

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC EN ABITIBI-TÉMISCAMINGUE

ÉCOLE DE GÉNIE

**ÉLABORATION, PROCÉDÉ ET CARACTÉRISATION DES COMPOSITES
RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRE DE CELLULOSE**

MÉMOIRE

PRÉSENTÉ

COMME EXIGENCE PARTIELLE

DE LA MAÎTRISE EN INGÉNIERIE

PAR

ABDELMAJID BEN JMEAA

JUN 2019



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 a obtenu l'autorisation de l'auteur 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'auteur conserve néanmoins ses droits de propriété intellectuelle, dont son droit d'auteur, sur cette œuvre. Il est donc interdit de reproduire ou de publier en totalité ou en partie ce document sans l'autorisation de l'auteur.

Warning

The library of the Cégep de l'Abitibi-Témiscamingue and the Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue obtained the permission of the author to use a copy of this document for non-profit 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. Neither the whole document, nor substantial extracts from it, may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

Dédicace

*Assez naturellement, je dédie ce travail
À mes défunts grand-pères,
À mes autres adorables grand-mères,
À mon frère et ma sœur que j'aime tant,
À mes cousines et cousins qui me manquent tellement,
À mes oncles et mes tantes que je chéris tant,
À mes intimes qui me soutiennent dans le meilleur et
dans le pire,
Et qui ont su malgré tout me faire garder le sourire,
Et surtout, à mes parents qui m'ont tant donné,
À mes parents et ma fiancée qui m'ont tant aimé,
À mes parents à qui je voue toute ma fierté...*

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, je tiens à remercier mon directeur, le professeur **Sébastien Migneault**, professeur chercheur à l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT), pour avoir assisté et dirigé ce projet.

Aussi, je tiens à remercier le professeur **Ahmed Koubaa**, professeur chercheur à l'UQAT et directeur scientifique du Laboratoire de biomatériaux, pour m'avoir accueillie au sein de son unité, outre sa disponibilité et sa patience, qui m'a fait confiance et qui m'a donné une totale autonomie pour ce projet.

J'exprime toutes mes reconnaissances à mes directeurs pour leurs précieuses assistances, leurs soutiens, leurs prodigieux conseils et tout le savoir qu'ils m'ont communiqué. Je les remercie surtout pour m'avoir permis de profiter de ses connaissances dans le domaine des composites bois-plastique.

Je remercie **Madame Sara Magdouli**, Coordinatrice de laboratoire au Centre Technologique des Résidus Industriels (CTRI), pour son encouragement ainsi que pour sa générosité.

J'exprime toute ma gratitude à **William Belhadeh**, pour son écoute, sa patience, sa précieuse assistance et ses valeureuses aides qu'il m'a apportées.

Un grand merci à l'ensemble des autres membres du laboratoire, surtout **Basma Bouslimi**, qui se sont montrés disponibles à tout moment, ainsi qu'aux autres étudiants présents.

Aussi, je tiens à remercier Madame **Mathilde Loubier** pour son assistance et Produits de Construction Derby pour le financement.

Je tiens à remercier l'ensemble des membres de jury pour avoir accepté de donner une partie de leur précieux temps en tant qu'examineurs et d'avoir ainsi partagé une partie de leur savoir.

Finalement, je remercie toute personne qui m'a orientée, encouragée, conseillée et soutenue durant toute cette période.

TABLE DES MATIÈRES

| | |
|---|-------------|
| <i>Dédicace</i> | <i>i</i> |
| <i>Remerciements</i> | <i>ii</i> |
| <i>Liste des figures</i> | <i>vii</i> |
| <i>Liste des tableaux</i> | <i>xi</i> |
| <i>Résumé</i> | <i>xii</i> |
| <i>Abstract</i> | <i>xiii</i> |
| <i>Liste des symboles</i> | <i>xiv</i> |
| <i>Introduction</i> | <i>1</i> |
| <i>Chapitre 1</i> | <i>4</i> |
| <i>Revue à la littérature : du plastique pur au composite bois-polymère</i> | <i>4</i> |
| <i>1. Les matrices organiques</i> | <i>4</i> |
| 1.1 Les polymères thermodurcissables | 5 |
| 1.2 Les polymères thermoplastiques | 5 |
| 1.2.1 Polypropylène | 7 |
| <i>2. Les fibres de renfort naturelles</i> | <i>7</i> |
| 2.1 Les fibres de bois | 7 |
| 2.1.1 La cellulose | 8 |
| 2.1.2 La lignine | 9 |
| 2.1.2 L'hémicellulose..... | 10 |
| 2.2 Les fibres kraft | 11 |
| 2.3 Les fibres de la microcristalline de cellulose | 13 |

| | |
|--|-----------|
| 2.4 Les fibres torrifiées..... | 14 |
| 3. Les additifs pour les CBP..... | 15 |
| 4. Les procédés de mise en forme | 16 |
| 5. Les composites bois-polymère (CBP) | 18 |
| 5.1 Généralités | 18 |
| 5.2 Le moulage par injection des composites renforcés avec haute teneur en fibres | 19 |
| 5.3 Les propriétés des composites bois-polymères | 24 |
| 5.3.1 Effet de la granulométrie..... | 24 |
| 5.3.2 Effet d'un agent de couplage..... | 26 |
| 5.3.3 Effet d'un lubrifiant..... | 27 |
| 5.3.4 Effet de la proportion en fibres..... | 27 |
| 5.3.5 Effet du type de fibre..... | 28 |
| 6. Objectifs et hypothèses de travail..... | 30 |
| 6.1 Contexte..... | 30 |
| 6.2 Objectifs | 31 |
| 6.3 Hypothèses | 31 |
| Chapitre 2 | 32 |
| Matériels et méthodes..... | 32 |
| 2.1 Matériel | 33 |
| 2.1.1 Caractérisation des fibres | 33 |
| 2.1.2 Polymère et additifs..... | 34 |
| 2.1.3 Fibres..... | 35 |
| 2.2 Méthodes | 36 |
| 2.2.1 Broyage et tamisage des fibres..... | 36 |
| 2.2.2 Préparation des mélanges | 37 |

| | |
|--|-----------|
| 2.2.3 Mise en granules..... | 37 |
| 2.2.4 Mise en forme des composites | 39 |
| 2.2.5 Caractérisation des composites | 42 |
| 2.2.6 Analyse statistique..... | 49 |
| Chapitre 3 | 52 |
| Résultats et discussions | 52 |
| 3.1 L'EFFET DE L'AJOUT DE LA GLYCÉRINE SUR LES COMPOSITES RENFORCÉS AVEC FORTE TENEUR EN CELLULOSE | 52 |
| 3.1.1 Résultats de l'analyse de variance | 52 |
| 3.1.2 Études des propriétés rhéologiques capillaires des CBP à base de cellulose..... | 54 |
| 3.1.2.1 Effet de la température sur la viscosité et la contrainte de cisaillement | 54 |
| 3.1.2.2 Influence de la proportion en fibres sur la viscosité et la contrainte de cisaillement | 57 |
| 3.1.2.3 Effet de la glycérine sur la viscosité et la contrainte de cisaillement | 59 |
| 3.1.3 Étude des propriétés thermiques : Analyse thermogravimétrique (TGA) | 61 |
| 3.1.4 Effet de la proportion de fibres et de la glycérine sur les propriétés mécaniques..... | 65 |
| 3.1.5 Étude des propriétés physiques..... | 73 |
| 3.2 EFFET DU TYPE DE CELLULOSE SUR LE MOULAGE PAR INJECTION DES COMPOSITES PP RENFORCÉS AVEC DE FORTES TENEURS EN FIBRES..... | 77 |
| 3.2.1 Résultats de l'analyse de variance..... | 77 |
| 3.2.2 Étude des propriétés thermiques : TGA | 79 |
| 3.2.3 Étude des propriétés rhéologiques des CBP avec haute teneur en fibres..... | 86 |

| | |
|---|------------|
| 3.2.4 Étude des propriétés thermiques par calorimétrie à balayage différentiel : DSC | 89 |
| 3.2.5 Étude des propriétés mécaniques | 92 |
| 3.2.6 Étude des propriétés physiques : test d’immersion dans l’eau | 101 |
| 3.2.7 L’effet de l’ajout d’un agent de couplage sur les propriétés de traction des composites à forte teneur en fibres | 104 |
| <i>CONCLUSIONS GÉNÉRALES</i> | <i>108</i> |
| <i>Références.....</i> | <i>110</i> |

LISTE DES FIGURES

| | |
|---|----|
| FIGURE 1.1 : STRUCTURE DE BOIS AVEC DES OBSERVATIONS MULTI-ECHELLES (BENZIMAN ET AL. , 1980)..... | 8 |
| FIGURE 1.2 : LES DIFFÉRENTS PROCÉDÉS DE MISE EN PÂTE (THIEBAUD, 1995)..... | 11 |
| FIGURE 1.3 : PROCÉDÉ KRAFT (ELCHINGER, 2013)..... | 13 |
| FIGURE 1.4 : LES DIFFÉRENTES COMPOSANTES DE L'EXTRUDEUSE (TROTIGNON ET AL. , 1996)..... | 17 |
| FIGURE 1.5 : PRINCIPE DE FONCTION DE MOULEUSE (GEORGE ET AL. , 2001)..... | 18 |
| FIGURE 2.1 : APPROCHE MÉTHODOLOGIQUE..... | 32 |
| FIGURE 2.2 : ANALYSEUR DE LA QUALITÉ DE LA FIBRE (AQF) MODÈLE KAJAANIFS300TM DE LA METSO..... | 34 |
| FIGURE 2.3: A) BROYEUR THOMAS WILLEY, MODÈLE 4; B) TAMISEUR THOMAS WILLEY, MODÈLE 4..... | 36 |
| FIGURE 2.4 : MACHINE D'EXTRUSION ET DE LA RHÉOLOGIE CAPILLAIRE HAAKE MINILAB II DE THERMOSCIENTIFIC..... | 38 |
| FIGURE 2.5 : THERMOSCIENTIFIC BROYEUR ET EXTRUDEUSE..... | 39 |
| FIGURE 2.6 : LA MACHINE DE MOULAGE PAR INJECTION MINIJET ET LES DIFFÉRENTS MOULES UTILISÉS..... | 40 |
| FIGURE 2.7 : LA MOULEUSE HAITAN A600 ET LES DIFFÉRENTS FORMES À INJECTER..... | 41 |
| FIGURE 2.8 : CHAMBRE DE CONDITIONNEMENT LABOCON..... | 42 |
| FIGURE 2.9 : ANALYSEUR THERMOGRAVIMÉTRIQUE, MODÈLE Q50 DE TA INSTRUMENT..... | 44 |
| FIGURE 2.10 : ANALYSEUR CALORIMÉTRIQUE À BALAYAGE DIFFÉRENTIEL, MODÈLE Q20 DE TA INSTRUMENT..... | 45 |
| FIGURE 2.11 : LES DISPOSITIFS POUR LES ESSAIS DE TRACTION, FLEXION ET D'IMPACT..... | 46 |
| FIGURE 2.12 : APPAREIL IR TRACER 100 DE SHIMADZU POUR L'ANALYSE DE CHIMIE DE SURFACE PAR SPECTROSCOPIE INFRAROUGE À TRANSFORMÉE DE FOURRIER..... | 49 |
| FIGURE 3.1 : EFFET DE DIFFÉRENTS TEMPÉRATURES SUR LA VISCOSITÉ APPARENTE À A) 50% CELLULOSE, B) 60% CELLULOSE ET C) 70% CELLULOSE | 55 |
| FIGURE 3.2 : EFFET DE DIFFÉRENTS TEMPÉRATURES SUR LA CONTRAINTE DE CISAILLEMENT APPARENTE À A) 50% CELLULOSE, B) 60% CELLULOSE ET C) 70% CELLULOSE | 56 |
| FIGURE 3.3 : EFFET DE LA TENEUR EN CELLULOSE SUR LA VISCOSITÉ APPARENTE DES CBP À A) 180 °C ET B) 210°C..... | 58 |

| | |
|---|----|
| FIGURE 3.4 : EFFET DE LA TENEUR EN CELLULOSE SUR LA CONTRAINTE DE CISAILLEMENT APPARENTE DES CBP À A) 180 °C ET B) 210°C..... | 59 |
| FIGURE 3.5 : EFFET DE LA GLYCÉRINE SUR LA VISCOSITÉ APPARENTE À 180 °C..... | 61 |
| FIGURE 3.6 : EFFET DE LA GLYCÉRINE SUR DES COMPOSITES RENFORCÉS AVEC 70% DE CELLULOSE À 180 °C ET À 210 °C..... | 61 |
| FIGURE 3.7 : COURBES DE L'ANALYSE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (TGA) ET DE LA DÉRIVÉE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (DTG) DU POLYPROPYLENE..... | 63 |
| FIGURE 3.8 : COURBES DE L'ANALYSE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (TGA) ET DE LA DÉRIVÉE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (DTG) DE LA CELLULOSE..... | 63 |
| FIGURE 3.9 : COURBES DE L'ANALYSE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (TGA) ET DE LA DÉRIVÉE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (DTG) DE LA GLYCÉRINE..... | 64 |
| FIGURE 3.10 : COURBES DE L'ANALYSE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (TGA) ET DE LA DÉRIVÉE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (DTG) DU MAPP..... | 64 |
| FIGURE 3.11 : INFLUENCE DE LA GLYCÉRINE SUR LE MODULE DE YOUNG EN TRACTION DES CBP À BASE DE CELLULOSE..... | 67 |
| FIGURE 3.12 : INFLUENCE DE LA GLYCÉRINE SUR LA CONTRAINTE MAXIMALE EN TRACTION DES CBP À BASE DE CELLULOSE..... | 67 |
| FIGURE 3.13 : INFLUENCE DE LA GLYCÉRINE SUR LA CONTRAINTE À LA LIMITE D'ÉLASTICITÉ EN TRACTION DES CBP À BASE DE CELLULOSE..... | 68 |
| FIGURE 3.14 : INFLUENCE DE LA GLYCÉRINE SUR LA DÉFORMATION À LA RUPTURE EN TRACTION DES CBP À BASE DE CELLULOSE..... | 68 |
| FIGURE 3.15 : INFLUENCE DE LA GLYCÉRINE SUR L'ÉNERGIE APPLIQUÉE JUSQU'À LA RUPTURE EN TRACTION DES CBP À BASE DE CELLULOSE..... | 69 |
| FIGURE 3.16 : INFLUENCE DE LA GLYCÉRINE SUR LE MODULE D'ÉLASTICITÉ EN FLEXION DES CBP À BASE DE CELLULOSE..... | 71 |
| FIGURE 3.17 : INFLUENCE DE LA GLYCÉRINE SUR LA FORCE MAXIMALE EN FLEXION DES CBP À BASE DE CELLULOSE..... | 71 |
| FIGURE 3.18 : INFLUENCE DE LA GLYCÉRINE SUR LA CONTRAINTE À LA LIMITE D'ÉLASTICITÉ EN FLEXION DES CBP À BASE DE CELLULOSE..... | 72 |
| FIGURE 3.19 : INFLUENCE DE LA GLYCÉRINE SUR LA DÉFORMATION JUSQU'À F _{MAX} EN FLEXION DES CBP À BASE DE CELLULOSE..... | 72 |
| FIGURE 3.20 : INFLUENCE DE LA GLYCÉRINE SUR L'ÉNERGIE APPLIQUÉE JUSQU'À LA CONTRAINTE MAXIMALE EN FLEXION DES CBP À BASE DE CELLULOSE..... | 73 |

| | |
|--|----|
| FIGURE 3.21 : LES SPECTRES FTIR POUR DES COMPOSITES AYANT 50% DE CELLULOSE AVEC ET SANS GLYCÉRINE..... | 74 |
| FIGURE 3.22 : ANALYSES THERMOGRAVIMÉTRIQUES (TGA) DES FIBRES D'ÉRABLE, DES FIBRES KRAFT, DES FIBRES TORRÉFIÉES ET DE MCC..... | 82 |
| FIGURE 3.23 : COURBES DES DÉRIVÉES THERMOGRAVIMÉTRIQUES (DTG) DES FIBRES D'ÉRABLE, DES FIBRES KRAFT, DES FIBRES TORRÉFIÉES ET DE MCC..... | 82 |
| FIGURE 3.24 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LES PROPRIÉTÉS DE LA TGA DES COMPOSITES RENFORCÉS AVEC 51% DE FIBRES..... | 83 |
| FIGURE 3.25 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LES PROPRIÉTÉS DE LA DTG DES COMPOSITES RENFORCÉS AVEC 51% DE FIBRES KRAFT, CMC ET D'ÉRABLE..... | 83 |
| FIGURE 3.26 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LES PROPRIÉTÉS DE LA TGA DES COMPOSITES RENFORCÉS AVEC 60% DE FIBRES KRAFT, CMC ET D'ÉRABLE..... | 84 |
| FIGURE 3.27 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LES PROPRIÉTÉS DE LA DTG DES COMPOSITES RENFORCÉS AVEC 60% DE FIBRES KRAFT, CMC ET D'ÉRABLE..... | 84 |
| FIGURE 3.28 : COURBES DE L'ANALYSE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (TGA) ET DE LA DÉRIVÉE THERMOGRAVIMÉTRIQUES DES ÉCHANTILLONS DU PP RENFORCÉ AVEC 51% ET 60% DE FIBRES KRAFT..... | 85 |
| FIGURE 3.29 : COURBES DE L'ANALYSE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (TGA) ET DE LA DÉRIVÉE THERMOGRAVIMÉTRIQUES DES ÉCHANTILLONS DU PP RENFORCÉ AVEC 51% ET 60% DE FIBRES D'ÉRABLE..... | 85 |
| FIGURE 3.30 : COURBES DE L'ANALYSE THERMOGRAVIMÉTRIQUES (TGA) ET DE LA DÉRIVÉE THERMOGRAVIMÉTRIQUES DES ÉCHANTILLONS DU PP RENFORCÉ AVEC 51% ET 60% DE MCC.... | 86 |
| FIGURE 3.31 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LA VISCOSITÉ APPARENTE DU PP CHARGÉ DE 51% DE FIBRES DE KRAFT, D'ÉRABLE ET DE MCC..... | 88 |
| FIGURE 3.32 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LA VISCOSITÉ APPARENTE DU PP CHARGÉ DE 60% DE KRAFT, D'ÉRABLE, DE TORRÉFIÉES ET DE MCC..... | 88 |
| FIGURE 3.33 : L'EFFET DU TYPE DE FIBRE SUR LE CYCLE DE REFROIDISSEMENT..... | 91 |
| FIGURE 3.34 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LE CYCLE DE CHAUFFAGE DES CBP À 60% DE FIBRES KRAFT, CMC, DU BOIS TORRÉFIÉ ET DU BOIS D'ÉRABLE..... | 92 |
| FIGURE 3.35 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LE MODULE DE YOUNG (GPa) EN TRACTION DES CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 95 |
| FIGURE 3.36 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LA CONTRAINTE À LA LIMITE D'ÉLASTICITÉ (MPa) EN TRACTION DES CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 95 |

| | |
|--|-----|
| FIGURE 3.37 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LA CONTRAINTE MAXIMALE (MPa) EN TRACTION DES CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 96 |
| FIGURE 3.38 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LA DÉFORMATION À LA RUPTURE (%) EN TRACTION DES CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 96 |
| FIGURE 3.39 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LE MODULE D'ÉLASTICITÉ (GPa) EN FLEXION DES CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 98 |
| FIGURE 3.40 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LA CONTRAINTE À LA LIMITE D'ÉLASTICITÉ (MPa) EN FLEXION DES CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 98 |
| FIGURE 3.41 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LA CONTRAINTE MAXIMALE (MPa) EN FLEXION DES CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 99 |
| FIGURE 3.42 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LA DÉFORMATION À LA RUPTURE (%) EN FLEXION DES CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 99 |
| FIGURE 3.43 : EFFET DU TYPE DE FIBRE SUR L'ÉNERGIE D'IMPACT (kJ/m ²) DES CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 101 |
| FIGURE 3.44 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LE GAIN EN MASSE (%) LORS DU TEST D'IMMERSION DANS L'EAU..... | 103 |
| FIGURE 3.45 : EFFET DU TYPE DE FIBRES SUR LE GAIN EN ÉPAISSEUR (%) LORS DU TEST D'IMMERSION DANS L'EAU..... | 103 |
| FIGURE 3.46 : EFFET DE L' AJOUT DU MAPP COMME AGENT DE COUPLAGE SUR LE MODULE DE YOUNG (GPa) EN TRACTION DE CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 106 |
| FIGURE 3.47 : EFFET DE L' AJOUT D'UN AGENT DE COUPLAGE SUR LA CONTRAINTE À LA LIMITE D'ÉLASTICITÉ (MPa) EN TRACTION DE CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 106 |
| FIGURE 3.48 : EFFET DE L' AJOUT D'UN AGENT DE COUPLAGE SUR LA DÉFORMATION À LA RUPTURE (%) EN TRACTION DE CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 107 |
| FIGURE 3.49 : EFFET DE L' AJOUT D'UN AGENT DE COUPLAGE SUR LA CONTRAINTE MAXIMALE (MPa) EN TRACTION DE CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRES..... | 107 |

LISTE DES TABLEAUX

| | |
|--|----|
| TABLEAU 1.1 : CARACTÉRISTIQUES DES PRINCIPALES MATRICES POLYMÈRES (CHRETIEN, 1986)..... | 4 |
| TABLEAU 1.2 : CARACTÉRISTIQUES DES RÉSINES THERMODURCISSABLES (MICHAUD, 2003) | 5 |
| TABLEAU 1.3 : LES DIFFÉRENTS THERMOPLASTIQUES CONVENTIONNELS (HOLBERY ET HOUSTON, 2006) | 6 |
| TABLEAU 1.4 : PROCÉDÉ, RENDEMENT ET PRODUITS (ZHANG ET KOUBAA, 2009) | 12 |
| TABLEAU 1.5 : LES DIFFÉRENTES DÉRIVÉES DE CELLULOSE (MOON ET AL. , 2011)..... | 14 |
| TABLEAU 2.2 : LES CONDITIONS D'EXTRUSION..... | 38 |
| TABLEAU 2.3 : LES CONDITIONS DE MOULAGE PAR INJECTION PAR MINIJET..... | 40 |
| TABLEAU 2.4 : LES DIFFÉRENTES PARAMÈTRES D'INJECTION POUR LA MOULEUSE HAITIAN A600 | 41 |
| TABLEAU 2.5 : LES DIFFÉRENTS PARAMÈTRES DE CONDITIONNEMENT..... | 42 |
| TABLEAU 3.1 : RÉSULTATS DE L'ANALYSE DE VARIANCE ANOVA (VALEURS DE F) CONCERNANT L'EFFET DES TENEURS EN FIBRES ET EN GLYCÉRINE SUR LES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES ET PHYSIQUES DES COMPOSITES..... | 53 |
| TABLEAU 3.2 : DÉFORMATION MAXIMALE EN TRACTION DES ÉCHANTILLONS DE PP ET DES CBP RENFORCÉS AVEC DIFFÉRENTES TENEURS EN CELLULOSE (50%, 60% ET 70%)..... | 66 |
| TABLEAU 3.3 : L'EFFET DE L'AJOUT DE LA GLYCÉRINE DANS LES COMPOSITES AVEC FORTE TENEUR EN CELLULOSE SUR LES PROPRIÉTÉS PHYSIQUES | 76 |
| TABLEAU 3.4 : RÉSULTATS DES ANALYSES DE VARIANCE ANOVA (VALEUR DE F) CONCERNANT L'EFFET DE TYPE DE FIBRE ET L'EFFET D'UN AGENT DE COUPLAGE SUR LES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES ET PHYSIQUES DES CBP | 78 |
| TABLEAU 3.5 : LES DIFFÉRENTS PARAMÈTRES OBTENUS DE L'ESSAI DE CALORIMÉTRIE À BALAYAGE DIFFÉRENTIEL DES CBP RENFORCÉS AVEC HAUTE TENEUR EN FIBRE | 91 |
| TABLEAU 3.6 : RÉSULTATS DU FACTEUR DE FORME ET DE LA LONGUEUR DES FIBRES KRAFT, MCC, ÉRABLE ET TORRÉFIÉE..... | 94 |

RÉSUMÉ

L'utilisation des fibres papetières recyclées par l'industrie plastique présente une alternative prometteuse qui permet à la fois de réduire l'impact économique et l'impact environnemental. L'utilisation des fibres naturelles permet d'améliorer plusieurs propriétés des polymères (i.e. mécaniques). Néanmoins, une diminution de certaines propriétés clés (i.e. physiques) est observée. D'autres part, l'utilisation de la cellulose, un composé hautement cristallin, dans les composites pourrait générer des effets bénéfiques sur le comportement mécanique et sur la stabilité thermique et dimensionnelle. Grâce à ces dernières, l'utilisation de la cellulose peut aider pour surmonter les difficultés du moulage par injection avec des pourcentages en fibres naturelles au-delà de 40%. L'objectif général du projet est le moulage par injection du polypropylène renforcé avec haute teneur en fibres de cellulose. L'évaluation de l'effet d'un lubrifiant sur les composites hautement chargés en fibres de cellulose, ainsi que l'étude de l'effet du type et de la teneur en cellulose sur le procédé de mise en forme de ces composites sont effectuées. Deux types de celluloses, les fibres kraft et la cellulose microcristalline (MCC), font l'objet de cette étude. Les effets de la nature, de la teneur en cellulose et du lubrifiant sur la stabilité thermique, la stabilité dimensionnelle et sur le comportement mécanique ont été étudiés. Un procédé en deux étapes, l'extrusion des granules suivie par l'injection des éprouvettes a été menée. Les résultats suggèrent que les fibres papetières kraft donnent des composites plus performants en terme de résistance mécanique mais la MCC donne des composites avec une meilleure stabilité thermique et dimensionnelle. Aussi, l'ajout des fibres de cellulose à des pourcentages allant jusqu'à 70% augmente de 5 fois la résistance en traction et en flexion des composites par rapport au PP pur, tandis qu'une diminution importante de la ténacité est observée. L'ajout de la glycérine (lubrifiant biosourcé) n'a pas un effet significatif sur les propriétés mécaniques. Par contre, il augmente l'absorption d'eau. De même, il a provoqué une diminution de la viscosité à 180 °C mais pas à 210 °C parce qu'il se dégrade.

Mots clés : Composites bois-polymère, kraft, cellulose microcristalline, rhéologie capillaire, TGA, caractérisation.

ABSTRACT

The use of papermaking fibers and plastic offers a promising alternative that reduces economic and environmental impacts related to the disposal and the management of these products. The use of natural fibers is reported to have positive effects on properties of composites, mostly mechanical ones. Nevertheless, a decrease in some physical properties is observed. On the other hand, the use of cellulose, a crystalline compound, in different composites may generate beneficial effects on the mechanical behavior and the thermal and dimensional stability of these composites. The use of cellulose can help to overcome difficulties in injection molding beyond 40% of natural fibers loads. The overall project objective is to optimize the injection molding process of reinforced polypropylene with a higher fiber content of cellulose. The evaluation of the effects of a lubricant on composites with a high cellulose content as well as the effects on the processing is carried out. Two types of celluloses, kraft fibers and microcrystalline cellulose (MCC), are the subject of this study. The effects of the nature and the content of cellulose and the lubricant on thermal stability, dimensional stability and mechanical behavior were studied. A two-step process, starting with the extrusion of the granules followed by the injection of the tested specimens, was carried out. The results suggest that kraft fibers led to a higher performance in terms of mechanical strength; however, MCC led to the formation of composites with a higher thermal and dimensional stability. Therefore, the addition of cellulose fibers up to 70% allowed to increase the tensile and flexural strength of the composites by a factor of five when compared to pure PP. Nevertheless, a decrease of the toughness is clearly observed. The addition of glycerin (biobased lubricant) did not have a significant effect on the mechanical properties. However, it increased water absorption. Similarly, it decreased viscosity at 180 °C compared to 210 °C. Thus, the lubricant had a lower effect at high temperature because it degraded.

Key words: Wood-polymer composites, kraft, microcrystalline cellulose, capillary rheology, TGA

LISTE DES SYMBOLES

ANOVA: Analyse de variance
ASTM: American Society For Testing and Materials
A%: Taux d'absorption
MCC ou CMC : Cellulose microcristalline
CTMP: Pâte chimico thermomécanique
TMP: Pâte thermomécanique
CBP: Composite bois-polymère
DSC: Calorimétrie différentielle à balayage
E : Module d'élasticité en traction
Fm : Force maximale
FTIR: Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier
GM : Gain en masse
GE : Gain en épaisseur
MOE: Module d'élasticité
MOR: Module de la rupture
PP: Polypropylène
PEHD: Polyéthylène haute densité
PVC : Polychlorure de vinyle
PA6 : polyamide 6
MAPE: Polyéthylène greffé à l'anhydride maléique
MAPP: Polypropylène greffé à l'anhydride maléique
Rm : Résistance à la traction
Rmf : Résistance en flexion
T : Température
Tc: Température de cristallisation
Tf: Température de fusion
WPC: Wood-plastic composite

X_c : Taux de cristallinité

ΔH_f : Enthalpie de fusion spécifique du polymère utilisé

ΔH_f° : Enthalpie de fusion du polymère 100% cristallin à la température d'équilibre thermodynamique

ω : Fraction massique du PP dans le composite

INTRODUCTION

Un composite est défini comme tout produit plastiques chargé ou renforcé par des éléments filamentaires jouant le rôle d'un renfort. Selon Carey (2016), un matériau est dit composite s'il répond aux deux principaux critères : i) être constitué d'au moins deux matériaux non miscibles ii) les constituants sont mélangés dans les 2 directions (Carey, 2016). Dans le but d'améliorer certaines performances, il faut que ces constituants mélangés mènent à des performances élevées par rapport au chacun des matériaux seuls (Chrétien, 1986).

L'intérêt pour les composites à base de matériaux renouvelables a énormément augmenté en raison de la demande exponentielle pour un produit à faible impact environnemental, à moindre entretien, et à une meilleure durabilité vis-à-vis des rayons ultraviolets (Hull & Clyne, 1996). Les industries ont recours à l'utilisation des composites dans divers domaines industriels de construction, de transport, et de consommation. Récemment, la recherche scientifique et industrielle s'est orientée vers l'exploitation des fibres naturelles comme fibres de renfort vu le coût prohibitif des plastiques et de l'impact néfaste sur l'environnement. Parmi ces fibres naturelles, on cite les fibres de bois présentant des propriétés mécaniques spécifiques élevées, biodégradables et un faible coût.

Cette étude se concentre sur les composites thermoplastiques renforcés par le bois, appelés composites bois-plastique (CBP). En 2015, la production mondiale des CBP est estimée à 2695 millions de tonnes (Koay et al., 2018) et les prévisions prévoient que le marché des composites renforcés avec des fibres naturelles devrait atteindre 5,83 milliards de dollars d'ici 2019, avec un taux de croissance annuel de 12,3% (Ali et al., 2018).

De nos jours, le cumul des pâtes issues des industries des pâtes et papiers pose un vrai problème de gestion. En effet, la disponibilité de la grande quantité des copeaux provenant des industries de sciage utilisée pour la fabrication des pâtes, face à la

diminution de l'utilisation des papiers sont à l'origine de ce cumul récurrent des pâtes. Cependant, une grande progression de l'utilisation des matériaux plastiques est parallèlement observée malgré les problèmes environnementaux qui en résultent. L'exploitation de ces matériaux plastiques pour la production des biomatériaux riches en fibres végétales est une voie prometteuse permettant à la fois la gestion de plastique et la valorisation des fibres végétales provenant d'une seconde transformation. Par ailleurs, ces fibres sont connues avec leur pourcentage élevé en cellulose qui est l'origine de la rigidité du bois. Le moulage par injection des polymères renforcés en haute charge de cellulose reste un défi à surmonter. En effet, la nature fortement polaire de la surface de cellulose n'est pas adaptée pour de fortes interactions avec le polymère non polaire, tel que le polypropylène (PP). Pour pallier à ces contraintes, l'utilisation du polypropylène greffé anhydride maléique (MAPP) est l'approche la plus répandue pour améliorer les propriétés mécaniques de matériaux composites cellulodiques.

La conception technique des procédés de mise en forme (extrusion et injection) exige une bonne connaissance du mécanisme d'écoulement des plastiques fondus hautement chargés. Egalement, ces formulations requièrent une évaluation fiable de la performance d'écoulement des mélanges fondus. La caractérisation rhéologique permet de connaître à la fois le comportement d'écoulement fondamental des plastiques hautement chargés et l'évaluation de la performance d'écoulement pour le développement du procédé. Les défis techniques à surmonter dans cette étude sont les problèmes d'écoulement, la faible densité apparente du bois / cellulose ainsi que les problèmes du malaxage des composites. L'évaluation la distribution granulométrique du bois, son rapport d'aspect et sa dispersion pendant le traitement, l'adhérence fibre-matrice, le transfert de contrainte à l'interface et les températures de mise en forme jouent aussi un rôle déterminant dans l'élaboration de ces matériaux. A date, les thermoplastiques sont renforcés par les fibres de bois jusqu'à 80% durant l'extrusion et de 10% à 40% dans le moulage par injection (Koay et al. , 2018). Ce faible pourcentage de fibres lors du moulage par injection est expliqué par la difficulté de la circulation des

masses fondues hautement chargés en fibres dans les parois minces du moule (Jafarian Jam et Hossein Behraves, 2009). Donc, l'ajout de haute teneur en fibre influence négativement la fluidité des mélanges (Kumari et al. , 2007). L'augmentation de la température du moulage par injection est parmi les solutions possibles pour surmonter le problème de la faible fluidité. Mais, ceci peut dégrader les fibres naturelles au-delà de 200 °C. Ce problème peut être surmonté par l'utilisation des fibres de cellulose (ayant une température de dégradation ~260 °C) et/ou l'utilisation d'un lubrifiant lors de la mise en forme. L'avancement de ces connaissances pour cette nouvelle classe de matériaux est important pour les développements scientifiques et industriels futurs (Kumari et al. , 2007).

Ce présent projet porte sur l'étude du moulage par injection du polypropylène avec haute charge en fibres de cellulose (PRFC), qui a été réalisé dans le cadre d'un projet de maîtrise en ingénierie matériaux renouvelables à l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT).

L'objectif de ce travail est le moulage par injection des PRFC avec une haute charge en fibres de cellulose. Les matériaux élaborés seront caractérisés en termes de propriétés mécaniques, physiques et rhéologiques. Les composites sont élaborés en voie fondue par : l'extrusion suivi du moulage par injection.

CHAPITRE 1

REVUE À LA LITTÉRATURE : DU PLASTIQUE PUR AU COMPOSITE BOIS-POLYMÈRE

1. Les matrices organiques

Le matériau investigué dans ce projet est un composite en haute charge en fibre de cellulose à matrice organique. Les matrices organiques subdivisent en deux grandes parties : les thermodurcissables et les thermoplastiques. Les techniques de mise en œuvre et les performances obtenues se diffèrent de l'un à l'autre. Le tableau 1.1 ci-dessous présente quelques propriétés de ces deux types de matrice (Chrétien, 1986).

Tableau 1.1 : Caractéristiques des principales matrices polymères
(Chrétien, 1986)

| Matrices thermodurcissables | Matrices thermoplastiques |
|--|---|
| - Amorphes | - Amorphes ou semi cristallines |
| - Résistances aux températures élevées | - Haute résistance à l'impact |
| - Viscosité basse pendant la mise en forme | - Fabrication difficile en raison de la viscosité très élevée du polymère fondu |
| - Fragiles | - Thermo formables |
| - Cycles de fabrication longs | - Recyclage très aisé |
| - Recyclage des déchets impossible | |

Parmi les avantages de ces deux matrices, on cite la basse viscosité des thermodurcissables avant leur mise en forme ainsi que leur haute résistance thermique. Alors que les thermoplastiques ont une résistance à l'impact élevée (Chrétien, 1986).

1.1 Les polymères thermodurcissables

Les polymères thermodurcissables appelés aussi les colles ou résines sont connus à assurer l'adhésion dans les composites à base de bois (Frisch et al. , 1983) et les composites renforcés par les fibres cellulosiques (Michaud, 2003). Parmi les thermodurcissables on cite les époxydes, les composés phénoliques, les polyesters. Le tableau 1.2 présente quelques caractéristiques des polymères thermodurcissables (Michaud, 2003) :

Tableau 1.2 : Caractéristiques des résines thermodurcissables (Michaud, 2003)

| Résine | Densité | E (GPa) | G (MPa) | ν_{poisson} | σ_r (MPa) | T_{max} (°C) | α_d ($10^{-5} \cdot \text{K}^{-1}$) |
|------------|---------|------------|------------|------------------------|---------------------|--------------------------|---|
| Epoxyde | 1,2 | 4,5 | 1600 | 0,4 | 130 | 90-200 | 0,3-1,6 |
| Phénolique | 1,3 | 3 | 1100 | 0,4 | 70 | 120-200 | 1,0-2,3 |
| Uréthane | 1,1 | 0,7-7 | - | - | 30 | 100 | - |
| Polyester | 1,2 | 4 | 1400 | 0,4 | 80 | 60-200 | 0,4-1,6 |
| UF | 1,2-1,5 | 6-10 | - | - | 40-80 | 140 | 0,7-1,1 |
| PF | 1,1-1,3 | 3-4 | - | 0,36 | 35-60 | 80-300 | - |
| pMDI | 1,24 | - | - | - | - | 230 | - |

α_d : coefficient de dilatation, T_{max} : température maximale d'utilisation, σ_r : contrainte à la rupture, ν_{poisson} : coefficient de poisson, E : module d'élasticité

1.2 Les polymères thermoplastiques

Les polymères thermoplastiques sont dérivés de monomères linéaires ou légèrement ramifiés constituant le motif de base d'une chaîne. Trois techniques de préparation des thermoplastiques sont couramment identifiées : la polymérisation, la copolymérisation et/ou la polycondensation. Sous l'effet de la température, les thermoplastiques deviennent de plus en plus malléables jusqu'à qu'ils deviennent liquéfiés (Holbery et Houston, 2006). La fusion permet la mise en forme des pièces

complexes. Contrairement aux résines thermodurcissables, les thermoplastiques ne subissent aucune modification chimique sous l'action de la chaleur. Ils prennent la forme souhaitée après solidification par refroidissement. Les thermoplastiques sont connus à être recyclables (Michaud, 2003). Il existe plusieurs thermoplastiques synthétiques comme le polypropylène (PP), polyéthylène, les polyamides. Les différentes propriétés des thermoplastiques sont énumérées dans le tableau 1.3 (Holbery et Houston, 2006) :

Tableau 1.3 : Les différents thermoplastiques conventionnels (Holbery et Houston, 2006)

| Propriétés | PP | LDPE | HDPE | PS | Nylon 6 |
|-----------------------------|-------------|-------------|-----------|-----------|-----------|
| Densité | 0,899-0,920 | 0,910-0,925 | 0,94-0,96 | 1,04-1,06 | 1,12-1,14 |
| Absorption d'eau (24h) | 0,01-0,02 | ≤0,015 | 0,01-0,2 | 0,03-0,10 | 1,3-1,8 |
| T _f (°C) | 160-176 | 105-116 | 120-140 | 110-135 | 215 |
| R _m (MPa) | 26-41,4 | 40-78 | 14,5-38 | 25-69 | 43-79 |
| E (GPa) | 0,95-1,77 | 0,055-0,38 | 0,4-1,5 | 4-5 | 2,9 |
| Élongation (%) | 15-700 | 90-800 | 2,0-130 | 1-2,5 | 20-150 |
| Résistance à l'impact (J/m) | 21,4-267 | ≥854 | 26,7-1068 | 1,1 | 42,7-160 |

T_f : Température de fusion ; R_m : Contrainte maximale ; E : Module d'élasticité

1.2.1 Polypropylène

Parmi les thermoplastiques les plus utilisés, on cite le polypropylène qui appartient à la famille des polyoléfinés ayant une formule chimique $(C_3H_6)_n$ (Gehring, 2013). Le PP possède une bonne résistance chimique. Grâce à son caractère hydrophobe, il est moins sensible à l'eau que d'autres polymères (i.e. nylon6) (Richaud, 2006). Le PP est favorisé dans les applications industrielles en raison de sa faible densité, son excellente aptitude à l'usinage, ses propriétés mécaniques, sa faible conductivité électrique, sa bonne stabilité dimensionnelle et sa résistance aux chocs (Holbery et Houston, 2006). En outre, le PP est sensible aux chocs et aux ultraviolets. Par contre, il possède une température de fusion (165 °C) plus élevée que d'autres polymères (i.e. HDPE (120-140 °C), LDPE (105-116 °C)).

2. Les fibres de renfort naturelles

L'utilisation des fibres lignocellulosiques d'origine végétale comme fibres de renfort est en expansion et suscite beaucoup d'intérêt car elles sont renouvelables et biodégradables. Ces fibres assurent une économie durable et protègent l'environnement. Malgré les avantages présentés pour les fibres naturelles, l'utilisation de ces fibres et leurs dérivés est restreinte parce qu'elles ont un caractère hydrophobe qui empêche la bonne cohésion entre les fibres et la matrice, ce qui affecte les propriétés mécaniques et physiques de ces composites. Plusieurs études sont investiguées pour optimiser les paramètres de mise en forme des composites afin d'améliorer le procédé du moulage par injection surtout avec des teneurs en fibres très élevées. Parmi les fibres utilisées qui font l'objet de l'étude dans ce projet, on cite les fibres de bois, de kraft, de MCC et les fibres torréfiées.

2.1 Les fibres de bois

Les fibres de bois sont constituées principalement de cellulose, d'hémicellulose et de lignine. Les proportions varient d'une espèce à l'autre. Les extractibles et les

protéines sont aussi présentes à faible quantité. Dans cette structure (figure 1.1), la lignine joue le rôle de la matrice qui assure l'adhésion de différentes cellules de cellulose. Ces cellules sont à l'origine des performances mécaniques de la fibre naturelle.

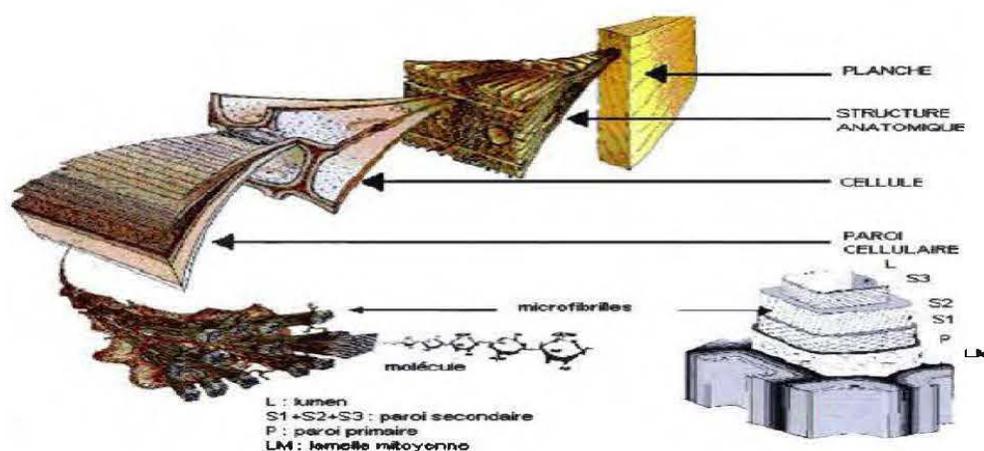


Figure 1.1 : Structure de bois avec des observations multi-échelles (Benziman et al. , 1980)

2.1.1 La cellulose

Les micro-fibrilles sont majoritairement composées par la cellulose qui est entourée par les deux autres composantes principales de fibre de bois, l'hémicellulose et la lignine (Morán et al. , 2008). Les micro-fibrilles de cellulose peuvent être trouvées sous forme de micro-fibrilles entrelacées dans la paroi cellulaire (2-20 μm de diamètre et de longueur de 100 nm à 40 000 nm en fonction de la source) (Benziman et al. , 1980). En plus des micro-fibrilles, il existe des nanofibres (également composées de cellulose) avec des diamètres de 5 nm à 50 nm et des longueurs de plusieurs micromètres compatibles avec des domaines nanocristallins et des régions amorphes.

Une hydrolyse acide contrôlée permet d'attaquer ces deux régions conduisant à la formation des domaines cristallins avec un module élastique de 150 GPa. Ce module est plus élevé que celui de fibres de S-glass (85 GPa) et Aramid (65 GPa) (Saïd Azizi Samir et al. , 2004). La cellulose est le principal constituant de plusieurs fibres naturelles telles que le coton, le lin, le chanvre, le jute et le sisal. Ce constituant naturel représente environ un tiers des tissus végétaux et peut être réapprovisionné par la photosynthèse.

La cellulose est un polymère linéaire de motifs β - (1 \rightarrow 4) -D-Glucopyranose (figure 4a). Les propriétés mécaniques des fibres naturelles dépendent du type de cellulose présent. Il existe plusieurs types de cellulose (I, II, III, IV et V). La cellulose I a de meilleures propriétés mécaniques. Il existe un grand nombre d'utilisation potentielle de la cellulose dans des différentes industries. En conséquence, son utilisation a suscité un intérêt grandissant pour les chercheurs surtout pour la production de cellulose à partir de fibres naturelles. Le traitement alcalin de ces fibres ou leur attaque par des bisulfites permet de séparer la lignine et d'extraire l'hémicellulose.

Les techniques d'extraction les plus couramment utilisés diffèrent par la quantité et/ou qualité de la cellulose à extraire (Morán et al. , 2008).

2.1.2 La lignine

Les lignines sont des polymères amorphes formés par des unités phényle-propane. Elles sont constituées principalement par des unités aromatiques telles que le guai acyle, le syringyl et le phénylpropane (Morán et al. , 2008).

La lignine du bois agit comme un polymère de cimentation et de fixation dans la paroi cellulaire. Elle est toujours présente en étroite association avec les polysaccharides. La nature composite du bois avec son mélange de cellulose, d'hémicellulose et de lignine rend les fibres rigides. Par ailleurs, la lignine est un

élément clé constitutif de la lamelle moyenne dans le bois, qui fonctionne comme une colle efficace et résistante, unissant les différentes cellules (Henriksson et al. , 2009).

La lignine inhibe le gonflement des parois cellulaires dans l'eau. Sa fonction fondamentale est de rendre imperméable la paroi cellulaire. Le maintien de l'hydrophobicité est requis pour le développement de cellules et le transport de l'eau et des éléments nutritifs (Henriksson et al. , 2009).

Par ailleurs, la lignine joue le rôle d'un agent antibactérien empêchant la dégradation microbienne du bois. Elle agit comme une barrière aux microorganismes, ce qui, avec la complexité et l'hétérogénéité de la lignine, rend le bois plus résistant contre les attaques microbiennes (Henriksson et al. , 2009).

2.1.2 L'hémicellulose

Représentant 15% à 35% de la masse sèche, les hémicelluloses se trouvent dans la matrice entre les fibrilles de cellulose dans la paroi cellulaire (Henriksson et al. , 2009). La cellulose et la plupart des hémicelluloses sont des glucides structuraux car ils forment la majeure partie de la structure de support de la cellule végétale. Les composants lignocellulosiques sont étroitement associés et il s'est avéré difficile de séparer les hémicelluloses de la lignine et de la cellulose sans modifier la structure de l'hémicellulose. Le type et la quantité d'hémicellulose varient considérablement selon les matériaux végétaux, le type de tissus, la croissance, les conditions de croissance et du stockage et la méthode d'extraction. Les hémicelluloses se présentent généralement sous forme d'hétéropolysaccharides. Quelques autres se présentent sous forme des homopolysaccharides. Leurs unités de construction principales sont les hexoses (D-glucose, D-mannose et D-galactose) et/ou les pentoses (D-xylose et L-arabinose). La

stabilité chimique et thermique des hémicelluloses est généralement inférieure à celle de la cellulose (Henriksson et al., 2009).

2.2 Les fibres kraft

Les industries papetières utilisent trois sortes de procédés de mise en pâte : mécanique, chimique ou mécanique-chimique (figure 1.2). Dans le procédé chimique kraft, l'ajout des solutions chimiques sert à augmenter la teneur en cellulose dans les pâtes, cependant ce type de procédé a un faible rendement par rapport au procédé mécanique (tableau 1.4) (Soucy, 2015).

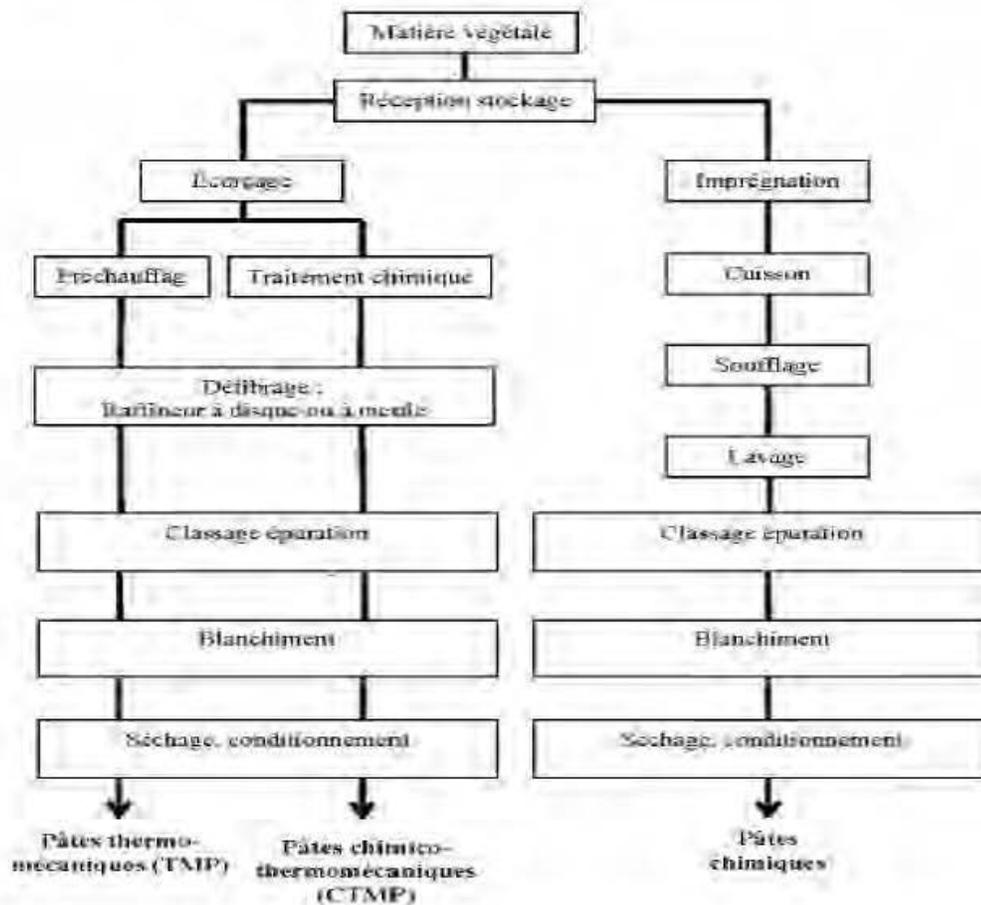


Figure 1.2 : Les différents procédés de mise en pâte (Thiebaud, 1995)

Tableau 1.4 : Procédés de mise en pâte, rendement et produits (Zhang et Koubaa, 2009)

| Procédé de mise en pâte | Rendement (%) | Produits |
|-------------------------|---------------|---|
| Mécanique de meule | 93-96 | Papier journal, papier sanitaire, papier couché |
| Thermomécanique | 90-93 | Papier journal, papier calendré, papier couché |
| Chimico-thermomécanique | 82-89 | Papier journal, papier d'impression |
| Chimico-mécanique | 78-88 | |
| Au bisulfite acide | 65-80 | Carton, carton ondulé et carton ondulé double |
| Au bisulfite | 65-74 | Carton, carton ondulé |
| Au sulfate (kraft) | 46-55 | Carton, papier couché, papier fin, papier cristal |

Le procédé kraft sert à plonger les copeaux de bois pendant deux heures à 170 °C dans un milieu alcalin composé de la soude caustique, des carbonates de calcium et des sulfures de sodium (Zerhouni, 2010). Le procédé kraft consiste à dissoudre la lignine afin de libérer des fibres riches en cellulose (figure 1.3). La dissolution de la lignine est l'origine de ses meilleures propriétés mécaniques grâce à sa structure cristalline (Zerhouni, 2010).

Les thermoplastiques renforcés des fibres naturelles riches en cellulose évoluent rapidement pour diverses applications. Parmi ces fibres naturelles, on peut citer la fibre

kraft blanchie dont plusieurs recherches durant ces dix dernières années ont étudié l'effet de l'ajout de ces fibres sur les CBP (Beg et Pickering, 2008).

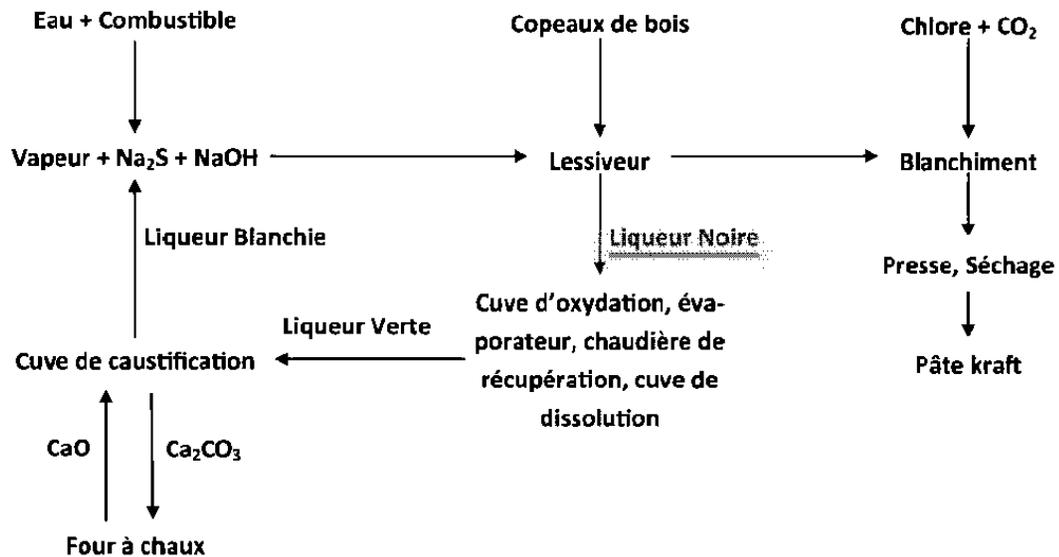


Figure 1.3 : Procédé kraft (Elchinger, 2013)

2.3 Les fibres de la microcristalline de cellulose

La nomenclature des particules de cellulose n'est pas standardisée et, de ce fait, il existe plusieurs nomenclatures dont neuf sont principalement utilisées. Ces dernières diffèrent par le type de particules de cellulose à extraire, les matériaux sources et de la méthode d'extraction. Chaque type de particule est distinct par sa taille, son rapport d'aspect, sa morphologie, sa cristallinité, sa structure cristalline et ses propriétés caractéristiques. Le terme des nanoparticules de cellulose (CN) est utilisé pour désigner plusieurs types de particules ayant une dimension à l'échelle nanométrique, tels que : micro fibrille de cellulose (FMC), nano fibrille de cellulose (NFC), cellulose nano cristalline (CNC) et tunicate-nano cristalline de cellulose (t-CNC). Le tableau 1.5 ci-dessous présente les différentes dérivées de cellulose avec leurs tailles correspondantes.

Tableau 1.5 : Les différentes dérivées de cellulose (Moon et al. , 2011)

| Types des particules | Taille des particules | | | Cristallinité (%) |
|----------------------|-----------------------|--------------|--------------|-------------------|
| | Longueur (µm) | Largeur (nm) | Hauteur (nm) | |
| WF et PF | ≥2000 | 20-50 (µm) | 20-50 (µm) | 43-65 |
| MCC | 10-50 | 10-50 (µm) | 10-50 (µm) | 80-85 |
| MFC | 0,5-10's | 10-100 | 10-100 | 51-69 |
| NFC | 0,5-2 | 4-20 | 4-20 | - |
| CNC | 0,05-0,5 | 3-5 | 3-5 | 54-88 |
| t-CNC | 0,1-4 | ~20 | ~8 | 85-100 |

WF : farine de bois; PF : fibre de plante; MCC : cellulose microcristalline

Dans la microcristalline de cellulose (MCC), les régions amorphes sont généralement éliminées par hydrolyse acide. La MCC peut être utilisée comme un renforcement cellulosique pour les polymères. La MCC a l'avantage d'avoir une surface spécifique élevée par rapport aux autres fibres de cellulose conventionnelles (Mathew et al. , 2005). Habituellement, la cellulose cristalline dérivée d'une pâte de bois offre une haute qualité, et une hydrolyse complète s'est avérée essentielle pour la désintégration de cellulose en « whiskers ». La cellulose native est l'une des fibres naturelles les plus fortes et les plus rigides disponibles sur le marché. Leur module théorique est estimé à 167,5 GPa et offre un futur promoteur comme agent de renforcement dans les biopolymères. Cette fibrille de cellulose peut avoir un diamètre d'environ 5 à 10 nm et sa longueur varie de 100 nm à plusieurs micromètres.

2.4 Les fibres torréfiées

La torréfaction est un procédé bien connu, notamment dans l'industrie du café. Ce procédé consiste en un traitement thermique modéré (200-300 °C) de la biomasse sous une atmosphère inerte (Berthet et al. , 2016). La torréfaction de la biomasse dépend

principalement de la température et de la durée de torréfaction. Une température plus élevée et une torréfaction plus longue pointent vers une torréfaction plus sévère et vice versa (Basu et al. , 2013). Au cours des dernières années, une attention particulière a été portée à la biomasse torréfiée comme une matière carburante. La torréfaction implique des modifications physiologiques de la biomasse engendrant une perte de sa ténacité. La biomasse devient plus foncée et cassante. Une autre conséquence de la torréfaction de la biomasse est l'augmentation dans son hydrophobicité qui pourrait être exploitée positivement pour des applications de renforcement (Berthet et al. , 2016).

3. Les additifs pour les CBP

Le but d'utiliser les additifs est d'améliorer l'adhésion entre deux matériaux hétérogènes en contact. Cette adhésion engendre une augmentation de la résistance mécanique à la séparation (Ben'Mbarek, 2011). On peut classer les additifs selon plusieurs catégories (Mahfoudh, 2013; Schwarzenbach et al. , 2001) : lubrifiants, agents de couplage, élastomères, etc. Chaque type d'additifs utilisé assure un rôle bien précis. L'incorporation des agents de couplage dans les CBP a pour but de garantir une bonne adhésion entre le complexe fibre/matrice. Les fibres apolaire et hydrophiles sont incompatibles avec le polymère polaire et hydrophobe. La quantité et la nature d'agent de couplage utilisé influencent les différentes propriétés des composites WPC (Hadidane, 2015). L'incorporation des lubrifiants aux polymères plastiques renforcés par des fibres du bois permet de faciliter la circulation des masses fondues et de diminuer le taux de cisaillement lors de l'extrusion ou de l'injection. En effet, suite à l'ajout des lubrifiants, une diminution de frottement entre le mélange et les parois métalliques de la machine d'extrusion ou de moulage par injection est observée. L'utilisation des lubrifiants améliore les conditions d'écoulement de mélange (Achilleos et al. , 2002) et génère des produits avec des bonnes propriétés esthétiques (Slama, 2008).

4. Les procédés de mise en forme

L'extrusion est un procédé de mise en forme des matières plastiques pour produire des profilés finis comme des tubes, des lisses et des films (Soucy, 2007). Sur le marché industriel, il existe deux formes d'extrudeuse : l'une est l'extrudeuse mono vis et l'autre est l'extrudeuse double-vis co-courants ou contre-courants. En s'intéressant aux constituants de l'extrudeuse mono vis, on trouve une vis d'Archimède tournant en vitesse réglable selon la nature de matière et plongée entre les surfaces d'un fourreau chauffé (Ryan Gosselin, 2005). On peut diviser le système de l'extrudeuse en trois principales zones (figure 1.3) (Ryan Gosselin, 2005; Soucy, 2007; Zaddi, 2003).

Les trois zones constitutives du système de l'extrudeuse sont :

- La zone d'alimentation : C'est la zone de premier contact entre les granules compressés par le cylindre chauffé et la vis. Dans cette zone, les granules deviennent de plus en plus fondus.
- La zone de compression : Dans cette zone, les granules fondus subissent au centre de la vis une compression à cause de la réduction de l'entre fer et/ou les profilés de la vis, ce qui résulte à une augmentation de taux de cisaillement.
- La zone de pompage : C'est la zone responsable de l'homogénéisation des matières fondus et de leur transporter vers la filière où on trouvera les profilés désirés.

L'extrudeuse double vis mène à des extrudats avec une grande homogénéité. Néanmoins, la température peut engendrer une dégradation des fibres. Aussi, une vitesse de rotation élevée peut engendrer de la friction. Il faut ainsi optimiser le procédé. Le procédé de moulage par injection peut être par conséquent précédé de l'extrusion pour les composites bois-polymère.

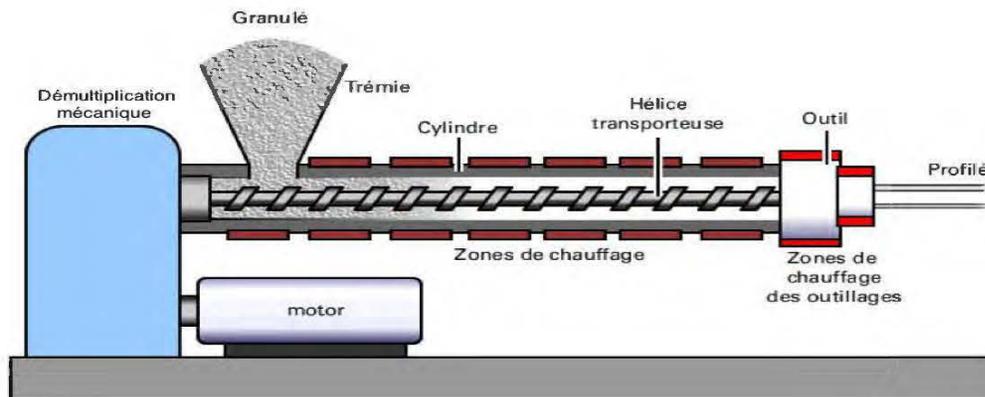


Figure 1.4 : Schéma typique d'une extrudeuse (Mahfoudh , 2013)

Le moulage par injection est le procédé de fabrication le plus utilisé pour la mise en forme des matières plastiques. L'une des différences entre le moulage par injection et l'extrusion est la complexité de la forme de la pièce. Le procédé de moulage par injection favorise la fabrication des produits finis et similaires avec une complexité de forme presque illimitée par un processus cyclique et semi continu (Mohammad Dalour Hossen Beg, 2007). Le principe de fonction de la mouleuse par injection est similaire à celui de l'extrudeuse se basant sur une vis d'Archimède comprenant une zone d'alimentation, une zone de compression et une zone de pompage (figure 1.5) (Soucy, 2007). Pour injecter le polymère dans les cavités creuses du moule, il faut fournir une force d'injection élevée. Aussi, il faut qu'elle soit adaptée pour éviter le retrait pendant la solidification. En ce qui concerne les composites renforcés, les fibres sont orientées selon le sens de l'écoulement du composite fondu lors du remplissage du moule (Mohammad Dalour Hossen Beg, 2007). Vers la fin, la matière injectée doit être autorisée à refroidir et à se solidifier avant que le moule soit ouvert pour retirer le produit final (Mohammad Dalour Hossen Beg, 2007; Soucy, 2007).

L'extrusion et le moulage par injection sont très sensibles à la teneur en humidité des matériaux utilisés. Généralement, la teneur en humidité des granulés doit être inférieure à 1% (Jafarian Jam et Hossein Behraves, 2009).

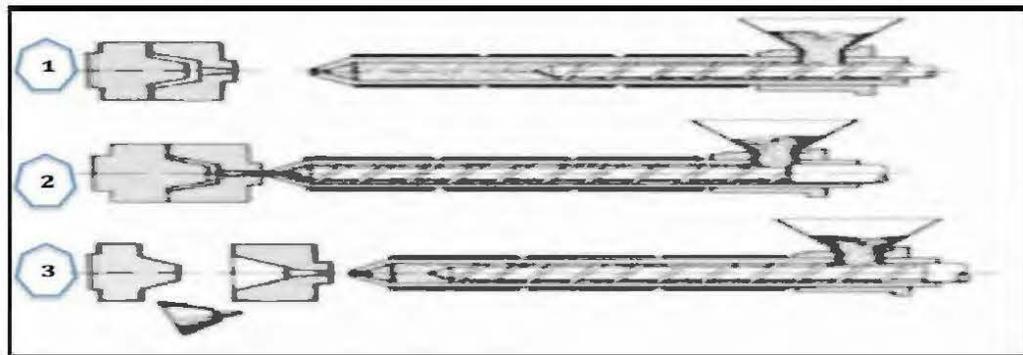


Figure 1.5 : Principe de fonction de mouleuse (George et al. , 2001)

5. Les composites bois-polymère (CBP)

5.1 Généralités

Le composite est constitué de plusieurs phases, i) la matrice : la phase continue qui forme et qui lie les fibres entre elles afin de bien répartir les efforts, ii) la phase discontinue du composite formé par le renfort. Le renfort constitue le squelette de composite et assure la tenue mécanique (i.e. résistance à la traction et la rigidité). Les fibres de renfort peuvent être d'origine minérale ou organique, iii) l'agent de couplage assure la cohésion entre le complexe matrice-renfort tout en transmettant les contraintes de l'un vers l'autre, iv) les lubrifiants et d'autres additifs spécifiques. Le mélange de ces phases par extrusion ou moulage par injection permet l'obtention d'un matériau homogène résultant de la juxtaposition des deux matériaux non miscibles.

La naissance de l'industrie de CBP impliquait l'interfaçage de deux industries (l'industrie du bois et l'industrie du plastique) qui, historiquement, connaissaient peu les uns des autres et possèdent une connaissance, une expertise et des perspectives très différentes. En effet, l'industrie du plastique a une connaissance du traitement des matières plastiques tandis que l'industrie des produits forestiers a plus d'expérience et plus de ressources dans le marché des produits de construction. L'industrie du plastique a traditionnellement utilisé du talc, du carbonate de calcium et des fibres de verre et de

carbone (Clemons, 2002) pour modifier les performances du plastique. Par ailleurs, les fibres de bois sont connues à être plus légères et moins abrasives pour les équipements de traitement que les charges conventionnelles. Toutefois, la fibre de bois a été ignorée en raison de sa faible densité apparente, de sa faible stabilité thermique et de sa tendance à absorber l'humidité (Clemons, 2002), ce qui limitait son application. De plus, la température de traitement pour les plastiques à faible point de fusion est souvent trop élevée pour incorporer des fibres de bois sans dégradation thermique. Les transformateurs de matières plastiques qui ont essayé d'utiliser du bois ou d'autres fibres naturelles manquent souvent de connaissances sur le bois, et leurs tentatives échouées ont rendu l'industrie généralement sceptique de combiner le bois et le plastique (Clemons, 2002).

La perspective de certaines industries du plastique a considérablement changé au cours de la dernière décennie (Clemons, 2002). L'intérêt a été alimenté par le succès de plusieurs produits CBP. Par ailleurs, une plus grande prise de conscience, une meilleure compréhension du bois, le développement des équipements et l'expansion des fournisseurs d'additifs sont parmi les raisons qui ont contribué au développement de ce marché. Les industries des produits forestiers ont changé également leur point de vue pour l'utilisation des CBP. Ces derniers sont vus comme un moyen incontournable pour accroître la durabilité du bois avec un moindre entretien de la part du consommateur. Les CBP sont largement utilisés dans le remplacement de produits en bois naturel comme les fenêtres, les panneaux de plancher, les cadres de portes et les meubles. La chaise ODGER d'IKEA est l'un des exemples les plus récents de WPC fabriqué à partir de plastique recyclé et de fibres de bois (Koay et al. , 2018).

5.2 Le moulage par injection des composites renforcés avec haute teneur en fibres

Le moulage par injection de CBP a récemment été abordé et plusieurs recherches ont été effectuées dans ce domaine. En 2004, les CBP élaborées par le moulage et/ou

par injection ne représentaient que 2% du marché en dollars des industries de CBP. En 2007, cette proportion a augmenté d'un facteur 20 (Jafarian Jam et Hossein Behraves, 2009). Bien que le moulage par injection des CBP produit des pièces plus complexes que l'extrusion, la teneur maximale en fibres de bois lors du moulage par injection est inférieure à celle de l'extrusion (80%) (Koay et al. , 2018). Plusieurs études suggèrent que 55% de la teneur en bois est le maximum de charge qu'on peut introduire dans les thermoplastiques dans le procédé du moulage par injection (Jafarian Jam et Hossein Behraves, 2009). Le moulage par injection a le potentiel d'être la technique la plus prometteuse pour le CBP à l'avenir. Il est donc nécessaire d'étudier les capacités et les limites de ce procédé, en particulier au niveau de teneur en fibre et la granulométrie.

Plusieurs tests de comparaison ont été utilisés pour déterminer les effets des différents bio polymères renforcés en haute charge en fibres de bois sur les propriétés mécaniques (Sykacek et al. , 2009). Une faible viscosité à l'état fondu est nécessaire pour le moulage par injection de pièces à paroi mince ou de forme complexe. En outre, une fluidité élevée permet la mise en forme des composites à des températures plus basses tout en gardant une pression d'injection plus faible. L'optimisation de la viscosité et de la fluidité mène à une amélioration de la productivité des CBP. La maîtrise de ce processus permet de réduire le temps de cycle, de minimiser de l'énergie consommée et de limiter la dégradation thermique des charges naturelles. D'ailleurs, l'incorporation des fibres naturelles dans des matrices thermoplastiques augmente généralement la viscosité à l'état fondu. Cette augmentation est dépendante de la teneur en fibres et de la taille des particules.

Les composites ayant des charges supérieures à 55% ne peuvent plus être moulées dans une moule en spirales parce que la sprue peut être bouchée (Sykacek et al. , 2009). Indépendamment du type de polymère, des chercheurs ont montré que les échantillons ne peuvent être moulés qu'à une concentration de charge inférieure à 65% en raison de la perte de la capacité d'écoulement (Sykacek et al. , 2009). Par conséquent, le moulage

par injection des mélanges contenant plus de 50% de farine de bois peut entraîner des cycles plus longs (Sykacek et al. , 2009). Le moulage des éprouvettes d'essais avec des charges supérieures à 30% nécessite un temps et une pression de maintien plus faibles lors de refroidissement par rapport les CBP ayant teneur en bois plus faible. Conjointement à la viscosité croissante des plastiques renforcés des fibres naturelles, la pression d'injection doit être augmentée (Sykacek et al. , 2009). Lors du moulage par injection, l'augmentation de la pression d'injection est corrélée à l'augmentation de la charge en fibres pour les bio polymères (Sykacek et al. , 2009) et même pour les polymères conventionnels (PE) (García et al. , 2009). Les pressions d'injection élevées sont requises pour des charges en fibres supérieures à 50% dans le cas les bio polymères (García et al. , 2009; Sykacek et al. , 2009). Ces constatations concordent avec les travaux de Mika et al. (2005) qui ont montré que les composites de PE renforcés à très haute teneur en farine de bois (i.e. 75%) sont difficiles à mouler et la pression d'injection nécessaire pour ces composite doit être presque cinq fois plus élevée que celle du PE pur (Miki et al. , 2005).

Cette augmentation de pression suite à l'augmentation de la teneur en charge est toujours corrélée linéairement avec la viscosité. Toute augmentation de la teneur en bois au-delà de 60% est accompagnée par une augmentation notable de la viscosité. En outre, une corrélation linéaire peut avoir lieu entre la taille des particules et la viscosité. L'utilisation des fibres très longues engendre une augmentation de la viscosité. La mesure de l'indice de fluidité (MFI) des composites joue un rôle déterminant dans le classement des matériaux ayant des charges élevées en fibres de bois. Par exemple, l'augmentation de la teneur en bois de 40% à 50% a entraîné une diminution de 41% des MFI. L'évaluation de la valeur du MFI pour un composite rempli de bois à 70% est fastidieuse et la valeur mesurée est toujours au dehors de la plage de fonctionnement des instruments (0,5-40 g/10min) (Jafarian Jam et Hossein Behraves, 2009). Pour surmonter à ce problème, l'augmentation des températures d'injection et de moule et/ou le changement de la sprue ont été proposées comme solutions. Ces tentatives ont

échoué et les MFI ont baissé (Jafarian Jam et Hossein Behraves, 2009). D'une autre côté, Shibata et al. (2010) ont étudié les effets de la température d'injection sur la dégradation thermique et la porosité des composites moulés par injection bagasse/polypropylène (Shibata et al. , 2010). Au-dessus de 185 °C, un remplissage incomplet du moule a eu lieu (Shibata et al. , 2010). Ce résultat a été expliqué par la présence de gaz généré par la dégradation thermique des fibres de bagasse (Shibata et al. , 2010). Une méthode d'injection modifiée avec dégazage augmente le pourcentage de remplissage complet du moule (Shibata et al. , 2010). Les propriétés mécaniques diminuent avec l'augmentation de la température d'injection de 165 °C à 260 °C. Cela est dû à l'augmentation de la porosité et au raccourcissement des fibres (Shibata et al. , 2010).

L'humidité présente aussi un élément clé durant le moulage par injection. En effet, le séchage des produits en amont de l'injection est requis. Dans ce contexte, le moulage par injection des granules non séchés ayant de 60 à 70% de la farine de bois a donné une pièce imparfaite ayant des signes de brûlure visibles sur les bords du produit (Jafarian Jam et Hossein Behraves, 2009).

Depuis les années 2008-2009, les industries papetières vivent une crise suite à l'augmentation du recyclage des papiers. Cependant, les fibres de cellulose provenant des pâtes coûtent entre 200-1000 dollars/tonnes ce qui est moins chère que les fibres de verre et de carbone (Lepetit, 2017). Ainsi, l'utilisation de la cellulose dans les composites de thermoplastique demande des énergies de production 8 et 32 fois moins que les fibres de verre et les fibres de carbone, respectivement (Lepetit, 2017). Les fibres de cellulose ayant une haute pureté sont à l'origine de l'augmentation du module d'Young et de la résistance en traction. En outre, la cellulose est recommandée pour assurer des propriétés mécaniques intermédiaires entre la fibre de verre et la Wollastonite (Sears et al. , 2001). Sears et al. (2005) ont recours à des températures plus basses que 205 °C pour mouler des composites à base de cellulose (Sears et al. ,

2001). Le moulage par injection des produits à base de cellulose est réalisé en fixant la température des trois zones de la machine à 200 °C a donné des pièces de bonne qualité. Les pièces ont été trouvées à environ 10% à 12% plus léger que les composites renforcés de Wollastonite et de fibres de verre (Sears et al., 2005). Puisque les fibres de cellulose ont une température de dégradation inférieure aux celle des fibres de verre et Wollastonite, les composites à base de cellulose ont été moulé à une température d'injection (~205 °C) inférieure aux autres (~260 °C), ce qui minimise la décoloration et la dégradation des fibres, la réduction de l'énergie consommée et la réduction du temps de cycle (Sears et al. , 2001).

D'autres recherches ont évalué la faisabilité de la compression, du moulage par injection et de l'extrusion pour des composites de PP chargé avec des hautes charges en fibres de cellulose (Kumari et al. , 2007). La fluidité du mélange est l'un des facteurs les plus importants à considérer lors de la réalisation du moulage par injection et de l'extrusion. L'indice de fluidité (MFI) fournit des informations précieuses sur le comportement d'écoulement des matériaux. Il a été constaté que la valeur de MFI diminue avec l'augmentation de la teneur en cellulose. Ceci est dû à l'incorporation d'un matériau non fusible aux matrices, ce qui limite leur mobilité libre et augmente leur viscosité apparente. Les mélanges avec des fibres avec une longueur de 300 µm donne des MFI inférieures à ceux avec des fibres de 120 µm (Kumari et al. , 2007). Le moulage par injection avec recours au lubrifiant augmente la densité et facilite la circulation des mélanges lors de la mise en forme afin de bien remplir le moule (Kumari et al. , 2007).

El-Sabbagh et al. (2016) ont étudié la faisabilité du moulage par injection dans un moule spirale (El-Sabbagh et al. , 2016). En doublant la pression, l'augmentation du parcourt de la masse fondue dans le moule a été de 20% à 30%. Aussi, l'augmentation de la température de 180 °C à 220 °C augmente la longueur de la spirale de 45-55% selon la pression d'injection utilisée. Ceci est attribué à la

diminution de la viscosité du polymère PP en fonction de la température (El-Sabbagh et al. , 2016). La pression est le paramètre le plus significatif face aux températures d'injections et du moule pour le moulage par injection (El-Sabbagh et al. , 2016).

Une comparaison des micrographies entre les composites (longueur de fibre de 120 µm, 80% de cellulose) obtenus par extrusion et par injection a montré que les composites faits par extrusion contiennent des lacunes et des vides (Kumari et al. , 2007). Par contre, les particules sont mieux dispersées avec le moulage par injection qu'avec l'extrusion (Kumari et al. , 2007). Les micrographies révèlent une amélioration de l'adhérence interfaciale qui a été provoquée par l'augmentation de la surface de contact entre les fibres de cellulose et la matrice MAPP/PP (Kumari et al. , 2007).

5.3 Les propriétés des composites bois polymère

Les composites avec haute charge en fibres de cellulose sont très peu étudiés. Les paramètres qui peuvent influencer les propriétés mécaniques, physiques et rhéologiques sont la granulométrie, l'agent de couplage, l'ajout du lubrifiant, la teneur en fibre ainsi que le type de fibre (Lepetit, 2017). Une bonne compréhension de la réaction de chaque paramètre dans les composites mène à maximiser ces effets et à bien analyser les résultats.

5.3.1 Effet de la granulométrie

La longueur et la distribution des fibres jouent un rôle important dans la mise en œuvre et la performance mécanique des produits à base de fibres naturelles. Toutefois, la production des CBP avec des fibres longues est une manipulation difficile avec les équipements de production conventionnels (Migneault et al. , 2008). Les variations dans la charge de fibre et la distribution de la longueur sont accompagnées généralement par des variations des propriétés de fusion et des caractéristiques rhéologiques. La variation de la viscosité des masses fondues de HDPE est étroitement liée à la variation de la teneur en bois et de la taille des particules (Li et Wolcott, 2005)

contrairement aux taux de cisaillement qui ne change pas beaucoup avec la variation de la teneur en fibres et la taille des particules (Li et Wolcott, 2005). La diminution de la taille des fibres de bois diminue la viscosité et le couple maximale lors de la circulation des masses fondues dans le rhéomètre capillaire et le rhéomètre à torque, respectivement (Gallagher, 2006). Des informations supplémentaires ont été obtenues à partir de la rhéologie des plaques parallèles des éprouvettes moulées qui indiquent une diminution des modules de stockage et de perte avec une diminution de la taille de la fibre de bois (Gallagher, 2006). Il en résulte que la forme de la fibre de bois joue un rôle dans les propriétés rhéologiques, ce qui concorde avec la littérature selon laquelle une augmentation du facteur de forme augmente la viscosité à l'état fondu dans les mesures rhéologiques (Barnes, 2000; Gallagher, 2006; Shenoy, 2013).

Amir et al. (2009) ont montré que pour des tailles de particules plus petites (entre 250 et 300 μm), une augmentation modérée de la résistance mécanique est observée. Ces observations montrent que la taille des particules a une influence sur la rigidité des composites (Amir et al. , 2009; Migneault et al. , 2008). Ce comportement est expliqué par l'amélioration de l'adhérence interfaciale entre la matrice et les fibres (Amir et al. , 2009). L'augmentation de la taille des particules est habituellement accompagnée par une augmentation de la résistance à la traction et par une diminution l'énergie de rupture (Amir et al. , 2009; Migneault et al. , 2008). Ceci peut être expliqué par la diminution de l'allongement à la rupture. En effet, ce phénomène est plus marqué pour des particules de grande taille et les fissures se déplacent autour des particules de bois. Par conséquent, moins d'énergie est nécessaire pour provoquer la rupture d'un échantillon contenant des particules grossières (Amir et al. , 2009).

L'effet de la taille des particules sur les propriétés mécaniques est plus prononcé dans le cas des teneurs des fibres élevées. Cependant, la taille des particules n'a pas un effet significatif sur l'absorption d'eau même à des hautes teneurs en fibres. Ceci peut être attribué au fait que, à des teneurs plus élevées, l'effet de la taille de la fibre est

minime par rapport à celui du niveau de charge. De plus, la taille de la fibre peut changer pendant le traitement. À l'opposé, plus la taille des particules est grande, plus l'absorption d'eau est élevée pour des teneurs en fibres faibles (moins de 40%) (Amir et al. , 2009; Migneault et al. , 2008). L'augmentation de la taille des particules conduisant à des surfaces hydrophiles plus grandes est l'une des explications émises. D'un autre côté, la mauvaise adhérence entre les particules de bois et la matrice polymère génère des espaces vides autour des particules de bois. Ces vides sont facilement remplis d'eau (Bouafif et al. , 2009).

5.3.2 Effet d'un agent de couplage

Un agent de couplage peut améliorer la dispersion des fibres. Ce dernier augmente la cohésion entre la matrice de caractère non polaire et les fibres naturelles de caractère polaire dans le but de minimiser l'agglomération des fibres dans la matrice (Amir et al. , 2009). Ceci peut éviter la création des composites hétérogènes ayant des zones riches en fibres et d'autres riches en plastique. Le MAPP est un agent de couplage couramment utilisé dans des composites du polypropylène.

Plusieurs études ont été menées pour évaluer l'efficacité de l'agent de couplage sur le comportement mécanique des composites. L'addition de 2% à 6% en poids de MAPP dans le PP a augmenté les propriétés de traction (Amir et al. , 2009; Awanis et al. , 2012; Spoljaric et al. , 2009). L'effet de l'agent de couplage pour améliorer la compatibilité entre les fibres et la matrice a clairement été démontré (Amir et al. , 2009).

La microscopie électronique à balayage a révélé que l'addition de MAPP génère des interactions entre une matrice (PP) et des fibres de renfort (cellulose). Toutes les fibres de cellulose sont encapsulées par des couches de la matrice et étroitement liées à l'intérieur de la matrice (Qiu et al. , 2003). Par ailleurs, le MAPP contribue à l'augmentation de la résistance à la traction et le module de Young des composites (Qiu et al. , 2003). Il diminue aussi l'absorption relative de l'eau (Qiu et al. , 2003).

L'augmentation de la teneur en MCC et en MAPP permet d'augmenter la stabilité thermique du PP ainsi que la température de cristallisation (T_c), bien que la cristallinité s'est avérée réduite en raison des cristaux de cellulose II (Spoljaric et al. , 2009).

L'agent de couplage (MAPE) ayant un faible poids moléculaire est reporté capable de modifier la performance de l'écoulement de la matrice et affecter l'orientation des particules de charge (Li et Wolcott, 2005).

5.3.3 Effet d'un lubrifiant

Le lubrifiant améliore l'écoulement lors de l'extrusion et de l'injection (Erbas Kiziltas et al. , 2016). Une teneur en lubrifiant élevée réduit la viscosité apparente des masses fondues (Adhikary et al. , 2010). La réduction de la viscosité peut être liée à la nature des fibres, aux alignements moléculaires et aux désengagements des longues chaînes de polymère (Adhikary et al. , 2010). La glycérine à 2% a été utilisée dans le but de faciliter les procédés de mise en forme des composites du PP renforcés avec 35% de fibres. L'ajout de la glycérine contribue à une légère diminution de la stabilité thermique par rapport au polymère pur (Erbas Kiziltas et al. , 2016). Plus la proportion en glycérine augmente, plus la stabilité thermique diminue. Ceci est explicable par le fait que la glycérine commence à s'évaporer à partir de 200 °C jusqu'à 300 °C (Erbas Kiziltas et al. , 2016). L'ajout de la glycérine avec une teneur entre 2% et 7% ne semble pas influencer les modules de traction et de flexion pour les composites bois polymère (Adhikary et al. , 2010; Erbas Kiziltas et al. , 2016; Kers, 2016). Une nette amélioration de l'énergie d'impact est observée lorsqu'on ajoute de la glycérine. Ceci est expliqué par la plastification des lignines et des hémicelluloses en coupant quelques liaisons H (Adhikary et al. , 2010; Erbas Kiziltas et al. , 2016; Kers, 2016).

5.3.4 Effet de la proportion en fibres

Généralement, les propriétés mécaniques du CBP et l'absorption d'eau augmentent avec l'augmentation de la proportion en fibres, tandis que la ténacité diminue

(Migneault et al. , 2014). En général, une teneur élevée en particules de bois donne des matériaux ayant une rigidité et une résistance élevées. Aussi, les composites avec 45% de fibres de bois ont un module d'élasticité élevé et une résistance maximale à la flexion de trois et deux fois plus grandes que le plastique. Cependant, l'énergie à la rupture et l'allongement à la rupture des matériaux composites diminuent lorsque la concentration de particules augmente. Cette réduction d'allongement est une résultante de l'ajout de fibres qui modifie le comportement plastique de la matrice en un matériau moins ductile (Bouafif et al. ,2009).

L'incorporation des fibres de bois diminue de la fluidité des masses fondues. Premièrement, deux paramètres avec un rhéomètre à torque ont été examinés: le couple maximal et le couple de stabilisation. Le couple maximal augmente lorsque la charge en fibres de bois augmente (Gallagher, 2006). Il a également été démontré que le couple à l'état d'équilibre augmente de manière significative, passant de 31% à 37%, en fonction des charges du bois allant de 30% à 50% (Gallagher, 2006). Deuxièmement, les résultats montrent que la MFI des masses fondues diminue de 84% avec l'augmentation des charges naturelle de 30% à 50% (les formulations contenant 50% des charges de bois ont des MFI de 0,16 à 0,70 g / 10 min) (Gallagher, 2006). Par contre, des formulations contenant 70% des fibres du bois n'ont pas pu être testées en raison de leur viscosité trop élevée pour les appareils de mesure (Gallagher, 2006).

5.3.5 Effet du type de fibre

Tout les paramètres discutés précédemment (granulométrie, agent de couplage, lubrifiant et la teneur en fibre) agissent en synergie du type de fibre utilisé lors de l'élaboration des composites (Lepetit, 2017).

Le module élastique de la cellulose I peut atteindre 138 GPa dans le sens parallèle de l'axe de la chaîne, qui est nettement plus élevé que ceux de l'aluminium (70 GPa) et des fibres de verre (76 GPa) et comparable aux valeurs des polyamides aromatiques à haute performance (156 GPa) et des polyesters aromatiques (126 GPa) (Li et al. ,

2018). La résistance à la traction de la cellulose I est estimée à 17,8 GPa, soit 7 fois plus que celle de l'acier (Li et al. , 2018). La cellulose I a la résistance à la traction spécifique la plus élevée parmi les polymères naturels connus (667 MPa) (Li et al. , 2018). Les fibres de cellulose ont des propriétés mécaniques élevées par rapport aux fibres de bois et aux fibres torréfiées. Ceci peut être expliqué par la présence d'un grand nombre des parties amorphes par rapport à la cellulose. Aussi, la cellulose a une haute stabilité thermique par rapport aux fibres de bois. Pour cela, l'utilisation des différents dérivés de la cellulose avec les thermoplastiques est en pleine croissance (Li et al. , 2018).

On peut citer quelques exemples de l'utilisation de la cellulose comme renfort dans les thermoplastiques tels que les composites de polypropylène (PP)/microcristalline de cellulose (MCC)/farine de bois (Ashori et Nourbakhsh, 2010). La résistance à la rupture augmente aussi avec le pourcentage des fibres kraft dans des composites du PP renforcés (Vilaseca et al. , 2008). L'augmentation de la teneur en cellulose diminue de la résistance aux chocs. Par contre, l'ajout de cellulose augmente la résistance à la traction et le module d'élasticité (Jang et Kim, 2015). La stabilité thermique des composites à base de PP et des MCC est élevée par rapport à celle des PP renforcés de fibres de bois (Chuayjuljit et Palasuth, 2012).

Les essais dans un moule en spirale du PP renforcés de fibres naturelles (chanvre, lin, sisal, bois, paille, et cellulose) montrent que l'augmentation de la teneur et de la longueur des fibres diminuent la viscosité des masses fondues (El-Sabbagh et al. , 2016). Par exemple, les mélanges avec des fibres de chanvre et de lin ont une fluidité relative moins élevée que celle des mélanges avec fibres de sisal, de bois, de paille et de cellulose (El-Sabbagh et al. , 2016). Les fibres non ramifiées ayant une résistance à la flexion élevée, comme la cellulose et le sisal, ont une capacité d'écoulement élevée et une plus grande homogénéité du contenu en fibres dans les produits moulés par injection par rapport aux fibres ramifiées à faible résistance à la flexion, telles que le chanvre et le lin (El-Sabbagh et al. , 2016).

Ma et al. (2008) ont préparé des composites thermoplastiques d'amidon de pois (TPS)/carboxyméthylcellulose (CMC) plastifiés au glycérol et des composites TPS/cellulose microcristalline (MC). Le MEB a montré qu'il existe une bonne adhésion entre l'amidon et le CMC ou le MC, mais ces dérivés de cellulose ont entraîné une agglomération dans la matrice TPS (Ma et al. , 2008). La MC augmente la stabilité thermique, tandis que la CMC l'altère. Aussi, l'ajout de CMC ou de MC améliore le module de stockage et la température de transition vitreuse des composites (Ma et al. , 2008). Aux faibles teneurs en dérivés de la cellulose (<9% en poids), plus la teneur en CMC ou MC est élevée, plus la résistance à la traction du composite est élevée (Ma et al. , 2008). Les composites TPS/MC ont un meilleur effet barrière contre la vapeur d'eau que les composites TPS/CMC (Ma et al. , 2008).

Iwatake et al. (2008) ont signalé le renforcement de l'acide polylactique (PLA) par la microfibrille de la cellulose (MFC) ou les fibres kraft blanchie (NBKP) (Iwatake et al. , 2008; Khalil et al. , 2012). L'incorporation de 10% de MFC a augmenté le module de Young et la résistance à la traction par rapport au PLA pur de 40% et 25%, respectivement, sans réduction de la limite d'élasticité (Iwatake et al. , 2008). Ceci est expliqué par la dispersion uniforme des MFC dans les composites. D'autre part, l'ajout de 5% de NBKP a réduit la limite d'élasticité de 30% et la résistance de 15% par rapport au PLA pur (Iwatake et al. , 2008; Khalil et al. , 2012).

6. Objectifs et hypothèses de travail

6.1 Contexte

Selon la revue de littérature, il semble que le moulage par injection est problématique lorsque la charge en fibres est élevée. Malgré le nombre réduit d'études qui ont traité cette problématique, quelques solutions ont été proposées, comme l'augmentation de la pression d'injection, de la température d'injection, de la température du moule et/ou l'utilisation des lubrifiants pour augmenter la fluidité des masses fondus hautement renforcés en fibres. Par contre, l'application d'une

température d'injection élevée dégrade les fibres naturelles. Pour cela, l'exploitation de la cellulose qui est plus résistante à la température peut être une solution.

6.2 Objectifs

L'objectif général de cette étude est de mouler par injection des polymères renforcés avec une haute charge en fibres de cellulose (PRFC).

Plus spécifiquement ce projet vise à :

- Mouler par injection des PRFC avec une haute teneur en fibres.
- Étudier les propriétés rhéologiques, thermiques, mécaniques et physiques des PRFC avec une haute teneur en fibres.
- Comparer l'effet sur les propriétés des composites hautement chargés avec deux types de celluloses: Microcristalline de cellulose (MCC) et les fibres kraft.
- Évaluer l'effet d'un lubrifiant biosourcé (la glycérine) et d'un agent de couplage sur le procédé de moulage par injection et sur les propriétés mécaniques et physiques des PRFC.

6.3 Hypothèses

- L'ajout de la glycérine dans les composites avec haute charge en fibres de cellulose diminue la viscosité du mélange.
- Les fibres de cellulose mènent à des composites ayant des performances mécaniques élevées grâce à leur cristallinité.
- Les PRFC absorbent beaucoup d'eau durant l'essai d'immersion dans l'eau à cause du caractère hydrophile des fibres de cellulose.
- Les fibres de MCC sont plus stables thermiquement que les fibres kraft grâce à leur pureté par rapport aux fibres kraft.
- L'utilisation d'agent de couplage améliore la compatibilité entre la cellulose et le polymère qui se traduit par de meilleures propriétés mécaniques.

CHAPITRE 2

MATÉRIEL ET MÉTHODES

L'ensemble des étapes méthodologiques (figure 2.1) pour atteindre l'objectif principal de cette étude sont résumées comme suit :

1. Préparations et caractérisations des matières premières (fibres)
2. Broyage et tamisages des matières premières (fibres torrifiées et PP)
3. Caractérisation rhéologique des masses fondues
4. Élaborations des composites par extrusion suivie du moulage par injection
5. Conditionnement et caractérisations des CPB

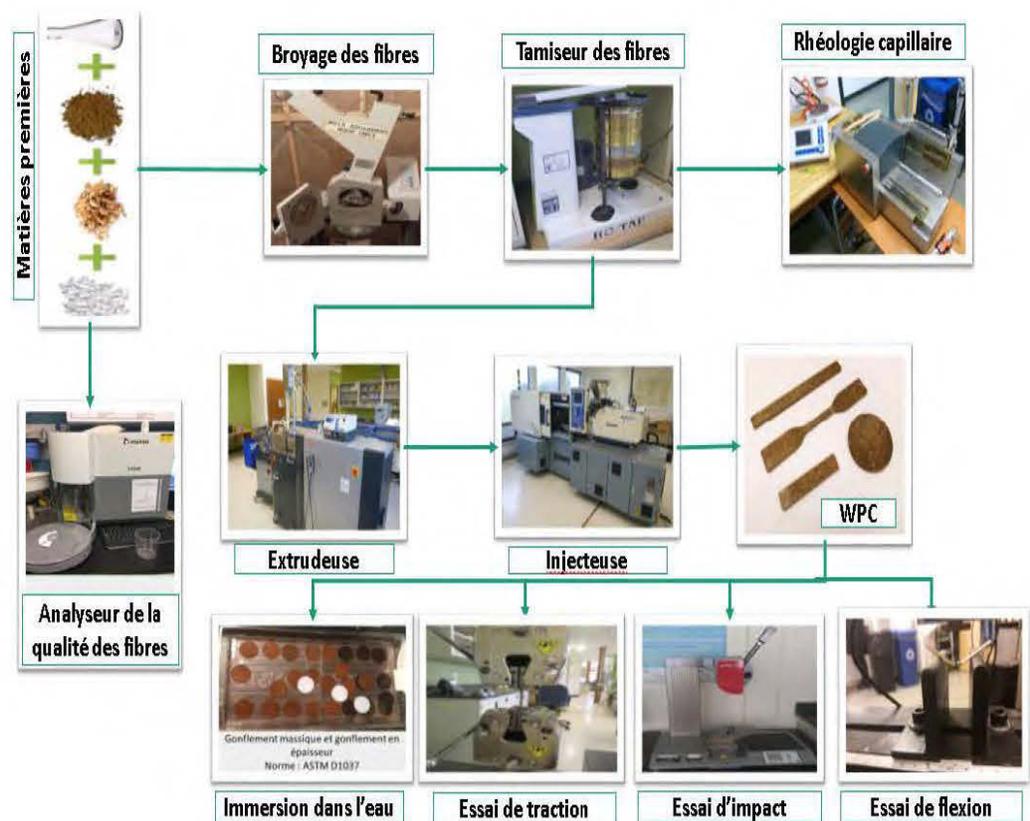


Figure 2.1 : Approche méthodologique

2.1 Matériel

2.1.1 Caractérisations des fibres

Afin de calculer le ratio longueur par diamètre (L/D), on a utilisé un analyseur de la qualité de la fibre (AQF) de type KajaaniFS300™ de la compagnie Metso (Finlande) (figure 2.2). Selon la norme TAPPI 271, une dilution des fibres dans l'eau à une concentration d'environ 3% a été préparée. L'analyseur permet de mesurer plusieurs paramètres morphologiques dont la longueur (jusqu'à 10 mm) et le diamètre des fibres.

Le calcul de la longueur moyenne arithmétique L_n se base sur la formule suivante :

$$L_n = \frac{\sum_{k=1}^N (n_k l_k)}{\sum_{k=1}^N n_k} \quad [1]$$

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).

D'après l'analyse anatomique des fibres, on tire la distribution de la longueur L et de la diamètre D pour calculer le ratio L/D afin d'évaluer et comparer les fibres.



Figure 2.2 : Analyseur de la qualité de la fibre (AQF) modèle KajaaniFS300TM de la compagnie Metso

2.1.2 Polymère et additifs

Le polypropylène (PP) utilisé lors de cette étude a été livré sous forme de granules fournies par Nexeo Solution (The Woodlands, TX, USA). Son indice de fluidité est de 20 g/10 min et sa masse volumique est de 0,903 g/cm³. Son module d'élasticité en flexion est de 1,482 GPa et sa résistance à la rupture en traction est de 33,09 MPa.

L'un des additifs utilisés au cours de cette étude pour l'élaboration des CBP est l'agent de couplage le polypropylène modifié à l'anhydride maléique (MAPP). Le fournisseur Mitsui Chemicals America, Inc. (San Jose, Canada) livre l'agent de couplage nommé MAPP AT2305A sous forme de poudre blanche. La masse volumique du MAPP est de 0,91 g/cm³ et sa température de fusion est de 158 °C.

Le deuxième additif utilisé est la glycérine pour son effet lubrifiant. Il est sous forme liquide sans couleur, claire, sans odeur et portant un nom commercial Glycerin (Lab Grade, Glycerol) du fournisseur Fisher Science Education (Ottawa, Canada). Sa

formule chimique est $C_3H_8O_3$ ($HOCH_2-CHOH-CH_2OH$) et son un poids moléculaire est de 92,10 g/mol. La glycérine est un alcool dont le point d'ébullition est de 260 °C. La glycérine est également une molécule hygroscopique avec des groupements hydroxyles.

2.1.3 Fibres

La cellulose, de couleur blanche et sous forme de poudre, porte le nom commercial Sigmacell cellulose-type 50, 50 μm et a été fournie par SIGMA (Saint Louis, USA).

Les fibres kraft blanchies provenant de J. Rettenmaier (Fosston, USA) (sous le nom commercial Arbocell BW40) sont fournies sous forme de poudre. La teneur en humidité maximale est de 8% (par rapport à la masse anhydre) et la masse volumique est de 0,110-0,145 g/cm^3 . Une analyse de fibres fait par l'industrie selon la norme DIN EN ISO 4,610 à l'aide d'un tamis à jet d'air a montré une longueur moyenne des fibres entre 90 μm et 100 μm .

Les fibres de microcristalline de cellulose (MCC) dérivent de pâtes kraft blanchies et sont désignées sous le nom commercial Hewetten 102, J. Rettenmaier. Ces fibres de MCC sont très pures. Après tamisage, la longueur moyenne des fibres est de 90 μm , et la masse volumique est de 0,27-0,33 g/cm^3 .

Les fibres de l'épinette noire (*Picea mariana*) torréfiées à 400 °C par le procédé Carbon FX ont été fournies par Airex Energy (Bécancour, Quebec, Canada). Ce procédé consiste à produire des grandes quantités tout en cogérant l'énergie moyennant la combustion des gaz générés lors de ce processus. Le carbone FX peut se décomposer en 4 étapes :

- Le pré-séchage de la biomasse broyées (≤ 12 mm).
- Le conditionnement des fibres : teneur en humidité entre 30% et 60%.
- La combustion des fibres séchées.

- Les fibres traitées subissent un traitement de pyrolyse à des températures élevées allant jusqu'à 445°C.

Les fibres de l'épinette noires torréfiées ont été broyées et tamisées et classifiées entre 150 μm et 56 μm .

2.2 Méthodes

2.2.1 Broyage et tamisage des fibres

Moyennant le tamisage, les fibres torréfiées ont passé d'une longueur moyenne de 500 μm à 90-100 μm . Dans un premier temps, le broyage des fibres a été effectué moyennant une grille de 2 mm, et une grille de 1 mm successivement à l'aide d'un broyeur à couteaux rotatifs de la compagnie Retsch (Newtown, U.S.A) (figure 2.3.a). Dans un deuxième temps, 3 tamis de porosités de 76 μm , 106 μm et 125 μm ont été utilisés pour les copeaux broyés à l'aide d'un tamiseur RO-TAP de la compagnie W.S.Tyler (Mentor, U.S.A) (figure 2.3.b). Finalement, des quantités égales à 300 g ont été prises de chaque intervalles 76-106 μm et 106-125 μm afin d'avoir une longueur moyenne par quantité égale à peu près à 100 microns.



Figure 2.3 : a) Broyeur à couteaux rotatifs ; b) Tamiseur RO-TAP

2.2.2 Préparation des mélanges

Le projet se décompose sur deux parties : i) l'évaluation de l'effet de la glycérine sur le moulage par injection du polypropylène renforcé avec haute teneur en cellulose, ii) l'évaluation de l'effet du type de cellulose et celui de l'agent de couplage sur les composites hautement chargés de fibres.

Pour réaliser la première partie, on a mélangé à l'aide d'une spatule trois proportions des fibres (50%, 60% et 70%) avec trois teneurs en glycérine (0%, 2% et 3%). Pour la deuxième partie, on a utilisé 4 types de fibres (kraft, MCC, farine d'érable et fibre torréfiée) à deux teneurs différentes (51% et 60%) avec une proportion massique de MAPP de 3%. Finalement, on a varié le pourcentage de l'agent de couplage (0% ou 3%) avec les deux proportions des fibres (51% et 60%) pour les 4 types des fibres.

2.2.3 Mise en granules

Les granules ont été produites soit avec une micro-extrudeuse ou encore avec une extrudeuse de laboratoire. On a opté pour le Haake Minilab II, Thermoscientific (Burlington, Ontario, Canada). Cet instrument est contrôlé par le logiciel Polysoft monitor (figure 2.4). L'extrudeuse bis-vis (conique) est utilisée en mode contre-rotatif. Les différents paramètres pour l'extrusion sont illustrés dans le tableau 2.1. Ces paramètres sont adaptés pour minimiser la dégradation des fibres au cours de l'extrusion. À la sortie de la filière, les extrudats sont refroidis à l'air ambiant puis découpés en granules d'une longueur de 3 mm.

On a utilisé l'extrudeuse Haake Rheomex OS (Burlington, Ontario, Canada) où la température est fixée à 175 °C pour assurer la fluidité des mélanges avec une vitesse de rotation des vis de 50 rpm. Le profilé sortant de l'extrudeuse a été mis dans un bain d'eau froide avant de le passer dans un broyeur à couteaux rotatifs (laboratoire de biomatériaux de l'UQAT) (figure 2.5). Ceci permet d'obtenir des extrudats ayant une forme cylindrique de 3 mm de longueur et de diamètre. Finalement, les granules

résultats de l'extrusion ont été séchés à l'étuve à 90 °C pendant 24 heures pour avoir des granules ayant une humidité inférieure à 1%.

Tableau 2.1 : Les conditions d'extrusion

| Procédé | Température (°C) | Vitesse (rpm) | Vitesse de remplissage (rpm) |
|-----------|---------------------|---------------|---------------------------------|
| Extrusion | 185 | 50 | 10 |

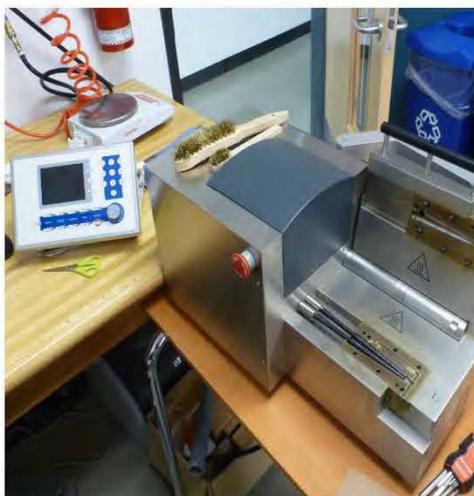


Figure 2.4 : Extrudeuse Haake Minilab II de Thermoscientific



Figure 2.5 : Broyeur et extrudeuse Thermoscientific

2.2.4 Mise en forme des composites

Des éprouvettes de CBP normées (traction, flexion, impact et absorption d'eau) ont été produites par extrusion suivie du moulage par injection.

La machine Haake Minijet Thermoscientific (Burlington, Ontario, Canada) (figure 2.6) est utilisée pour injecter deux formes des éprouvettes : la première pour les éprouvettes de traction et la seconde pour les éprouvettes de flexion et de l'immersion dans l'eau. Les paramètres adaptés pour le procédé de moulage par injection sont illustrés dans le tableau 2.2.

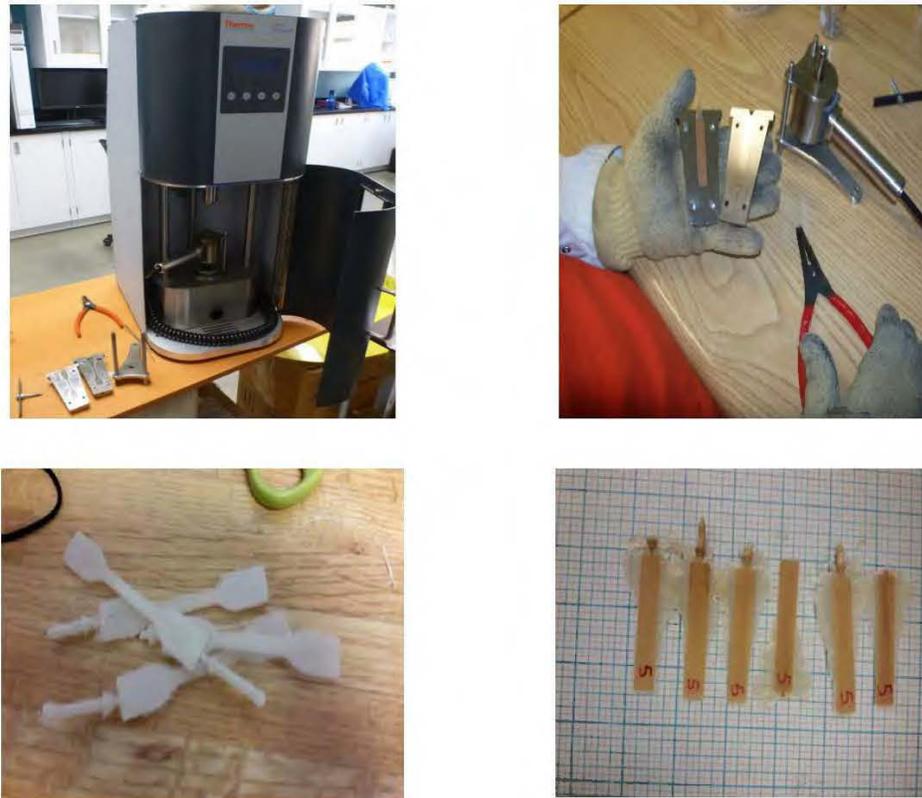


Figure 2.6 : La machine de moulage par injection Minijet et les différents moules utilisés

Tableau 2.2 : Les conditions de moulage par injection par Minijet

| Température d'injection (°C) | Pression injection (bar) | Pression maintient (bar) | Temps de pression (s) | Temps de maintient (s) | Température moule (°C) |
|------------------------------|--------------------------|--------------------------|-----------------------|------------------------|------------------------|
| 185 | 850-900 | 400 | 10 | 20 | 70 |

L'étape de l'injection à une échelle plus grande a été effectuée moyennant une mouleuse Haitian A600 (Ningbo, Chine). Cette machine comporte un moule ayant 4 différentes formes pour l'injection des éprouvettes. La figure 2.7.b présente les 4 types d'éprouvettes utilisées en caractérisation : mécanique (traction, flexion et impact) et

physique (immersion dans l'eau). Les différents paramètres adaptés lors du moulage par injection sont présentés dans le tableau 2.3.

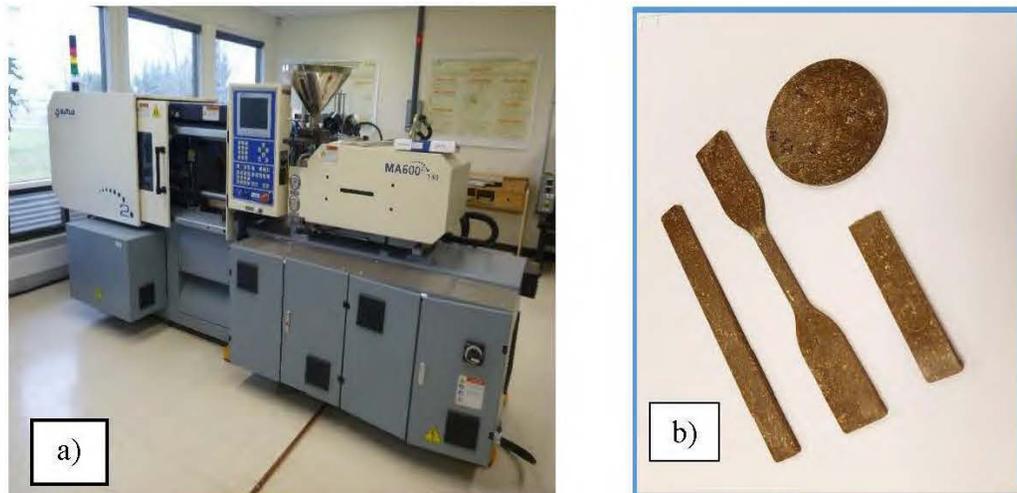


Figure 2.7 : La mouleuse Haitan A600 et les différentes formes à injecter

Tableau 2.3 : Les différents paramètres d'injection pour la mouleuse Haitian A600

| Fibres | Température d'injection (°C) | Quantité de matière pour éprouvette de traction (mm) | Pression d'injection (bar) |
|---------------|------------------------------|--|----------------------------|
| 60% kraft | 175 | 50-55 | 120 |
| 60% MCC | 175 | 45-50 | 70 |
| 60% torréfiée | 185 | 50-55 | 120 |
| 60% érable | 185 | 50-55 | 120 |
| 51% fibre | 175 | 45-50 | 70 |
| PP | 175 | 42-45 | 70 |

Les éprouvettes obtenues se solidifient initialement au niveau du moule (différence de la température de mélange (180 °C) relativement à celle du moule (température ambiante)).

2.2.5 Caractérisation des composites

2.2.5.1 Conditionnement et préparation des éprouvettes

Pour s'assurer que toutes les éprouvettes sont testées dans les mêmes conditions, on a mis les éprouvettes dans une chambre de conditionnement Labocon (Leicester, United Kingdom) (figure 2.8) selon les conditions indiquées au tableau 2.4. Pour les mesures des dimensions des éprouvettes, on a utilisé un pied à coulisse avec une résolution de 0,01 mm.



Figure 2.8 : Chambre de conditionnement Labocon

Tableau 2.4 : Les différents paramètres de conditionnement

| Humidité de l'air (%) | Température (°C) | Temps (heures) |
|-----------------------|------------------|----------------|
| 50 | 23 | Au moins 44 |

2.2.5.2 Propriétés physiques : immersion dans l'eau

Pour contrôler l'hygroscopicité des composites, on a immergé les éprouvettes dans un bain avec l'eau distillée à 21 °C (selon la norme ASTM D 570). Ces essais visent à évaluer (i) l'influence de l'injection des hautes teneurs en cellulose sur

l'absorption d'eau des CBP et (ii) l'influence de la glycérine sur l'hygroscopicité des CBP. Les mesures dimensionnelles et massiques sont prises hebdomadairement avec un réplica de 3 pour chaque échantillon, conformément à la norme ASTM D570. Les paramètres qu'on peut calculer au cours de cet essai sont le gonflement volumique et le gain massique. Les éprouvettes ont été séchées avec un chiffon sec avant de mesurer leur masse.

La teneur en humidité (Eq. 2), le gain massique (Eq. 3) et le gonflement en épaisseur (Eq. 4) des éprouvettes ont été calculées selon les formules suivantes :

$$H(\%) = \frac{M_{H_2O}}{M_0} * 100 = \frac{M_h - M_0}{M_0} * 100 \quad [2]$$

Avec :

- $H(\%)$: Teneur en humidité ;
- M_{H_2O} : Masse de l'eau présent dans l'échantillon (kg) ;
- M_0 : Masse anhydre de l'échantillon (kg) ;
- M_h : Masse de l'échantillon à l'état humide (kg).

➤ Gain en masse :

$$GM(\%) = \frac{M_{H_2O}}{M_t} * 100 = \frac{M_h - M_t}{M_t} * 100 \quad [3]$$

- $GM(\%)$: Absorption de l'eau ;
- M_{H_2O} : Masse de l'eau présent dans l'échantillon (kg) ;
- M_t : Masse de l'échantillon à l'état initial (kg) ;
- M_h : Masse de l'échantillon à l'état humide (kg).

➤ Gain en épaisseur :

$$GE(\%) = \frac{E_f - E_i}{E_i} * 100 \quad [4]$$

- $GE(\%)$: Taux de gonflement;
- E_i : Épaisseur du CBP à l'état initial;
- E_f : Épaisseur du CBP après l'immersion dans l'eau.

2.2.5.3 Propriété thermique : analyse thermogravimétrique

L'analyse thermogravimétrique (TGA) est un moyen qui renseigne sur le comportement de dégradation des matériaux. Les échantillons ont une masse entre 8 mg et 15 mg. La plage de température appliquée a été de 25 °C à 600 °C avec un taux de chauffe constant de 10 °C/min sous atmosphère inerte (azote). Les paramètres obtenus incluent la vitesse de la perte de masse (la première dérivée de la TGA), la masse résiduelle, et les températures de début et de fin de la dégradation. Les tests de la TGA été réalisés avec un appareil TA instrument Q50 (New Castle, USA) (figure 2.9). Cet instrument est contrôlé par un logiciel TA Analysis.



Figure 2.9 : Analyseur thermogravimétrique, modèle Q50 de TA Instrument

2.2.5.4 Calorimétrie à balayage différentiel

Les tests de la DSC ont été menés conformément à la norme ASTM D3417 avec l'appareil TA instrument Q20 (New Castle, USA) (Figure 2.10). Cet instrument est

contrôlé par un logiciel TA Analysis. L'échantillon à l'étude avait une masse entre 15 mg et 30 mg. Le chauffage/refroidissement est de 30 °C à 220 °C avec une vitesse de chauffe de 10 °C/min. Deux cycles de chauffage/refroidissement ont été effectués. La température est maintenue pendant 5 min aux extrêmes (30 °C et 220 °C) avant de déclencher le demi-cycle suivant. Cette analyse a été menée selon le protocole décrit dans Bouafif et al. (2009).

Le taux de cristallinité est calculé à partir de la formule suivante :

$$\chi_c = \frac{\Delta H_f}{\Delta H_f^0} \times \frac{100}{\omega} \quad [5]$$

Où,

- ΔH_f : L'enthalpie de fusion spécifique du polymère utilisé;
- ΔH_f^0 : L'enthalpie de fusion du polymère 100% cristallin à la température d'équilibre thermodynamique (209 J/g);
- ω : La fraction massique du PP dans le composite.



Figure 2.10 : Analyseur calorimétrique à balayage différentiel, modèle Q20 de TA instrument

2.2.5.5 Propriété mécanique : Traction

Les éprouvettes de traction ont été caractérisés avec une machine à essais universels Zwick Rowell RN20 de capacité 20 kN (Allemagne) (figure 2.11.a). Les éprouvettes préparées avec la mouleuse Haitan A600 sont selon la norme ASTM D638 (type I) et ceux préparés avec la mouleuse Haake Minijet sont selon la norme ISO 527. La vitesse de déformation est de 1 mm/min avec 8 répétitions de chaque formulation. L'essai de traction enregistre la courbe contrainte-déformation et fournit le module d'Young E (en utilisant un extensomètre pour avoir plus de précision), la contrainte maximale R_m , la contrainte à la limite d'élasticité $R_{e0.2}$, l'allongement à la rupture ε .

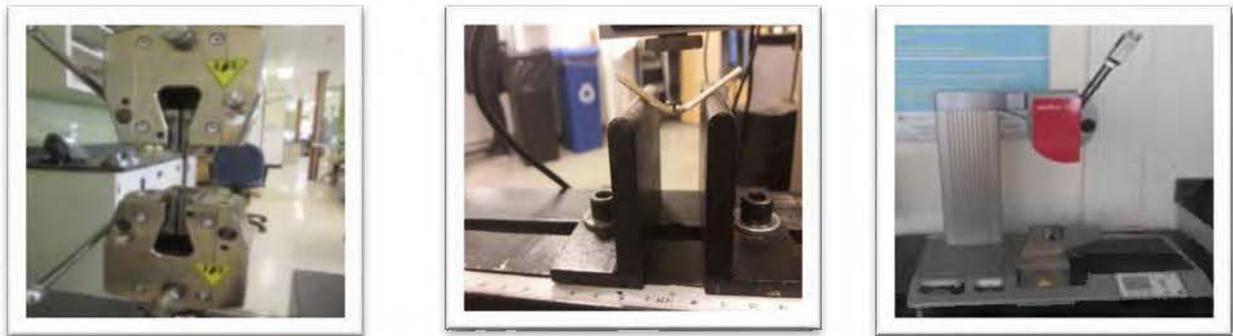


Figure 2.11 : Les dispositifs pour les essais de traction, flexion et d'impact

2.2.5.6 Propriété mécanique : Flexion

Pour réaliser le test de flexion, on a utilisé la machine Zwick Rowell RN20 de capacité 20 kN (Allemagne) avec un dispositif adapté pour la flexion trois-points (figure 2.11.b). Selon la norme ASTM D790, on a utilisé une vitesse de 1,4 mm/min.

Les paramètres mesurés sont le module d'élasticité de flexion E_f , la contrainte maximale de flexion R_{mf} , la contrainte à la limite d'élasticité de flexion $R_{ef0.2}$, l'allongement ε_f (Baïlon et Dorlot, 2000).

2.2.5.7 Caractérisation mécaniques : Impact

L'essai est réalisé à l'aide d'un mouton pendule Zwick/Roell modèle HIT (Allemagne) (figure 2.11.c). Selon la norme ASTM D4812, les échantillons ont une épaisseur de 3 mm, une longueur de 64 mm et une largeur de 12 mm. Le type d'essai est « unnotched cantilever beam impact resistance ». Pour chaque formulation, minimum 15 échantillons ont été testés.

Selon la norme ASTM D4812, la résilience est calculée à partir de la relation suivante :

$$a_{\omega} = \frac{E_c}{b.h} \times 1000 \quad [6]$$

Où,

- a_{ω} : Résistance au choc d'éprouvettes lisses en kN/m ;
- b : Largeur de l'éprouvette en mm ;
- h : Épaisseur de l'éprouvette en mm ;
- E_c : Énergie absorbée par le choc en joules.

2.2.5.8 Propriétés rhéologiques capillaires

Pour mesurer la viscosité, on a utilisé la méthode ASTM D 5422-03, « Méthode d'essai standard pour la mesure des propriétés de matériaux thermoplastiques par le rhéomètre capillaire à extrusion à vis ». Avec cette méthode, on mesure la contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement. La viscosité est calculée à l'aide des paramètres obtenus. La valeur de viscosité résultante est une valeur relative (dépendante de l'instrument). Néanmoins, la viscosité mesurée avec le Minilab est très proche des valeurs réelles de la viscosité. Deux corrections ont été effectuées pour la mesure rhéologique : Rabinowitsch et Bagley. La correction de Rabinowitsch explique l'amplification mesurée pour le taux de cisaillement réel (en raison de l'amincissement par cisaillement) relativement au taux de cisaillement apparent (pour

les fluides non-newtoniens) (Klyosov, 2007). Le facteur de correction de Bagley est appliqué à la contrainte de cisaillement apparente sur la paroi de la machine, afin d'obtenir la contrainte de cisaillement réelle au mur de la filière capillaire. La correction de Bagley compense les pertes d'énergie à la l'entrée et à la sortie de la matrice et neutralise également l'influence de la pression statique dans le système qui ne varie pas avec la longueur de la matrice (Klyosov, 2007). Pour cet essai, on a utilisé une vitesse de remplissage de 10 rpm et le profil de la viscosité est enregistré dans une marge de vitesse de 10 rpm jusqu'à 360 rpm pour deux températures (180 °C et 210 °C). Chaque formulation a été testée 3 fois.

Les courbes ont été tracées sous la forme logarithme de la viscosité en fonction le logarithme du taux de cisaillement. Donc, les courbes prennent la forme d'un S étiré où une partie linéaire relativement long au milieu se terminant par des parties non linéaires (plus courtes) des deux côtés de la ligne (taux de cisaillement faibles et élevés) (Klyosov, 2007).

2.2.5.9 Chimie de surface par Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier

L'appareil IR Tracer-100 de Shimadzu (Kyoto, Japon) (figure 2.12) est utilisé pour étudier la chimie de surface des composites. Ce dispositif est lié à un logiciel Labsolution permettant l'analyse des résultats. Les analyses ont été réalisées en mode ATR (Attenuated Total Reflectance). Lorsque les échantillons sont exposés à un rayonnement infrarouge, les molécules de l'échantillon absorbent de manière sélective le rayonnement de longueurs d'ondes spécifiques, ce qui entraîne le changement du moment dipolaire des molécules de l'échantillon. La fréquence du pic d'absorption est déterminée par l'intervalle d'énergie vibratoire. Le nombre de pics d'absorption est lié au nombre de libertés vibratoires de la molécule. Par conséquent, en analysant le spectre infrarouge, on peut obtenir une information structurale d'une molécule donnée. La région utilisée pour la spectroscopie d'absorption infrarouge est de $4000\sim 500\text{ cm}^{-1}$. Les CBP ont été testés après conditionnement.



Figure 2.12 : Appareil IR Tracer 100 de Shimadzu pour l'analyse de chimie de surface par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR)

2.2.6 Analyse statistique

Toutes les propriétés de CBP étudiées (mécaniques et physiques) sont soumises à une analyse de variance (ANOVA).

Dans une première étape, on s'intéresse à l'effet de la glycérine sur les propriétés physiques et mécaniques des composites de polypropylène renforcés avec haute teneur en cellulose.

Les facteurs considérés (ou variables indépendantes) sont: la teneur en cellulose (0%, 50%, 60%, 70%) et la teneur en glycérine (0%, 2%, 3%). Les variables dépendantes (ou variables réponses) sont les propriétés mécaniques (module d'élasticité (E), contrainte à la limite d'élasticité ($R_{p0.2}$), la contrainte maximale (R_m) et la déformation à la rupture (ϵ) et physiques (gain en masse (GM) et gain en épaisseur (GE)). Ces analyses permettent de mettre en évidence l'effet de la teneur en cellulose et de la glycérine sur les différentes propriétés indiquées.

Le modèle général est le suivant :

$$Y_{ij} = \mu + \alpha_i + \beta_j + \alpha_i \times \beta_j + \epsilon_{ij} \quad [7]$$

Où Y_{ij} représente la valeur de la variable réponse (propriétés mécaniques); μ est l'effet moyen général (intercepte); α_i est l'effet du pourcentage de cellulose; β_j est l'effet du pourcentage de glycérine, $\alpha_i \times \beta_j$ est l'effet de l'interaction entre pourcentage de cellulose et le pourcentage de glycérine; et ε_{ij} l'erreur résiduelle.

Dans une seconde étape, on s'intéresse à l'effet du type des fibres sur les propriétés physiques et mécaniques des composites de polypropylène renforcés avec haute teneur en fibres. Puisque l'ajout de la glycérine n'a pas un effet significatif sur les propriétés mécaniques et influence négativement les propriétés physiques, cet ajout a été éliminé lors de cette partie.

Les variables indépendantes sont: la teneur en fibres (0%, 51%, 60%) et le type des fibres (kraft, cellulose microcristalline, farine d'érable et fibres torréfiées). Les variables réponses sont les propriétés mécaniques (E , $R_{p0.2}$, R_m , ε , GM et GE). Ces analyses permettent de mettre en évidence l'effet de la teneur en fibres et du type des fibres sur les différentes propriétés indiquées.

Le modèle général est le suivant :

$$Y_{ij} = \mu + \alpha_i + \beta_j + \alpha_i \times \beta_j + \varepsilon_{ij} \quad [8]$$

Où Y_{ij} représente la valeur de la variable réponse (propriétés mécaniques et physiques); μ est l'effet moyen général (intercepte); α_i est l'effet de la teneur en fibres; β_j est l'effet du type des fibres, $\alpha_i \times \beta_j$ est l'effet de l'interaction entre la teneur en fibres et le type des fibres; et ε_{ij} l'erreur résiduelle.

Vers la fin, on s'intéresse à l'effet de l'ajout d'un agent de couplage (MAPP) sur les propriétés en traction des composites de polypropylène renforcés avec haute teneur en fibres.

Les variables indépendantes sont: la teneur en fibres (0%, 51%, 60%), le type des fibres (kraft, cellulose microcristalline, farine d'érable et fibres torréfiées) et la proportion en MAPP (0% et 3%). Les variables réponses sont les propriétés mécaniques en traction (E , $R_{p0.2}$, R_m , ε , GM et GE). Ces analyses permettent de mettre en évidence l'effet de la teneur en fibres, du type des fibres et de la proportion en MAPP sur les différentes propriétés indiquées.

Le modèle général est le suivant :

$$Y_{ijz} = \mu + \alpha_i + \beta_j + \Omega_z + \alpha_i \times \beta_j + \alpha_i \times \Omega_z + \Omega_z \times \beta_j + \varepsilon_{ijz} \quad [9]$$

Où Y_{ij} représente la valeur de la variable réponse (propriétés mécaniques en traction); μ est l'effet moyen général (intercepte); α_i est l'effet de la teneur en fibres; β_j est l'effet du type des fibres ; Ω_z est l'effet de la proportion en MAPP ; $\alpha_i \times \beta_j$ est l'effet de l'interaction entre la teneur en fibres et le type des fibres; $\alpha_i \times \Omega_z$ est l'effet de l'interaction entre la teneur en fibres et la proportion en MAPP ; $\Omega_z \times \beta_j$ est l'effet de l'interaction entre le type des fibres et la proportion en MAPP ; et ε_{ijz} l'erreur résiduelle.

Toutes les analyses sont exécutées à l'aide du logiciel SAS (SAS, 2018). La signification statistique des effets fixes est déterminée à l'aide des tests F à $P \leq 0,05$. Des tests de multiples comparaisons sont également faites par le test de *Tukey* pour déterminer les différences significatives entre les moyennes de toutes les variables étudiées pour chaque propriété évaluée.

CHAPITRE 3

RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

3.1 L'EFFET DE L'AJOUT DE LA GLYCÉRINE SUR LES COMPOSITES RENFORCÉS AVEC FORTE TENEUR EN CELLULOSE

3.1.1 Résultats de l'analyse de variance

L'analyse de variance (Tableau 3.1) montre que la variation des propriétés mécaniques et physiques dépend de la teneur en fibres du mélange (A) ainsi que de la proportion de glycérine (B). Ces résultats confirment que la quantité de fibres dans le composite influence de manière très significative ($\alpha = 0,001$) le comportement mécanique, ainsi que la stabilité dimensionnelle. De plus, l'ajout de glycérine a un effet très significatif sur les propriétés physiques ($\alpha = 0,001$). Les interactions entre les deux paramètres (A) et (B) sont significatives pour toutes les propriétés physiques et mécaniques (Tableau 3.1). L'effet significatif de l'interaction entre A et B s'explique par le fait que l'effet de la glycérine sur les propriétés des composites varie selon la proportion de fibres dans le composite. Ces observations sont en accord avec les travaux de Kers et al. (2016) qui ont conclu que l'ajout de glycérine n'a pas d'effet significatif sur les propriétés mécaniques malgré l'augmentation du MOE en flexion et en traction.

Tableau 3.1 : Résultats de l'analyse de variance ANOVA (valeurs de F) concernant l'effet des teneurs en fibres et en glycérine sur les propriétés mécaniques et physiques des composites

| Source | DDL | Propriétés mécaniques | | | | | | | Propriétés physiques | | |
|---------------------|-----|-----------------------|---------------------|---------------------|--------------------|--------------------|--------------------|---------------------|----------------------|---------------------|---------------------|
| | | Flexion 3 points | | | | Traction | | | GM | GE | |
| | | MOE | MOR | ϵ_{\max} | $R_{pf0.2}$ | E_T | σ_{\max} | ϵ_{\max} | | | $\sigma_{p0.2}$ |
| Teneur en fibre (A) | 3 | 1467 ^{***} | 320 ^{***} | 165 ^{***} | 320 ^{***} | 374 ^{***} | 219 ^{***} | 158 ^{***} | 699 ^{***} | 3845 ^{***} | 380 ^{***} |
| Glycérine (B) | 2 | 5.55 ^{NS} | 4.54 ^{NS} | 12.57 ^{NS} | 4.45 ^{NS} | 5.59 ^{NS} | 0.53 ^{NS} | 11.13 ^{**} | 18,6 ^{NS} | 939 ^{***} | 81 ^{***} |
| (A) × (B) | 6 | 9.20 ^{***} | 33.8 ^{***} | 5.05 ^{**} | 4.34 [*] | 2.81 [*] | 2.19 [*] | 3.46 ^{**} | 9.27 ^{***} | 78 ^{***} | 18.26 ^{**} |

MOE : module d'élasticité en flexion; MOR : module de rupture en flexion; ϵ_{\max} : déformation maximale; $R_{pf0.2}$: contrainte à la limite d'élasticité en flexion; E_T : module d'Young; σ_{\max} : contrainte maximale en traction; $\sigma_{p0.2}$: contrainte à la limite d'élasticité en traction; GM : gain massique; GE : gain en épaisseur *** : $\alpha \leq 0.001$; ** : $\alpha \leq 0.01$; * : $\alpha \leq 0.05$; NS: $\alpha \geq 0.05$

3.1.2 Études des propriétés rhéologiques capillaires des CBP à base de cellulose

3.1.2.1 Effet de la température sur la viscosité et la contrainte de cisaillement

La température a généralement un effet remarquable sur la viscosité apparente (Zimmermann et al. , 2005). Les figures 3.1.a, 3.1.b et 3.1.c montrent qu'il y a une diminution de la viscosité apparente avec une augmentation de température de 180 °C à 210 °C. Par exemple, pour des échantillons avec une teneur en fibres de cellulose de 50%, on note une diminution de la viscosité apparente à 210 °C par rapport à celle à 180 °C (Figure 3.1.a). Lorsque la température augmente, la viscosité du PP pur augmente beaucoup, tandis que cet effet est minime pour les PP renforcés à forte teneur en cellulose (Figure 3.3). Cette grande différence est perceptible due à l'augmentation de la fluidité de la matrice en fonction de la température (Zimmermann et al. , 2005). Ces résultats montrent que le polypropylène devient de plus en plus liquide en s'éloignant de la température de fusion (approximativement 170 °C) (Holbery et Houston, 2006).

La figure 3.2 montre qu'il y a une diminution de la contrainte de cisaillement apparente en fonction du taux de cisaillement. L'effet de la température sur la contrainte de cisaillement est très élevé à 50% de cellulose (Figure 2.a), tandis que cet effet est minime aux teneurs plus élevées (Figure 3.2.b et Figure 3.2.c). Ceci est probablement dû au comportement thermique de la cellulose ou au frottement fibre-matrice et non au comportement rhéologique du PP. Ces résultats sont en accord avec la littérature (Haddout et Villoutreix, 2000; Mnekbi Djebali, 2012).

Puisque les températures de début de dégradation de la cellulose et du PP sont supérieures à 260 °C, Sears et al. (2001) recommande d'utiliser une température d'injection plus haute que 180 °C afin de diminuer la viscosité. Ceci facilite la mise en forme des échantillons et le remplissage du moule.

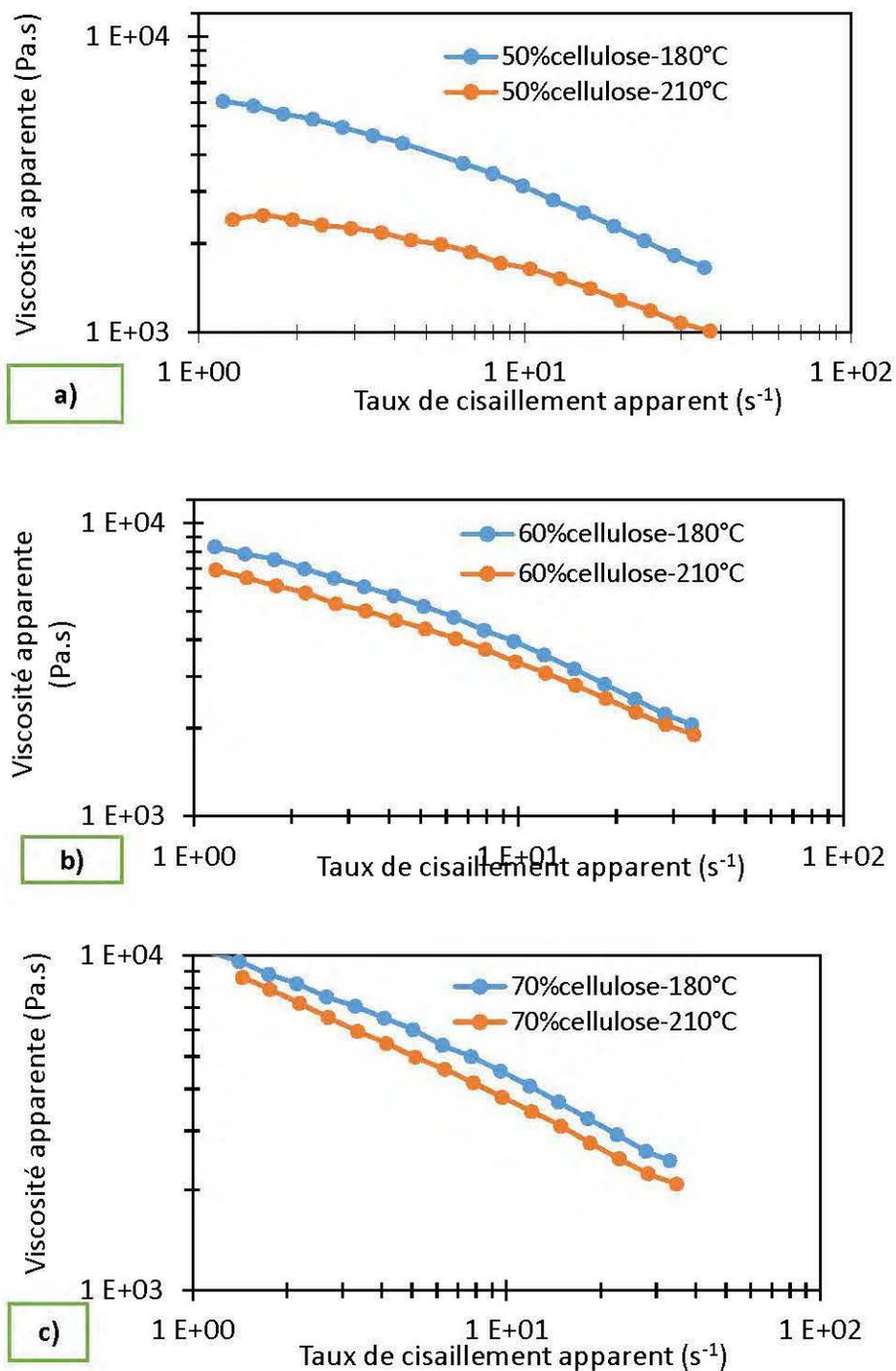


Figure 3.1 : Effet de différentes températures sur la viscosité apparente sur les CBP à base de a) 50% cellulose, b) 60% cellulose et c) 70% cellulose.

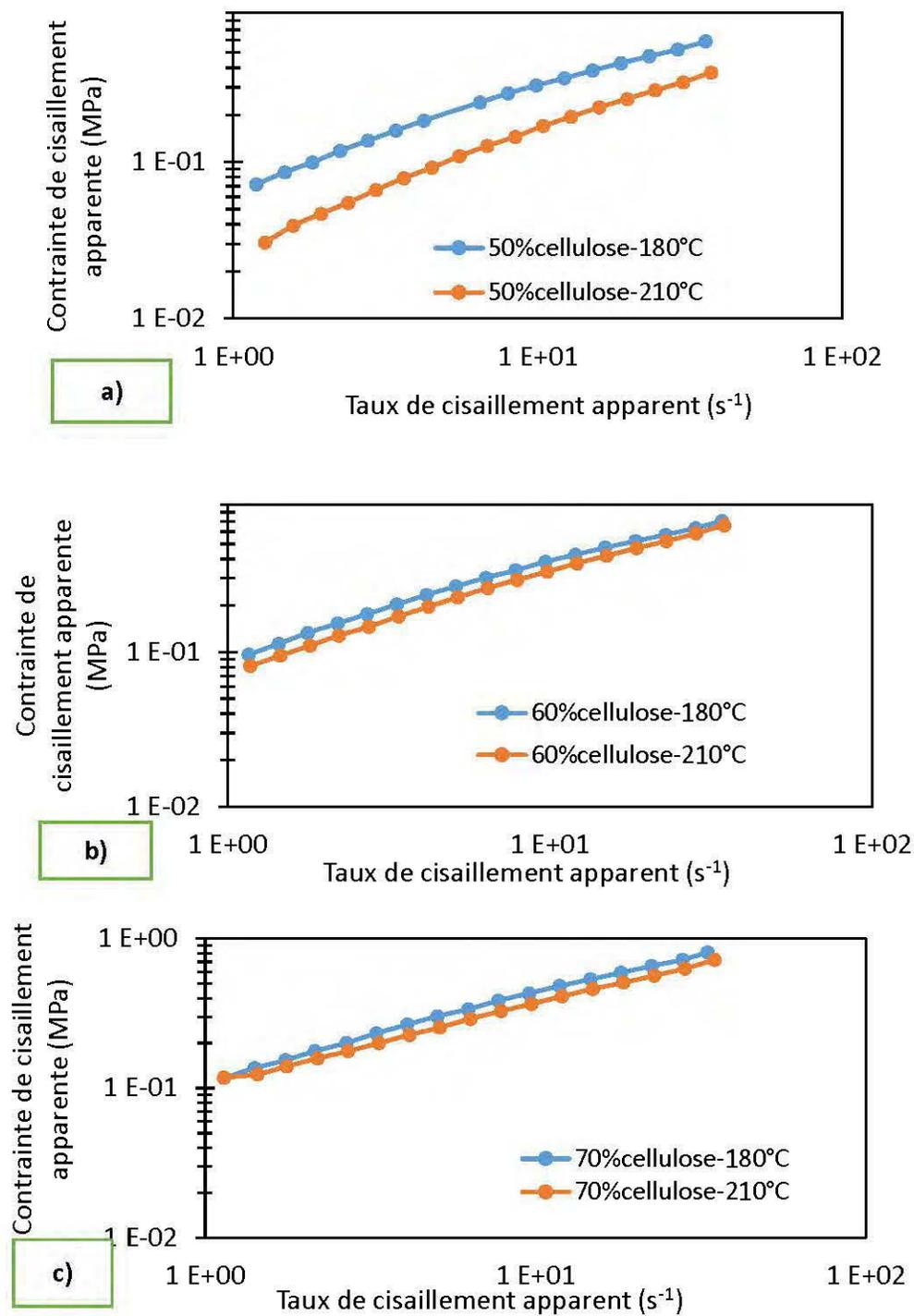


Figure 3.2 : Effet de différentes températures sur la contrainte de cisaillement apparente des CBP à base de a) 50% cellulose, b) 60% cellulose et c) 70% cellulose.

3.1.3.2 Influence de la proportion en fibres sur la viscosité et la contrainte de cisaillement

Les figures 3.3.a et 3.3.b montrent que l'ajout de fibres de cellulose jusqu'à une proportion de 70% génère une augmentation de la viscosité apparente. Par ailleurs, l'ajout de la cellulose augmente beaucoup la viscosité par rapport au PP pur. À titre d'exemple, l'ajout de la cellulose à des proportions entre 50% et 60% produit une grande augmentation de la viscosité (Figure 3.3.b). Ces observations sont en accord avec des recherches précédentes qui ont rapporté que plus la teneur en fibre est élevée, plus la viscosité est élevée parce que les masses fondues des PPs renforcés se comportent comme des fluides pseudo plastiques (Kiziltas et al., 2014; Wang et al., 2018). Ce comportement est attribué à l'empêchement du mouvement des chaînes macromoléculaires de la matrice par les fibres MCC (Kiziltas et al., 2014).

De plus, les figures 3.4.a et 3.4.b montrent que l'ajout de fibres de cellulose augmente la contrainte de cisaillement apparente. Par exemple, à 180 °C, on trouve une augmentation significative de la contrainte de cisaillement pour les composites ayant 50% de cellulose comparativement à ceux ayant 70% de cellulose (Figure 3.4.a). Généralement, la contrainte de cisaillement est rapportée être proportionnelle au taux de cisaillement qui lui, à son tour, dépend ultimement de la variation en teneur en bois et de la taille des particules (Li et Wolcott, 2005).

En guise de conclusion, la réussite du moulage par injection à de fortes teneurs en fibres nécessite une optimisation du procédé et des différents paramètres opératoires, telles que la granulométrie, la teneur en fibre, la température et la pression d'injection, ainsi que l'utilisation d'un lubrifiant (i.e. glycérine), pour faciliter la circulation des masses fondues dans le moule.

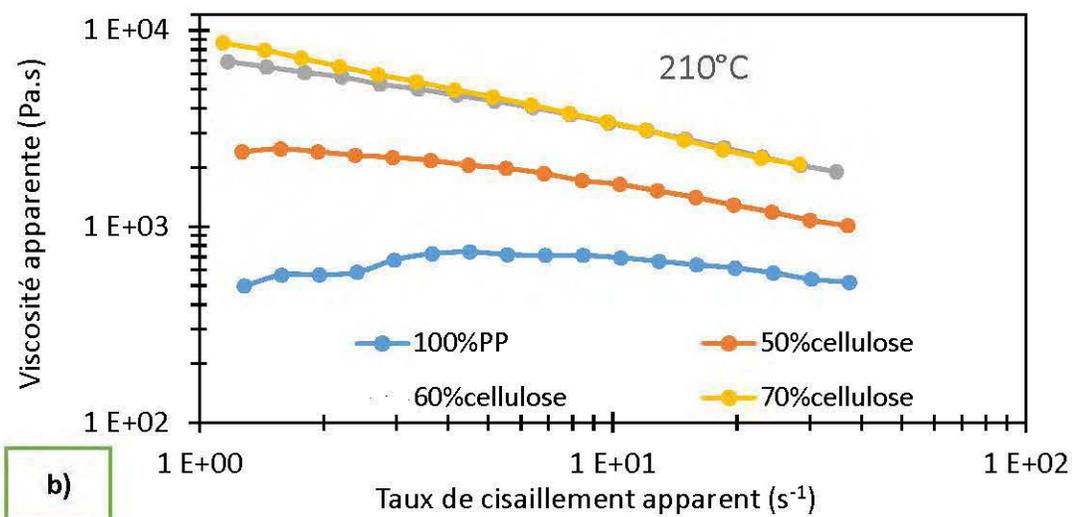
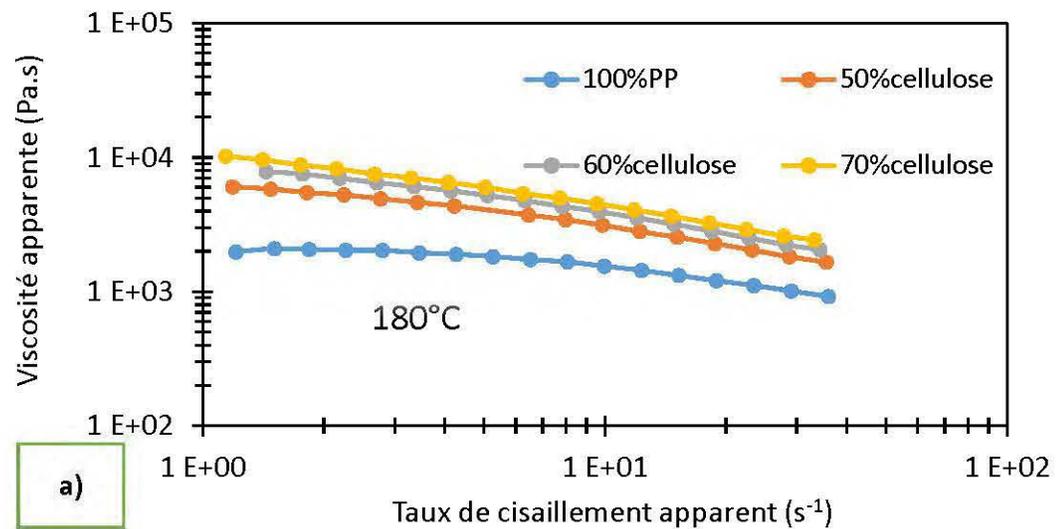


Figure 3.3 : Effet de la teneur en cellulose sur la viscosité apparente des CBP à
a) 180 °C et b) 210 °C.

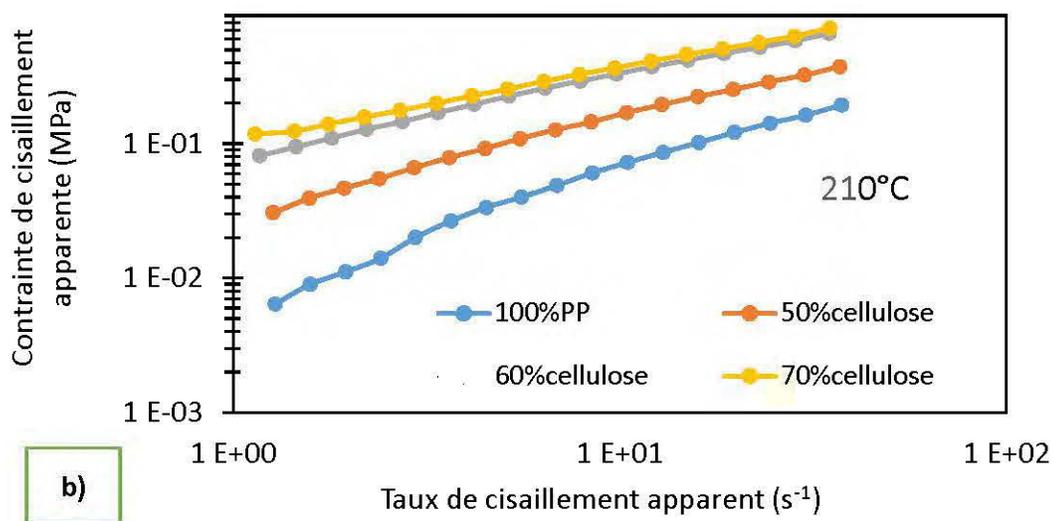
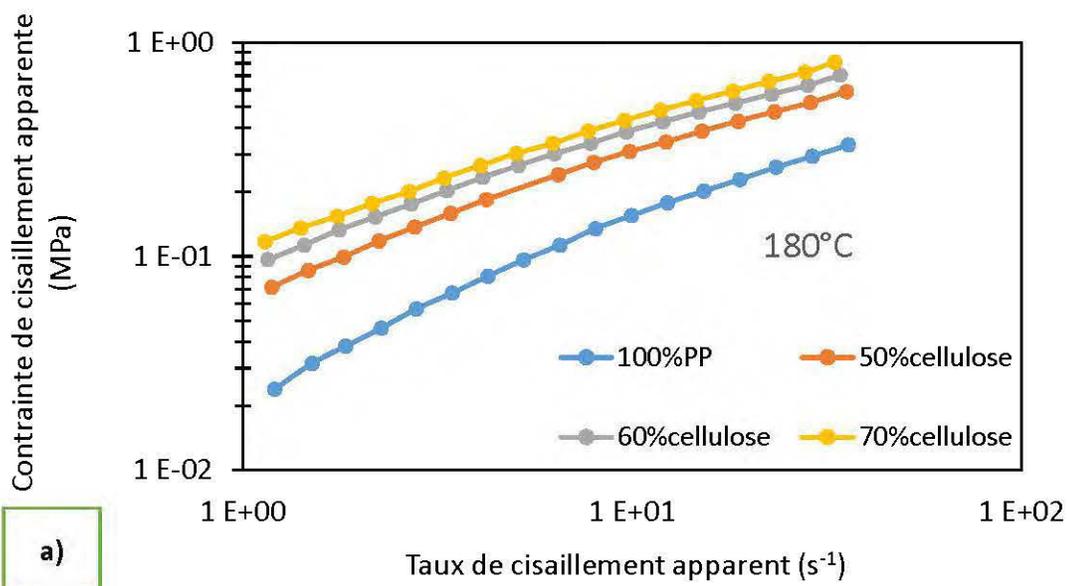


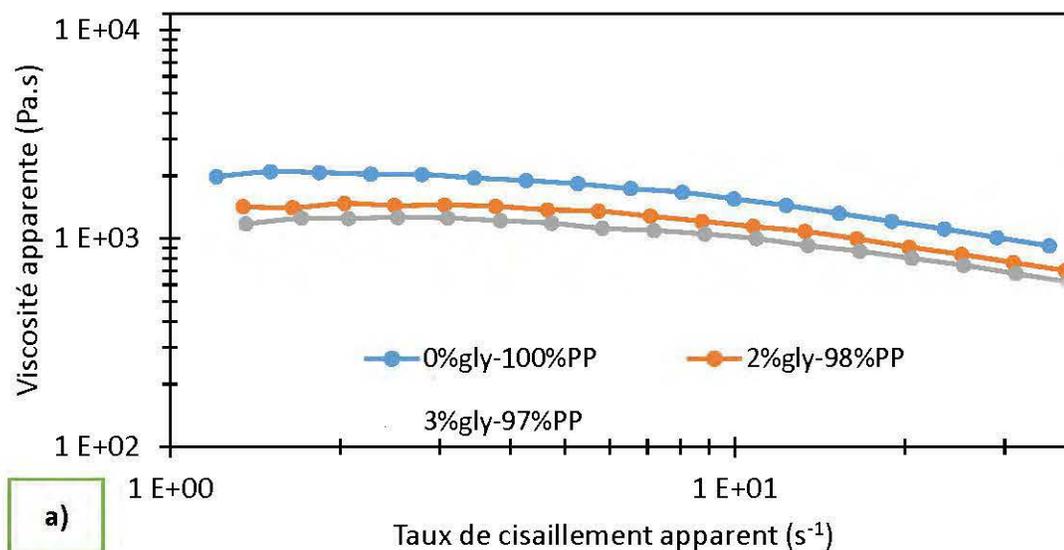
Figure 3.4 : Effet de la teneur en cellulose sur la contrainte de cisaillement apparente des CBP à a) 180 °C et b) 210 °C.

3.1.3.3 Effet de la glycérine sur la viscosité et la contrainte de cisaillement

L'ajout de la glycérine avec des teneurs en cellulose élevées diminue la viscosité apparente des mélanges pour tous les taux de cisaillement apparent (Figure 3.5.a et

Figure 3.5.b). Selon la littérature, la vitesse optimale de rotation des vis est 50 rpm (corresponds à un taux de cisaillement de l'ordre de 5.5 s^{-1}) (Joseph et al., 1999). À cette vitesse, on trouve que la viscosité des masses fondues 60cell/3gly est 14% plus faible que celle des masses fondues 60cell/0gly (Figure 3.5.b). Ces résultats sont en accord avec les travaux de Li et Wolcott (2006) qui ont suggéré que le lubrifiant diminue la viscosité (Li et Wolcott, 2006). Par ailleurs, Adhikary et al. (2010) ont montré que l'ajout de lubrifiant jusqu'à une teneur de 4% n'a pas d'effet majeur sur la viscosité apparente (Adhikary et al. , 2010).

À $210 \text{ }^\circ\text{C}$, l'ajout de la glycérine ne diminue pas la viscosité des masses fondues. Par exemple, la figure 3.6 montre que la viscosité apparente augmente malgré la présence de glycérine. Ceci peut être expliqué par l'évaporation de la glycérine.



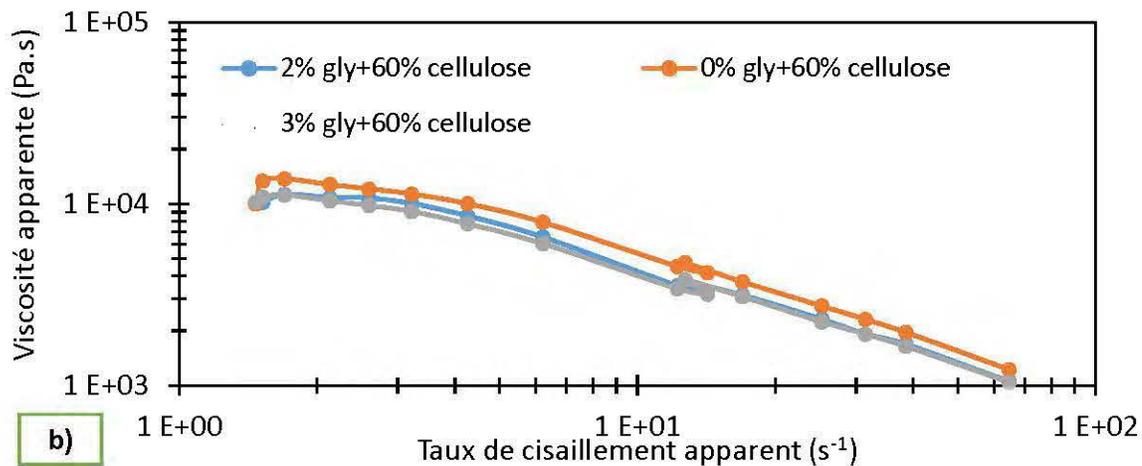


Figure 3.5 : Effet de la glycérine sur la viscosité apparente sur le PP (a) et sur des CBP renforcés avec 60% de cellulose (b) à 180 °C

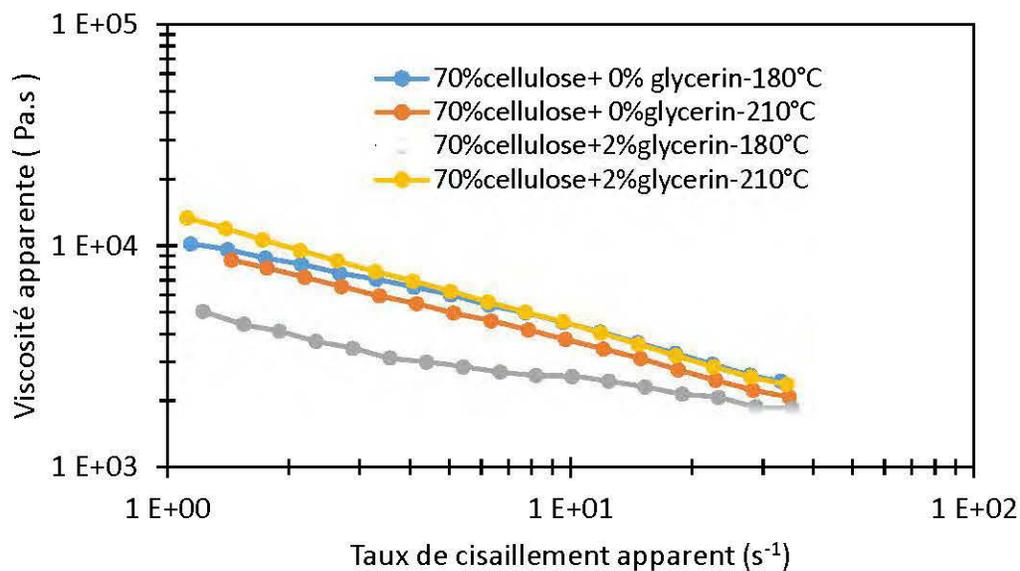


Figure 3.6 : Effet de la glycérine sur des composites renforcés avec 70% de cellulose à 180 °C et à 210 °C

3.1.3 Étude des propriétés thermiques : Analyse thermogravimétrique (TGA)

Pour cette étude, on a étudié la réaction des matières premières (cellulose, PP, MAPP et la glycérine) face aux températures élevées. D'après ces essais, on peut

constater que la glycérine se dégrade à 189 °C. Cette température de début de dégradation semble être la plus faible comparée aux autres matières premières (Figure 3.9). La courbe DTG (Figure 3.9) montre que la glycérine perd de la masse à partir de 30 °C et jusqu'à 220 °C, où une perte totale de masse a eu lieu. Ceci confirme l'hypothèse que la glycérine s'évapore lors de l'extrusion et du moulage par injection. Donc, lors de l'essai de la rhéologie capillaire à 210 °C, on n'a pas trouvé un effet remarquable de la glycérine sur les contraintes de cisaillement apparent et sur la viscosité aux différents taux de cisaillement. Les résultats obtenus pour le PP sont en accord avec la littérature (Bendahou et al. , 2007) (Figure 3.7). En ce qui concerne la courbe de cellulose (Figure 3.8), il y a une légère diminution en masse entre 100 °C et 150 °C par rapport au PP pur. Ceci s'explique par la présence d'eau résiduelle dans les fibres de cellulose qui est progressivement libérée au-dessus de 100 °C (Arrakhiz et al. , 2013). La plus haute température de début de dégradation est trouvée pour l'agent de couplage MAPP et est environ 410 °C (Figure 3.10).

En guise de conclusion, on peut dire que les températures élevées de début de dégradation de la cellulose, du PP et du MAPP permettent une température d'injection allant jusqu'à 300 °C. Par ailleurs, cette température crée une bonne fluidité des

masses fondues, ce qui facilite la mise en forme. Néanmoins, l'impact de cette température sur les propriétés mécaniques reste à vérifier.

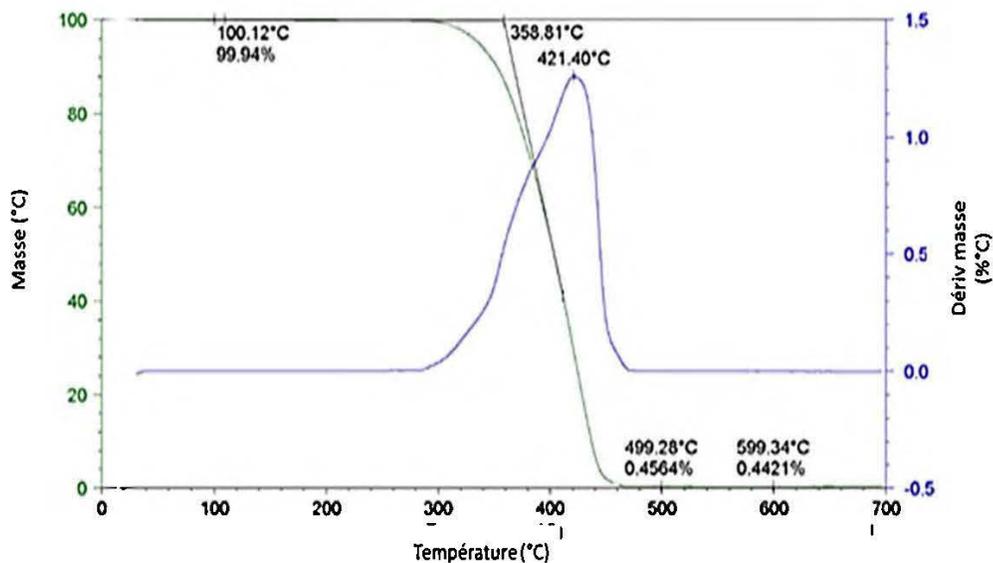


Figure 3.7 : Courbes de l'analyse thermogravimétriques (TGA) et de la dérivée thermogravimétrique (DTG) du polypropylène

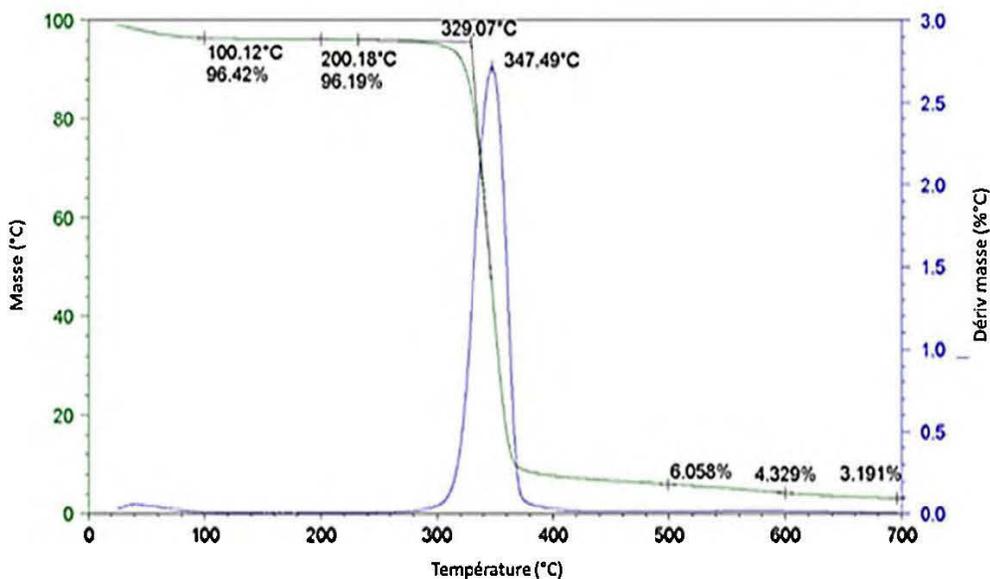


Figure 3.8 : Courbes de l'analyse thermogravimétriques (TGA) et de la dérivée thermogravimétrique (DTG) de la cellulose

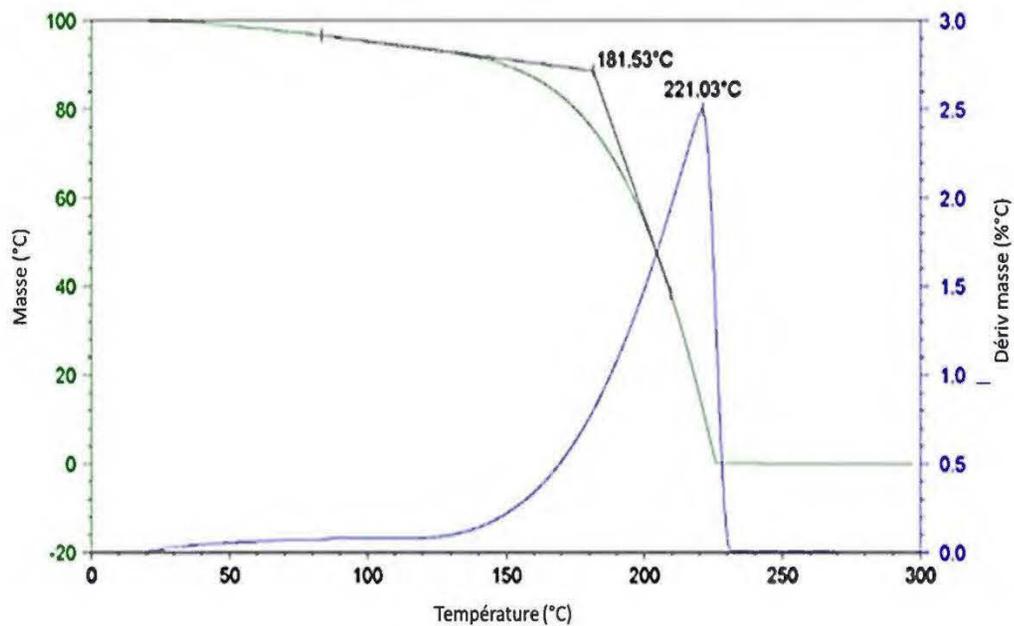


Figure 3.9 : Courbes de l'analyse thermogravimétriques (TGA) et de la dérivée thermogravimétriques (DTG) de la glycérine

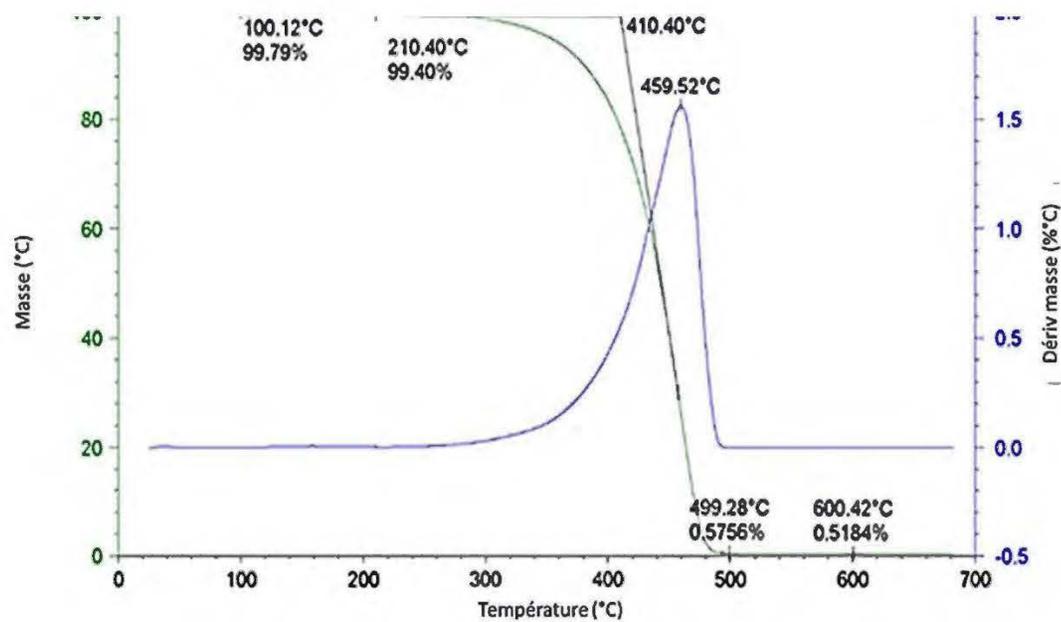


Figure 3.10 : Courbes de l'analyse thermogravimétriques (TGA) et de la dérivée thermogravimétriques (DTG) du MAPP

3.1.4 Étude des propriétés mécaniques : Traction et flexion

Les résultats des effets de la proportion de fibres et de la glycérine sur les propriétés mécaniques en traction sont présentés aux figures 3.11 à 3.15. Le module de Young augmente proportionnellement avec la teneur en fibres (Figure 3.11). Par exemple, il est cinq fois plus élevé à 70% de fibres qu'à 0% de fibres (5,1 GPa vs 1,1 GPa). Cette augmentation est expliquée par le remplacement de la matrice polymère molle par des fibres de bois plus rigides. En effet, le module de Young des fibres de résineux est presque 36 fois plus élevé que le module du PP (40 GPa vs 1,1 GPa) (Alanís et Kennedy, 2005; Mohanty et al. , 2005). Cependant, une bonne adhésion fibres-matrice est nécessaire pour augmenter la rigidité de la matrice (Klyosov, 2007). Cette adhésion est due à l'ajout du MAPP qui augmente la comptabilité entre les fibres polaires et la matrice apolaire. Ce résultat est en accord avec les études antérieures (Beg, 2007; Migneault et al. , 2011). Par exemple, l'incorporation de 3% de MAPE augmente le module de Young et la contrainte maximale (Migneault et al. , 2011). On constate aussi les mêmes augmentations des contraintes maximales (Figure 3.12) et de la limite d'élasticité ($R_{p 0,2}$) (Figure 3.13). Par exemple, les composites ayant une teneur en cellulose de 70% ont les contraintes maximales (35,8 MPa) et à limite d'élasticité (26,5 MPa) les plus élevées, comparativement au PP qui a les plus faibles contraintes (Figure 3.12 et Figure 3.13). La déformation à la rupture diminue fortement avec l'ajout de fibres de cellulose (Figure 3.14), ce qui est en accord avec des études antérieures (Vezeau, 2010; Mohanty et al. , 2005). Ceci est expliqué par le faible pourcentage d'allongement des fibres naturelles par rapport au thermoplastique. Par exemple, Mohanty et al. (2005) ont mesuré un allongement de 1,5% pour des fibres et de 8% pour des CBP (Mohanty et al. , 2005). La déformation maximale du PP est de 467%, 635% et 933% plus élevée que l'allongement des composites avec 50%, 60% et 70% de cellulose, respectivement (Tableau 3.2).

Tableau 3.2 : Déformation maximale en traction (avec écart-types entre parenthèses) des échantillons de PP et des CBP renforcés avec différentes teneurs en cellulose (50%, 60% et 70%)

| Proportion en fibres | Déformation maximale (%) |
|----------------------|--------------------------|
| 100% PP | 45,45(2,0) |
| 50% cellulose | 9,76(1,0) |
| 60% cellulose | 7,16(1,09) |
| 70% cellulose | 4,87(0,51) |

L'énergie de rupture en traction est inversement proportionnelle à la teneur en cellulose (Figure 3.15). Ceci est fortement lié à la diminution de l'allongement à la rupture. En effet, ce phénomène pourrait être expliqué par la forte teneur en fibres qui peut créer plus d'agglomérations de fibres dans la matrice (Ma et al. , 2008). Ces agglomérations sont des zones de faiblesse (appelées zone de concentration de contraintes) pour les composites (Amir et al. , 2009).

La figure 3.11 montre que l'ajout de la glycérine dans les CBP avec une proportion de 2% augmente légèrement le MOE. Cette différence est de 2% à 70% de cellulose par exemple. L'effet inverse, soit une diminution du MOE, est observé avec une teneur à 3% de glycérine. Par exemple, le MOE de 60cell/3gly est de 2% inférieur à celui de 60cell/0gly. Ces résultats en accord avec la littérature puisque les lubrifiants réduisent généralement le MOE, surtout lorsque la teneur dépasse 2% à 3% (Migneault et al. , 2011; Wolcott et al. , 2001).. Les figures 3.12 et 3.13 montrent que la contrainte maximale et la contrainte à la limite d'élasticité présentent les mêmes tendances que le module d'élasticité. L'ajout de glycérine diminue toutefois la déformation à la rupture (Figure 3.14) ainsi que l'énergie à la rupture (Figure 3.15).

Il est possible que la glycérine s'évapore après avoir joué son rôle comme lubrifiant. L'évaporation de la glycérine peut être due à la température élevée à l'extrusion et au moulage par injection (180 °C) (Erbas Kiziltas et al. , 2016; Kallakas

et al. , 2016). C'est pour cela que l'ajout de la glycérine n'a pas affecté les propriétés mécaniques.

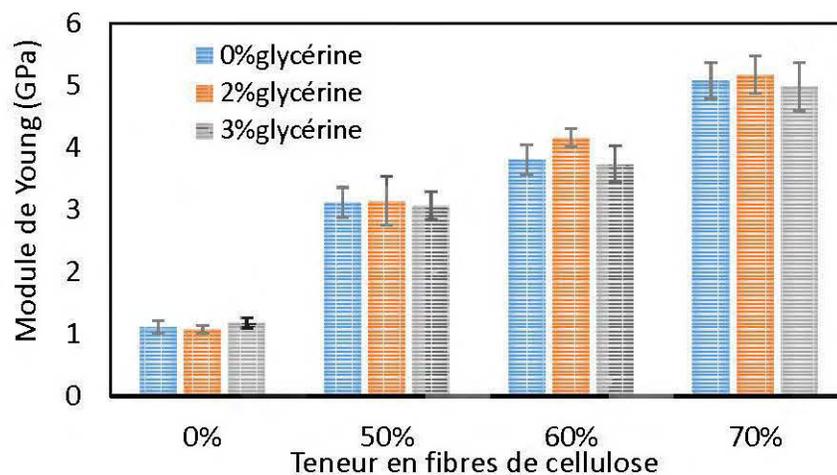


Figure 3.11 : Influence de la glycérine sur le module de Young en traction des CBP à base de cellulose

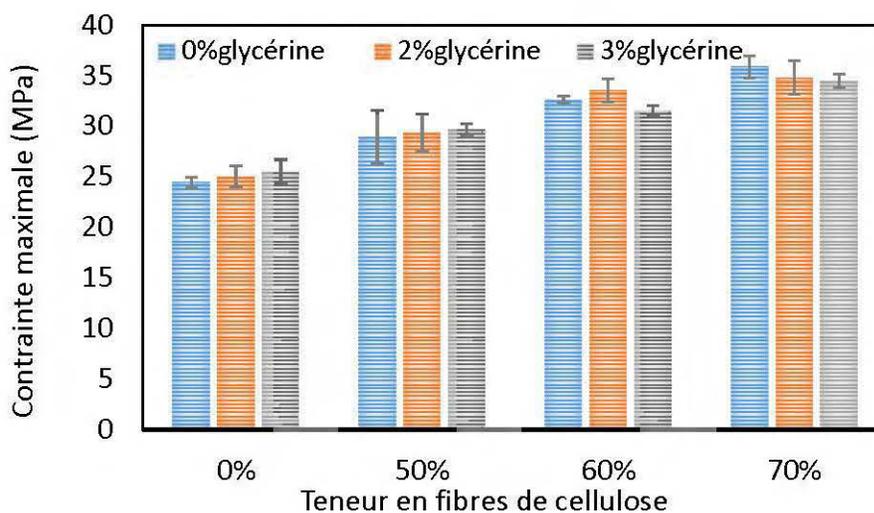


Figure 3.12 : Influence de la glycérine sur la contrainte maximale en traction des CBP à base de cellulose

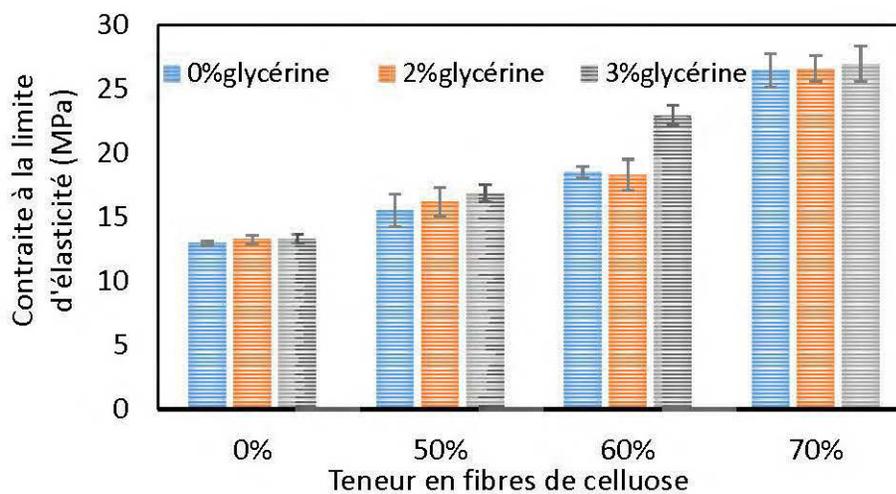


Figure 3.13 : Influence de la glycérine sur la contrainte à la limite d'élasticité en traction des CBP à base de cellulose

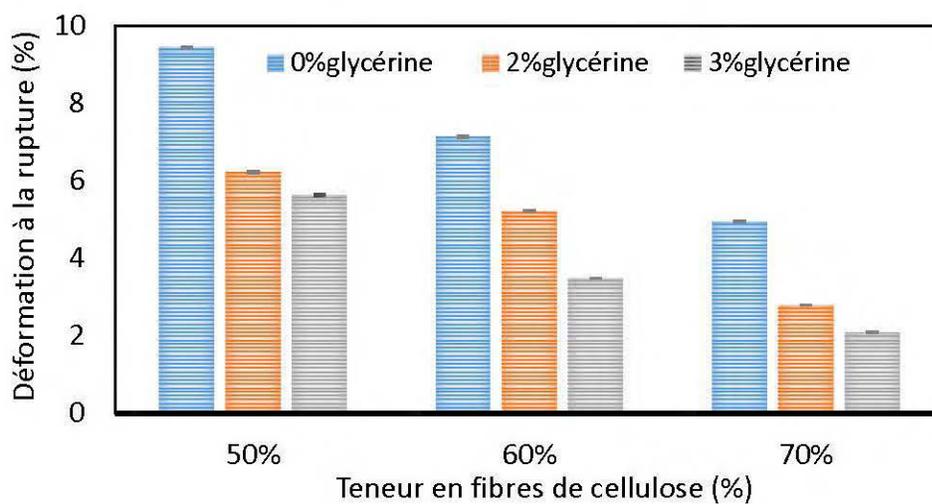


Figure 3.14 : Influence de la glycérine sur la déformation à la rupture en traction des CBP à base de cellulose

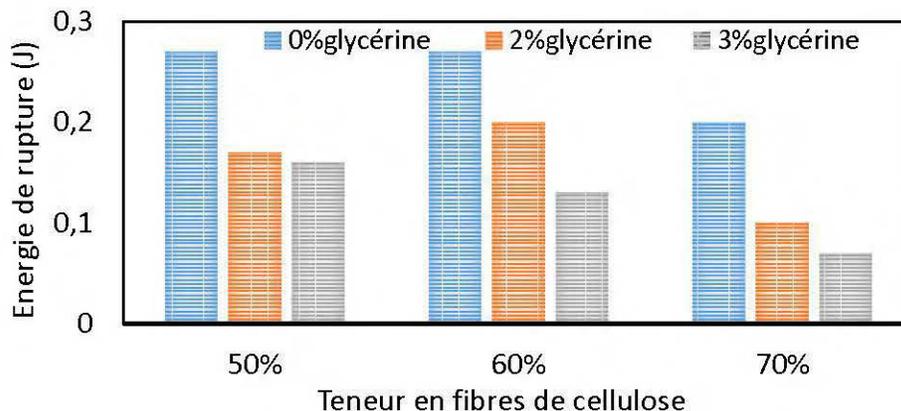


Figure 3.15 : Influence de la glycérine sur l'énergie appliquée jusqu'à la rupture en traction des CBP à base de cellulose

Les résultats des effets de la proportion de fibres et de la glycérine sur les propriétés mécaniques en flexion sont présentés aux figures 3.16 à 3.20. L'incorporation de la cellulose (50 microns) a un effet significatif sur les propriétés en flexion des CBP. Les composites avec une teneur en cellulose de 70% ont le MOE le plus élevé à 4,4 GPa. Cette augmentation est de 253% par rapport au PP. Un comportement similaire du module d'élasticité en flexion a été observé dans les études antérieures (Gosselin et al. , 2006; Mahfoudh, 2013). En effet, l'addition de farine de bois augmente le module d'élasticité en flexion de 97% avec une teneur en bois de 30% par rapport au HDPE pur (Mahfoudh, 2013). À la figure 3.18, on remarque une augmentation de la contrainte à la limite d'élasticité de 1,3 et 1,4 fois pour les composites à 70% et 60% de fibres de cellulose, respectivement, par rapport au PP. Aussi, la déformation diminue fortement en ajoutant les fibres de cellulose qui sont moins ductile que le thermoplastique (Figure 3.19). Cette constatation est en accord avec une étude réalisée par Vezeau (2010). L'énergie de déformation jusqu'à la force maximale augmente linéairement avec la teneur en fibres, de 4084 J/m², 5284 J/m² et 5617 J/m² pour des teneurs en fibres de cellulose de 0%, 50% et 60%, respectivement. Ceci confirme que l'énergie en flexion augmente proportionnellement avec l'augmentation de la teneur en fibres.

La figure 3.17 montre que l'ajout de la glycérine diminue légèrement le MOE à l'exception du 70cell/2gly où le MOE augmente de 8%. Les composites 70cell/3gly présentent une diminution de 6% par rapport aux composites 70cell/2gly. Ces observations sont corrélées avec la contrainte maximale (Figure 3.17) et la contrainte à la limite d'élasticité (Figure 3.18). L'ajout de la glycérine diminue aussi l'énergie et l'allongement jusqu'à la force maximale (Figures 3.19 et Figure 3.20).

Pour récapituler, l'ajout de la glycérine avec des fibres de cellulose peut diminuer les propriétés mécaniques, tout en abaissant la résistance des composites à cause de son effet plastifiant. Cependant, aucun effet significatif n'est observé pour une teneur en lubrifiant de 7% en poids (Adhikary et al. , 2010; Erbas Kiziltas et al. , 2016; Kers, 2016). Le module de traction diminue légèrement jusqu'à 5% de lubrifiant, puis augmente légèrement avec l'augmentation de la teneur en lubrifiant (Adhikary et al. , 2010; Erbas Kiziltas et al. , 2016; Kers, 2016). Les variations des valeurs de la résistance en traction et du module de Young avec les teneurs en lubrifiant peuvent être expliquées par les effets de mouillage et de répartition de la farine de bois, du lubrifiant et de l'agent de couplage (Adhikary et al. , 2010; Erbas Kiziltas et al. , 2016; Kers, 2016). La légère variation est probablement due à la mauvaise mouillabilité et à la dispersion des fibres plutôt qu'aux effets synergiques entre le lubrifiant et l'agent de couplage. La mauvaise liaison entre la matrice et la farine de bois, en raison d'un mouillage insuffisant, a probablement causé une faible résistance à la flexion sous une faible teneur en lubrifiant. La chute de poids moléculaire du thermoplastique avec la présence d'un lubrifiant de bas poids moléculaire a également aidé la diminution (Adhikary et al. , 2010; Erbas Kiziltas et al. , 2016; Kers, 2016). Par ailleurs, l'ajout de la glycérine à des teneurs allant jusqu'à 25% peut jouer le rôle de plastifiant, améliorant ainsi la ténacité et la ductilité des composites (Sreekumar et al. , 2013). Cependant, l'ajout de la glycérine à faibles teneurs a pour principal but de faciliter la circulation des masses fondues lors de la mise en forme (Adhikary et al. , 2010; Erbas Kiziltas et al. , 2016; Kers, 2016). Ce rôle peut être étudié avec l'évaluation des propriétés rhéologiques des masses fondues.

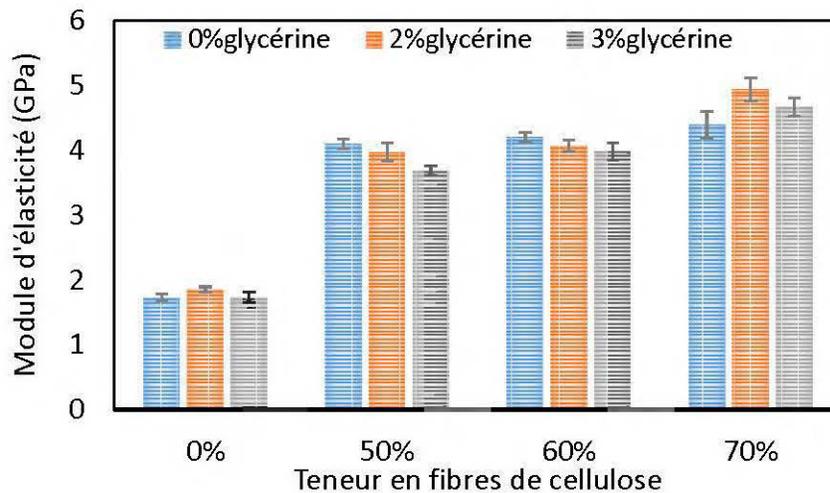


Figure 3.16 : Influence de la glycérine sur le module d'élasticité en flexion des CBP à base de cellulose

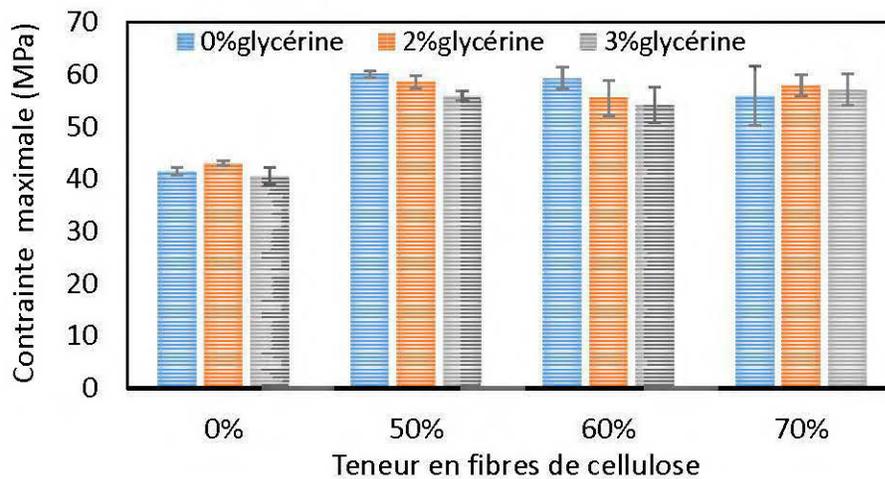


Figure 3.17 : Influence de la glycérine sur la force maximale en flexion des CBP à base de cellulose

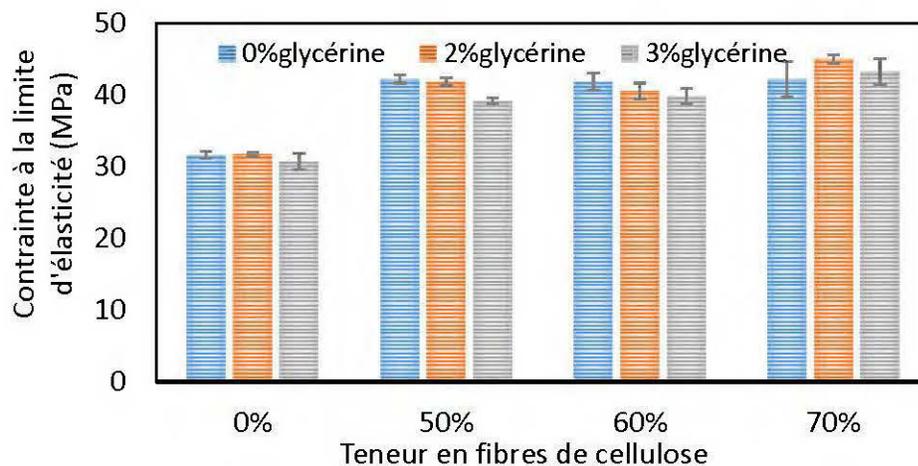


Figure 3.18 : Influence de la glycérine sur la contrainte à la limite d'élasticité en flexion des CBP à base de cellulose

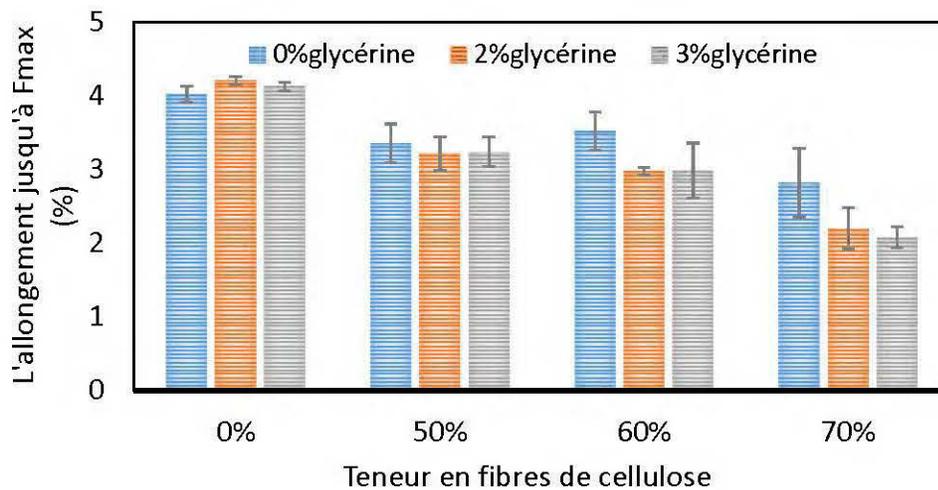


Figure 3.19 : Influence de la glycérine sur la déformation jusqu'à Fmax en flexion des CBP à base de cellulose

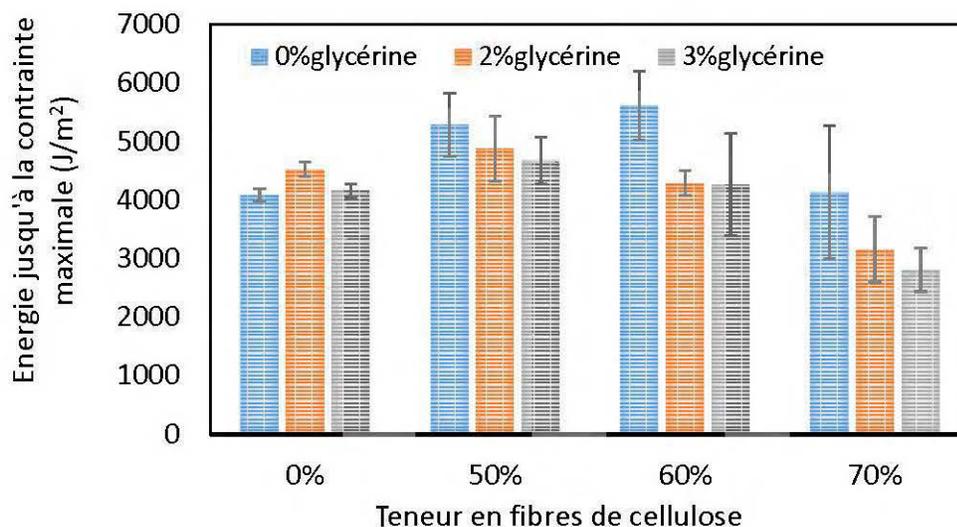


Figure 3.20 : Influence de la glycérine sur l'énergie appliquée jusqu'à la contrainte maximale en flexion des CBP à base de cellulose

3.1.5 Étude des propriétés physiques

L'influence de la glycérine et de la proportion en fibres sur le gain massique et volumique a été étudiée durant 576 heures d'immersion dans l'eau. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.3. Le gain en masse et le gain en épaisseur sont proportionnels à l'augmentation de la proportion en fibres (Tableau 3.3). Par exemple, les plus grands gains en masse et en volume ont été enregistrés pour les composites ayant 70% de cellulose. Cette augmentation est reliée au caractère hydrophile des fibres de bois (Espert et al. , 2004), contrairement au thermoplastique qui est hydrophobe (Joseph et al. , 2002). Aussi, en élaborant des composites, l'un des facteurs influençant les propriétés physiques des composites est l'homogénéité des mélanges. En effet, plus l'homogénéisation est importante, plus l'aptitude des composites à absorber de l'eau est faible. Par ailleurs, l'absorption de l'eau augmente proportionnellement avec l'ajout de la glycérine (Tableau 3.3). Le gonflement a atteint une valeur maximale avec une proportion de 3% de glycérine. Ces observations sont expliquées par le caractère hydrophile de la glycérine. Donc, la glycérine ne s'évapore pas totalement lors de l'extrusion et laisse quelques traces dans les composites, ce qui

favorise l'absorption d'eau. Une analyse FTIR a été réalisée pour mieux élucider l'impact de la glycérine et vérifier sa présence sur la surface des composites. La figure 3.21 montre qu'il n'y a aucune différence entre les composites avec ou sans glycérine, bien que la glycérine à caractère huileux ait tendance à occuper la surface. Ceci permet de confirmer l'hypothèse concernant l'évaporation éventuelle de la glycérine et/ou son piégeage à l'intérieur des composites, ce qui peut provoquer des vides à l'intérieur. Pour vérifier cette hypothèse, un test de la densité réelle à l'aide d'un picomètre à hélium a été réalisé. Les résultats montrent que l'ajout d'un lubrifiant provoque une légère augmentation de la densité réelle par rapport à celle sans lubrifiant. La masse volumique des échantillons 70cell/0gly est de 1319 kg/m^3 et elle augmente à 1367 kg/m^3 pour les échantillons 70cell/3gly. Selon Kumari et al. (2007), l'ajout d'un lubrifiant facilite la mise en forme et élimine des vides dans la pièce, ce qui mène à une augmentation de la densité des composites moulés par injection (Kumari et al., 2007). Ce résultat est en accord avec l'étude de Migneault (2007) qui suggère que la présence de lubrifiant augmente l'absorption d'eau.

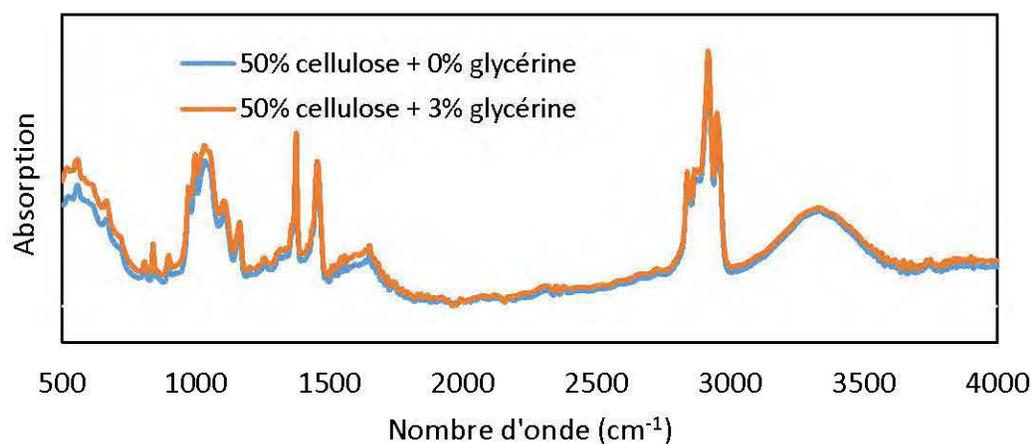


Figure 3.21 : Les spectres FTIR pour des composites ayant 50% de cellulose avec et sans glycérine

En résumé, on peut dire que le lubrifiant influence négativement la stabilité dimensionnelle et n'a pas d'effet significatif sur les propriétés mécaniques. Aussi, les résultats montrent que les composites renforcés avec 70% de cellulose gagnent de la rigidité, mais ils perdent par contre beaucoup de ductilité et de fluidité, ce qui empêche la mise en forme et cause des problèmes à l'injection.

Tableau 3.3 : L'effet de l'ajout de la glycérine dans les composites avec forte teneur en cellulose sur les propriétés physiques

| Teneur en fibres (%) | Teneur en glycérine (%) | Gain massique (%) | | | | Gain volumique (%) | | | |
|----------------------|-------------------------|----------------------------|------------|------------|------------|----------------------------|------------|------------|------------|
| | | Temps d'immersion (heures) | | | | Temps d'immersion (heures) | | | |
| | | 24 | 192 | 390 | 576 | 24 | 192 | 390 | 576 |
| 0 | 0 | 0 | 0,2 | 0,27 | 0,34 | 0 | 0,02 | 0,07 | 0,11 |
| | 2 | 0,3 | 0,64 | 0,71 | 0,91 | 0,19 | 0,5 | 0,74 | 0,93 |
| | 3 | 0,19 | 0,34 | 0,85 | 1,1 | 0,2 | 0,62 | 0,89 | 1,08 |
| 50 | 0 | 0,69(0,30) | 1,54(0,68) | 1,98(0,58) | 2,18(0,50) | 0,48(0,15) | 1,55(0,70) | 2,30(0,60) | 2,85(0,44) |
| | 2 | 0,73(0,32) | 1,68(0,55) | 2,14(0,48) | 2,60(0,20) | 0,62(0,26) | 2,05(0,53) | 2,94(0,50) | 3,62(0,47) |
| | 3 | 0,96(0,37) | 1,62(0,40) | 2,13(0,46) | 2,57(0,63) | 0,99(0,10) | 2,19(0,80) | 3,32(0,80) | 4,10(0,90) |
| 60 | 0 | 1,15(0,50) | 1,91(1,00) | 2,33(1,20) | 2,60(0,50) | 0,53(0,10) | 1,78(0,70) | 2,65(0,70) | 3,24(0,50) |
| | 2 | 1,17(0,58) | 2,62(0,60) | 3,68(1,20) | 4,46(1,00) | 0,88(0,25) | 2,98(0,87) | 4,26(0,90) | 5,17(0,70) |
| | 3 | 1,45(0,14) | 3,16(0,17) | 4,35(0,45) | 5,19(0,25) | 0,87(0,20) | 3,44(0,58) | 4,90(0,54) | 5,76(0,48) |
| 70 | 0 | 0,95(0,06) | 2,64(0,05) | 3,68(0,45) | 4,22(0,45) | 0,59(0,06) | 2,68(0,90) | 3,95(0,70) | 4,71(0,50) |
| | 2 | 1,33(0,40) | 3,95(0,85) | 5,56(1,40) | 6,27(1,10) | 1,21(0,12) | 4,44(0,43) | 6,23(0,27) | 7,22(0,21) |
| | 3 | 1,98(0,00) | 6,03(0,48) | 7,12(0,20) | 7,87(0,54) | 1,69(0,34) | 6,07(0,35) | 7,03(0,10) | 7,87(0,15) |

3.1.2 EFFET DU TYPE DE CELLULOSE SUR LES COMPOSITES PP RENFORCÉS AVEC DE FORTES TENEURS EN FIBRES

3.2.1 Résultats de l'analyse de variance

Les résultats de l'analyse de variance confirment que la teneur en fibres (B) influence de manière très significative ($\alpha = 0,001$) le comportement mécanique et la stabilité dimensionnelle des composites (Tableau 3.4). Le types de fibres (A) influence aussi d'une manière très significative les propriétés mécaniques et physiques des composites. L'effet de l'interaction entre les deux facteurs (A) et (B) est également significative pour toutes les propriétés mécaniques et physiques des composites (Tableau 3.4). L'ajout d'un agent de couplage MAPP (C) influence aussi d'une manière très significative les propriétés mécaniques en traction ainsi que les interaction (A) x (C) et (B) x (C) (Tableau 3.4).

Tableau 3.4: Résultats des analyses de variance ANOVA (valeur de F) concernant l'effet de type de fibre et l'effet d'un agent de couplage sur les propriétés mécaniques et physiques des CBP

| Source | Propriétés mécaniques | | | | | | Propriétés physiques | | | |
|-------------------------|-----------------------|---------------------|----------------------|---------------------|---------------------|----------------------|----------------------|---------------------|--------------------|--------------------|
| | Flexion 3 points | | | Traction simple | | | Impact | | GM | GE |
| | MOE | MOR | ε_{\max} | E_T | σ_{\max} | ε_{\max} | Énergie de rupture | Énergie d'impact | | |
| Type de fibre (A) | 1103 ^{***} | 1205 ^{***} | 196 ^{***} | 4271 ^{***} | 8026 ^{***} | 9,7 ^{***} | 64 ^{***} | 173 ^{***} | 422 ^{***} | 153 ^{***} |
| Proportion de fibre (B) | 143 ^{***} | 72,8 ^{***} | 79 ^{***} | 606 ^{***} | 252 ^{***} | 84,5 ^{***} | 46 ^{***} | 43,6 ^{***} | 134 ^{***} | 83 ^{***} |
| Proportion en MAPP (C) | - | - | - | 172 ^{***} | 3442 ^{***} | 110 ^{***} | 250 ^{***} | - | - | - |
| (A) × (B) | 0,2 ^{NS} | 15,5 ^{***} | 10,1 ^{***} | 14,7 ^{***} | 58 ^{***} | 3 ^{**} | 1,8 [*] | 4 ^{***} | 4,6 [*] | 44 ^{**} |
| (A) x (C) | - | - | - | 5,4 ^{***} | 89,7 ^{***} | 2,4 [*] | 7,5 ^{**} | - | - | - |
| (B) x (C) | - | - | - | 11,8 ^{***} | 19,1 ^{***} | 4,2 [*] | 5,4 [*] | - | - | - |

MOE : module d'élasticité en flexion; MOR : module de rupture en flexion; ε_{\max} : déformation maximale; $R_{pf0.2}$: contrainte à la limite d'élasticité en flexion; E_T : module d'Young; σ_{\max} : contrainte maximale en traction; $\sigma_{p0.2}$: contrainte à la limite d'élasticité en traction; GM : gain massique; GE : gain en épaisseur *** : $\alpha \leq 0.001$; ** : $\alpha \leq 0.01$; * : $\alpha \leq 0.05$; NS: $\alpha \geq 0.05$

3.2.2 Étude des propriétés thermiques :TGA

Les figures 3.22 et 3.23 présentent les courbes TGA et DTG des matières premières. Les courbes de TGA peuvent être divisées en trois parties. La première plage de température est de 30 °C à 200 °C. Dans cette partie, une perte en masse maximale de 8% est remarquée. La deuxième étape de 200 °C jusqu'à 400 °C provoque une perte de plus de 90%, 85%, 75% et 55% en poids pour les fibres MCC, kraft, d'érable et torréfiées, respectivement. L'étape finale s'étend jusqu'à la température finale de 700 °C et démontre une perte en poids de plus de 97% pour les fibres MCC. Cette répartition des phases est semblable à celle trouvée dans l'étude de Kiziltas et al. (2014). La cellulose décomposée passe à travers deux réactions parallèles ou compétitives: (1) en dessous de 280 °C, la formation de carbone, d'H₂O et de gaz permanent (CO, CO₂, etc.) et (2) au-dessus de 280 °C, la formation de lévoglucosan (Kiziltas et al. , 2014). La perte initiale associée à des températures inférieures à 200 °C est due à la libération d'eau (humidité) ou d'autres substances volatiles des fibres.

La température de dégradation initiale des fibres MCC approche 320 °C et une perte totale en poids de 97% est associée à une température plus haute que 450 °C. Ceci montre que la masse résiduelle des fibres MCC ne représente que 3% compte tenu de la pureté des fibres MCC. La figure 3.23 montre aussi la présence d'un pic de décomposition à 330 °C. Ceci prouve la présence d'une décomposition complète dans la plage de température de 275 °C et 375 °C de la courbe DTG.

La température de début de dégradation des fibres kraft et torréfiée est approximativement 300 °C. La décomposition a lieu dans une plage de température plus large, allant de 250 °C à 380 °C dans les courbes de DTG.

Initialement, une perte de poids est observée à une température supérieure à 50 °C pour les fibres d'érable. Ce phénomène est dû principalement à l'élimination de l'humidité et des composés volatils. Ensuite, une deuxième perte de poids est observée

à partir de 150 °C suite à la dégradation thermique de l'hémicellulose. Enfin, la majeure partie de la dégradation thermique a lieu à partir de 300 °C. Ceci est lié à la dégradation de la cellulose et de la lignine (Koay et al. , 2018). Par ailleurs, la décomposition de la cellulose et de la lignine a produit une grande quantité de résidus (15%). Pour les courbes de DTG, on remarque deux plages de températures : la première est de 200 °C jusqu'à 300 °C et est associée à la dégradation de l'hémicellulose, tel que mentionné ci-dessus. La deuxième plage correspond à l'intervalle 300 °C jusqu'à 400 °C et est liée à la dégradation de la cellulose et de la lignine.

L'étude de TGA a montré que les fibres MCC ont une plus grande stabilité thermique que les autres fibres. Les fibres kraft et les fibres torréfiées ont des résistances thermiques similaires tandis que les fibres d'érable ont une faible résistance thermique. La haute stabilité thermique des fibres kraft et MCC est expliquée par l'absence de la lignine et des hémicelluloses.

Les figures 3.24, 3.25, 3.26 et 3.27 montrent l'apparition d'un nouveau pic dans la deuxième plage de température de 200 °C à 500 °C. Pour les CBP, les courbes TGA et DTG sont divisées en 4 phases : La première se situe dessous 200 °C et correspond à une perte en masse suite à la vaporisation de l'eau et la dégradation de quelques substances volatiles. La deuxième se situe entre 200 °C et 350 °C et présente une perte de masse liée à la dégradation des renforts tel que discuté ci-dessus. La nouvelle phase correspond à une plage de température de 350 °C à 500 °C. Cette partie est liée directement à la dégradation du polymère ayant une température de début de dégradation à 420 °C, plus haute que celle utilisée pour les renforts naturels. Au-delà de 500 °C, aucun changement au n'a été détecté.

Les figures de TGA (Figure 3.26) et DTG (Figure 3.27) montrent que les composites à base de fibres MCC sont les composites les plus stables thermiquement avec la température de début dégradation la plus haute à 330 °C. Cette stabilité est due aux fibres MCC. L'élaboration des composites n'a pas influencé le classement de

stabilité mentionné auparavant. On peut conclure que, pour l'utilisation des fibres kraft, MCC et torréfiées dans des composites, les températures d'injection peuvent être de l'ordre de 260 °C. De même, l'application d'une très haute température engendre une fluidité très élevée, requise pour injecter ces produits facilement.

Après avoir testé l'effet du type de fibres sur les propriétés thermiques des composites, on s'intéresse à l'effet de la proportion de fibres sur les propriétés thermiques des composites. Les figures 3.28, 3.29 et 3.30 ne montrent aucune différence pour les températures de dégradation et les mêmes quatre phases sont à nouveau observées. La seule différence a été remarquée pour la masse perdue lors de l'essai de TGA. Par exemple, les composites avec 60% de fibres kraft perdent 50% de leur poids initial à 350 °C, tandis que ceux avec 51% de fibres kraft ne perdent que 40% de leur poids initial. Cette observation peut être expliquée par la différence de la quantité de renfort et de PP disponible dans chaque échantillon. Le même résultat est obtenu avec les composites à base de fibres d'érable (Figure 3.29) et de MCC (Figure 3.30).

Il en résulte que les composites à base de fibres MCC sont les plus stables thermiquement et l'injection sera possible à des températures plus élevées, allant jusqu'à 300 °C, ce qui engendre une bonne fluidité pour les masses fondues et un bon remplissage du moule malgré la haute teneur en fibres.

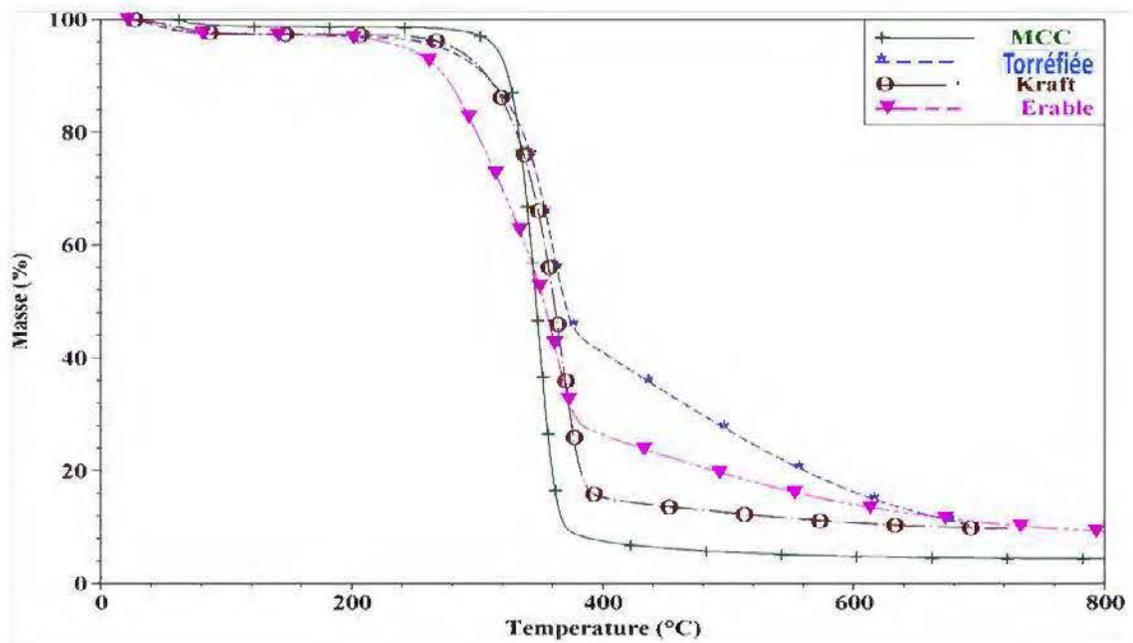


Figure 3.22 : Courbes des analyses thermogravimétriques (TGA) des fibres d'érable, des fibres kraft, des fibres torréfiées et de MCC

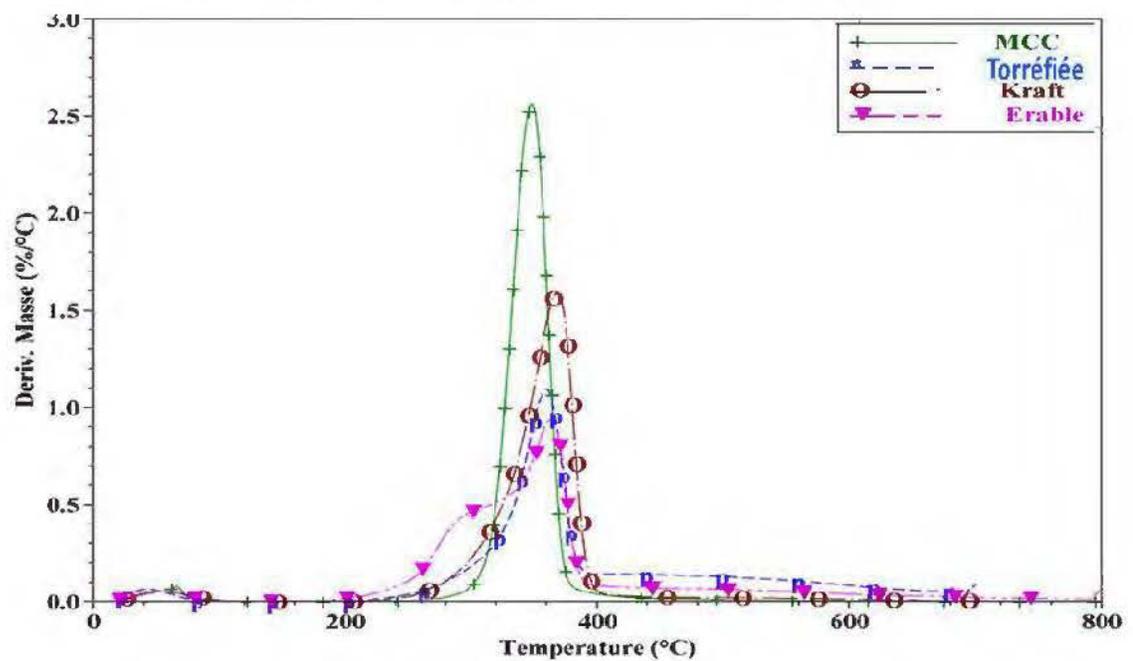


Figure 3.23 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des fibres d'érable, des fibres kraft, des fibres torréfiées et de MCC

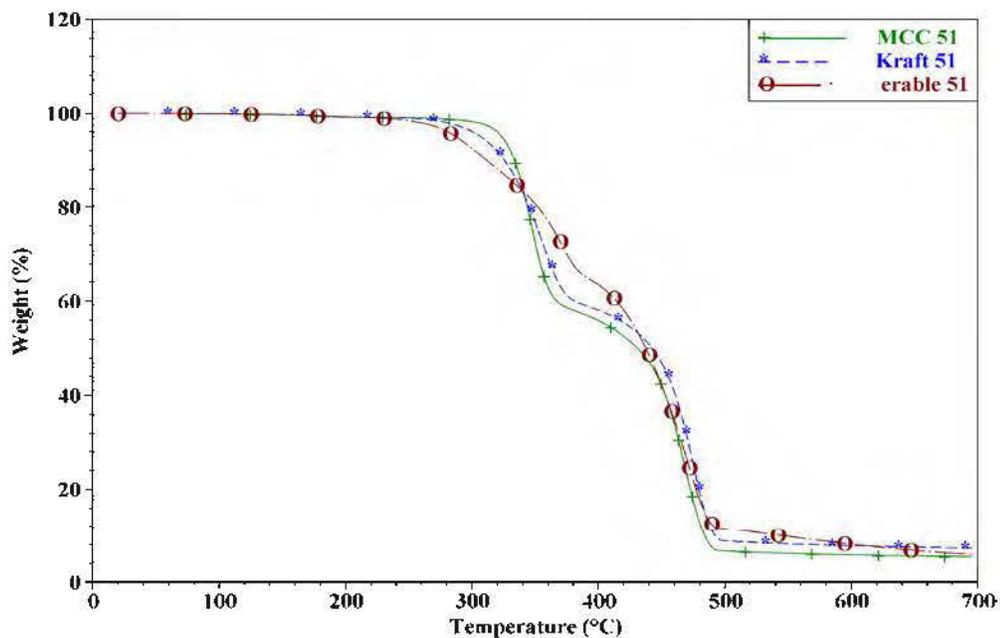


Figure 3.24 : Courbes des analyses thermogravimétriques (TGA) des composites renforcés avec 51% de fibres

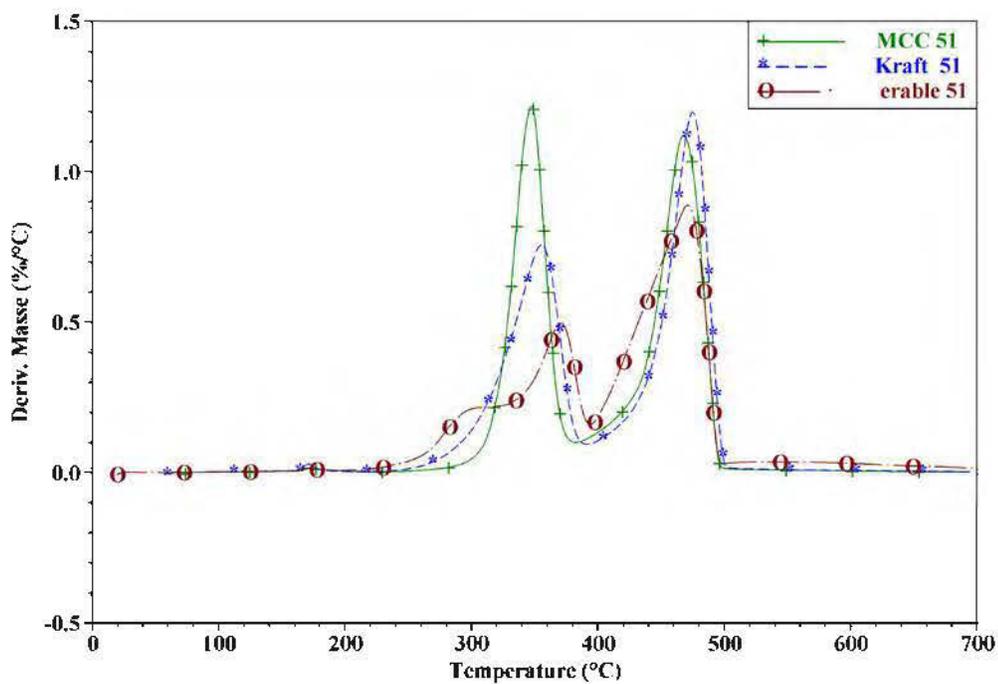


Figure 3.25 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des composites renforcés avec 51% de fibres kraft, CMC et d'érable

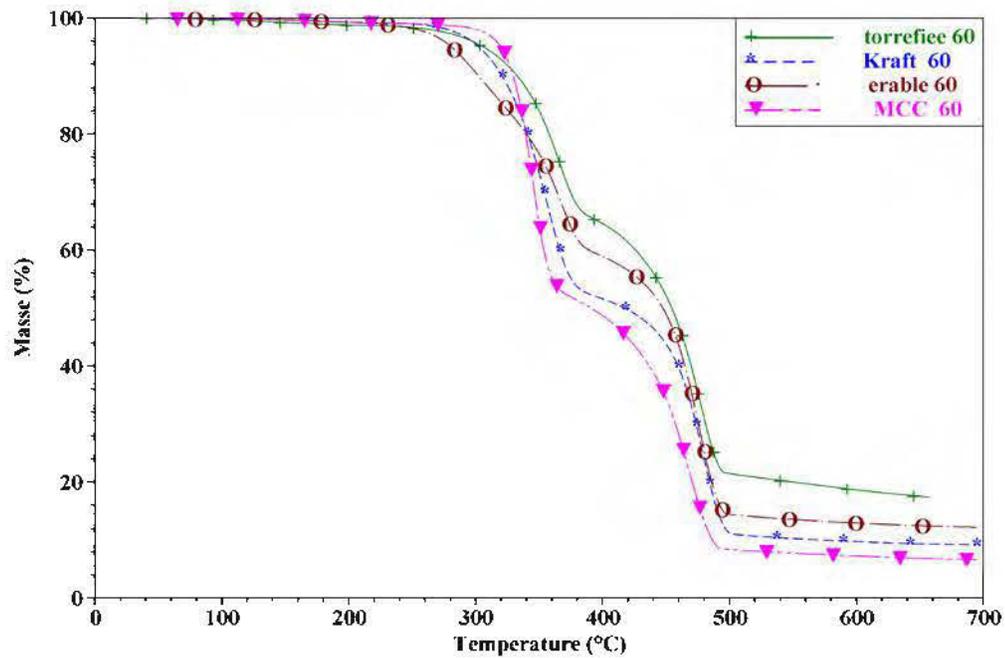


Figure 3.26 : Courbes des analyses thermogravimétriques (TGA) des composites renforcés avec 60% de fibres kraft, CMC et d'érable

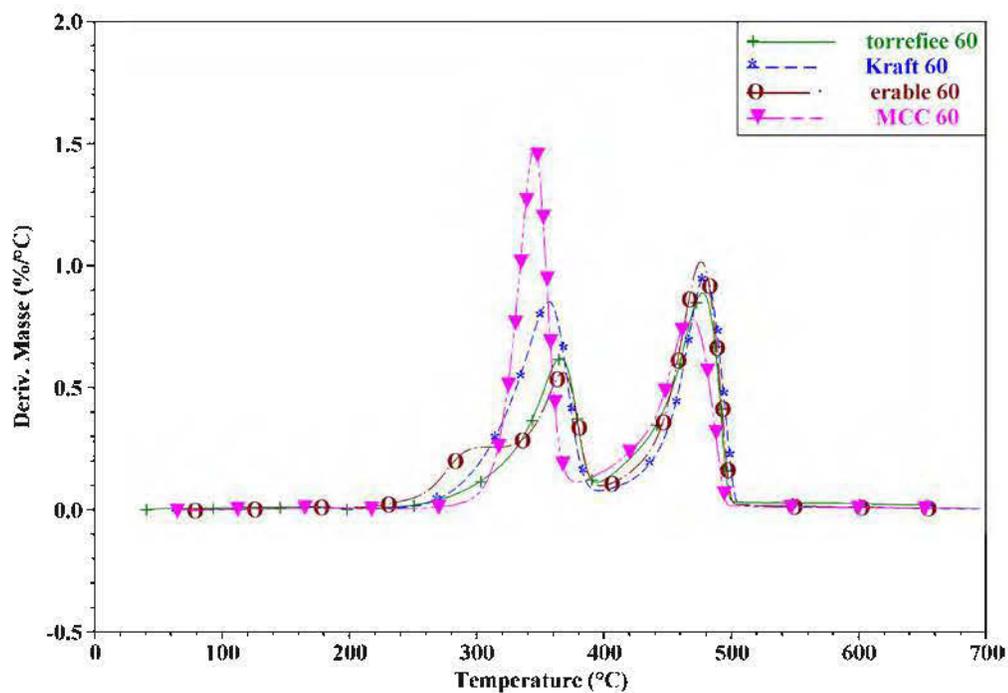


Figure 3.27 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des composites renforcés avec 60% de fibres kraft, CMC et d'érable

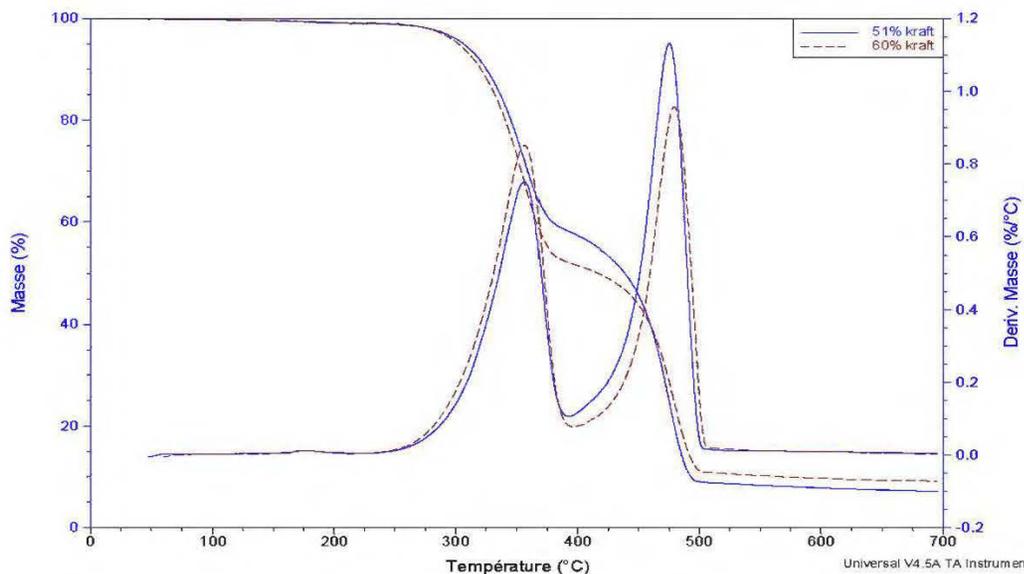


Figure 3.28 : Courbes de l'analyse thermogravimétriques (TGA) et de la dérivée thermogravimétriques des échantillons du PP renforcé avec 51% et 60% de kraft

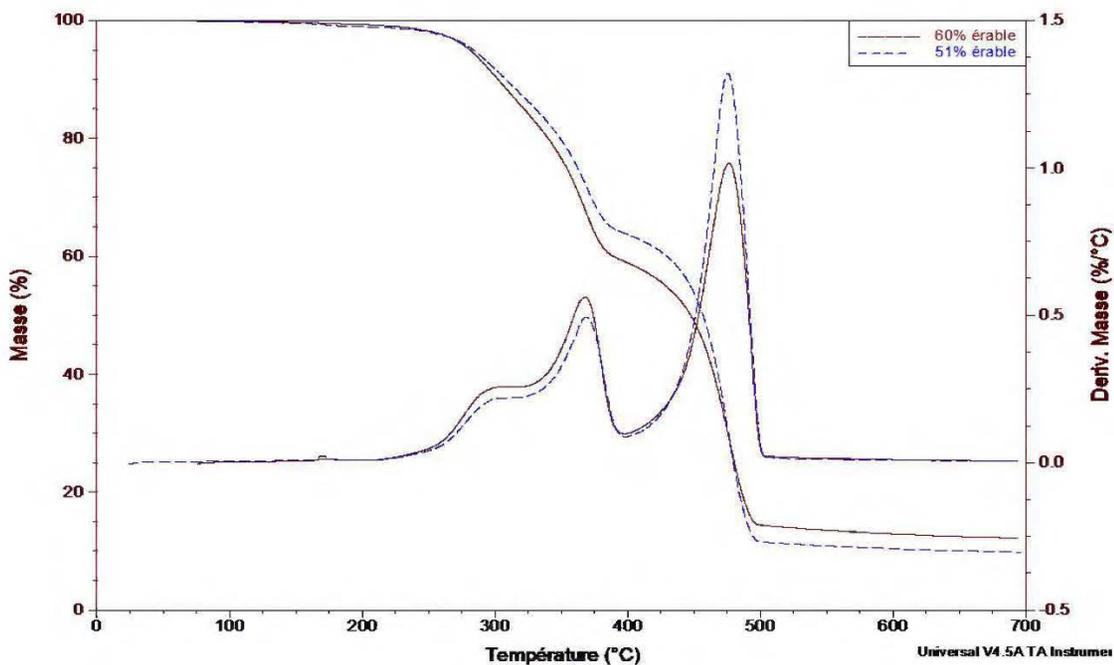


Figure 3.29 : Courbes de l'analyse thermogravimétriques (TGA) et de la dérivée thermogravimétriques des échantillons du PP renforcé avec 51% et 60% d'érable

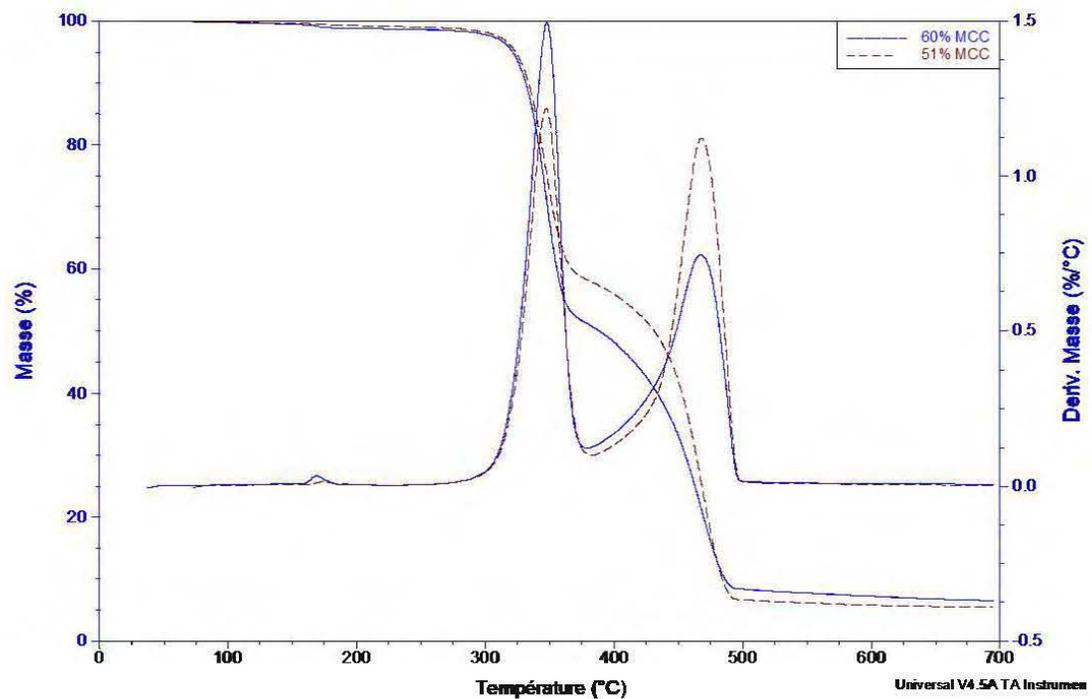


Figure 3.30 : Courbes de l'analyse thermogravimétriques (TGA) et de la dérivée thermogravimétriques des échantillons du PP renforcé avec 51% et 60% de MCC

3.2.3 Étude des propriétés rhéologiques des CBP avec haute teneur en fibres

Les figures 3.31 et 3.32 illustrent les différents profils de viscosité des masses fondues étudiées lors de cette étude. Quelle que soit la vitesse utilisée lors de l'essai, le PP est toujours plus fluide que les composites. Généralement, les vitesses utilisées au cours de l'extrusion sont entre 40 et 70 rpm (révolution par minute) (Joseph et al., 1999). Cette valeur limite (70 rpm) nous permet de diviser les figures en deux parties : une partie à faible vitesse, de 10 jusqu'à 70 rpm, et une autre à haute vitesse, de 70 jusqu'à 360 rpm. Dans la présente étude, on s'intéresse seulement à la plage des vitesses 10-70 rpm. Lors des faibles vitesses de traitement, la figure 3.31 montre que les composites à base de fibres MCC sont plus fluides que les autres composites. Cela peut être expliqué (i) par la structure cubique régulière des fibres MCC qui est responsable de la bonne circulation des fibres et (ii) par le facteur de forme L/D car

plus L/D augmente, plus la viscosité augmente (Migneault, 2007). Les composites à base de fibres kraft sont peu fluides par rapport à ceux renforcés avec des fibres d'érable. Le comportement visqueux peut être attribué à l'orientation des chaînes moléculaires rigides de la cellulose, qui perturbe la formation des chaînes du PP dans le composite et le degré d'interaction entre fibres et la matrice, qui provoque une contrainte de cisaillement plus élevée lors de l'essai (Kiziltas et al. , 2014). La présence de lignine, qui joue le rôle d'une colle entre la cellulose et l'hémicellulose, peut freiner l'écoulement du composite à base de fibres d'érable.

La figure 3.32 montre les mêmes constatations tirées précédemment. Les fibres MCC sont un peu plus fluides que les fibres kraft, qui sont aussi plus fluides que les fibres d'érable. Les fibres torréfiées donnent le composite ayant le profil de viscosité le plus élevé. Ceci est expliqué par (i) la forme irrégulière de ces fibres; (ii) la température utilisée lors de la pyrolyse rapide puisque des études antérieures ont montré que plus la température de la pyrolyse est élevée, plus le couple de stabilisation qui est lié directement à la viscosité augmente (Ayadi, 2018; Zhang et al. , 2007); (iii) les résultats de DSC ont montré que l'ajout des fibres torréfiées ou des fibres d'érables comme renfort aux PP augmentent le taux de cristallinité puisque ces fibres jouent un rôle de nucléation pour le PP. Ceci peut provoquer plus de contrainte de cisaillement lors du traitement ce qui augmente la viscosité.

On conclut que les masses fondues à base de fibres MCC ont une meilleure fluidité par rapport aux autres fibres utilisées dans cette étude. Donc, la fluidité et la stabilité thermique des composites à base de fibres MCC expliquent son choix pour l'injection à de fortes teneurs en fibres, allant jusqu'à 70%. On sait bien que les propriétés mécaniques des composites à base de fibres de cellulose microcristalline sont médiocres par rapport aux fibres kraft, mais ceci peut être corrigé par l'ajout des additifs pour améliorer leurs performances mécaniques.

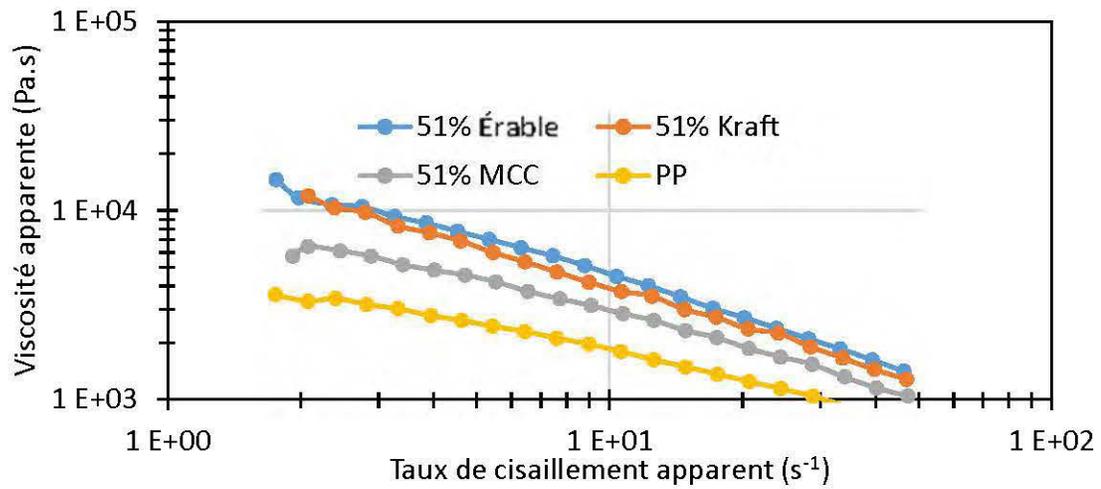


Figure 3.31 : Effet du type de fibres sur la viscosité apparente du PP chargé de 51% de fibres de kraft, d'érable et de MCC

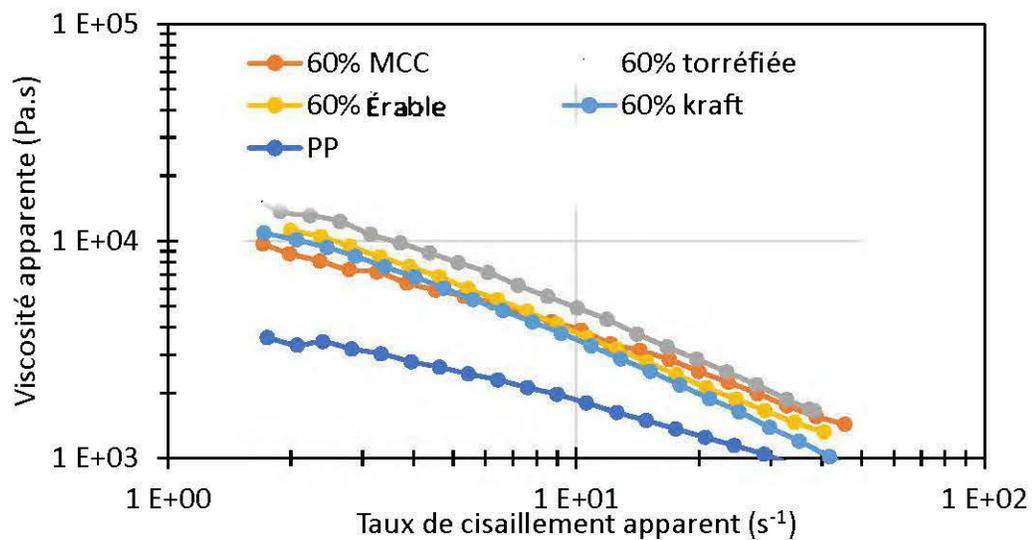


Figure 3.32 : Effet du type de fibres sur la viscosité apparente du PP chargé de 60% de kraft, d'érable, de torréfiée et de MCC

3.2.4 Étude des propriétés thermiques par calorimétrie à balayage différentiel

Les pics de chauffage et de refroidissement ont été obtenus au cours de l'essai de calorimétrie à balayage différentiel durant le cycle de chauffage ou de refroidissement avec une vitesse de 5 °C/min. L'enthalpie de fusion de PP 100% cristallin est 209 J/g (Xin et Li, 2012). Le tableau 3.5 et la figure 3.33 montrent qu'il n'y a pas de différence significative des températures de fusion entre le PP et les composites fortement renforcés en fibres et entre les composites eux-mêmes. Les températures de fusion sont toutes aux alentours de 169 °C. Par contre, on remarque une grande différence dans l'enthalpie de fusion. Le PP pur a l'enthalpie de fusion la plus grande (109,9 J/g). Les résultats montrent que les enthalpies de fusion des composites varient selon le type de fibres. Les composites ayant 60% de fibres torréfiées ont la plus haute enthalpie de fusion (43,22 J/g) et les composites à base de fibres kraft ont l'enthalpie de fusion la plus basse (34,43 J/g). Par ailleurs, le taux de cristallinité est directement lié aux enthalpies de fusion. On remarque que le taux de cristallinité du PP est de 53,09%. L'ajout de quatre types de fibres au PP a provoqué deux différents phénomènes : (1) une augmentation de 5% de taux de cristallinité par rapport au PP. Cela peut être expliqué par la température élevée appliquée aux fibres durant la pyrolyse (400 °C), ce qui engendre la disparition d'un grand nombre de régions amorphes dans les fibres de bois (Ayadi, 2018). L'ajout de fibres d'érable augmente le taux de cristallinité par 2,5% comparé au PP pur. Donc, cette augmentation reflète l'effet de nucléation des fibres de bois (Bouafif et al. , 2009), un résultat recherché puisque la rigidité du matériau reflète une bonne dispersion de fibres dans la matrice; (2) L'ajout de fibres MCC ou de fibres kraft entraîne une diminution des taux de cristallinité. En effet, l'ajout de fibres MCC provoque une légère diminution de 1,5%. La raison pour laquelle la cristallinité du PP renforcé avec 60% de fibres MCC est inférieure à celle du PP pur est expliquée par le fait que les particules de fibres MCC fournissent des sites de nucléation favorables à la cristallisation du PP. Cependant, la mobilité des chaînes du PP est limitée par la présence de ces particules (Kiziltas et al. , 2014; Xin et Li, 2012). En conclusion, les

fibres MCC peuvent servir comme une barrière empêchant la formation de cristaux de PP (Kiziltas et al. , 2014; Xin et Li, 2012). L'ajout des fibres kraft comme agent de renfort au PP engendre une diminution du taux de cristallinité. Le PP chargé par les fibres kraft perd approximativement 10% de sa cristallinité par rapport au PP non chargé. Cette dégradation est liée à la structure fibreuse de l'agent de renfort et à la taille des fibres (Chen et Yan, 2013). De même, l'ajout des fibres de cellulose diminue la cristallinité par rapport à l'ajout de fibres MCC et de fibre de bois (Mathew et al. , 2006).

Dans un second temps, on s'intéresse aux températures et enthalpies de cristallisation. La température de cristallisation du PP pur est 116,5 °C (Tableau 3.5). Par contre, les températures de cristallisation du PP renforcé augmentent de 10 °C indépendamment du type de fibres (Tableau 3.5 et Figure 3.34). En effet, lors du refroidissement, la cristallisation du PP a commencé plus tôt dans les composites que dans le PP non chargé et les charges naturelles agissent en tant qu'agents de nucléation pour induire la cristallisation de la masse fondue de polymère lors du processus de refroidissement (Xin et Li, 2012). L'enthalpie de cristallisation du PP pur est 100,1 J/g (Tableau 3.5 et Figure 3.34). L'ajout de fibres naturelles provoque une diminution de l'enthalpie de cristallisation du PP chargé par rapport au PP pur (Tableau 3.5 et Figure 3.34).

Finalement, on peut tirer de ce qui précède, qu'on peut optimiser la température d'injection à l'aide de la température de fusion. De même, les propriétés mécaniques, la dispersion des fibres et les taux de cristallinité sont étroitement liés.

Tableau 3.5: Les différents paramètres obtenus de l'essai de calorimétrie à balayage différentiel des CBP renforcés avec haute teneur en fibre

| Mélange | T_c | T_f | DH_f | DH_c | Cristallinité X (%) |
|--------------|--------|--------|--------|--------|---------------------|
| PP | 116,50 | 169,20 | 109,90 | 100,10 | 53,09 |
| 60%kraft | 126,26 | 168,21 | 34,43 | 30,85 | 44,52 |
| 60%MCC | 125,86 | 170,75 | 39,84 | 29,25 | 51,51 |
| 60%érable | 127,06 | 169,08 | 43,23 | 31,11 | 55,91 |
| 60%torréfiée | 127,42 | 169,72 | 45,22 | 30,96 | 58,47 |

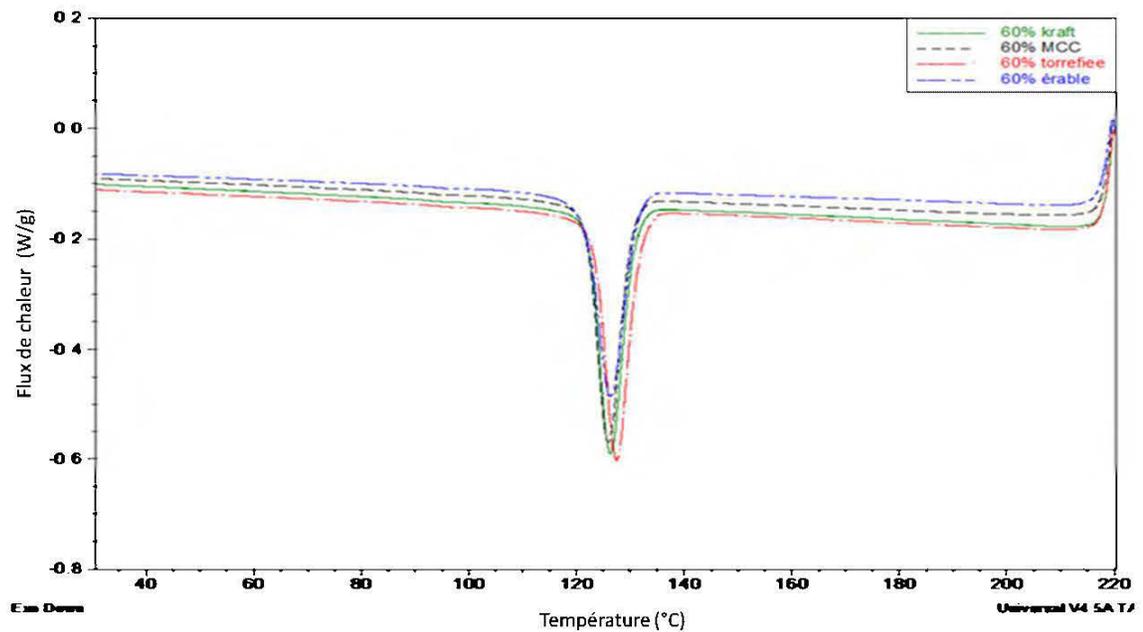


Figure 3.33 : Effet du type de fibres sur le cycle de refroidissement des CBP à 60% de fibres kraft, MCC, du bois torréfié et du bois d'érable

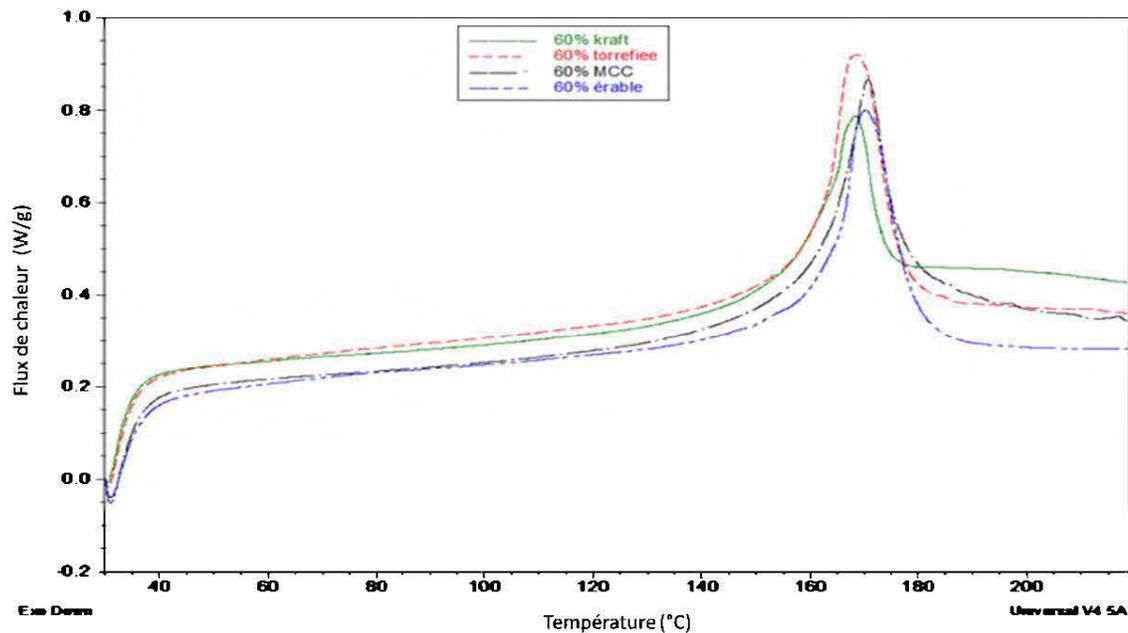


Figure 3.34 : Effet du type de fibres sur le cycle de chauffage des CBP à 60% de fibres kraft, MCC, du bois torréfié et du bois d'érable

3.2.5 Étude des propriétés mécaniques

La figure 3.35 montre que le module de Young en traction augmente en passant d'une teneur en fibres de 51% à 60%, et ce, pour les quatre types de fibres. En effet, le module de Young augmente de 20%, 21% et 21% respectivement pour les fibres kraft, MCC et d'érable. Manshor et al. (2014) ont montré que le module de Young augmente généralement lorsque la teneur en fibres augmente. De plus, la figure 3.36 montre que l'ajout des fibres augmente la contrainte à la limite d'élasticité en traction. Par exemple, la contrainte à la limite d'élasticité en traction augmente de 24,9 MPa, 18,6 MPa et 25,1 MPa jusqu'à 28,1 MPa, 20,9 MPa et 28,5 MPa pour les fibres kraft, MCC et d'érable, respectivement. La figure 3.37 montre que l'ajout des fibres augmente la contrainte maximale des différents types de fibres. À titre d'exemple, la contrainte maximale augmente de 42,7 MPa, 26,3 MPa et 40,3 MPa à 45,7 MPa, 27,0 MPa et 43,9 MPa pour les fibres kraft, MCC et érable, respectivement.

En générale, l'augmentation de la teneur en fibres peut mettre plus de fibres orientées parallèlement à la contrainte en traction. Alors, ces fibres assurent une bonne distribution des contraintes, c'est-à-dire, des meilleures tenues mécaniques (Koay et al. , 2018).

La figure 3.38 illustre la déformation à la rupture pour les composites soumis en traction. On peut voir que la ductilité des composites diminue quel que soit le type de fibres ajouté. En effet, la ductilité diminue par 18%, 29% et 28% suite à l'ajout de fibres kraft, MCC et érable, respectivement. Ces résultats sont expliqués par la réduction de la mobilité des chaînes du polymère, causée par le frottement entre les fibres et la matrice, ce qui explique la réduction de la flexibilité des composites. Par conséquent, plus la teneur en fibres est élevée, plus le composite devient rigide et moins ductile (Koay et al., 2018 ; Chun et al. , 2016).

Dans un deuxième temps, on s'intéresse à l'effet du type de fibres sur les composites de polypropylène renforcé avec une teneur en fibres de 60%. La figure 3.35 montre que les composites à base de fibres kraft ont un module de Young (5,5 GPa) plus grand que ceux à base de fibres d'érable (5,2 GPa), de fibres torréfiées (4,4 GPa), et de cellulose microcristalline (3,8 GPa). Aussi, la figure 3.24 montre que les mêmes contraintes à la limite d'élasticité ont été observées pour les fibres kraft (28,1 MPa) et les fibres d'érable (28,5 MPa). Par contre, la contrainte à la limite d'élasticité diminue de 14% et 36% avec l'ajout de fibres torréfiées et MCC, respectivement, par rapport aux fibres kraft. De plus, la figure 3.37 montre que les composites renforcés avec 60% de fibres kraft ont les contraintes maximales les plus élevées (45,7 MPa), suivie par les fibres d'érable (43,9 MPa). Par contre, les composites à base de fibres torréfiées (34,7 MPa) et MCC (27,0 MPa) ont les contraintes maximales les plus faibles. La variation des contraintes maximales en fonction du type de fibres peut être expliquée soit par le facteur de forme L/D des fibres (Tableau 3.6) car plus le facteur L/D augmente plus la contrainte maximale augmente. Ceci peut influencer la dispersion et l'orientation des fibres (Koay et al. , 2018). Pour cela, les contraintes les plus élevées ont été enregistrées

dans les composites à base de kraft ayant un facteur L/D le plus élevé par rapport aux fibres d'érable et de MCC

Les composites les plus ductiles sont les composites avec 60% de fibres kraft, ayant une déformation maximale de 5,45%. Par contre, l'ajout de fibres d'érable, torréfiées et MCC diminue la ductilité de 17%, 24% et 42%, respectivement, par rapport aux fibres kraft (Figure 3.38). Ceci peut être expliqué par la souplesse des fibres kraft, la rigidité de fibres d'érable lignifiés, la fragilité des fibres torréfiées et la cristallinité des fibres MCC.

Tableau 3.6 : Résultats du facteur de forme et de la longueur des fibres kraft, MCC, érable et torréfiées

| Fibres | L_n (μm) | D_n (μm) | L/D |
|-----------|-------------------------|-------------------------|------|
| kraft | 100 | 21,09 | 4,74 |
| CMC | 110 | 46,98 | 2,34 |
| Érable | 110 | 35,01 | 3,14 |
| Torréfiée | 300 | 51,10 | 5,87 |

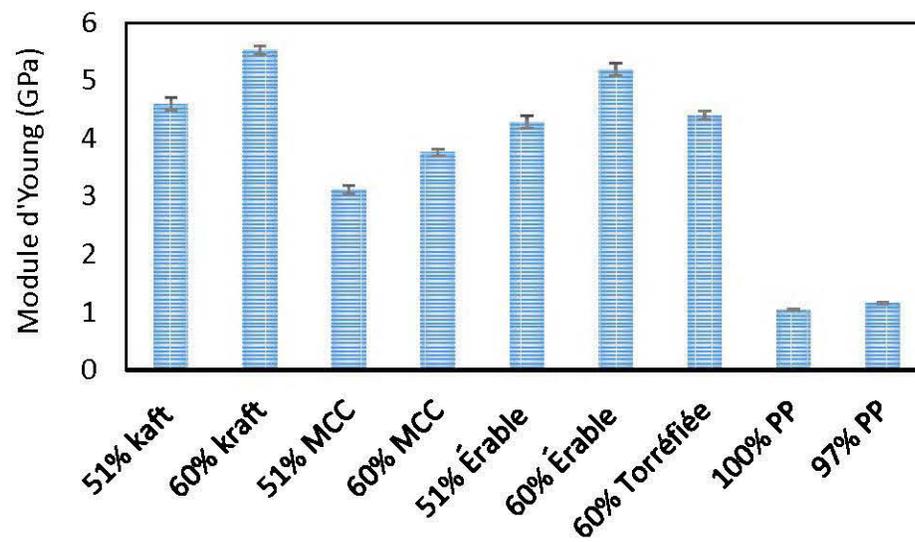


Figure 3.35 : Effet du type de fibres sur le module de Young (GPa) en traction des CBP renforcés avec haute teneur en fibres

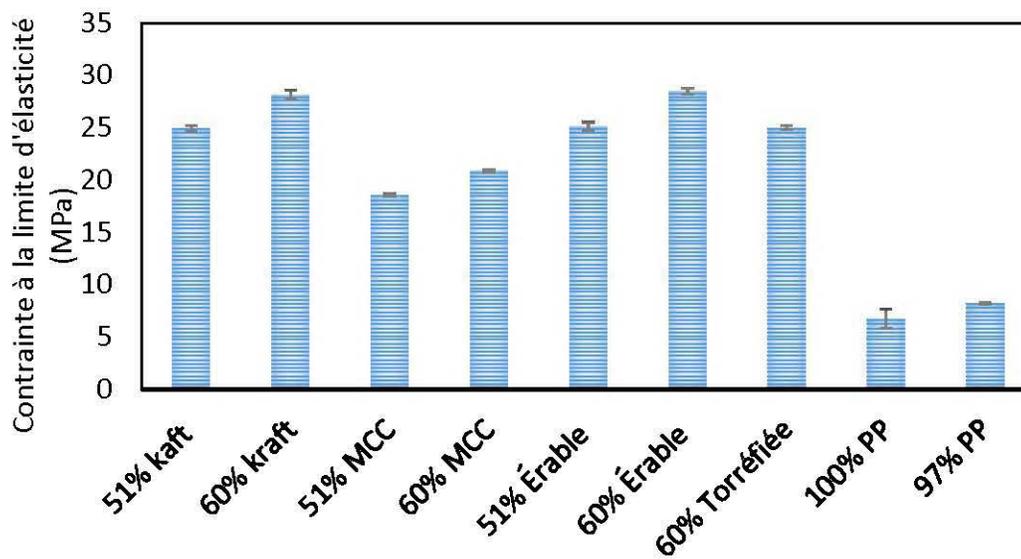


Figure 3.36 : Effet du type de fibres sur la contrainte à la limite d'élasticité (MPa) en traction des CBP renforcés avec haute teneur en fibres

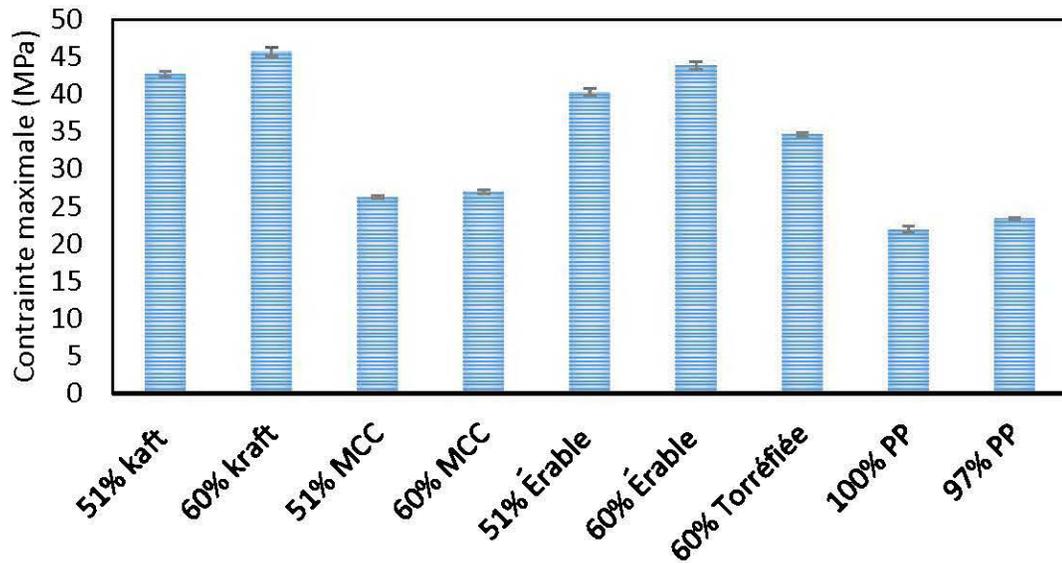


Figure 3.37 : Effet du type de fibres sur la contrainte maximale (MPa) en traction des CBP renforcés avec haute teneur en fibres

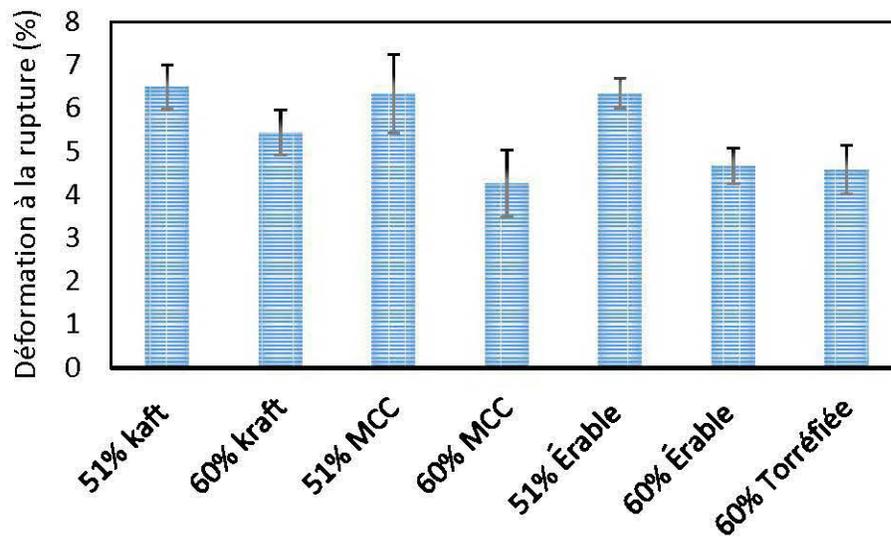


Figure 3.38 : Effet du type de fibres sur la déformation à la rupture (%) en traction des CBP renforcés avec haute teneur en fibres

L'ajout de 51% et 60% de fibres de chaque type a augmenté le module d'élasticité, la contrainte à la limite d'élasticité et la contrainte maximale (Figure 3.39 à 3.41) en flexion. Cependant, cet ajout a diminué la ductilité de différents degrés selon le type de fibres (Figure 3.42).

Dans cette partie, l'effet du type de fibres sur les propriétés des CBP en flexion sera exclusivement étudié pour les composites chargés avec une teneur de 60% de fibres. La figure 3.39 montre que les composites à base de fibres kraft et de fibres d'érable sont les plus rigides avec des valeurs similaires de 4,1 et 4,3 GPa, respectivement. Cette rigidité est 4 fois plus élevée que le module d'élasticité du PP (1,1 GPa). Par ailleurs, la rigidité des composites à base de fibres torréfiées et MCC est légèrement plus basse que celle des composites à base de fibres kraft et sont de 3,5 et 3 fois plus élevée, respectivement, que celle du PP pur.

De plus, les figures 3.40 et 3.41 montrent les mêmes tendances observées pour la rigidité (Figure 3.39). Les composites ayant 60% de fibres d'érable ont la meilleure résistance en flexion (72 MPa) comparativement aux composites à base de fibres kraft (68 MPa), de fibres torréfiées (62 MPa) et de MCC (48 MPa) (Figure 3.41).

On s'intéresse aussi à la déformation jusqu'à la force maximale. La figure 3.42 montre que le PP pur est le plus ductile. Le composite le plus ductile est celui à base de fibres kraft (4,6%). En second lieu, on trouve les composites à base de fibres MCC (3,9%) suivis par ceux à base de fibres d'érable (3,7%) et finalement ceux à base de fibres torréfiées (3,6%). Selon la norme ASTM D790-3, si un composite ne se casse pas avant 5% d'allongement, le test peut prendre fin. Dans la présente étude, le test a été fait jusqu'à 6% d'allongement. Les résultats montrent que les composites à base de fibres kraft n'arrivent pas à la rupture le long de ce domaine (i.e. 6% d'allongement). De même, les composites à base de fibres MCC brisent à une valeur de 5,2% d'allongement. Par contre, les composites renforcés par les fibres d'érable et les fibres torréfiées n'atteignent même pas 4% d'allongement jusqu'à la rupture.

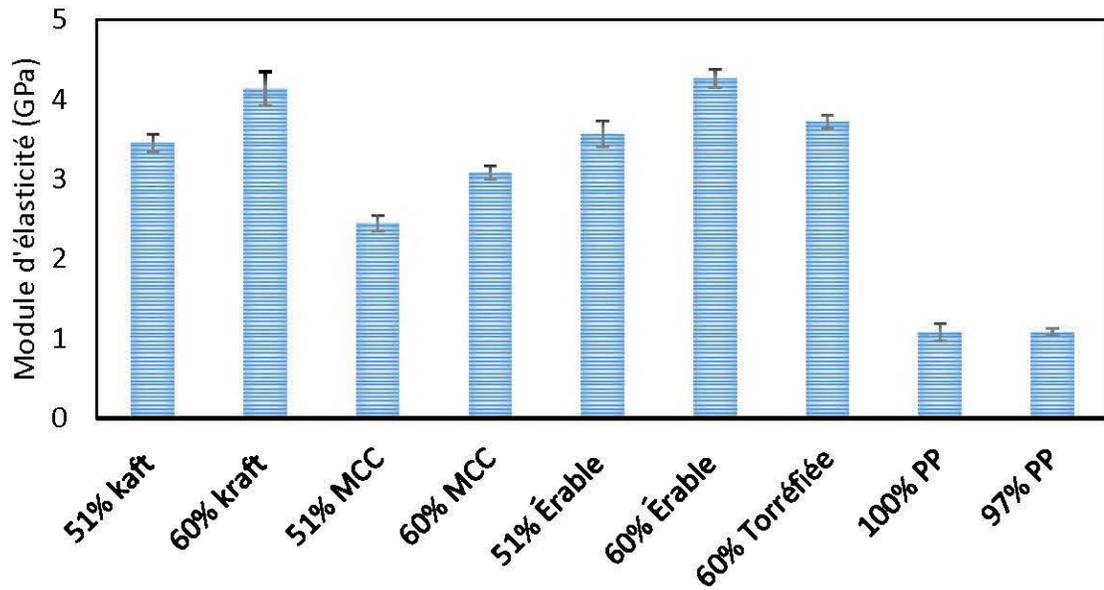


Figure 3.39 : Effet du type de fibres sur le module d'élasticité (GPa) en flexion des CBP renforcés avec haute teneur en fibres

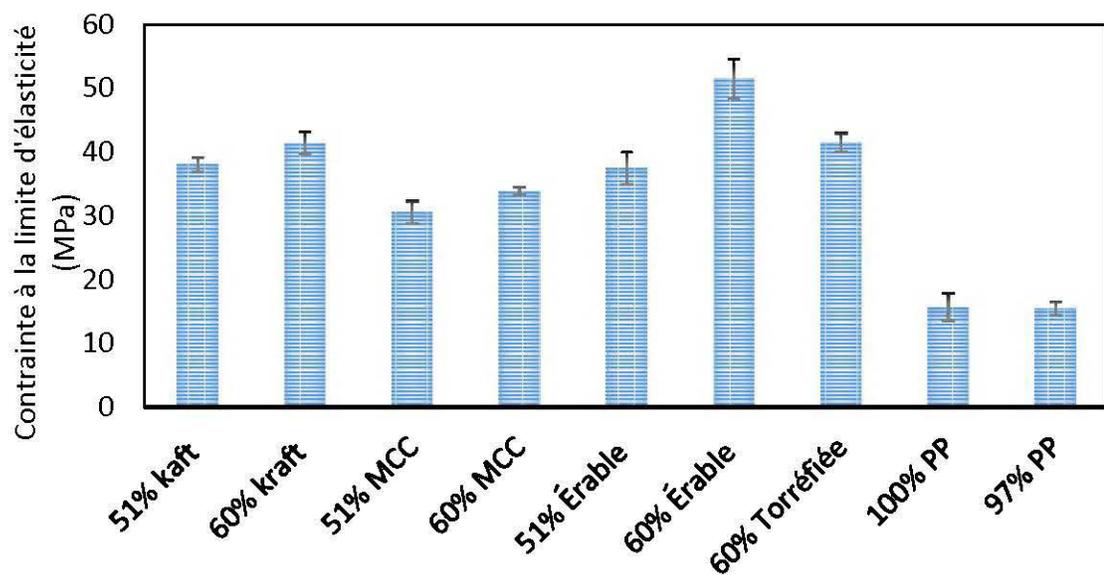


Figure 3.40 : Effet du type de fibres sur la contrainte à la limite d'élasticité (MPa) en flexion des CBP renforcés avec haute teneur en fibres

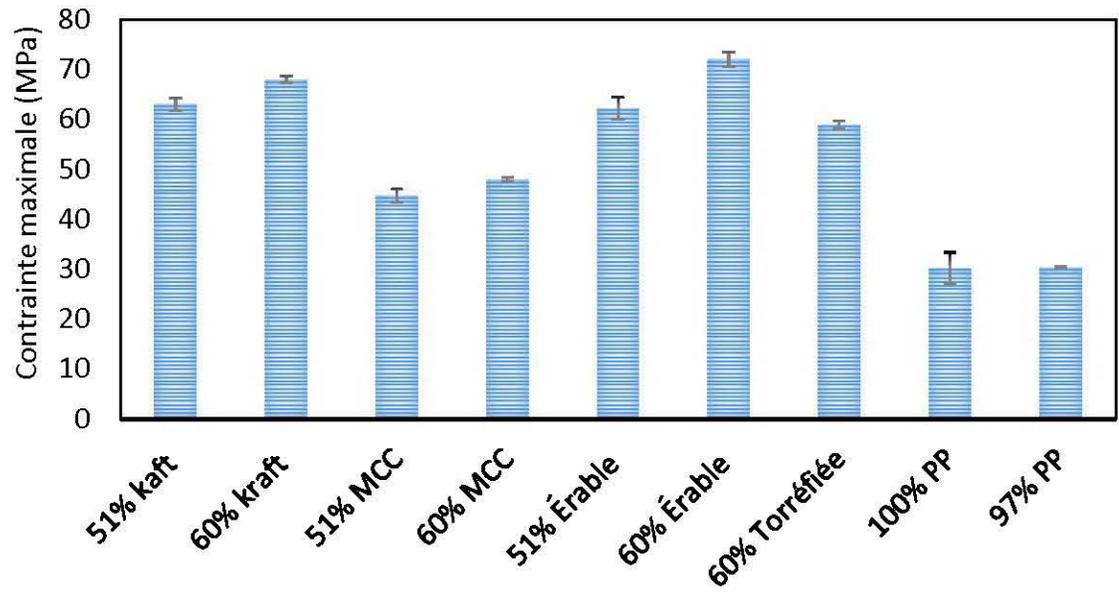


Figure 3.41 : Effet du type de fibres sur la contrainte maximale (MPa) en flexion des CBP renforcés avec haute teneur en fibres

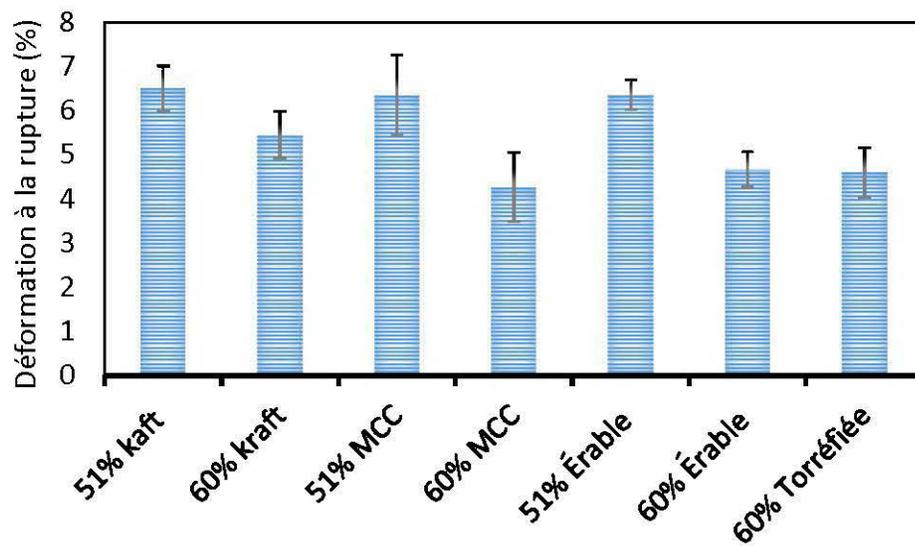


Figure 3.42 : Effet du type de fibres sur la déformation à la rupture (%) en flexion des CBP renforcés avec haute teneur en fibres

La figure 3.43 montre que l'ajout des fibres diminue la résistance aux chocs des composites. Par exemple, une augmentation de la proportion de fibres kraft de 51% à 60% diminue de 14% l'énergie d'impact. De plus, la plus grande diminution est observée avec les fibres MCC. Ces résultats sont en accord avec d'autres recherches qui ont révélé l'effet de l'ajout des fibres sur l'énergie d'impact (Jang et Kim, 2015; Migneault et al. , 2014).

On a étudié l'effet du type de fibres sur la ténacité des composites élaborés avec 60% de fibres. Comme pour les autres propriétés mécaniques, les composites à base de fibres kraft, ayant une énergie d'impact de $30,5 \text{ kJ/m}^2$, sont plus performants parce que les fibres kraft sont plus longues et flexibles. Les fibres d'érable engendrent une légère diminution de l'énergie d'impact ($28,0 \text{ kJ/m}^2$). Ces résultats peuvent être expliqués par (i) la quantité de OH libre pour l'interaction avec le MAPP qui sont d'avantage disponibles dans les fibres d'érable et kraft ce qui engendre une bonne dispersion et améliorent de façon importante l'homogénéisation entre les fibres et la matrice; (ii) plus le facteur de forme L/D augmente, plus l'énergie d'impact augmente (Tableau 3.6). L'ajout de fibres torréfiées et MCC provoque une diminution de 80% par rapport aux fibres kraft. Pour les fibres torréfiées, ces résultats sont attendus parce que ce sont les fibres les plus fragiles. Pour les fibres MCC, les résultats sont surprenants parce que les fibres MCC ont une très grande surface spécifique et un grand nombre de liens OH disponible. Dans la présence étude, il est possible que ces fibres soient mal dispersées ou encore que la teneur en agent couplant soit insuffisante pour couvrir la grande surface spécifique de la MCC.

Pour récapituler, les résultats montrent que les fibres kraft sont les meilleures en termes de propriétés mécaniques comparativement aux autres types de fibres.

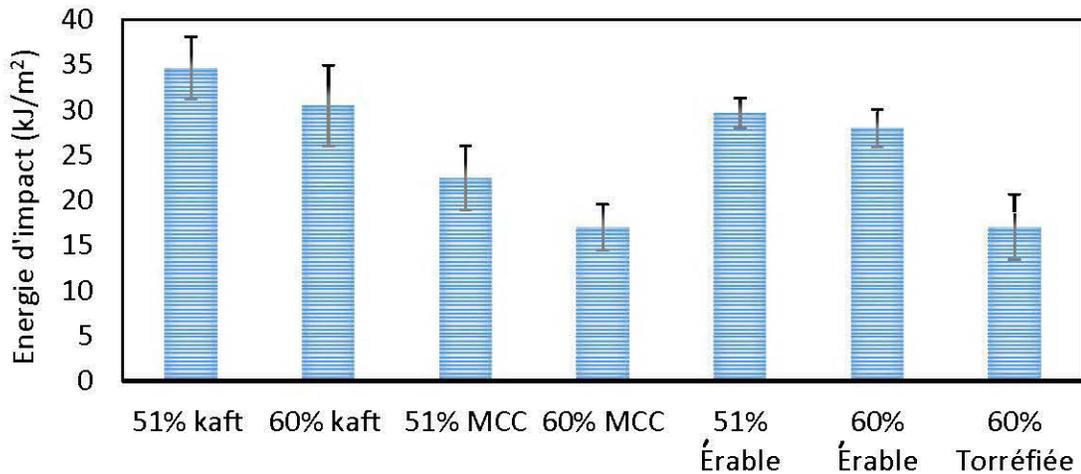


Figure 3.43 : Effet du type de fibre sur l'énergie d'impact (kJ/m²) des CBP renforcés avec haute teneur en fibres

3.2.6 Étude des propriétés physiques : Test de l'immersion dans l'eau

Les figures 3.44 et 3.45 illustrent l'influence du type de fibre sur la stabilité dimensionnelle et massique. Les résultats prouvent que l'ajout de fibres influence la stabilité dimensionnelle, c'est-à-dire, plus on ajoute des fibres au-delà de 51%, plus la quantité d'eau absorbée augmente. Une augmentation de 9% de la teneur en fibres kraft a presque doublé les gains volumiques et massiques. Ces constatations sont aussi les mêmes pour les composites avec 51% et 60% de fibres d'érable. Par contre, l'augmentation de 9% de fibres MCC n'a pas beaucoup influencé les valeurs trouvées pour les composites à base de 51% de fibres MCC.

Cette aptitude de capter l'eau atteint son maximum (2,5% de gain en épaisseur et en masse) pour les composites renforcés soit avec 60% de fibres kraft ou d'érable. Malgré cette aptitude d'absorber l'humidité, ces valeurs restent dans les normes industrielles puisqu'elles n'ont pas dépassé le 3%. Elles sont 5 fois plus élevées que pour les composites ayant 60% de fibres MCC ou de fibres torréfiées. En effet, les fibres torréfiées ont perdu beaucoup de groupement OH (premier responsable à

l'absorption d'eau) lors du procédé de pyrolyse à 400 °C. La cellulose et l'hémicellulose, qui sont riches en groupement OH, se dégradent à partir de 300 °C et 180 °C, respectivement. Ces résultats semblent être différents pour les composites MCC. Généralement, les fibres MCC et fibres kraft sont riches en groupement OH. De plus, les fibres MCC présentent une haute pureté et une haute cristallinité. Par contre, on trouve plus de parties cristallines que de parties amorphes dans les chaînes de cellulose chez les fibres kraft. Ceci mène à la conclusion que la partie amorphe existante (OH libre à la surface) chez les fibres kraft est à l'origine de cette faible stabilité dimensionnelle et la structure cristalline des fibres MCC est la première responsable de la stabilité dimensionnelle de ces composites. Outre ces constatations, la composition structurale de ces fibres nous permet de proposer une hypothèse concernant l'impact de la présence de cavités et de vides chez les composites à base de fibres kraft sur l'augmentation du phénomène d'adsorption de l'eau. Pour vérifier cette hypothèse, on a procédé au test de la densité réelle à l'aide d'un picomètre à hélium. La mesure de la densité réelle ne montre pas de différence significative entre les masses volumiques des composites à base de 60% de fibres kraft ou MCC (1217 kg/m³ et 1213 kg/m³, respectivement). Donc, l'hypothèse que les fibres kraft créent des vides et des cavités à l'intérieur des composites est fautive. Il en résulte que l'augmentation de l'absorption d'eau des composites à base de fibres kraft peut être expliquée par l'agglomération des fibres dans la matrice mais cette hypothèse reste à vérifier.

Finalement, les fibres MCC et les fibres torréfiées donnent naissance à une bonne stabilité dimensionnelle (0,6% d'augmentation d'épaisseur) malgré la forte teneur en fibres de ces composites.

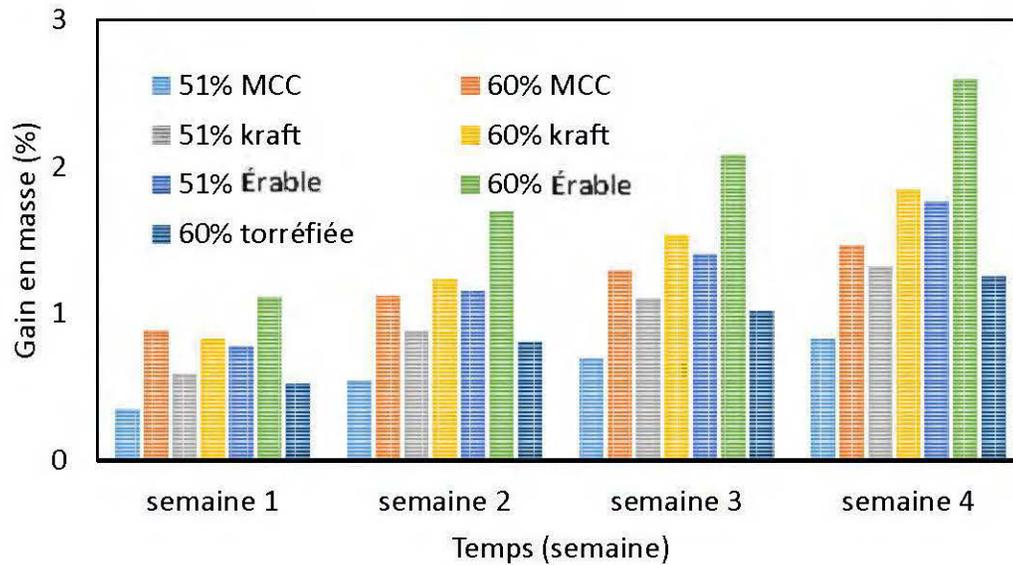


Figure 3.44 : Effet du type de fibres sur le gain en masse (%) lors du test d'immersion dans l'eau

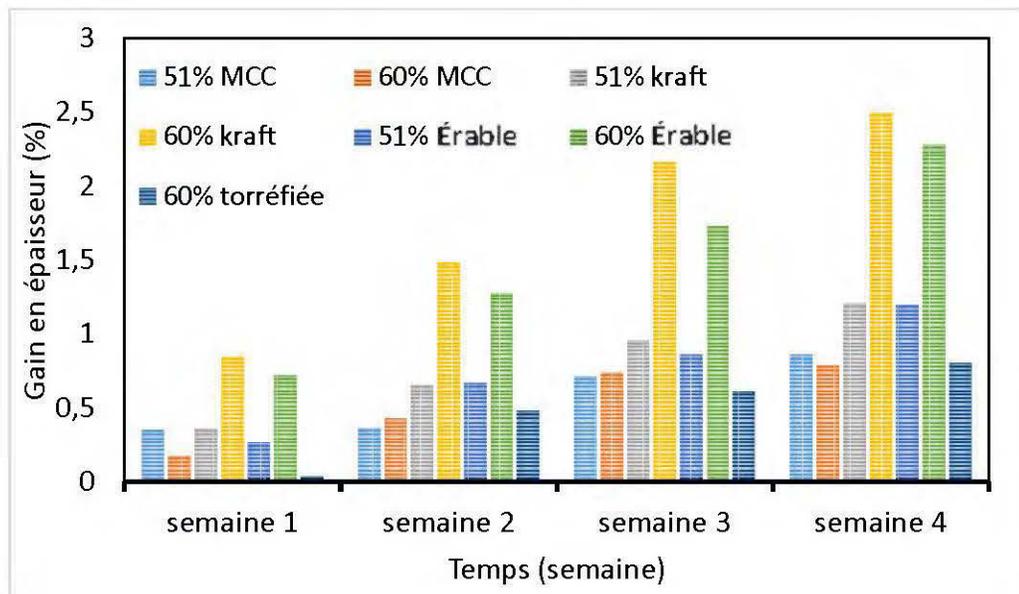


Figure 3.45 : Effet du type de fibres sur le gain en épaisseur (%) lors du test d'immersion dans l'eau

3.2.7 L'effet de l'ajout d'un agent de couplage sur les propriétés de traction des composites à forte teneur en fibres

En comparant les composites renforcés avec 51% à ceux renforcés avec 60% sans l'ajout d'un agent de couplage, aucun effet significatif sur les propriétés de traction n'est constaté (Figure 3.46, Figure 3.47, Figure 3.48 et Figure 3.49). Ceci est dû à une mauvaise dispersion des fibres et à une adhérence médiocre entre les fibres et la matrice (Steckel et al. , 2007). Par exemple, une augmentation de 9% de la teneur en fibres sans l'ajout de MAPP a augmenté légèrement le module de Young de 6,5%, 2,8% et 6,8% pour les composites à base de fibres kraft, d'érable et MCC, respectivement (Figure 3.46). Ces résultats sont en accord avec ceux de la littérature (Delgado-Aguilar et al. , 2018). De plus, sans l'ajout de MAPP, on remarque une légère diminution de la ductilité (Figure 3.48), due principalement à une proportion de plastique moins élevée, au niveau des éprouvettes ayant 51% de fibres par rapport celles ayant 60%. D'ailleurs, plus la teneur en plastique est élevée, plus les composites seront ductiles. Aussi, les résultats montrent que les composites à base de fibres d'érable, de fibres kraft ou de fibres torréfiées enregistrent des propriétés mécaniques plus élevées par rapport au PP. Cependant, les composites ayant des fibres MCC présentent de faibles propriétés mécaniques par rapport aux autres composites.

Ainsi, l'une des stratégies les plus utilisées pour assurer une bonne liaison entre les fibres naturelles et la polyoléfine consiste à utiliser des polymères fonctionnalisés avec de l'anhydride maléique comme agent de couplage, i.e. le MAPP. Dans ce cas, les effets de l'agent de couplage sur les propriétés mécaniques en traction étaient très significatifs. L'utilisation d'une teneur en MAPP de 3% crée une bonne amélioration des propriétés mécaniques en traction. Le module de Young (Figure 3.46) augmente de 19,7%, 16,9% et 16,4% pour les composites à base de fibres d'érable, kraft et MCC, respectivement. Cependant, les travaux antérieurs ne mentionnent aucun effet de la présence d'agents de couplage sur les valeurs du module de Young (Granda et al. , 2016).

La contrainte maximale en traction est fortement influencée par l'ajout d'un agent de couplage. La résistance en traction augmente de plus que deux fois avec une augmentation de 3% de la proportion de MAPP, et ce, indépendamment du type de fibres utilisées (Figure 3.49). Les travaux antérieurs étaient concentrés sur l'évaluation du rôle des liaisons chimiques entre les fibres naturelles et la matrice sur la qualité de l'interphase. En conséquence, Delgado-Aguilar et al. (2018) ont montré que l'utilisation d'une teneur de 6% de MAPP peut garantir des composites ayant la résistance à la traction la plus élevée (Delgado-Aguilar et al. , 2018).

L'autre propriété affectée par l'ajout du MAPP est la ductilité des composites. La figure 3.48 montre que tous les composites couplés présentent une amélioration importante de la déformation à la rupture. Les plus grandes augmentations sont trouvées avec les fibres kraft et les fibres d'érable, ce qui est expliqué par la quantité de groupements hydroxyles (OH) libres présents pour interagir avec le MAPP. Il en résulte que l'ajout d'un agent de couplage est indispensable pour garder une bonne tenue mécanique pour les composites CBP. Mais, pour les fibres MCC ayant une très grande surface spécifique et un grand nombre de liens OH disponible, les résultats sont inattendus ce qui peut être expliqué par (i) la mauvaise dispersion des fibres ; (ii) l'insuffisance la teneur en agent couplant pour couvrir la grande surface spécifique de la MCC.

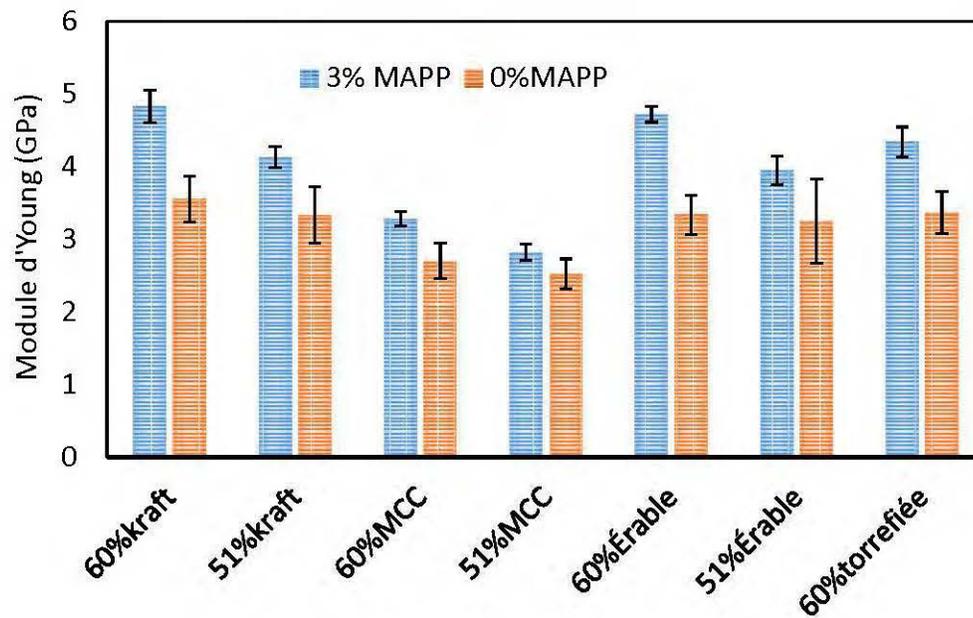


Figure 3.46 : Effet de l'ajout du MAPP comme agent de couplage sur le module de Young (GPa) en traction de CBP renforcés avec haute teneur en fibres

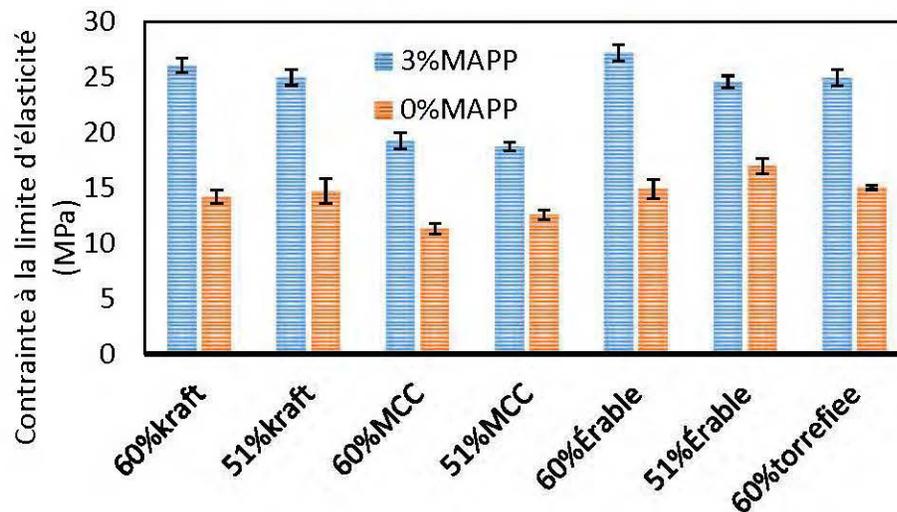


Figure 3.47 : Effet de l'ajout d'un agent de couplage sur la contrainte à la limite d'élasticité (MPa) en traction de CBP renforcés avec haute teneur en fibres

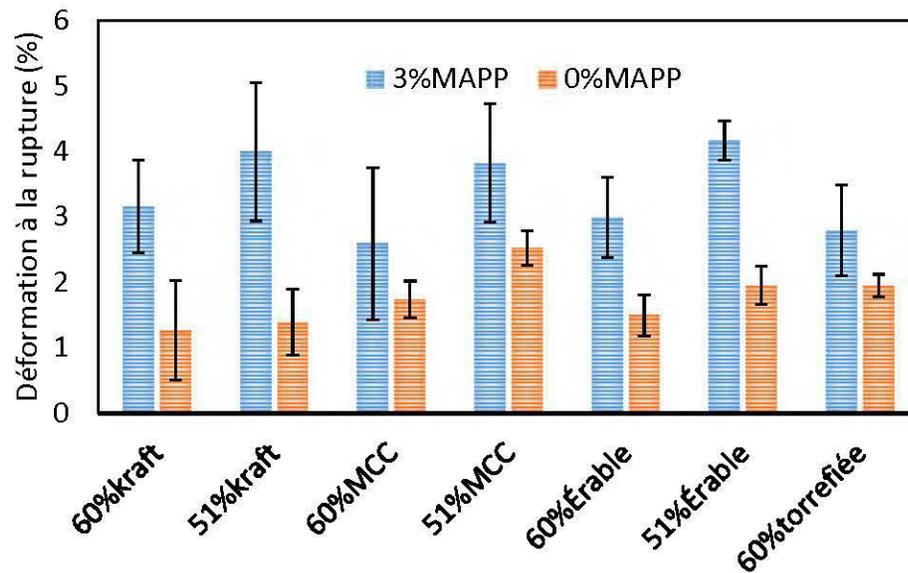


Figure 3.48 : Effet de l'ajout d'un agent de couplage sur la déformation à la rupture (%) en traction de CBP renforcés avec haute teneur en fibres

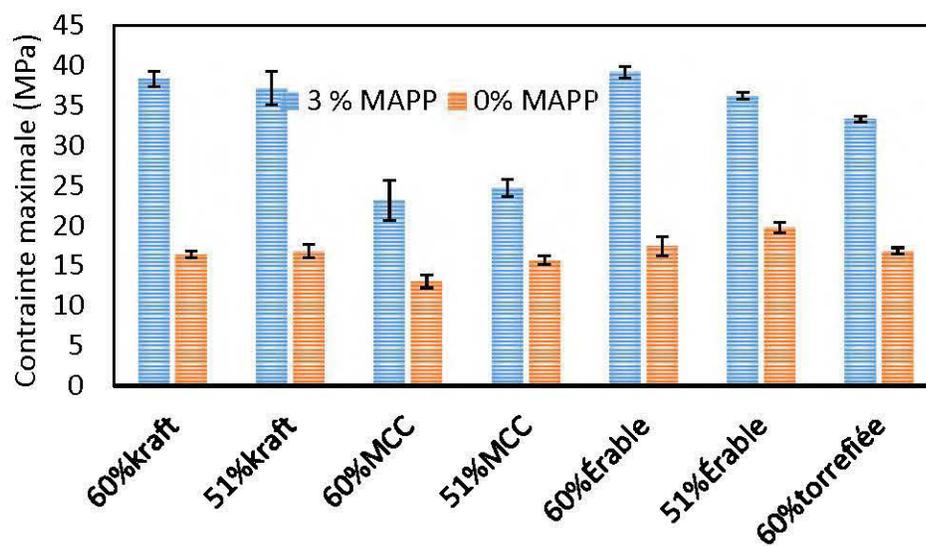


Figure 3.49 : Effet de l'ajout d'un agent de couplage sur la contrainte maximale (MPa) en traction de CBP renforcés avec haute teneur en fibres

CONCLUSIONS GÉNÉRALES

Les composites de PP renforcés avec une forte teneur en fibres ont été élaborés selon plusieurs facteurs, tels que la teneur en fibres (51%, 60% et 70%), le type de fibres (MCC, kraft, érable et torréfiée), et la présence ou l'absence de lubrifiant et/ou d'agent de couplage. Il a été possible de former des composites de bonne qualité malgré la forte teneur en fibres. Les CBP ont été testés pour leurs propriétés mécaniques en traction, de flexion et en impact. Par ailleurs, des analyses physiques ont aussi été élaborées en effectuant des tests d'immersion dans l'eau, d'analyse thermogravimétrique et de calorimétrie à balayage différentiel, et de densité réelle. Une analyse chimique FTIR a aussi été menée. Les masses fondues de PP renforcées avec des fibres naturelles ont été mises sous les conditions d'extrusion pour quantifier, à l'aide d'un rhéomètre capillaire, l'aptitude des composites de couler lors de mise en forme. Finalement, une étude d'analyse statistique a été faite pour évaluer l'implication des paramètres variés sur les propriétés des CBP.

L'objectif général et les objectifs spécifiques de ce projet ont été atteints. Les résultats obtenus nous permettent de tirer des conclusions sur l'effet de la teneur en fibres, du type de fibres et aussi sur l'utilisation des additifs (lubrifiant et/ou agent couplant) dans les composites de polypropylène renforcés avec une forte teneur en fibres.

Les conclusions tirées sont :

- L'ajout d'un lubrifiant en faible quantité (teneur maximale de 3%) n'a pas un effet significatif sur les propriétés mécaniques. Par contre, il favorise l'absorption d'eau. Cet ajout a un effet minime sur la viscosité apparente à 180 °C, tandis qu'à 210 °C, il n'a pas un effet remarquable sur la viscosité.
- L'ajout de fibres avec une teneur allant jusqu'à 70% crée une bonne rigidité et améliore la résistance en traction et en flexion. Cependant, il engendre une

diminution de la résistance aux chocs, de la fluidité et de la stabilité dimensionnelle des CBP renforcés avec haute teneur en cellulose.

- Les fibres kraft ont donné de meilleures propriétés mécaniques. Par contre, les fibres MCC ont donné une stabilité thermique aux composites et elles ont empêché l'absorption d'eau. En outre, lors de l'essai de la rhéologie capillaire, l'ajout de fibres MCC a rendu les mélanges moins visqueux par rapport aux autres mélanges.
- L'agent de couplage MAPP joue un rôle vital pour les propriétés mécaniques des CBP.

Finalement, il y a quelques défis à surmonter dans les prochaines études. On peut citer :

- Est-ce qu'on est capable de refaire tout ce travail avec des fibres plus longues?
- Est-ce que l'ajout d'un autre lubrifiant en proportions plus élevées peut aider l'extrusion et l'injection?
- Est-ce que l'utilisation d'un autre polypropylène ayant un indice de fluidité plus élevé influence les propriétés des composites et, surtout, l'écoulement des masses fondues?
- Est-ce que l'augmentation de la température d'injection aide l'injection sans influencer les propriétés des composites?

RÉFÉRENCES

- Achilleos, E., Georgiou, G. et Hatzikiriakos, S. (2002). Role of processing aids in the extrusion of molten polymers. *Journal of Vinyl and Additive Technology*, 8(1), 7-24.
- Adhikary, K. B., Park, C. B., Islam, M. R. et Rizvi, G. M. (2010). Effects of lubricant content on extrusion processing and mechanical properties of wood flour-high-density polyethylene composites. *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, 24(2), 155-171.
- Amir, N., Abolfazl, K., Alireza, A. et Anita, N. (2009). Effects of particle size and coupling agent concentration on mechanical properties of particulate-filled polymer composites. *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, 23(2), 169-174. doi:10.1177/0892705709340962
- Arrakhiz, F., El Achaby, M., Malha, M., Bensalah, M., Fassi-Fehri, O., Bouhfid, R., et al. . (2013). Mechanical and thermal properties of natural fibers reinforced polymer composites: Doum/low density polyethylene. *Materials & Design*, 43, 200-205.
- Ashori, A. et Nourbakhsh, A. (2010). Performance properties of microcrystalline cellulose as a reinforcing agent in wood plastic composites. *Composites Part B: Engineering*, 41(7), 578-581.
- Awanis, J., Anis Sofia, S. et Samat, N. (2012). *Effect of coupling agent on mechanical properties of composite from microcrystalline cellulose and recycled polypropylene*. Paper presented at the Advanced Materials Research, Vol. 576, pp. 390-393, Octobre 2012.
- 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, pp119.

- Baïlon, J.-P. et Dorlot, J.-M. (2000). *Des matériaux*: Presses inter Polytechnique. ISBN 2553007701, 9782553007705 . 736 pp .
- Basu, P., Rao, S., Acharya, B. et Dhungana, A. (2013). Effect of torrefaction on the density and volume changes of coarse biomass particles. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 91(6), 1040-1044.
- Beg, M. D. H. (2007). The improvement of interfacial bonding, weathering and recycling of wood fibre reinforced polypropylene composites. *Materials and Process Engineering*, The University of Waikato, Hamilton, New Zealand, March 2007, pp 194.
- Beg, M. D. H. et Pickering, K. L. (2008). Mechanical performance of Kraft fibre reinforced polypropylene composites: Influence of fibre length, fibre beating and hygrothermal ageing. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 39(11), 1748-1755.
- Ben'Mbarek, T. (2011). *Utilisation d'une méthode optique sans contact pour décrire le comportement mécanique de composites bois/plastique 'WPC'*., Thèse, l'Université de Pau et des Pays de l'Adour, pp 167.
- Bendahou, A., Dufresne, A., Habibi, Y. et Kaddami, H. (2007). *Matériaux composites à base de fibres lignocellulosiques et de matrices thermoplastiques (PP et PEBD)*. Paper presented at the 8ème Colloque Franco-Roumain sur les Polymères. *Revue Roumaine de Chimie*, 2009, 54(7), 557–563.
- Benziman, M., Haigler, C. H., Brown, R. M., White, A. R. et Cooper, K. M. (1980). Cellulose biogenesis: polymerization and crystallization are coupled processes in *Acetobacter xylinum*. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 77(11), 6678-6682.
- Berthet, M. A., Commandré, J. M., Rouau, X., Gontard, N. et Angellier-Coussy, H. (2016). Torrefaction treatment of lignocellulosic fibres for improving fibre/matrix adhesion in a biocomposite. *Materials & Design*, 92, 223-232.

- 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. (2009). Wood particle/high-density polyethylene composites: Thermal sensitivity and nucleating ability of wood particles. *Journal of Applied Polymer Science*, 113(1), 593-600.
- Chen, J. et Yan, N. (2013). Crystallization behavior of organo-nanoclay treated and untreated kraft fiber–HDPE composites. *Composites Part B: Engineering*, 54, 180-187.
- Chrétien, G. et Schun, A. (1986). *Matériaux composites à matrice organique: polymères et renforts type: caractéristiques, technologies de mise en forme: applications*. Technique et Documentation, Paris, P. 508.
- Chuayjuljit, S. et Palasuth, K. (2012). *Utilization of microcrystalline cellulose prepared from cotton waste as reinforcement in polypropylene composites*. Paper presented at the Advanced Materials Research, Wu Fan, Vols. 488-489, March 2012, Switzerland, 696-700 pp.
- Chun, K. S., Husseinsyah, S. et Yeng, C. M. (2016). Green composites from kapok husk and recycled polypropylene: Processing torque, tensile, thermal, and morphological properties. *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, 29(11), 1517-1535.
- Clemons, C. (2002). Wood-plastic composites in the United States: The interfacing of two industries. *Forest Products Journal*, 52(6), 10-18.
- Delgado-Aguilar, M., Vilaseca, F., Tarrés, Q., Julián, F., Mutjé, P. et Espinach, F. (2018). Extending the value chain of corn agriculture by evaluating technical feasibility and the quality of the interphase of chemo-thermomechanical fiber

- from corn stover reinforced polypropylene biocomposites. *Composites Part B: Engineering*, 137, 16-22.
- Elbadawi, M. (2018). Polymeric additive manufacturing: the necessity and utility of rheology. In *Polymer Rheology*: IntechOpen, pp 43-63.
- Elchinger, P.-H. (2013). *Réticulation de fibres lignocellulosiques et d'amidon: vers de nouveaux matériaux pour l'industrie papetière*, Thèse, Université du Québec à Trois-Rivières-Université de Limoge, pp 162.
- Erbas Kiziltas, E., Kiziltas, A., Nazari, B., Gardner, D. J. et Bousfield, D. W. (2016). Glycerine treated nanofibrillated cellulose composites. *Journal of Nanomaterials*, Volume 2016, 9 pp.
- 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.
- Frisch, K., Rumao, L. et Pizzi, A. (1983). Diisocyanates as wood adhesives. *Wood Adhesives, Chemistry and Technology*. Ed. Pizzi, A. Marcel Dekker, Inc. New York, 432 p:289-317.
- García, M., Hidalgo, J., Garmendia, I. et García-Jaca, J. (2009). Wood-plastics composites with better fire retardancy and durability performance. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 40(11), 1772-1776.
- 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, Université de Lorraine, Metz, France, pp 151.
- George, J., Sreekala, M. et Thomas, S. (2001). A review on interface modification and characterization of natural fiber reinforced plastic composites. *Polymer Engineering & Science*, 41(9), 1471-1485.

- Gosselin, R. (2005). *Injection de mousses composites bois/plastiques d'origine post-consommation*. Mémoire de Maîtrise, Faculté des Sciences et de Génie, Université Laval, Québec, Canada, pp 120.
- Gosselin, R., Rodrigue, D. et Riedl, B. (2006). *Injection molding of postconsumer wood-plastic composites II: mechanical properties*. *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, 19(6), 659-669.
- Granda, L., Espinach, F., Méndez, J., Tresserras, J., Delgado-Aguilar, M. et Mutjé, P. (2016). Semicheical fibres of *Leucaena collinsii* reinforced polypropylene composites: Young's modulus analysis and fibre diameter effect on the stiffness. *Composites Part B: Engineering*, 92, 332-337 pp.
- Haddout, A. et Villoutreix, G. (2000). Polymer melt rheology at high shear rates. *International Polymer Processing*, 15(3), 291-296.
- Hadidane, M. M. (2015). *Effet des nanoparticules sur les caractéristiques des composites bois-polymère*. Mémoire de Maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, Rouyn-Noranda, Québec, Canada, pp 112.
- Henriksson, G., Gellerstedt, G. et Ek, M. (2009). *Wood Chemistry and Wood Biotechnology*. Berlin: Walter De Gruyter. 308 p.
- Holbery, J. et Houston, D. (2006). Natural-fiber-reinforced polymer composites in automotive applications. *JOM*, 58(11), 80-86. doi:10.1007/s11837-006-0234-2
- Jafarian Jam, N. et Hossein Behravesh, A. (2009). Challenge to the Production of Fine Wood—Plastic Injection Molded Composites. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 28(1), 73-82.
- Jang, S. Y. et Kim, D. S. (2015). Preparation and physical properties of polypropylene/cellulose composites. *Polymer Korea*, 39(1), 130-135.
- 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), 1357-1372.
- Kallakas, H., Martin, M., Goljandin, D., Poltimäe, T., Krumme, A. et Kers, J. (2016). Mechanical and physical properties of thermally modified wood flour reinforced polypropylene composites. *Agronomy Research*, 14(I), 994-1003.
- Kers, J. (2016). Mechanical and physical properties of thermally modified wood flour reinforced polypropylene composites. *Agronomy Research*, 14 (S1),994-1003.
- Kiziltas, A., Nazari, B., Gardner, D. J. et Bousfield, D. W. (2014). Polyamide 6–cellulose composites: Effect of cellulose composition on melt rheology and crystallization behavior. *Polymer Engineering & Science*, 54(4), 739-746.
- Klyosov, A. A. (2007). *Wood-plastic composites*, John Wiley & Sons, Hoboken, New Jersey, Canada, 738 p :617-673.
- Koay, S. C., Subramanian, V., Chan, M. Y., Pang, M. M., Tsai, K. Y. et Cheah, K. H. (2018). *Preparation and characterization of wood plastic composite made up of durian husk fiber and recycled polystyrene foam*. Paper presented at the MATEC Web of Conferences, 9th Eureka 2017 International Engineering Research Conference, 9 p.
- Kumari, R., Ito, H., Takatani, M., Uchiyama, M. et Okamoto, T. (2007). Fundamental studies on wood/cellulose-plastic composites: effects of composition and cellulose dimension on the properties of cellulose/PP composite. *Journal of Wood Science*, 53(6), 470-480.
- Lepetit, A. (2017). *Élaboration de matériaux composites à base de filaments de cellulose et de polyéthylène*. Université du Québec à Trois-Rivières-Université de Limoges, pp 147.

- Li, J., Nawaz, H., Wu, J., Zhang, J., Wan, J., Mi, Q., et al. . (2018). All-cellulose composites based on the self-reinforced effect. *Composites Communications*, 9, 42-53.
- Li, T. et Wolcott, M. (2005). Rheology of wood plastics melt. Part 1. Capillary rheometry of HDPE filled with maple. *Polymer Engineering & Science*, 45(4), 549-559.
- Li, T. et Wolcott, M. (2006). Rheology of wood plastics melt, part 2: effects of lubricating systems in HDPE/maple composites. *Polymer Engineering & Science*, 46(4), 464-473.
- Mahfoudh, A. (2013). *Étude de la production et de la caractérisation de composites bois-plastiques*. Mémoire de Maîtrise, Université Laval, Québec, Canada, pp 89.
- Manshor, M., Anuar, H., Aimi, M. N., Fitrie, M. A., Nazri, W. W., Sapuan, S., et al. . (2014). Mechanical, thermal and morphological properties of durian skin fibre reinforced PLA biocomposites. *Materials & Design*, 59, 279-286.
- Mathew, A. P., Oksman, K. et Sain, M. (2005). Mechanical properties of biodegradable composites from poly lactic acid (PLA) and microcrystalline cellulose (MCC). *Journal of Applied Polymer Science*, 97(5), 2014-2025.
- Mathew, A. P., Oksman, K. et Sain, M. (2006). The effect of morphology and chemical characteristics of cellulose reinforcements on the crystallinity of polylactic acid. *Journal of Applied Polymer Science*, 101(1), 300-310.
- Michaud, F. (2003). *Rhéologie de panneaux composites bois/thermoplastiques sous chargement thermomécanique: aptitude au post formage*. Thèse, Université Bordeaux I-Université de Laval, pp 236.
- 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, Rouyn-Noranda, Québec, Canada pp107.

- Migneault, S., Koubaa, A., Erchiqui, F., Chaala, A., Englund, K., Krause, C., et al. (2008). Effect of fiber length on processing and properties of extruded wood-fiber/HDPE composites. *Journal of Applied Polymer Science*, 110(2), 1085-1092.
- Migneault, S., Koubaa, A., Erchiqui, F., Chaala, A., Englund, K. et Wolcott, M. P. (2011). Application of micromechanical models to tensile properties of wood-plastic composites. *Wood Science and Technology*, 45(3), 521-532.
- 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.
- Miki, T., Takakura, N., Iizuka, T., Yamaguchi, K., Imanishi, H. et Kanayama, K. (2005). Injection moulding of wood powder with low binder content. *JSME International Journal Series A Solid Mechanics and Material Engineering*, 48(4), 387-392.
- Mnekbi Djebali, C. (2012). *Rhéologie des polymères fondus à hauts taux de cisaillement: application à la microinjection*. ENMP, Paris, France, pp 203.
- Mohanty, A. K., Misra, M. et Drzal, L. T. (2005). *Natural fibers, biopolymers, and biocomposites*: CRC Press, Taylor & Francis Group, 6000 Broken Sound Parkway NW, Suite 300, Boca Raton, USA, 896 p.
- Moon, R. J., Martini, A., Nairn, J., Simonsen, J. et Youngblood, J. (2011). Cellulose nanomaterials review: structure, properties and nanocomposites. *Chemical Society Reviews*, 40(7), 3941-3994.
- Morán, J. I., Alvarez, V. A., Cyras, V. P. et Vázquez, A. (2008). Extraction of cellulose and preparation of nanocellulose from sisal fibers. *Cellulose*, 15(1), 149-159. doi:10.1007/s10570-007-9145-9

- Qiu, W., Zhang, F., Endo, T. et Hirotsu, T. (2003). Preparation and characteristics of composites of high-crystalline cellulose with polypropylene: Effects of maleated polypropylene and cellulose content. *Journal of Applied Polymer Science*, 87(2), 337-345.
- Richaud, E. (2006). *Durabilité des Géotextiles en Polypropylène*. Thèse, Arts et Métiers ParisTech, France, pp 163.
- Saïd Azizi Samir, M. A., Alloin, F., Paillet, M. et Dufresne, A. (2004). Tangling effect in fibrillated cellulose reinforced nanocomposites. *Macromolecules*, 37(11), 4313-4316.
- Schwarzenbach, K., Gilg, B., Müller, D., Knobloch, G., Pauquet, J., Rota-Graciosi, P., et al. . (2001). *Plastics Additives Handbook*. Hanser, Munich, Allemagne.
- Sears, K., Jacobson, R., Caulfield, D. et Underwood, J. (2001). *Reinforcement of engineering thermoplastics with high purity wood cellulose fibers*. Paper presented at the Proc. of the 6th International Conf. on Wood-Plastic Composites. Forest Products Society, Madison, WI.
- Slama, I. (2008). *Caractéristiques physico-mécaniques des composites bois-plastiques provenant de la valorisation des résidus des panneaux MDF: étude des possibilités de recyclage*. Mémoire de Maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, Rouyn-Noranda, Québec, Canada, pp 111.
- Soucy, J. (2007). *Potentiel d'utilisation des fibres de papier dans la conception de composites bois polymères par une technique d'extrusion*. Mémoire de Maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue-Université du Québec à Chicoutimi, Québec, Canada, pp 164.
- Soucy, J. (2015). *Utilisation des résidus papetiers de diverses sources pour la production de matériaux composites bois-polymère*. Thèse, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, Rouyn-Noranda, Québec, Canada, pp 268.

- Spoljaric, S., Genovese, A. et Shanks, R. A. (2009). Polypropylene–microcrystalline cellulose composites with enhanced compatibility and properties. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 40(6), 791-799.
- Sreekumar, P., Leblanc, N. et Saiter, J. (2013). Effect of glycerol on the properties of 100% biodegradable thermoplastic based on wheat flour. *Journal of Polymers and the Environment*, 21(2), 388-394.
- 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.
- Sykacek, E., Hrabalova, M., Frech, H. et Mundigler, N. (2009). Extrusion of five biopolymers reinforced with increasing wood flour concentration on a production machine, injection moulding and mechanical performance. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 40(8), 1272-1282.
- Thiebaud, S. (1995). *Valorisation chimique de composés lignocellulosiques: obtention de nouveaux matériaux*, Thèse, Laboratoire de Chimie Agro-Industrielle – LCA, Toulouse, France, pp 194.
- Trotignon, J., Verdu, J., Dobracginsky, A. et Piperaud, M. (1996). Précis de Matières Plastiques: structures–propriétés, mise en œuvre. *Normalisation, AFNOR-Nathan*, Paris, France, 216 p.
- Vezeau, B. (2010). *Caractérisation mécanique de composites LMDPE/bois en vue d'une application en rotomoulage*, Mémoire de Maîtrise, Université de Laval, pp 134.
- Vilaseca, F., Méndez, J. A., López, J. P., Vallejos, M. E., Barberà, L., Pèlach, M. A., et al. . (2008). Recovered and recycled kraft fibers as reinforcement of PP composites. *Chemical Engineering Journal*, 138(1), 586-595.

- Wang, L., Gardner, D. J. et Bousfield, D. W. (2018). Cellulose nanofibril-reinforced polypropylene composites for material extrusion: Rheological properties. *Polymer Engineering & Science*, 58(5), 793-801.
- Wolcott, M., Chowdhury, M., Harper, D., Heath, R. et Rials, T. (2001). *Coupling agent/lubricant interactions in commercial woodfiber–plastic composite formulations*. Paper presented at the Proceedings of the Sixth International Conference on Woodfiber–Plastic Composites, Madison, USA.
- Xin, F. et Li, L. (2012). The role of a silane coupling agent in carbon nanotube/polypropylene composites. *Journal of Composite Materials*, 46(26), 3267-3275.
- Zaddi, E. (2003). Procédé de transformation des matières plastiques II, Les Presses de l'Université Laval, Québec, Canada.
- Zerhouni, A. (2010). *Caractérisation des propriétés physico-chimiques des boues issues des principaux procédés papetiers*. Mémoire de Maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, Rouyn-Noranda, Québec, Canada, pp 124.
- Zhang, S. et Koubaa, A. (2009). *Les résineux de l'Est du Canada: Écologie forestière, caractéristiques, transformation et usages*: Publication spéciale—SP-526E. FPInnovations-Forintek-division, Québec, pp 1–28 .
- Zhang, S., Zhang, Y., Bousmina, M., Sain, M. et Choi, P. (2007). Effects of raw fiber materials, fiber content, and coupling agent content on selected properties of polyethylene/wood fiber composites. *Polymer Engineering & Science*, 47(10), 1678-1687.
- Zimmermann, T., Pöhler, E. et Schwaller, P. (2005). Mechanical and morphological properties of cellulose fibril reinforced nanocomposites. *Advanced Engineering Materials*, 7(12), 1156-1161.