Étude du comportement rhéologique et des propriétés mécaniques de composites sciures de bois-polyéthylène haute densité

F. Godard, Michel Vincent, Jean-François Agassant, Bruno Vergnes

▶ **To cite this version:**

F. Godard, Michel Vincent, Jean-François Agassant, Bruno Vergnes. Étude du comportement rhéologique et des propriétés mécaniques de composites sciures de bois-polyéthylène haute densité. Rhéologie, 2008, 13, pp.9-21. hal-00509533

HAL Id: hal-00509533

https://minesparis-psl.hal.science/hal-00509533

Submitted on 13 Aug 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Étude du comportement rhéologique et des propriétés mécaniques de composites sciures de bois-polyéthylène haute densité

F. Godard[1], M. Vincent[2], J.-F. Agassant[2] et B. Vergnes[2]

[1] *Département en Sciences Appliquées, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, 445 Boulevard de l'Université, Rouyn-Noranda, QC, Canada, J9X 5E4.*

[2] *CEMEF, École des Mines de Paris, UMR CNRS 7635, BP 207, 06904 Sophia-Antipolis Cedex, France.*

Reçu le 11 novembre 2007 - Version finale acceptée le 7 avril 2008

Résumé : Les propriétés rhéologiques dynamiques à l'état fondu et les propriétés mécaniques en traction simple de composites constitués de sciures de bois dans une matrice de polyéthylène haute densité (PEHD) ont été mesurées. Six concentrations massiques (0, 20, 30, 40, 50 et 60%) et trois granulométries ont été étudiées en présence d'un agent couplant (polyéthylène greffé anhydride maléique, PE-g-MA).

La présence de sciures augmente les valeurs du module de stockage et du module de perte : ces modules sont des fonctions croissantes de la teneur en sciures. Les pulsations de croisement ($G' = G''$) diminuent avec l'augmentation de la teneur en sciures et augmentent pour une granulométrie croissante. La viscosité complexe augmente fortement en présence des sciures. Pour chaque granulométrie, on peut tracer une courbe maîtresse en normalisant viscosité et taux de cisaillement par un facteur de glissement, fonction de la concentration. En exprimant les facteurs de glissement par des lois de type Krieger-Dougherty, on peut ainsi obtenir une courbe de viscosité "universelle", de type Carreau ou Carreau-Yasuda, pour laquelle la granulométrie apparaît au travers des paramètres de la loi de Krieger-Dougherty, en particulier la concentration maximale.

La présence de sciures de bois dans la matrice polymérique modifie considérablement la réponse en traction. Le composite perd beaucoup en ductilité et en ténacité, mais sa rigidité augmente sensiblement (facteur 1,12 à 2,04). La résistance à la traction et la limite d'élasticité sont généralement moindres que celles obtenues avec le polymère seul. Les meilleures propriétés mécaniques ont été obtenues avec la sciure la plus fine qui peut être assimilée à une farine de bois. C'est pour une teneur de 30% que la résistance à la traction la plus élevée a été observée et pour une teneur de 60% que le module d'Young maximum a été enregistré. L'efficacité de l'agent couplant sur le lien polymère - bois a été mise en évidence en comparant les résultats de traction d'éprouvettes à 40% de sciures avec et sans PE-g-MA. Pour les trois granulométries, la rigidité, la ténacité, la limite d'élasticité et la résistance à la traction ont été considérablement augmentées en présence d'agent couplant.

Mots clés : Polymère thermoplastique, Composite, Sciure de bois, Suspension concentrée, Propriétés mécaniques

[Abridged English version on last page]

1. Introduction

Depuis plus d'une décennie, les composites constitués de bois et d'une matrice thermoplastique (polypropylène, PEHD, polyamide…) ont connu un développement industriel important. Le bois est présent dans le composite sous forme de fibres, de farine ou de sciure, en dimension suffisamment fine pour permettre une mise en forme par des procédés standard, tels que l'extrusion ou l'injection. La concentration massique en bois est en général de 50 à 70%, mais peut aller jusqu'à 95% [1]. Les renforts naturels ont plusieurs avantages par rapport aux renforts minéraux : faible masse volumique, faible coût, abrasion moindre, réduction de la casse des fibres lors de la mise en forme. Ces matériaux sont également non toxiques, recyclables et abondants [2-4]. Des applications potentielles de ces composites se trouvent dans les domaines des matériaux de construction, des meubles et de l'automobile.

Toutefois, il y a une incompatibilité entre le renfort de bois qui est hydrophile et la matrice thermoplastique qui est hydrophobe : cela entraîne

une faible adhésion entre les deux phases, des difficultés à obtenir un mélange homogène (problème d'agglomération du bois) et des propriétés mécaniques décevantes [5-7]. Une amélioration de la résistance mécanique requiert un meilleur lien entre les constituants du composite. Cela peut être obtenu par une modification chimique de la surface du bois ou de la matrice, ou encore par l'ajout d'un agent couplant dont le rôle est d'établir un pont entre les constituants. De plus, cet agent joue également le rôle de dispersant et facilite grandement l'obtention d'un mélange homogène à l'état fondu [3, 6, 8, 9].

Les propriétés mécaniques finales des composites bois - polymères sont fonctions des propriétés de la matrice et du renfort, de la concentration en renfort, de sa géométrie (rapport *L/D*, distribution granulométrique), de la concentration en agent couplant, ainsi que des conditions de mise en œuvre [1-10]. Un mélange efficace est nécessaire pour assurer une bonne dispersion du bois dans le polymère. Le bois est également sujet à la dégradation thermique (en particulier à partir de 200°C [11]) et il est sensible au cisaillement intense. La présence de bois augmente sensiblement la viscosité du mélange, celle-ci ne doit pas excéder une certaine limite si l'on veut mettre en forme le composite par un équipement standard, tel une extrudeuse bi-vis. Il y a aussi un intérêt à réduire la viscosité du mélange de façon à diminuer la puissance requise pour la mise en œuvre [10, 11].

L'objectif de cette étude est de déterminer l'incidence du taux et de la taille des renforts sur les propriétés rhéologiques dynamiques et les propriétés mécaniques de composites bois-polymère.

2. Matériels et méthode

2.1 Matériaux

La matrice polymérique est un polyéthylène haute densité (PEHD) (Stamylan 8621, DSM). Il a une température de fusion de 131°C, une masse moyenne en masse de 210 000 g/mole et une polymolécularité de 34. L'agent couplant est un polyéthylène greffé anhydride maléique (PE-g-MA) (Fusabond 226DE, Du Pont). Il a une température de fusion de 120°C et un melt index de 1,5g/10 min (190°C, 2,16 kg). Nous avons utilisé une quantité de PE-g-MA fixe, égale à 3% de la masse totale du composite. Cette concentration a été trouvée optimale pour augmenter le module d'Young et la résistance à l'impact Charpy pour des composites PEHD/sciures de chêne [12] ou polypropylène (PP)/sciure de bois [13]. Le bois est présent sous forme de sciures tamisées. Cette sciure a été fournie par la scierie Tembec située à Béarn (QC, Canada). Elle est constituée sur une base massique sèche de 65% d'épinette blanche (*Picea glauca*), 20% d'épinette noire (*Picea mariana*) et de 15% de sapin baumier (*Abies balsamea*). Ces essences sont des bois mous (gymnospermes). Les sciures ont été séchées sous vide à 85°C durant 24 heures, puis conservées dans des sachets en polyéthylène jusqu'à leur utilisation. Même si nous n'avons pas mesuré l'humidité résiduelle, on peut s'attendre à une valeur voisine de 2 à 3% massique. En effet, Bengtsson et al. [3] mesurent une humidité de 2,2% après 24 h à 100°C et Adhikary et al. [14] 2-3% après 24 h à 102°C. Les sciures ont été tamisées pour obtenir trois granulométries selon le diamètre *d* des tamis : $d \leq 0{,}71$ mm (fines); $0{,}71 \leq d \leq 1{,}00$ mm (moyennes) et $1{,}00 \leq d \leq 1{,}40$ (grossières).

La masse volumique apparente des trois granulométries de sciures est de 170 kg/m^3, leur densité réelle mesurée avec un pycnomètre à l'hélium (Accupic modèle1330) est de 1480 kg/m^3, cette dernière densité excluant les micropores internes. La Figure 1 montre des sciures fines en microscopie optique sous faible grossissement (x7 environ).

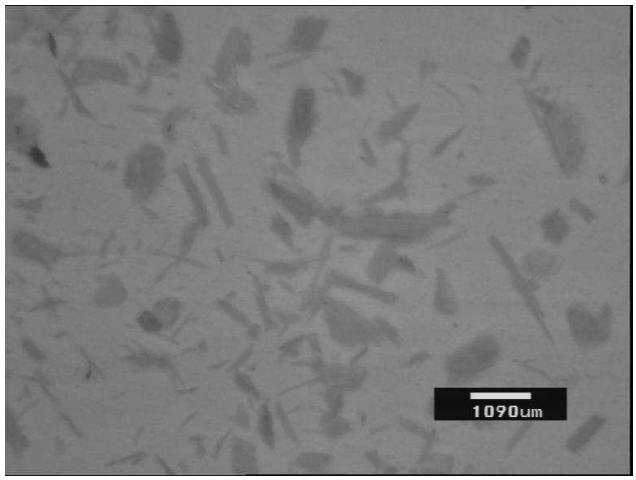

Figure 1. Sciure fine sous faible grossissement

Les longueur, diamètre et aire des particules ont été obtenus par analyse d'image (logiciel Visilog 6.3), sur plus de 280 particules pour chaque granulométrie. Les moyennes en nombre sont regroupées dans le Tableau 1. On constate que les sciures moyennes et grossières ont des dimensions assez voisines, même si la sciure grossière possède des particules de taille plus élevée (jusqu'à 4 mm). On note également que le rapport de forme (*L/D*) est plus élevé pour les sciures fines mais, dans tous les cas, il est faible (entre 1,5 et 2).

	Fines	Moyennes	Grossières
Aire (mm^2)	0,1154	0,7064	1,3457
Grand axe (mm)	0,57	1,48	1,78
Petit axe (mm)	0,30	0,78	1,15
Rapport de forme (*L/D*)	1,97	1,92	1,56

Tableau 1. Caractéristiques géométriques moyennes

Le Tableau 2 donne la distribution des longueurs des trois fractions tamisées. Il confirme l'écart assez faible entre les sciures moyennes et grossières. En fait, les analyses d'image sous Visilog éliminent les particules inférieures à 100 µm, qui sont souvent très présentes dans ce type de sciure. Pour la sciure fine, nous avons analysé plus précisément la granulométrie avec un appareil FQA (Fiber Quality Analyser, Optest Equipment, Hawkesbury, Ontario).

	Fines		Moyennes	Grossières
Longueur (mm)	Fréquence (%) Visilog	FQA	Fréquence (%)	Fréquence (%)
0 à 0,25	15,7	70,9	0	0
0,25 à 0,50	31,7	16,5	0	0
0,50 à 0,75	26,6	6,6	0	0
0,75 à 1,00	15,0	2,8	8,2	0
1,00 à 1,50	9,6	2,6	53,1	28,9
1,50 à 2,00	0,7	0,5	28,6	45,9
2,00 à 2,50	0,7	0,1	10,2	20,0
2,50 à 3,00	0	0	0	2,2
3,00 à 3,50	0	0	0	0,7
3,50 à 4,00	0	0	0	2,2
> 4,00	0	0	0	0

Tableau 2. Distribution des longueurs des sciures

La Figure 2 compare les distributions obtenues avec les deux méthodes (Visilog et FQA). On constate effectivement que les particules inférieures à 100 µm représentent 50% de la distribution (35% entre 50 et 100 µm). Cette analyse n'a malheureusement pas pu être faite sur les sciures moyennes et grossières.

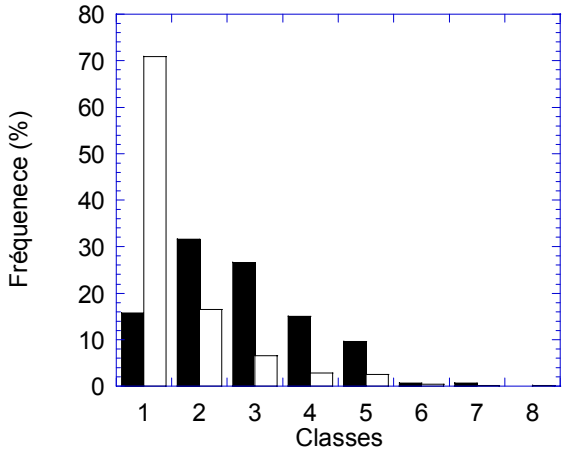

Figure 2. Distribution granulométrique des longueurs des sciures fines obtenues avec Visilog (noir) et FQA (blanc). Les classes de longueur sont celles décrites dans le Tableau 2.

2.2 Préparation des composites

Les composites ont été élaborés dans un mélangeur interne (Haake Rheomix 600, avec des rotors de type roller) à une vitesse angulaire de 60 tr/min et une température de 170 °C. Cette température a été choisie de manière à rester, pendant le malaxage, à des valeurs inférieures aux températures de dégradation des sciures et de la matrice. Un test de thermogravimétrie effectué en étuve à 170°C sur un échantillon à 60% de sciures a montré une première perte de masse très faible (0,2%) entre 30 et 40 minutes. La littérature indique, sur une essence d'épinette (*Picea abies*), une première perte de masse (très faible) entre 180 et 200°C et un maximum entre 360 et 407°C [15]. Le temps de mélange court (4 minutes) contribue également à éviter toute dégradation des composites.

Le PEHD et le PE-g-MA sont introduits initialement et mélangés durant 1,5 minutes, ce qui assure une fusion complète du mélange de polymères. Dans un deuxième temps, la sciure de bois est introduite et malaxée durant 4 minutes. Six concentrations massiques en sciures différentes ont été étudiées : 0, 20, 30, 40, 50 et 60%, ainsi que les trois granulométries. La masse totale du composite introduite dans la chambre du mélangeur est de 30 g, sauf pour la teneur à 60% de sciure pour laquelle 35 g de mélange ont été requis afin d'assurer un mélange homogène. Les mélanges ont été effectués en double afin d'obtenir une quantité suffisante pour les mesures rhéologiques et mécaniques. Les échantillons issus des deux mélanges ont ensuite été mis en commun pour réaliser les pastilles et les éprouvettes pour la caractérisation.

Les pastilles pour la rhéométrie et les éprouvettes pour les tests de traction ont été fabriquées à l'aide d'une presse chauffante, réglée à la température de 150 °C, et d'un moule constitué de plaques d'aluminium. Une pré-charge appliquée durant 2 minutes assure la fusion de la matrice, suivie d'une compression à 20 MPa durant 4 minutes pour la fabrication des échantillons. Les pastilles ont un diamètre de 25 mm et une épaisseur nominale de 4 mm. Les éprouvettes pour les tests de traction sont rectangulaires, de longueur 125 mm, largeur 13,8 mm et épaisseur 3,65 mm.

2.3 Tests rhéologiques

Les propriétés dynamiques à l'état fondu (170°C), sous azote, ont été mesurées avec un rhéomètre rotatif (Rheometrics RMS 800). Nous avons utilisé la géométrie plan – plan, avec des disques de 25 mm de diamètre et un entrefer de 3,50 mm. Étant donnée la taille des sciures, un entrefer important est requis pour être représentatif de l'échantillon [16]. Pour les différentes granulométries, la zone linéaire a été préalablement déterminée, sur les échantillons à 30% de sciure, par un balayage en déformations aux pulsations limites. Pour cette teneur, elle s'étend jusqu'à des déformations supérieures à 3%. Le balayage en pulsations couvre la plage de 0,1 à 100 rad/s (7 points par décade), il a été effectué à 2% de déformation. Des répétitions de tests ont donné des résultats similaires, à moins de 10% d'écart dans le pire des cas. À 170°C, sous azote, le comportement rhéologique des échantillons est stable pour plus de quatre heures.

2.4 Essais de traction

Cinq échantillons ont été sollicités en traction jusqu'à rupture pour chacun des composites. Les éprouvettes ont été testées 7 jours après leur moulage. Elles ont été conservées et testées dans des conditions ambiantes (environ 22°C et 40% d'humidité relative, à l'abri de la lumière). Nous avons utilisé une machine de traction universelle (Zwick/Z2.5) avec une cellule de charge de 2,5 kN. La vitesse de mise en charge est de 3 mm/min, ce qui assure une rupture du composite entre 30 secondes et 2 minutes (conforme à la norme ASTM D5456). La courbe contrainte/déformation obtenue est apparente, puisque c'est la géométrie initiale de l'éprouvette qui est utilisée dans les calculs. Cependant, pour nos composites, les contraintes vraies sont peu différentes des contraintes apparentes puisque les déformations plastiques sont très faibles (moins de 5%) et qu'il n'y a pas de striction avant la rupture. Le module d'Young est évalué par la méthode de la sécante (à 0 et 0,1% de déformation totale).

3. Comportement rhéologique et discussion

3.1 Spectres mécaniques

Il faut d'abord signaler que tous les matériaux ont donné des résultats satisfaisants, à l'exception des résines très chargées en sciures grossières : à 40%, on note un infléchissement brutal du module en fonction de la pulsation au-dessus de 20 rad/s. A 50%, ce phénomène se manifeste dès 3 rad/s. On peut attribuer ces résultats inattendus à l'apparition d'un glissement à la paroi, souvent observé pour ces matériaux à fort taux de charge [17-19].

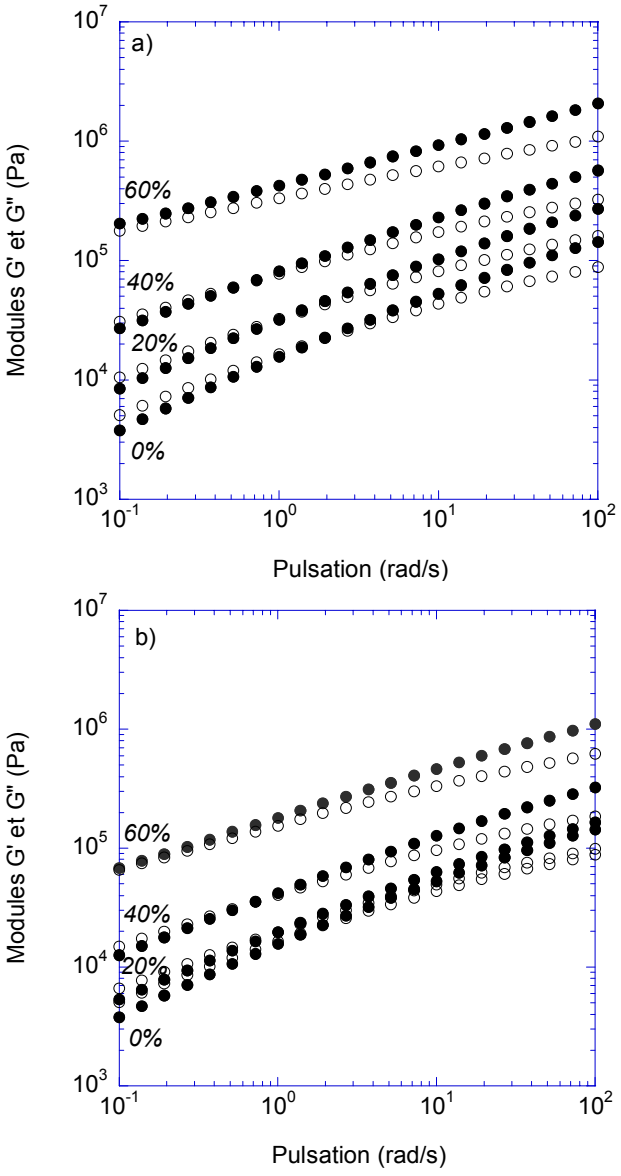

Figure 3. Evolution à 170 °C des modules *G*' (●) et *G*'' (○) des composites PEHD/sciures fines (a) et PEHD/sciures moyennes (b)

De plus, alors que pour l'ensemble des résultats, les modules croissent avec la concentration, la courbe pour 60% de sciures grossières est située très nettement en dessous de la courbe à 40%. Dans ce cas, il semble probable que la déformation de 2% choisie pour effectuer les mesures est en dehors du domaine linéaire : en effet, des valeurs inférieures à 0,1% sont citées dans la littérature pour des concentrations en bois supérieures à 50% [17-18]. En conséquence, les données correspondantes ne seront pas exploitées par la suite.

La Figure 3 présente un exemple de l'évolution des modules G' et G'' avec la pulsation, pour différents taux de charge en sciure fine et moyenne.

Le Tableau 3 donne les valeurs des pulsations de croisement pour laquelle les deux modules G' et G'' sont égaux. A 20 %, on observe un croisement des modules vers 1 rad/s, valeur proche de celle obtenue pour la matrice, soit 1,72 rad/s. Quand le taux augmente, les deux modules augmentent et la pulsation au point de croisement diminue (environ 0,6 rad/s à 40%), traduisant un comportement plus élastique. Pour 50 et 60 %, G' devient supérieur à G'' sur toute la gamme de pulsation étudiée, tout au moins pour les sciures fines.

Teneur en sciures	Fines	Moyennes	Grossières
20%	1,04	1,05	1,07
30%	0,669	0,760	0,910
40%	0,585	0,661	0,678
50%	<0,1	0,340	0,417
60%	<0,1	<0,1	-

Tableau 3. Pulsations de croisement (en rad/s) des modules de stockage et de perte

Ces résultats sont en accord avec ce qui est généralement observé pour les composites bois/polymère [20]. De plus, pour une teneur donnée en sciures, la pulsation de croisement augmente avec la granulométrie : les sciures fines augmentent davantage la composante élastique du composite. La Figure 3 montre également que, à taux de charge identique, les modules sont plus élevés pour les composites avec sciures fines.

3.2 Viscosité complexe

Les courbes de viscosité complexe pour les sciures fines et moyennes sont présentées Figure 4. La courbe pour le PEHD est sans agent couplant.

De façon générale, la présence des sciures augmente de façon importante la viscosité complexe. Cet effet est d'autant plus marqué que la taille des sciures est petite et la concentration massique élevée.

A partir de ces courbes de viscosité, on peut obtenir une courbe maîtresse, en utilisant un facteur de glissement fonction du taux de charge. Ce type de traitement a déjà été proposé par Marcovich et al. [20] pour des composites PP/farine de bois et, plus généralement, par Trappe et Weitz [21] pour des suspensions concentrées de particules faiblement attractives.

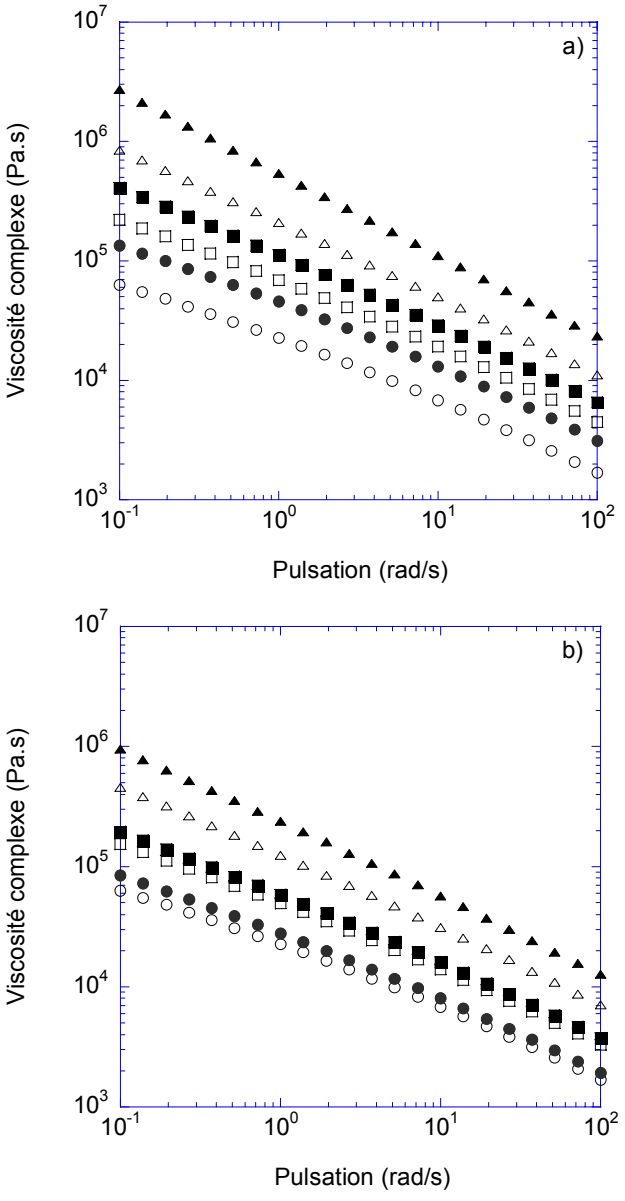

Figure 4. Viscosité complexe à 170 °C des composites PEHD/sciures fines (a) et PEHD/sciures moyennes (b) pour différents taux de charge :
○ 0%, ● 20%, □ 30%, ■ 40%, △ 50%, ▲ 60%

La Figure 5 montre, pour les sciures fines et moyennes, la viscosité réduite η^*/a_C en fonction de la pulsation réduite $\omega.a_C$, où a_C est le facteur de

glissement. On constate que la superposition est très satisfaisante et permet de définir le comportement des composites sur une large gamme de pulsations.

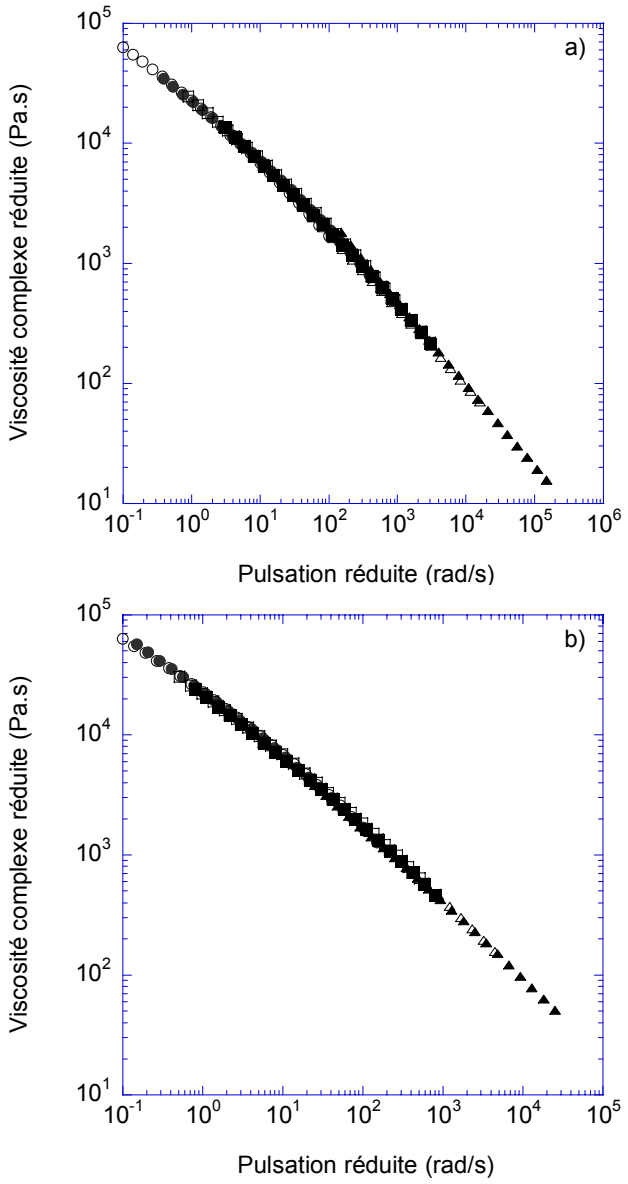

Figure 5. Courbes maîtresses à 170 °C des composites PEHD/sciures fines (a) et PEHD/sciures moyennes (b) pour différents taux de charge :
○ 0%, ● 20%, □ 30%, ■ 40%, ∆ 50%, ▲ 60%

Si l'on trace les courbes maîtresses pour les trois morphologies de sciures, on constate sur la Figure 6 que ces courbes sont parfaitement superposées. Cela signifie que l'on peut définir un comportement "universel" pour ce type de composite, caractérisé par exemple par une loi de Carreau-Yasuda, mais dont les paramètres vont dépendre à la fois du taux et de la morphologie des charges à travers le paramètre a_C :

$$\eta / a_C = \eta_0 \left[1 + (\lambda\, \omega\, a_C)^a\right]^{(n-1)/a} \qquad (1)$$

ou encore :

$$\eta = \eta_0\, a_C \left[1 + (\lambda\ a_C\, \omega)^a\right]^{(n-1)/a} \qquad (2)$$

Dans notre cas, le meilleur ajustement de la courbe donne les valeurs suivantes :

η_0 = 1 519 250 Pa.s, λ = 43,34 s, n = 0,28, a = 0,19.

On voit que ce comportement est caractérisé par une très forte viscosité plateau η_0 et un temps caractéristique λ élevé.

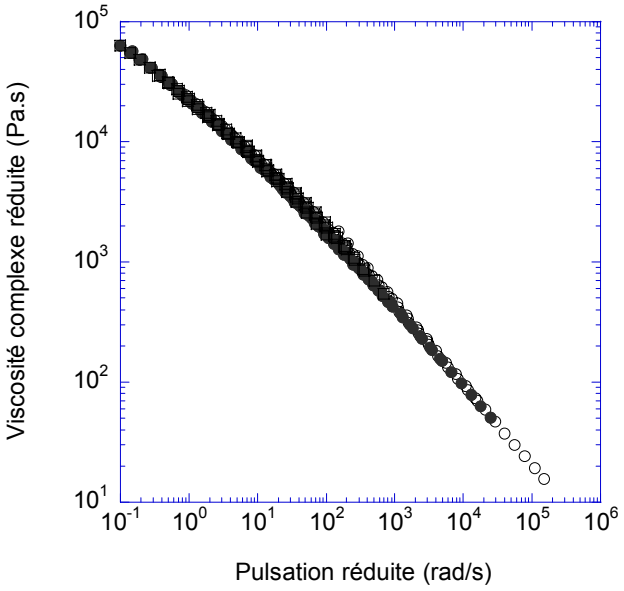

Figure 6. Courbes maîtresses à 170 °C des composites PEHD/sciures fines (○), PEHD/sciures moyennes (●) et PEHD/sciures grossières (□)

Avec ce type de formalisme, on constate que seuls la viscosité limite η_0 et le temps caractéristique λ sont modifiés par la présence des charges, via le facteur de glissement a_C. La Figure 7 montre les valeurs de a_C fonction du taux de charge pour les trois types de sciures.

Dans tous les cas, a_C augmente avec le taux de charge, et ce de façon plus marquée avec les sciures fines. L'influence de la morphologie est un peu surprenante, puisque le classement des courbes ne correspond pas directement à la granulométrie. Rappelons toutefois que les mesures avec les charges grossières peuvent être sujettes à caution, car un certain nombre de points ou même de taux de charge n'ont pas été pris en compte en raison des problèmes de glissement évoqués précédemment.

On peut imaginer caractériser l'évolution des facteurs de glissement par des lois de suspensions concentrées, du type Krieger-Dougherty [22] :

$$a_C = (1 - \frac{\phi}{\phi_{\max}})^{-[\eta]\phi_{\max}} \quad (3)$$

où ϕ_{max} est le taux de charge maximum et $[\eta]$ la viscosité intrinsèque.

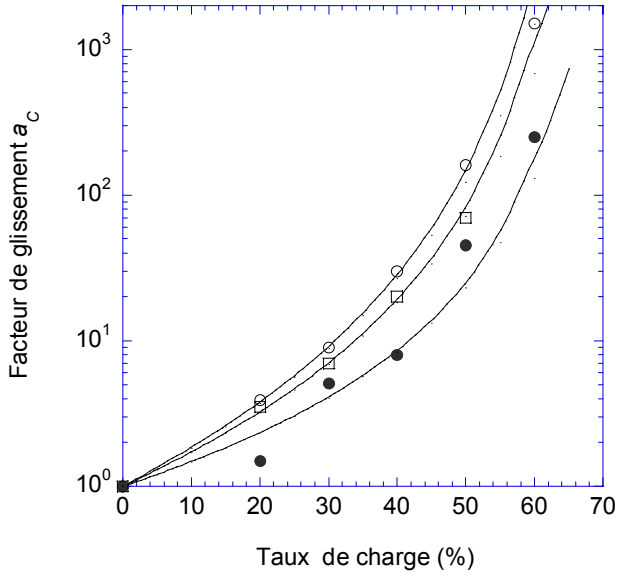

Figure 7. Facteurs de glissement des composites PEHD/sciures fines (○), PEHD/sciures moyennes (●) et PEHD/sciures grossières (□). Les traits continus correspondent au lissage par des lois de type Krieger-Dougherty.

Des approches similaires, visant à décrire la viscosité relative de composites bois/polymère par des lois de Krieger-Dougherty, ont été précédemment proposées par Dong et al. [23], Marcovich et al. [20] et Li et Wolcott [19]. La Figure 7 montre qu'effectivement ce type de loi permet de lisser convenablement les valeurs des facteurs de glissement définies par superposition des courbes de viscosité. Les valeurs des deux paramètres ϕ_{max} et $[\eta]$ ϕ_{max} pour les trois types de sciures sont données au Tableau 4.

Type de sciure	ϕ_{max}	$[\eta]\phi_{max}$
Fines	71,5 %	4
Moyennes	70 %	2,5
Grossières	71 %	3,5

Tableau 4. Paramètres du modèle de Krieger-Dougherty pour les composites PEHD/sciures

On constate que, pour les trois sciures, le taux de charge maximal est du même ordre, autour de 71%. En fait, dans les modèles de suspensions concentrées, c'est la fraction volumique et non massique qui est prise en compte. Compte tenu des densités respectives de la sciure et de la matrice, ce taux de 71% correspond à une fraction volumique de l'ordre de 60%. On est donc en dessous de la compacité maximale d'un empilement de sphères monodisperses (74%), mais plutôt autour de la valeur théorique d'un empilement dense aléatoire (63,7%), ce qui peut s'expliquer par la morphologie complexe des sciures (cf. Fig. 2). A titre de comparaison, sur des composites polyéthylène basse densité linéaire/fibres de bois (avec une longueur maximale de 240 µm et un rapport de forme de 10), Dong et al. [23] ont obtenu une fraction volumique ϕ_{max} de 0,58. Marcovich et al. [20] obtiennent ϕ_{max} = 0,40 pour des composites PP/farine de bois (de diamètre maximal 147 µm) et Li et Wolcott [19] ϕ_{max} = 0,675 pour des composites PEHD/farine de bois, ce qui est plus proche de nos valeurs. L'exposant $[\eta]\phi_{max}$ est souvent proche de 2 [24]. Pour nos sciures, il varie de 2,5 à 4 suivant la granulométrie. Il est trouvé égal à 2 par Li et Wolcott [19], à 4 par Marcovich et al. [20] et à 4,2 par Dong et al. [23]. Nos résultats sont donc assez semblables aux rares données de la littérature.

Les corrélations proposées permettent donc, pour l'ensemble des sciures étudiées, de prévoir des valeurs de viscosité complexe, avec un bon niveau de confiance, pour des teneurs massiques en sciures comprises entre 0 et 60 %.

4. Propriétés mécaniques et discussion

Les Tableaux 5, 6 et 7 synthétisent les résultats des tests de traction, respectivement pour les composites avec les sciures fines, moyennes et grossières.

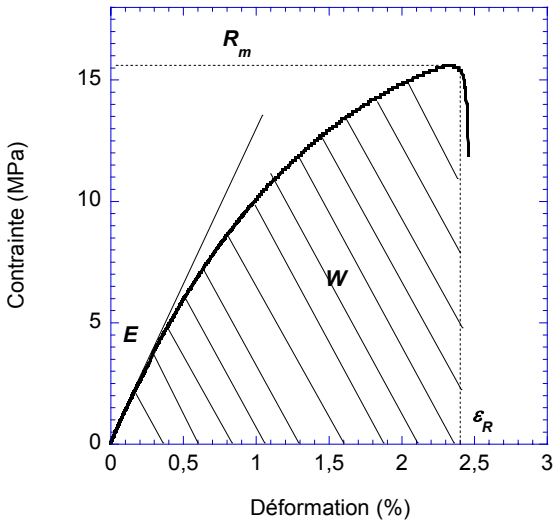

Figure 8. Courbe de traction caractéristique (40%, sciures moyennes) et paramètres mesurés.

Teneur en sciure	E (MPa)	R_p (MPa)	R_m (MPa)	ε_R (%)	W (N.mm)
0%	929 ± 33	12,48 ± 1,22	23,56 ± 2,10	108,3 ± 11,2	6942 ± 480
20%	1573 ± 41	11,20 ± 0,64	23,08 ± 1,62	5,47 ± 2,20	1844 ± 319
30%	1642 ± 60	11,51 ± 0,44	24,04 ± 0,66	5,06 ± 1,44	1827 ± 249
40%	1763 ± 77	12,92 ± 0,71	20,39 ± 0,86	2,99 ± 1,35	979 ± 375
40%*	1001 ± 120	6,80 ± 0,97	9,96 ± 1,31	2,55 ± 0,60	669 ± 220
50%	1757 ± 104	13,59 ± 0,78	18,02 ± 0,95	1,76 ± 0,34	691 ± 138
60%	1897 ± 87	12,00 ± 1,86	17,55 ± 2,25	1,59 ± 0,42	648 ± 198

Tableau 5. Propriétés mécaniques des composites à base de sciures fines (* = sans PE-g-MA)

Teneur en sciure	E (MPa)	R_p (MPa)	R_m (MPa)	ε_R (%)	W (N.mm)
0%	929 ± 33	12,48 ± 1,22	23,56 ± 2,10	108,3 ± 11,2	6942 ± 480
20%	1154 ± 44	9,94 ± 2,04	15,74 ± 1,68	4,08 ± 1,58	1632 ± 336
30%	1189 ± 65	10,18 ± 0,76	17,50 ± 1,17	3,58 ± 0,27	1617 ± 164
40%	1256 ± 92	10,93 ±0,95	14,82 ± 0,97	2,10 ± 0,30	732 ± 144
40% *	1142 ± 165	8,04 ± 0,97	10,87 ± 1,49	2,37 ± 1,05	567 ± 257
50%	1409 ± 91	12,12 ± 1,14	15,11 ± 2,12	1,67 ± 0,49	613 ± 141
60%	1449 ± 61	10,99 ± 1,16	14,04 ± 0,87	1,61 ± 0,44	534 ± 128

Tableau 6 : Propriétés mécaniques des composites à base de sciures moyennes (* = sans PE-g-MA)

Teneur en sciure	E (MPa)	R_p (MPa)	R_m (MPa)	ε_R (%)	W (N.mm)
0%	929 ± 33	12,48 ± 1,22	23,56 ± 2,10	108,3 ± 11,2	6942 ± 480
20%	1039 ± 23	9,41 ± 0,38	15,43 ± 0,98	3,58 ± 0,69	1445 ± 380
30%	1191 ± 23	10,31 ± 0,45	16,16 ± 0,43	3,09 ± 0,42	1256 ± 160
40%	1315 ± 66	11,30 ± 0,93	15,98 ± 0,65	2,36 ± 0,63	912 ± 145
40% *	1051 ± 74	6,99 ± 0,29	10,22 ± 1,04	2,75 ± 0,93	615 ± 247
50%	1358 ± 85	11,52 ± 0,75	14,76 ± 1,32	1,89 ± 0,93	699 ± 200
60%	1408 ± 57	9,55 ± 1,07	13,97 ± 1,36	1,40 ± 0,46	525 ± 250

Tableau 7 : Propriétés mécaniques des composites à base de sciures grossières (* = sans PE-g-MA)

Les paramètres indiqués sont le module d'Young E, la limite conventionnelle d'élasticité à 0,2% de déformation plastique R_p, la résistance à la traction R_m, la déformation à la rupture ε_R et l'aire sous la courbe contrainte-déformation, de l'origine au maximum de la courbe, W. Ce dernier paramètre est un indicateur de la ténacité du matériau (dans la suite, W est calculé sur la courbe brute force/déplacement, ce qui explique que l'unité correspondante est exprimée en N.mm). Une courbe de traction caractéristique, sur laquelle sont rappelés ces paramètres, est présentée Figure 8.

Le module d'Young est une fonction croissante de la teneur en sciure (Fig. 9). Les résultats sont assez peu différents entre sciures moyennes et grossières, ce qui est conforme au fait que les granulométries sont relativement proches. Globalement, le module diminue avec l'augmentation de la taille moyenne des sciures. Les modules avec sciure fine sont très largement supérieurs au module de la matrice, qui

est de 929 MPa. La plus grande rigidité (1897 MPa) est obtenue à 60% massique de sciures fines. Ces résultats sont en accord avec ceux de la littérature : sur des composites PEHD/farine de bois (diamètre de 0,18 à 0,5 mm), Adhikary et al. [14] mesurent des modules de 1,68 GPa à 50% de charges. Sur des composites HDPE/fibres de bois (rapport de forme de 12), Raj et Kokta [25] obtiennent des modules voisins de 2 GPa à 40%, alors que Yam et al. [26] arrivent à 1,6 GPa à 50% de charge pour des composites PEHD recyclé/fibres de bois.

Pour la limite d'élasticité (Fig. 10), les incertitudes de mesure sont élevées, mais on observe généralement une diminution des valeurs par rapport à la résine vierge, à deux exceptions près avec la sciure fine : la limite d'élasticité excède la valeur de la matrice pour les teneurs de 40 et 50% de sciure.

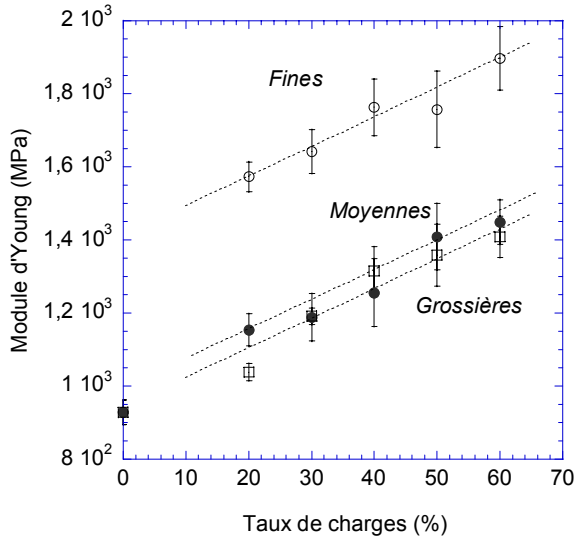

Figure 9. Module d'Young des composites PEHD/sciures fines (○), PEHD/sciures moyennes (●) et PEHD/sciures grossières (□). Les traits pointillés ne sont là que pour donner l'allure.

Pour la résistance à la traction (Fig. 11), on observe une valeur très légèrement supérieure à celle de la matrice avec 30% de sciure fine. Sinon, toutes les autres valeurs sont inférieures. Les valeurs des sciures moyennes et grossières sont indiscernables. Il est notable que, pour chacune des granulométries, on observe un maximum pour la résistance à la traction à 30% de sciures. Les valeurs obtenues avec la sciure fine sont nettement supérieures à celles obtenues avec les sciures moyennes et grossières. La plus grande résistance à la traction (24,04 MPa) est obtenue à 30% de sciures fines. Nous n'avons pas d'interprétation pour expliquer l'existence de ces valeurs optimales.

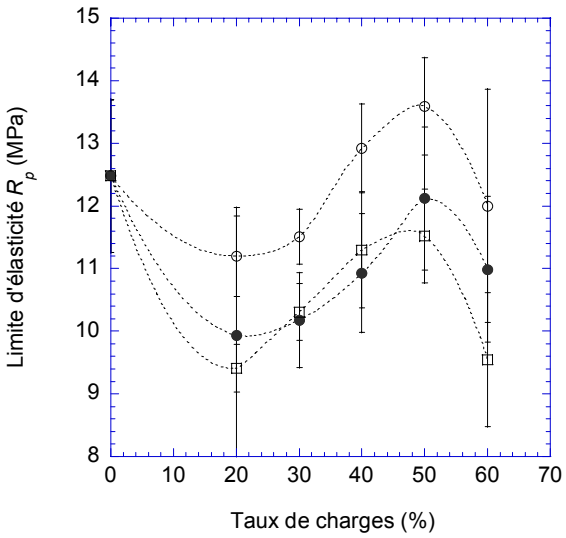

Figure 10. Limite d'élasticité R_p des composites PEHD/sciures fines (○), PEHD/sciures moyennes (●) et PEHD/sciures grossières (□). Les traits pointillés ne sont là que pour donner l'allure.

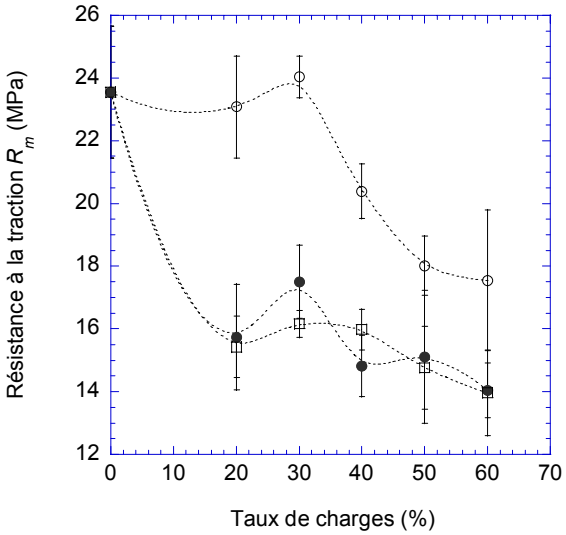

Figure 11. Résistance à la traction R_m des composites PEHD/sciures fines (○), PEHD/sciures moyennes (●) et PEHD/sciures grossières (□). Les traits pointillés ne sont là que pour donner l'allure.

L'évolution de la résistance à la traction avec le taux de charge donne des résultats contrastés dans la littérature : si Yam et al. [26] et Adhikary et al. [14] observent comme nous une diminution, Raj et Kokta [25], Woodhams et al. [27] ou Kuan et al. [28] signalent plutôt une augmentation. Dans ces derniers cas, il s'agit toutefois de fibres de bois et de pulpe, de rapport de forme important.

L'augmentation de E et R_p est particulièrement importante avec les sciures fines : ces paramètres sont tous augmentés d'au moins 50% par rapport aux sciures moyennes et grossières. On peut

attribuer cet effet au rapport surface/volume, qui est nettement plus élevé avec les sciures fines (Tableau 1). La surface spécifique de contact étant plus grande, les liens chimiques par l'intermédiaire de l'agent couplant à l'interface bois – polymère sont plus nombreux. Ceci pourrait expliquer le fait que les propriétés mécaniques diminuent avec l'augmentation des dimensions moyennes des sciures. Cet argument est celui qui est généralement avancé par les auteurs qui ont caractérisé l'influence de la taille des particules sur les propriétés mécaniques de composites bois-polymère [29, 30].

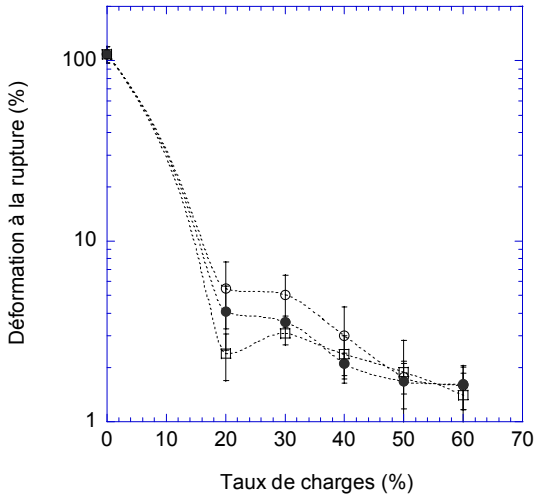

Figure 12. Déformation à la rupture des composites PEHD/sciures fines (○), PEHD/sciures moyennes (●) et PEHD/sciures grossières (□). Les traits pointillés ne sont là que pour donner l'allure.

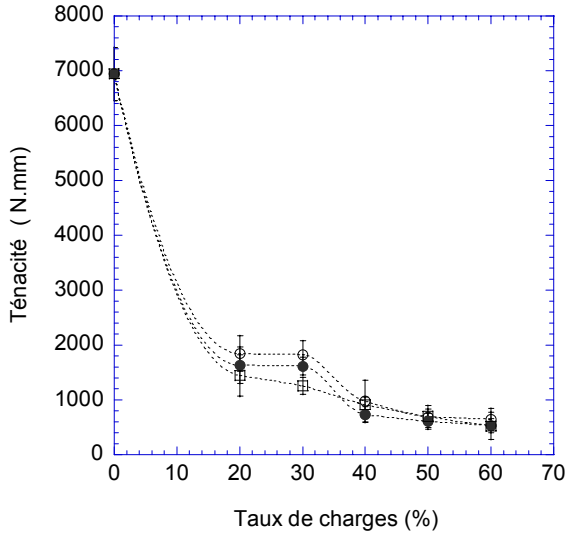

Figure 13. Ténacité des composites PEHD/sciures fines (○), PEHD/sciures moyennes (●) et PEHD/sciures grossières (□). Les traits pointillés ne sont là que pour donner l'allure.

Dans tous les cas, la présence de sciures diminue de façon très importante la ductilité (Fig. 12) et, de manière concomitante, la ténacité (Fig. 13). La chute dramatique de l'élongation à la rupture est signalée par tous les auteurs, avec des chiffres similaires : de 1 à 5% pour 50% de charges [14, 25, 26].

Pour les trois granulométries, la ténacité décroît de façon très similaire avec l'augmentation de la teneur en sciures. La meilleure ténacité est obtenue avec la plus faible teneur en sciures fines, elle correspond à 27% de la ténacité du PEHD. Ces tendances sont à rapprocher de la morphologie des renforts.

L'examen au microscope optique des granulométries moyennes et grossières démontre que la sciure prend généralement la forme d'une bûchette aux extrémités acérées. L'effet d'entaille qui provoque la concentration de contraintes est sûrement plus faible pour la farine de bois (sciures fines) que pour les deux autres granulométries.

Nous avons déterminé l'effet de l'agent couplant en mesurant les propriétés mécaniques sans et avec PE-g-MA. Comme attendu, la comparaison montre que, grâce à cet agent, le module d'Young augmente, selon le taux de renfort, de 10 à 76%, la limite d'élasticité de 36 à 90% et la résistance à la traction de 36 à 56%. En absence d'agent couplant, on observe avec 40% de sciures que la rigidité (module d'Young) est supérieure à celle de la matrice (929 MPa) pour les trois granulométries. Toutefois, les valeurs mesurées sont nettement inférieures à celles obtenues avec 3% de PE-g-MA. Enfin, en absence d'agent couplant, la résistance à la traction est très faible, environ 40% de la valeur obtenue avec la résine seule.

La Figure 14 illustre un faciès de rupture d'une éprouvette obtenu avec 30% de sciures moyennes en absence d'agent couplant.

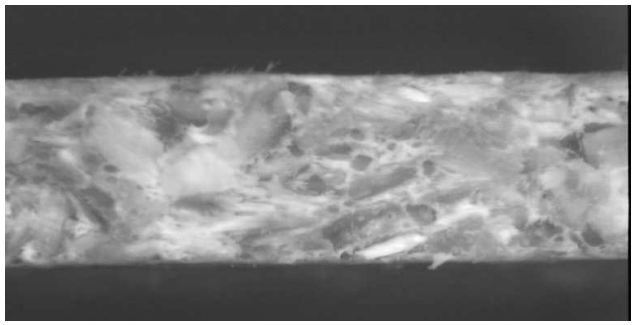

Figure 14. Faciès de rupture pour un composite à 30% de sciures moyennes sans PE-g-MA.

On remarque des vides qui correspondent à l'arrachement des fibres de la matrice. En absence d'agent couplant, la rupture est essentiellement silencieuse et elle s'effectue par délamination des fibres de la matrice. Par opposition, la rupture avec

3% de PE-g-MA était toujours accompagnée d'un claquement sec, vraisemblablement associé à la rupture de certaines fibres de bois.

Les Figures 15 et 16 illustrent des sections polies obtenues avec des échantillons contenant 40 % de sciures fines sans et avec agent couplant. Sur la Figure 15, on remarque des porosités entre la matrice et les particules de bois, ce qui contraste avec la Figure 16 où les fibres individuelles (d'un diamètre avoisinant les 20 micromètres) sont très bien enrobées dans la matrice de PEHD.

Pour toutes les concentrations et les granulométries, l'effet de l'agent couplant est significatif sur l'enrobage des particules de bois.

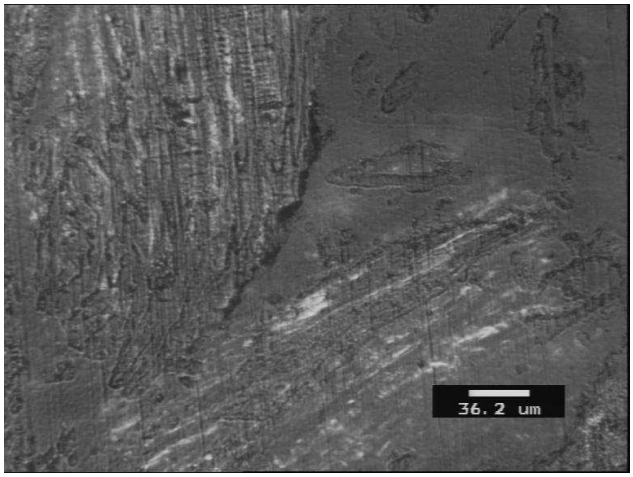

Figure 15. Section polie pour un composite à 40% de sciures fines sans PE-g-MA.

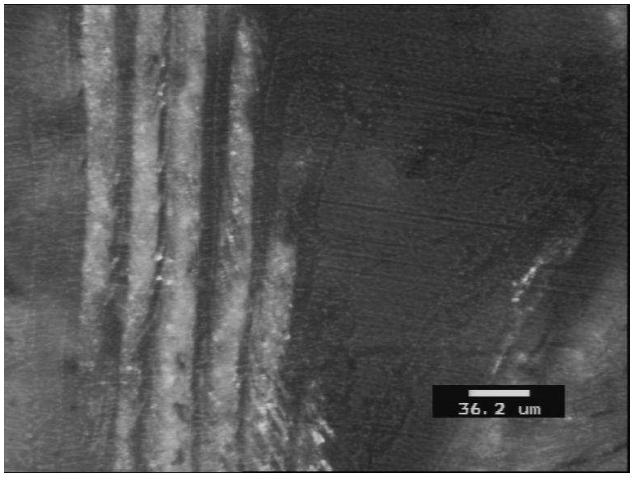

Figure 16. Section polie pour un composite à 40% de sciures fines avec PE-g-MA.

5. Conclusion

Nous avons étudié les propriétés rhéologiques dynamiques et le comportement mécanique en traction de composites constitués d'un polyéthylène haute densité et de sciures de bois à différentes teneurs et granulométries, en présence d'un agent couplant. Nos résultats indiquent que :

- Le module de stockage et le module de pertes sont des fonctions croissantes de la teneur en sciures.

- Pour une teneur donnée en sciures, la composante élastique diminue avec l'augmentation de la granulométrie.

- La viscosité complexe est une fonction croissante de la teneur en sciures et décroissante de la taille des sciures.

- La superposition des courbes de viscosité complexe avec un facteur de glissement dépendant du taux de charge et de la granulométrie permet d'arriver à une courbe unique, décrivant le comportement de tous les composites étudiés.

- Les facteurs de glissement sont correctement décrits par une loi de Krieger-Dougherty, dont les paramètres dépendent de la granulométrie.

- La présence de sciures augmente la rigidité des composites : le module d'Young est une fonction croissante de la teneur en sciure et décroissante de la taille des sciures.

- Les composites à base de sciures fines donnent les meilleurs propriétés en traction : la plus grande résistance à la traction est obtenue avec 30% de sciures fines et la plus grande rigidité avec 60% de sciures fines.

- L'agent couplant (PE-g-MA) à une teneur de 3% massique dans le composite permet un meilleur lien polymère – bois.

Les meilleures propriétés mécaniques obtenues avec les sciures fines sont vraisemblablement dues à un meilleur rapport surface/volume de la charge, permettant une meilleure adhésion entre la charge et la matrice.

6. Références

[1] Okamoto, T., Recent developments in wood/plastic composites extrusion of wood-based materials, *Mokuzai Gakkaishi*, 49, 401-407 (2003).

[2] Bledzki, A.K., Reihmane, S., Gassan, J., Thermoplastics reinforced with wood fillers: a literature review, *Polym. Plast. Technol. Eng.*, 37, 451-468 (1998).

[3] Bengtsson, M., Gatenholm, P., K. Oksman. The effect of crosslinking on the properties of polyethylene/wood flour composites. *Compos. Sci. Tech.*, 65, 1468-1479 (2005).

[4] Herrera-Franco, P.J., Valadez-Gonzalez A. A study of the mechanical properties of short natural-fiber reinforced composites, *Compos. Part B: Eng.*, 36, 597-608 (2005).

[5] Balasuriya, P.W., Ye, L., Mai, Y.-W., Mechanical properties of wood flake-polyethylene composites. Part I: effects of processing methods and matrix melt flow behaviour, *Compos. Part A: Appl. Sci. Manufact.*, 32, 619-629 (2001).

[6] Kumar, R.P., Amma, M.L.G., S. Thomas. Short sisal fiber reinforced styrene-butadiene rubber composites. *J. Appli. Polym. Sci.*, 58, 597-612 (1995).

[7] Lu, M., Wood fiber reinforced polypropylene composites, Ph.D. thesis, Dept. Chemical Engineering, Louisiana State University (1997).

[8] Lu, J.Z., Wu, Q., Negulescu, I.I., Wood-fiber/high density polyethylene composites : coupling agent performance, *J. Appl. Polym. Sci*., 96, 93-102 (2005).

[9] Wang, Y., Yeh, F.C., Lai, S.M., Chan, H.C., Shen, H.F., Effectiveness of functionalized polyolefins as compatibiliezrs for polyethylene/wood flour composites, *Polym. Eng., Sci.*, 43, 933- (2003).

[10] Bledski, A.K., Letman, M., Viksne, A., L. Rence. A comparaison of compounding processes and wood type for wood fibre-PP composites. *Compos. Part A: Appl. Sci. Manufact*., 36, 789-797 (2005).

[11] Saheb, D.N., Jog, J.P., Natural fiber polymer composites: A review, *Adv. Polym. Tech*., 18, 351-363 (1999).

[12] Keener, T.J., Stuart, R.K., T.K. Brown. Maleated coupling agents for natural fibre composites. *Compos. Part A: Appl. Sci. Manufact.*, 35, 357-362 (2004).

[13] Sombatsompop, N., Yotinwattanakumtorn, C., Thonpin, C., Influence of type and concentration of maleic anhydride grafted polypropylene and impact modifiers on mechanical properties of PP/wood sawdust composites, *J. Appl. Polym. Sci.*, 97, 475-484 (2005).

[14] Adhikary, K.B., Pang, S., Staiger, M.P., Dimensional stability and mechanical behaviour of wood-plastic composites based on recycled and virgin high density polyethylene, *Compos. Part B. Eng.,* in press (2008).

[15] Hamburg, O.F., Jakab, E., Till, F., Székely, T., Study on low mass thermal degradations products of milled wood lignins by thermogravimetry-mass-spectrometry. *Wood Sci. Tech.*, 22, 323-334 (1988).

[16] Barnes, H.A., Measuring the viscosity of large-particule (and flocculated) suspensions – A note on the necessary gap size of rotational viscometers, *J. Non-Newt. Fluid Mech.*, 94, 213-217 (2000).

[17] Hristov, V., Vlachopoulos, J., A study of viscoelasticity and extrudate distortions of wood polymer composites, *Rheol. Acta,* 46, 773-789 (2007).

[18] Li, T.Q., Wolcott, M.P., Rheology of HDPE-wood composites. I. Steady state shear and extensional flow, *Compos. Part A Appl. Sci. Manufact.*, 35, 303-311 (2004).

[19] Li, T.Q., Wolcott, M.P., Rheology of wood plastics melt. Part 1. Capillary rheometry of HDPE filled with maple, *Polym. Eng., Sci.*, 45, 549-559 (2005).

[20] Marcovich, N.E., Reboredo, M.M., Kenny, J., Aranguren, M.I., Rheology of particle suspensions in viscoelastic media. Wood flour-polypropylene melt, *Rheol. Acta,* 43, 293-303 (2004).

[21] Trappe, V., Weitz, D.A., Scaling of the viscoelasticity of weakly attractive particles, *Phys. Rev. Lett*., 85, 449-452 (2000).

[22] Krieger, I.M., Dougherty, T.J., A mechanism for non Newtonian flow in suspensions of rigid spheres, *Trans. Soc. Rheol*., 3, 137-152 (1959).

[23] Dong, S., Sapieha, S., Schreiber, H.P., Rheological properties of Corona modified cellulose/polyethylene composites, *Polym. Eng., Sci.*, 32,1734-1739 (1992).

[24] Quemada, D., *Modélisation rhéologique structurelle*, Lavoisier, Tec & Doc, Paris (2006).

[25] Raj, R.G., Kokta, B.V., Reinforcing high density polyethylene with cellulosic fibers. 1: the effect of additives on fiber dispersion and mechanical properties, *Polym. Eng., Sci.*, 31, 1358-1362 (1991).

[26] Yam, K.L., Gogoi, B.K., Lai, C.C., Selke, S.E., Comosites from compounding wood fibers with recycled high density polyethylene, *Polym. Eng., Sci.*, 30, 1693-1699 (1990).

[27] Woodhams, R.T., Thomas, G., Rodgers, D.K., Wood fibers as reinforcing fillers for polyolefins, *Polym. Eng., Sci.*, 24, 1166-1171 (1984).

[28] Kuan, H.C., Huang, J.M., Ma, C.C., Wang, F.Y., Processability, morphology, and mechanical properties of wood flour reinforced high density polyethylene composites, *Plast. Rubber Comp*., 32, 122-126 (2003).

[29] Caraschi, J.C., Leao, A.L., Woodflour as reinforcement of polypropylene, *Mater. Res.,* 5, 405-409 (2002).

[30] Myers, G.E., Chahyadi, I.S., Coberly, C.A., Ermer, D.S., Wood flour/polypropylene composites: influence of maleated polypropylene and process and composition variables on mechanical properties, *Intern. J. Polym. Mater*., 15, 21-44 (1991).

[Abridged English version]

Rheological behaviour and mechanical properties of wood-polyethylene composites

We have characterized in this study the molten rheological behaviour and the solid tensile properties of composites made of high density polyethylene (HDPE) and wood particles. Six concentrations (0, 20, 30, 40, 50 and 60 wt. %) and three particle sizes have been studied, in presence or not of a compatibilizer (maleic anhydride grafted polyethylene).

G' and *G*" increase with wood content and particle size. For each particle range, a mastercurve of complex viscosity can be obtained, using shift factors which depend on filler concentration. A general mastercurve, described by a Carreau-Yasuda law, may be deduced, whose relaxation time and zero shear viscosity are defined, as function of filler content, by Krieger-Dougherty equations.

Mechanical properties are highly modified by wood flour: ductility and tenacity largely decrease, but Young modulus may be increased by a factor 2. Best results are obtained with the finer structure, similar to a wood flour. All the mechanical properties are largely improved by the presence of the compatibilizer, which assures a good adhesion between wood and polymer matrix.