



HAL
open science

Contribution à l'étude des propriétés d'un composite PP/lin mis en oeuvre par extrusion

G. Coroller, G. Ausias, A. Bourmaud, M.-L. Tachon, C. Baley

► **To cite this version:**

G. Coroller, G. Ausias, A. Bourmaud, M.-L. Tachon, C. Baley. Contribution à l'étude des propriétés d'un composite PP/lin mis en oeuvre par extrusion. 17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17), Jun 2011, Poitiers-Futuroscope, France. pp.180. hal-00597757

HAL Id: hal-00597757

<https://hal.science/hal-00597757v1>

Submitted on 1 Jun 2011

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.

Contribution à l'étude des propriétés d'un composite PP/lin mis en œuvre par extrusion

Contribution to the study of properties of a composite PP / flax transformed by extrusion moulding

G. Coroller¹, G. Ausias¹, A. Bourmaud¹, M-L. Tachon², C. Baley¹

¹Laboratoire Ingénierie des Matériaux de Bretagne (LIMATB),
Université de Bretagne Sud, Rue de Saint Maudé, BP 92116, 56321 Lorient Cedex, France.
e-mail: guillaume.coroller@univ-ubs.fr, gilles.ausias@univ-ubs.fr, alain.bourmaud@univ-ubs.fr, christophe.baley@univ-ubs.fr
²Cooper Standard Automotive, Route des Eaux, 35503, Vitré, France.
e-mail: marie-laure.tachon@csautoint.com

Résumé

Le comportement mécanique d'un composite polypropylène (PP) renforcé avec des fibres de lin extrudé sous forme de bande plate a été étudié et comparé à celui du PP/talc. Ces mêmes matériaux ont aussi été injectés et leur propriétés comparées à celles des pièces extrudées. Les propriétés mécaniques et leur microstructure ont été étudiées après transformation. L'utilisation des fibres de lin comme renfort permet de dépasser les propriétés mécaniques du PP/talc tout en permettant une diminution du retrait et de la masse volumique. L'ajout d'anhydride maléique a permis une nette amélioration des performances grâce à l'amélioration de l'interface fibres/matrice. Les matériaux injectés présentent de meilleures caractéristiques mécaniques que ceux extrudés grâce à une meilleure orientation des fibres et une plus faible porosité.

Abstract

The mechanical behavior of a composite polypropylene (PP) reinforced with flax fibers extruded as flat band has been studied and compared with the PP / talc. These same materials were also injected and their properties compared to those of extrusions. The mechanical properties and microstructure were investigated after transformation. The use of flax fibers as reinforcement overcomes the mechanical properties of PP / talc while allowing a reduction in withdrawals and longitudinal density. The addition of maleic anhydride has a significant performance improvement by improving the interface fiber / matrix. The injected materials have better mechanical properties than those extruded through better fiber orientation and weaker porosity.

Mots Clés : extrusion, injection, PP/lin, microstructure

Keywords : Extrusion, injection, PP/flax, microstructure

1. Introduction

Les charges et renforts d'origine minérale sont les plus répandus dans les composites industriels [1-2]. Ils sont utilisés pour améliorer les propriétés du polymère et/ou permettent de diminuer les coûts [3-4]. Ces dernières années les charges et renforts organiques (sciure de bois, fibres végétales) sont devenus de sérieuses alternatives aux charges minérales grâce à leur faible densité, leur recyclabilité, leur origine renouvelable et leur biodégradabilité [5-8]. Ces qualités suscitent un grand intérêt chez les industriels et en particulier dans le secteur automobile qui affiche une volonté de plus en plus forte d'éco-conception dans leurs produits avec par exemple PSA qui veut porter à 30% en masse des matières plastiques la part des matériaux verts (20% de recyclé et 10% de biomasse) dans un véhicule en 2015 [9]. Parmi ces matériaux verts on retrouve les fibres végétales

qui présentent des capacités de renforcement proches des renforts minéraux tout en permettant un meilleur bilan environnemental grâce à un allègement des pièces et à une plus faible consommation énergétique pour l'obtention des fibres [10, 11].

Différents paramètres peuvent influencer les propriétés des fibres végétales comme la nature, la variété de la fibre, sa structure, l'angle micro-fibrillaire et son taux de cellulose [12, 13]. La fibre de lin possède des propriétés spécifiques (ratio entre la grandeur mécanique et la masse volumique) équivalentes voire supérieures à la fibre de verre [20], et c'est la fibre qui permet d'obtenir le composite avec les meilleures propriétés mécaniques [14]. Ces propriétés vont aussi dépendre fortement de l'interface fibre/matrice [15, 16]. Le polypropylène possède une faible énergie de surface [19], il en résulte une mauvaise adhérence fibre/matrice. L'utilisation d'un agent de couplage ou d'un compatibilisant tel que le polypropylène greffé à l'anhydride maléique permet d'améliorer l'adhésion fibre/matrice [14].

Dans la littérature la majeure partie des caractérisations des composites se fait sur des échantillons transformés par injection [17, 18]. Le terme extrusion est souvent lié à la phase de compoundage qui permet de réaliser le mélange des fibres et de la matrice pour la fabrication des granulés. L'extrusion ne peut être limitée à la seule fabrication de semi-produit et constitue une technique de transformation pour la réalisation de profilés en continu. C'est cette technologie qui nous intéresse. L'objectif de notre travail est de connaître le comportement de deux composites PP/lin (avec ou sans agent de couplage) extrudés sous forme de bandes plates ou injectés sous forme d'éprouvette haltère et de le comparer à celui d'un PP chargé avec du talc. Dans un premier temps nous avons caractérisé les composites extrudés afin de comparer les performances mécaniques et le niveau en retrait du PP/lin avec les PP/talc. Ensuite nous avons injecté les deux composites et nous avons comparé l'impact du process sur leurs propriétés mécaniques et sur leur microstructure (orientation et distribution des fibres dans la section).

2. Matériels et Méthodes

2.1 Matériaux

Le polypropylène utilisé comme matrice pour réaliser les composites est un copolymère de chez Dow présentant un MFI de $3.5\text{g}/10\text{min}^{-1}$. Le compatibilisant est un polypropylène greffé à l'anhydride maléique, le Licocene PPMA 7452 de chez Clariant. Les fibres utilisées sont issues d'un lin teillé puis coupé. Ces fibres avant compoundage ont une longueur moyenne de 3mm ($\pm 0.7\text{mm}$) et un rapport d'aspect (L/D) de 19 (± 12). Le matériau de référence dans cette étude sera un grade automobile de PP/talc chargé à 30% en masse.

2.2 Réalisation des compounds et des composites

Deux compounds ont été réalisés, le tableau 1 présente la composition des différents matériaux avec la fraction massique de chaque constituant.

Matériaux	Matrice (%)	Fibres (Mf%)	PP greffé anhydride maléique (%)
PP/lin	70	30	0
PPgMA/lin	68	30	2

Tab. 1 Composition des matériaux utilisés, en fraction massique

Avant compoundage les fibres ont été étuvées 2h à 100°C. Leur taux d'humidité a été contrôlé au dessiccateur halogène tout au long du process, il est maintenu entre 0.9% et 3%.

Les granulés obtenus ont été extrudés au travers d'une filière plate (42x2.26mmxmm) à l'aide d'une monovis avec une température allant de 175°C (pied de trémie) à 190°C (en tête de filière) et une

vitesse de vis de 100tr/min. Un tapis roulant permettait l'extraction régulière de la bande. Des éprouvettes haltères ont ensuite été usinées dans les bandes. Enfin des éprouvettes haltères ont été obtenues par injection des matières sur une presse BATTENFELD 80 tonnes avec des températures de moule de 30°C et de matière de 190°C.

2.3 Essais de traction

Les essais de traction ont été réalisés sur une machine de traction de type MTS Synergie RT/1000 à température de 23°C et un taux d'humidité de 48% avec un capteur de force de 10kN. La vitesse de déplacement de la traverse était de 1 mm.mn⁻¹. La mesure de la déformation s'est réalisée avec un extensomètre d'une longueur nominale de 25 mm. Les résultats présentés dans cet article sont des moyennes issues de 10 essais reproductibles.

2.4 Étude des rapports d'aspect

Des granulés ou morceaux de pièces ont été compressés à chaud sous forme de film. Ensuite à l'aide d'un microscope optique type Leica (Microsystems, Wetzlar, Germany) et du logiciel LEICA QWIN, nous avons mesuré la longueur et le diamètre de 100 fibres puis calculé le rapport d'aspect des fibres de lins qui correspond au ratio Longueur/Diamètre (L/D).

2.5 Microstructures

Pour déterminer l'orientation et la distribution des fibres dans les éprouvettes (extrudées et injectées), des observations après polissage des surfaces transverses à la direction de l'écoulement ont été menées à l'aide d'un microscope électronique JEOL JSM 6460LV. L'observation au MEB des faciès de rupture dans l'azote a permis de connaître la quantité et la répartition des porosités dans les échantillons.

2.6 Retrait longitudinal

Pour déterminer le retrait, la variation de longueur, dans le sens de l'écoulement, d'une bande extrudée de 500 mm est effectué avant et après 4 cycles climatiques (16h 40°C/95% HR – 3h (-20°C) – 6h 85°C). Ce cycle est une spécification d'un constructeur automobile.

2.7 Densité

La mesure de la densité des éprouvettes a été effectuée au pycnomètre avec de l'éthanol selon la norme ISO2781

3. Résultats et discussions

3.1 Propriétés mécaniques

La figure 1 présente l'évolution des propriétés mécaniques en fonction du renfort, de la présence d'un compatibilisant et du process d'obtention des échantillons. L'incorporation des fibres de lin renforce la matrice de manière significative. De même, les composites PP/lins présentent des propriétés mécaniques supérieures au PP/talc. L'anhydride maléique apporte un gain de performance significatif, la contrainte à rupture et le module d'Young sont supérieurs après ajout du compatibilisant.

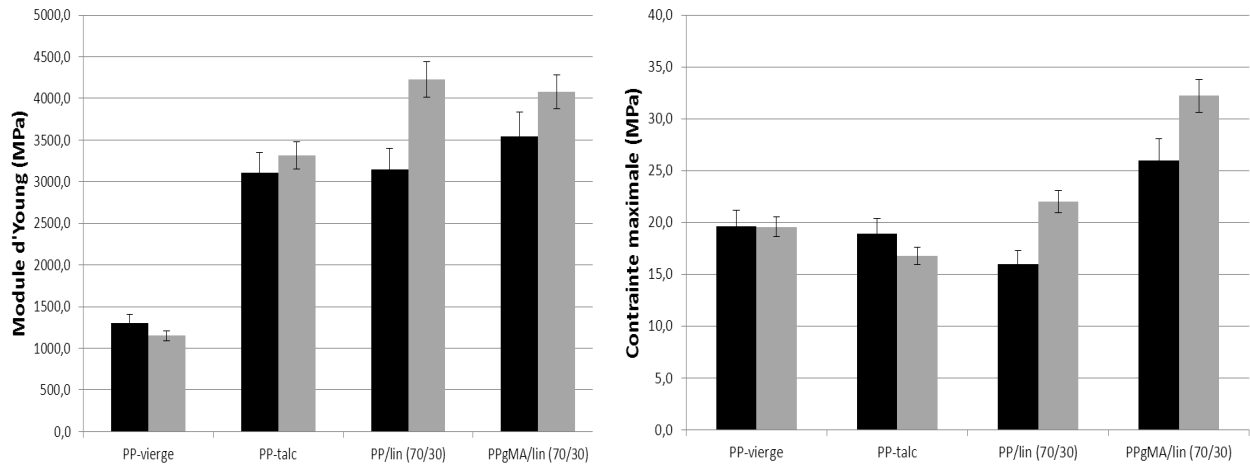


Fig.1 Propriétés mécaniques des matériaux selon le process de transformation: ■ extrusion et ■ injection

Le procédé de transformation a une influence sur les performances mécaniques ; nous notons des différences de module d'Young allant jusqu'à 28% entre un même composite injecté ou extrudé. De manière générale les composites injectés présentent les meilleures caractéristiques mécaniques par rapport à un composite extrudé, ceci est particulièrement vrai pour les composites renforcés par des fibres végétales. Les paramètres du process ont donc un impact important sur la microstructure du composite.

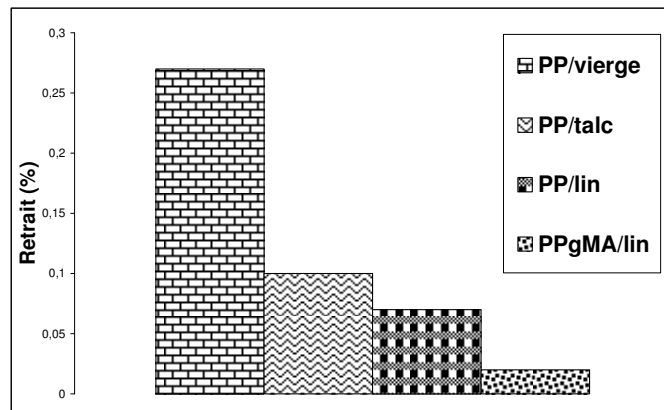


Fig.2 Evolution du retrait longitudinal en fonction du renfort

Le talc et les fibres apportent une stabilité dimensionnelle à la matrice comme le montre la figure 2. Ainsi, le retrait longitudinal des bandes extrudées passe de 0.27% pour le PP vierge, à 0.07% pour le PP/lin. Comme pour les propriétés mécaniques, l'anhydride maléique améliore la stabilité dimensionnelle des matériaux en permettant d'obtenir un retrait de 0,02%. Ce paramètre est très important, en effet la diminution des retraits dimensionnels permet d'obtenir des profilés plus stables mais aussi d'augmenter leurs cadences de production en augmentant la vitesse de tirage de la matière en sortie de filière.

La figure 3 montre les faciès de ruptures des éprouvettes injectées suite à un essai de traction. L'effet de l'anhydride maléique sur l'interface fibre/matrice se remarque sur la figure 3 b). L'adhésion fibre matrice y est meilleure que sans ajout d'anhydride maléique. On retrouve le même effet sur les éprouvettes extrudées. Cette observation explique l'amélioration des performances

mécaniques lors de son ajout. Les transferts de charges entre la fibre et la matrice sont meilleurs ce qui permet d'augmenter la contrainte à rupture.

Dans le futur, il sera intéressant de quantifier l'adhérence fibre/matrice (détermination d'une contrainte de cisaillement interfaciale) et la longueur critique des fibres (longueur minimum de la fibre de lin pour avoir, lors d'une sollicitation en traction, uniquement des ruptures de fibres).

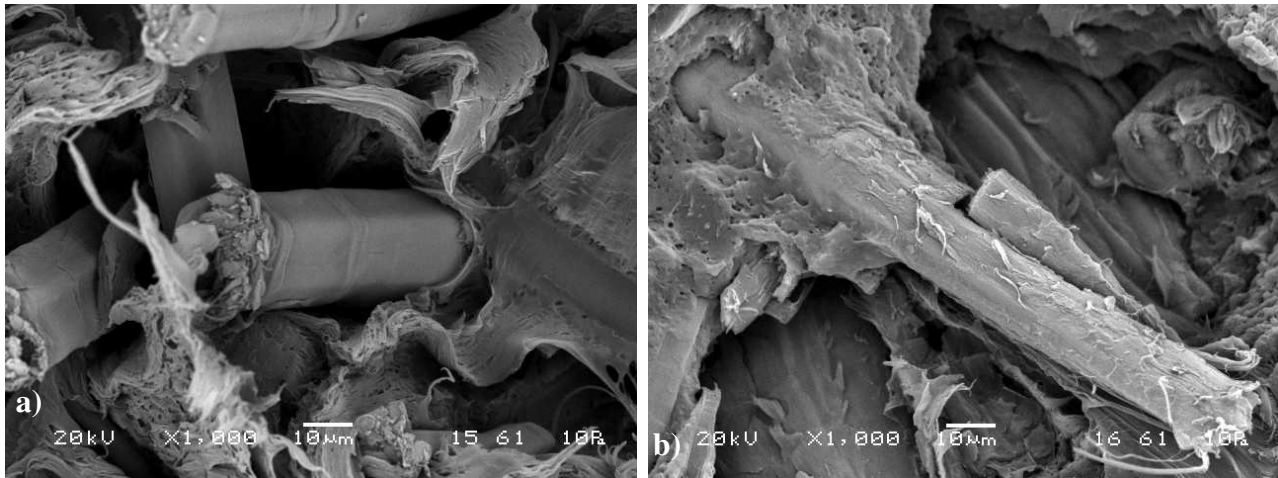


Fig.3 Photographie MEB de faciès de rupture d'éprouvette injectée en PP/lin sans a) et avec b) anhydride maléique

3.2 Évolution de la morphologie des fibres

Le protocole de transformation a une influence sur la géométrie des fibres, cette évolution de la morphologie des fibres a été étudiée tout au long du process, de la fibre découpée, à la fibre dans la pièce finale après injection ou extrusion. Le tableau 2 synthétise les résultats du composite PP/lin sans anhydride maléique il n'y a pas d'influence de l'anhydride maléique dans ce cas).

	Longueur moyenne (μm)	Diamètre moyen (μm)	L/D
Fibres découpées	3001 \pm640	207 \pm40	19 \pm2.9
Après compoundage	194 \pm50	20 \pm7	12 \pm0.7
Après extrusion	185 \pm56	19 \pm8	10 \pm3.6
Après injection	185 \pm2.5	17 \pm8	11 \pm2.5

Tab. 2 Evolution de la morphologie des fibres au cours du process PP/lin sans anhydride maléique

Il apparaît que l'étape qui a le plus d'impact est la phase de compoundage, il y a une division par 15 de la longueur et par 10 du diamètre. Dans la plante les fibres sont assemblées en paquet. Le rouissage et les traitements mécaniques de teillage et de peignage divisent les paquets, mais cette division ne va pas jusqu'à la fibre élémentaire. Le compoundage va séparer les faisceaux comme le montre la figure 3.

Suite au compoundage la morphologie des fibres n'évolue plus. Cette étape du process est critique pour l'obtention de fibres avec une morphologie apportant le meilleur renforcement possible à la pièce finale.

3.3 Étude de la microstructure

Le tableau 3 regroupe les valeurs des densités mesurées.

Matière	bande extrudée	épreuve injectée
PP	0,91	0,91
PP/talc	1,15	1,15
PP/lin	0,99 ±0.03	1,03 ±0.009
PPgMA/lin	1,01 ±0.001	1,02 ±0.002

Tab. 3 Comparaison entre la densité des échantillons extrudés et injectés

Le renforcement du polypropylène par des fibres de lin permet de baisser la densité du matériau par rapport à l'utilisation du talc, ce qui va permettre de diminuer la masse des pièces.

Pour le PP et le PP/talc on n'observe pas de différence de densités entre les deux technologies de mise en forme. Par contre l'ajout de fibre de lin dans le matériau induit une variation de la densité entre les procédés. On note un taux de porosité supérieur de 3,9% et 1% respectivement pour le PP/lin et pour le PPgMA/lin entre la matière extrudée et la matière injectée. Le temps de séjour plus long en extrusion de la matière dans la vis engendre une dégradation plus ou moins forte des parois cellulaires. Le dégagement des composés de dégradation couplé à la faible pression en sortie de filière favorise la création de porosités. La présence de ces défauts dans la matière induit des zones d'initiation de rupture dans le composite ce qui va diminuer sa contrainte à rupture.

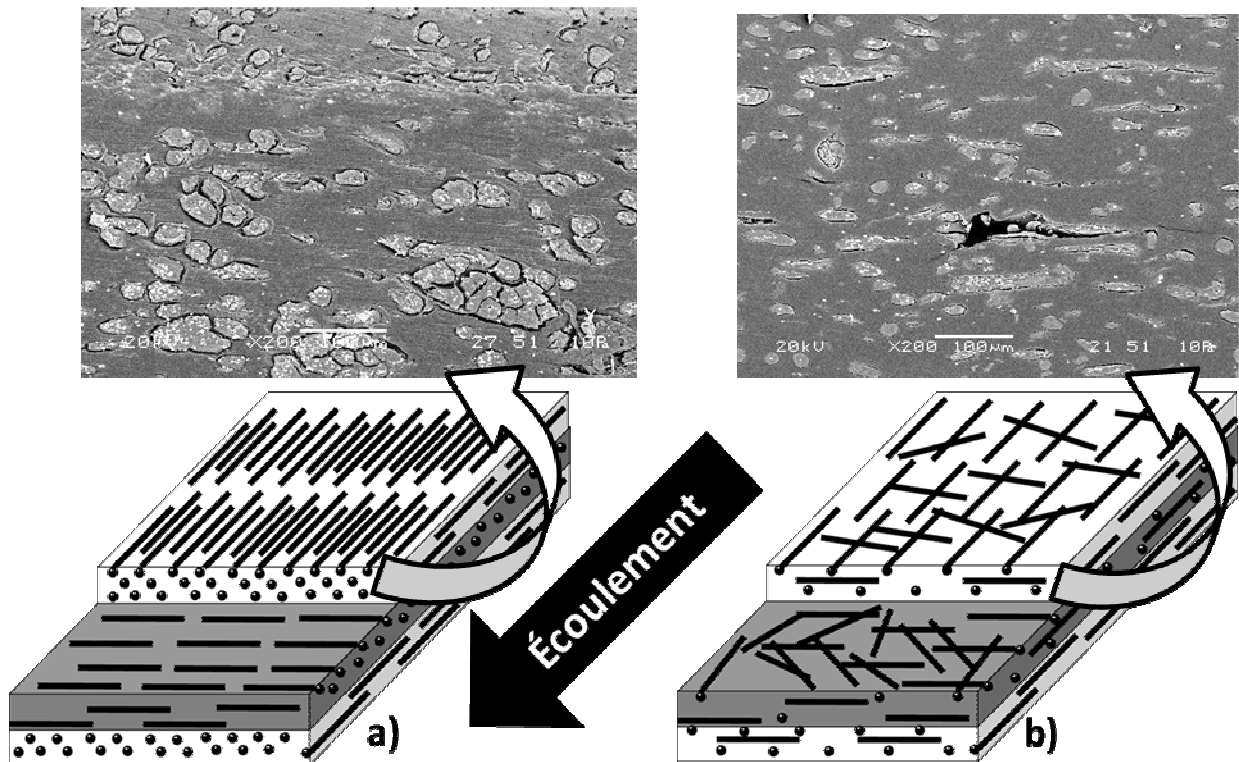


Fig.4 Photo MEB prises dans le sens transverse de l'écoulement Injection a) et Extrusion b) Observation. Schéma de l'organisation des fibres dans l'épaisseur des éprouvettes.

La figure 4 présente la répartition des fibres dans une section complète ainsi que une répartition schématique des fibres dans l'épaisseur de l'éprouvette. Cette répartition n'est pas uniforme et influence le comportement thermo-mécanique des matériaux. La figure 4 compare la distribution et l'orientation des fibres dans le composite. Le moulage par injection permet d'obtenir une plus forte orientation des fibres dans le sens de l'écoulement (particulièrement à l'extérieur) ce qui permet d'obtenir de meilleures performances mécaniques longitudinales. La répartition des fibres dans la bande extrudée est influencée par les paramètres « machine » qui feront l'objet d'une étude plus détaillée dans le futur.

4. Conclusion

Nous avons étudié l'influence de la fibre de lin et d'un agent de couplage sur un composite à matrice polypropylène ainsi que celle du procédé de transformation sur ces composites.

Le renforcement du polypropylène par de la fibre de lin permet d'améliorer les propriétés mécaniques et de diminuer le retrait longitudinal. Il permet aussi de diminuer la masse volumique par rapport à l'ajout du talc. Ceci permet d'envisager des pièces plus légères et aussi d'augmenter les cadences de production. Pour évaluer ces gains, un changement d'échelle est nécessaire pour être représentatif des procédés industriels à plus grande échelle (travaux à venir).

L'ajout de l'anhydride maléique permet d'augmenter les performances mécaniques du composite et de le rendre plus performant par rapport à notre matériau de référence grâce à l'amélioration de l'adhésion fibre/matrice. Il s'agit maintenant de quantifier l'apport de l'anhydride maléique, notamment avec des essais de choc et l'étude de la tenue au vieillissement.

Les performances mécaniques des éprouvettes injectées sont supérieures à celle des éprouvettes extrudées. Après la phase de compoundage la morphologie des fibres n'évolue plus mais de nettes différences apparaissent au niveau de la microstructure entre les deux procédés. Les bandes injectées possèdent une meilleure orientation des fibres et un taux plus faible de porosité que les bandes extrudées. Ces différences de comportement peuvent être engendrées par les pressions, le débit et les conditions de refroidissement qui feront l'objet d'étude complémentaire lors de futurs travaux.

Références

- [1] J. L. Thomason, « The influence of fibre length and concentration on the properties of glass fibre reinforced polypropylene. 6. The properties of injection moulded long fibre PP at high fibre content », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 36, no. 7, p. 995-1003, juill. 2005.
- [2] H. G. B. Premalal, H. Ismail, et A. Baharin, « Comparison of the mechanical properties of rice husk powder filled polypropylene composites with talc filled polypropylene composites », *Polymer Testing*, vol. 21, no. 7, p. 833-839, 2002.
- [3] H. D. Rozman, B. K. Kon, A. Abusamah, R. N. Kumar, et Z. A. M. Ishak, « Rubberwood-high-density polyethylene composites: Effect of filler size and coupling agents on mechanical properties », *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 69, no. 10, p. 1993-2004, 1998.
- [4] J. E. Stamhuis, « Mechanical properties and morphology of polypropylene composites. III. Short glass fiber reinforced elastomer modified polypropylene », *Polymer Composites*, vol. 9, no. 4, p. 280-284, 1988.
- [5] A. Le Duigou, I. Pillin, A. Bourmaud, P. Davies, et C. Baley, « Effect of recycling on mechanical behaviour of biocompostable flax/poly(l-lactide) composites », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 39, no. 9, p. 1471-1478, sept. 2008.
- [6] R. T. Woodhams, G. Thomas, et D. K. Rodgers, « Wood fibers as reinforcing fillers for polyolefins », *Polymer Engineering and Science*, vol. 24, no. 15, p. 1166-1171, 1984.

- [7] Joshi, S.V., et al., « Are natural fiber composites environmentally superior to glass fiber reinforced composites? *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* AICChE 2002, 2004. 35(3): p. 371-376.
- [8] C. Baley, Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol.33, pp.939-948, 2002
- [9] <http://www.developpement-durable.psa.fr>
- [10] S. M. Luz, A. Caldeira-Pires, et P. M. C. Ferrão, « Environmental benefits of substituting talc by sugarcane bagasse fibers as reinforcement in polypropylene composites: Ecodesign and LCA as strategy for automotive components », *Resources, Conservation and Recycling*, vol. 54, no. 12, p. 1135-1144, oct. 2010.
- [11] Papier Antoine
- [12] K. Oksman, A. P. Mathew, R. Långström, B. Nyström, et K. Joseph, « The influence of fibre microstructure on fibre breakage and mechanical properties of natural fibre reinforced polypropylene », *Composites Science and Technology*, vol. 69, n°. 11-12, p. 1847-1853, sept. 2009.
- [13] D. N. Saheb et J. P. Jog, « Natural fiber polymer composites: A review », *Advances in Polymer Technology*, vol. 18, n°. 4, p. 351-363, 1999.
- [14] Ausias G, Bourmaud A, Veille JM, Baley C. Effect of fibre characteristics and process conditions on the mechanical properties of vegetal fibre reinforced polypropylene *Applied Composite Materials*. 2011;Under review
- [15] Baley, C., et al., Influence of chemical treatments on surface properties and adhesion of flax fibre-polyester resin. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 2006. 37(10): p. 1626-1637.
- [16] Zafeiropoulos, N.E., C.A. Baillie, and J.M. Hodgkinson, Engineering and characterisation of the interface in flax fibre/polypropylene composite materials. Part II. The effect of surface treatments on the interface. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 2002. 33(9): p. 1185-1190.
- [17] Alain Bourmaud, Christophe Baley, Rigidity analysis of polypropylene/vegetal fibre composites after recycling, *Polymer Degradation and Stability*, Volume 94, Issue 3, March 2009, Pages 297-305*
- [18] A. Arbelaiz, B. Fernandez, J.A. Ramos, A. Retegi, R. Llano-Ponte, I. Mondragon, Mechanical properties of short flax fibre bundle/polypropylene composites: Influence of matrix/fibre modification, fibre content, water uptake and recycling, *Composites Science and Technology*, Volume 65, Issue 10, August 2005, Pages 1582-1592
- [19] G. Cantero, A. Arbelaiz, R. Llano-Ponte, et I. Mondragon, « Effects of fibre treatment on wettability and mechanical behaviour of flax/polypropylene composites », *Composites Science and Technology*, vol. 63, n°. 9, p. 1247-1254, juill. 2003.
- [20] E. Bodros, I. Pillin, N. Montrelay, et C. Baley, « Could biopolymers reinforced by randomly scattered flax fibre be used in structural applications? », *Composites Science and Technology*, vol. 67, n°. 3-4, p. 462-470, mars. 2007.