



**HAL**  
open science

## Impact de la variabilité des polypropylènes issus des gisements actuels sur les propriétés mécaniques.

Hamdi Jmal, Nadia Bahlouli, Christiane Wagner-Kocher

### ► To cite this version:

Hamdi Jmal, Nadia Bahlouli, Christiane Wagner-Kocher. Impact de la variabilité des polypropylènes issus des gisements actuels sur les propriétés mécaniques.. 19èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC 2015), Jun 2015, Lyon, France. hal-03511505

**HAL Id: hal-03511505**

**<https://hal.science/hal-03511505v1>**

Submitted on 10 Jun 2022

**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.

## **Impact de la variabilité des polypropylènes issus des gisements actuels sur les propriétés mécaniques**

### ***Impact of the variability of polypropylene from existing sourcing on the mechanical properties***

**Hamdi Jmal<sup>1</sup>, Nadia Bahlouli<sup>1</sup>, Christiane Wagner-Krocher<sup>2</sup>**

1 : ICube, Université de Strasbourg, CNRS  
2-4 rue Boussingault, 67000 Strasbourg  
e-mail : jmal@unistra.fr, nadia.bahlouli@unistra.fr

2 : LPMT - ENSISA, Université de Haute Alsace, Mulhouse  
11 rue Alfred Werner - 68093 Mulhouse  
e-mail : christiane.wagner-kocher@uha.fr

### **Résumé**

A partir des gisements actuels, différents grades de polypropylènes peuvent être proposés. Pour obtenir ces différents grades, les recycleurs introduisent des adjuvants, des charges, etc. pour obtenir des propriétés spécifiques [1-5]. Nous proposons dans cette étude de travailler sur des polypropylènes régénérés pour déterminer l'impact de la variabilité des grades (MFI) sur le type du comportement, le module élastique, la limite élastique, la contrainte maximale et les mécanismes de rupture. Une comparaison entre les propriétés mécaniques du polypropylènes régénérés et non régénérés a été également menée. Une analyse post mortem du faciès de rupture des échantillons a été réalisée afin d'identifier les mécanismes de ruptures.

### **Abstract**

The properties of regenerated polypropylene depend on the origin of waste deposits and its chemical constituents. So to obtain specific properties [1-5] with a predefined grade of polypropylene, the recyclers introduce additives, fillers, etc... In this study, we propose to work on regenerated polypropylenes to determine the impact of the variability of grades (MFI) on the mechanical behavior type, the elastic modulus, the yield stress, the maximum stress, and the failure mechanisms. A comparison of the mechanical properties of regenerated and unregenerate polypropylene was also conducted. A post-mortem analysis of the samples was carried out to make the link between mechanical properties and microstructure.

**Mots Clés :** régénération, polypropylène, grade, effets de vitesses, propriétés mécaniques

**Keywords :** regenerated polypropylene, grade, strain rate effects, mechanical properties

## **1. Introduction**

En raison de la forte augmentation des gisements de polymères, les effets du recyclage sur les matériaux en polypropylène ont fait l'objet de nombreuses études [1-11]. Certaines dégradations induites par le vieillissement et le recyclage des composites à base de polypropylène ont été quantifiées sous chargement quasi statique par Luda et al [8-9]. Ceux-ci, Aurrekoetxea et al. [10], Guerrica-Hechevarria et al. [11] ont montré que les caractéristiques rhéologiques et les propriétés physiques sont dégradées après le recyclage. Ils ont observé une augmentation de l'indice de fluidité à chaud (MFI) et du degré de cristallinité ( $\chi_c$ ), avec une réduction continue de la masse molaire, et de la température de fusion ( $T_m$ ) lorsque le nombre d'extrusion augmente. Au cours de multiples extrusions / procédés de broyage, la chaîne polymère subit de nombreuses scissions qui provoquent la dégradation des propriétés mécaniques [1-5]. Ces différentes études mettent en évidence la perte de certaines propriétés mécaniques. Les recycleurs qui fournissent les polypropylènes recyclés régénèrent les différents lots de diverses origines (flaconnages, pare choc, etc.) en les qualifiant par rapport à des « grades » en fonction des besoins clients. Ces « grades » sont proportionnels au Melt

Flow Index. Ainsi, pour obtenir différents grades, les recycleurs introduisent des adjuvants, des charges, etc. pour obtenir des propriétés spécifiques pour chaque client [1-5]. Mais l'adjonction de certains éléments pour assurer un niveau de grade suffisant ne se fait pas sans modification des propriétés mécaniques et des mécanismes de déformations. Nous proposons dans cette étude de travailler sur 3 grades différents de polypropylènes régénérés : grade 3, grade 10 et grade 50 pour déterminer l'impact de la variabilité des grades (MFI) sur le type du comportement, le module élastique, la contrainte maximale, la limite élastique, les propriétés thermomécaniques et les mécanismes de rupture. Une comparaison entre les propriétés mécanique des polypropylènes régénérés et non régénérés issus d'études antérieurs menées dans notre équipe a permis d'identifier le type d'adjuvants ou de charges en fonction du grade et de comprendre les comportements obtenus.

## 2. Matériaux et méthodes

### 2.1 Matériaux

Afin d'étudier l'influence de grades (MFI) sur les propriétés mécaniques du polypropylène régénéré, trois lots de trois indices de fluidité à chaud différents (donc de trois grades) ont été fournis par le recycleur (Tab 1). Ce dernier confirme que les indices de fluidité ont été obtenus suite à l'introduction d'additifs de différentes natures et à différents taux. Ainsi, le taux de charge final de chaque lot (Tab. 1) comporte à la fois les additifs volontairement ajoutés et les charges dépendantes du gisement.

Désignation	PP3	PP10	PP54
Description	PP régénéré	PP régénéré	PP régénéré
Technique de mise en forme	Injection	Injection	Injection
Couleur	Gris floral	Noir	Blanc laiteux
Densité (g/cm <sup>3</sup> )	0.968	0.951	0.923
Indice de fluidité (g/10min)	3	10.3	54.1
Taux de charge (%)	8.3	4.1	2.2

Tab. 1 : Matériaux étudiés

### 2.2 Essais

Des essais de traction et flexion quasi statique ont été menés selon les normes en vigueur (ISO 527-2 (2012) pour l'essai de traction et ISO 14125 (1998) pour les essais de flexion.

Les conditions expérimentales sont décrites dans le tableau 2. Les lettres 'T' et 'F' désignent respectivement l'essai de traction et l'essai de flexion. Les vitesses d'essais en traction ont été choisies afin d'avoir au moins trois vitesses de déformations différentes. Ainsi, nous avons pu étudier l'influence de la vitesse de déformation sur les propriétés mécaniques. Les vitesses d'essais en flexion ont été choisies afin d'avoir les mêmes vitesses de déformations en traction et en flexion. Par conséquent, une comparaison rigoureuse a pu être menée entre les propriétés en traction et en flexion.

Désignation du test (traction / flexion)		(T1 / F1)	(T2 / F2)	(T3 / F3)
Vitesse d'essai (traction)	(mm/min)	5	50	200
Vitesse d'essai (flexion)	(mm/min)	9.03	90.36	361.45
Tolérance sur la vitesse	(%)	20	10	10
Vitesse de déformation	(sec <sup>-1</sup> )	$6.5 \cdot 10^{-4}$	$6.5 \cdot 10^{-3}$	$2.6 \cdot 10^{-2}$
Nombre d'échantillon testé		5	5	5
Température	(°C)	23±2	23±2	23±2
Taux d'humidité	(%)	50 ±10	50 ±10	50 ±10

Tab. 2 : Conditions expérimentales des essais

Les essais de traction et de flexion ont été menés sur une machine de traction / compression de type INSTRON 3345. La machine comporte une cellule de force de 5 kN et un capteur de déplacement intégré. Un extensomètre à pince INSTRON 2630-102 a été mis en place lors des essais de traction afin d'assurer une mesure de la rigidité et de la contrainte seuil dans la partie utile de l'éprouvette. Il permet également de s'absoudre des effets liés à la machine à savoir la tri-axialité du chargement, la raideur machine et le jeu cinématique. Les éprouvettes testées en traction sont de forme plate, de section rectangulaire et de dimensions normalisés (type 1A, ISO 572-2).

Pour les essais de flexion 4 points conformément à la norme ISO 14125 (1998), nous avons fabriqué un dispositif de flexion adapté à la machine. Les essais de flexion 4 points ont été choisis puisqu'ils offrent théoriquement une sollicitation en flexion pure entre les cylindres de chargement (Fig. 1-b). Les éprouvettes testées en flexion sont de forme rectangulaire et de dimensions normalisées (Class I, ISO 14125). Contrairement aux essais de traction menés jusqu'à la rupture des éprouvettes, nous n'avons pas pu atteindre la rupture avec les essais de flexion. Ce dernier est arrêté dès que l'éprouvette commence à s'enrouler autour des cylindres de chargement. Ainsi, lors de comparaisons entre les propriétés à la traction et à la flexion, nous nous intéresserons uniquement au module d'Young, à la limite élastique et à la contrainte maximale.

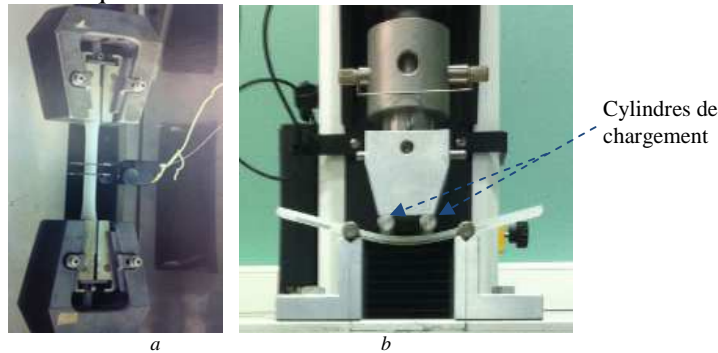


Fig. 1. Dispositif d'essai : a) traction, b) flexion.

### 3. Résultats et discussions

Pour des raisons de confidentialité, les résultats présentés dans ce papier ont été normalisés.

Les courbes contrainte vraie - déformation vraie en traction (Fig. 2.a) et les courbes contrainte-déformation en flexion (Fig. 2-b) montrent un comportement visco-élasto-plastique du PP régénéré. Ce type de comportement est mis en évidence lors de l'observation de l'évolution de la déflexion après le déchargement des éprouvettes testées en flexion (Fig. 3). En fait, un recouvrement rapide a été observé au départ, suivi par une évolution lente.

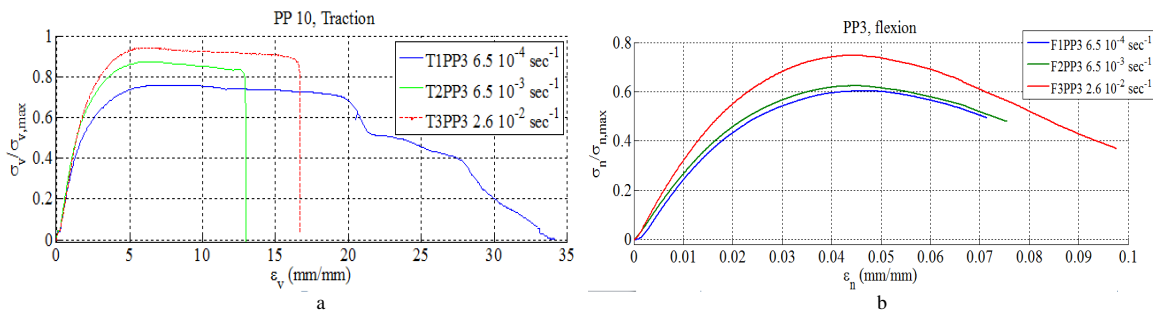


Fig. 2. Courbes contrainte- déformation (a. traction, b. flexion).



Fig. 3. Evolution de la déflexion après déchargement des éprouvettes en flexion.

Les essais de traction sur les trois grades de PP régénérés montrent trois mécanismes de rupture différents. La rupture du PP3 est initiée par un phénomène de cavitation (blanchiment au niveau de la zone utile) avant fibrillation (Fig. 4-a). A la vitesse de déformation  $6.5 \cdot 10^{-4} \text{ sec}^{-1}$ , l'effet de peau visualisé sur le grade PP10 (Fig. 4-b) est expliqué par la génération de cavités qui ont eu le temps de se propager jusqu'aux bords des éprouvettes. Cependant, pour les vitesses de déformation  $6.5 \cdot 10^{-3} \text{ sec}^{-1}$  et  $2.6 \cdot 10^{-2} \text{ sec}^{-1}$ , l'effet de peau n'était pas constaté sur le grade PP10 vu que les cavités générées n'ont pas eu le temps de se propager (Fig. 4-b). Le PP54 quant à lui, présente un faciès de rupture fragile avec un comportement faiblement ductile. Des analyses chimiques menées par nos partenaires du projet ont mis en évidence la grande pureté de ce grade (pas de charge). Cette faible ductilité est donc probablement due à l'ajout de peroxyde par les recycleurs comme additifs dans le PP54 pour augmenter le grade et faciliter le process. L'ajout de peroxyde induit en effet une scission des chaînes polymères d'où une rupture fragile (Fig. 4-c).

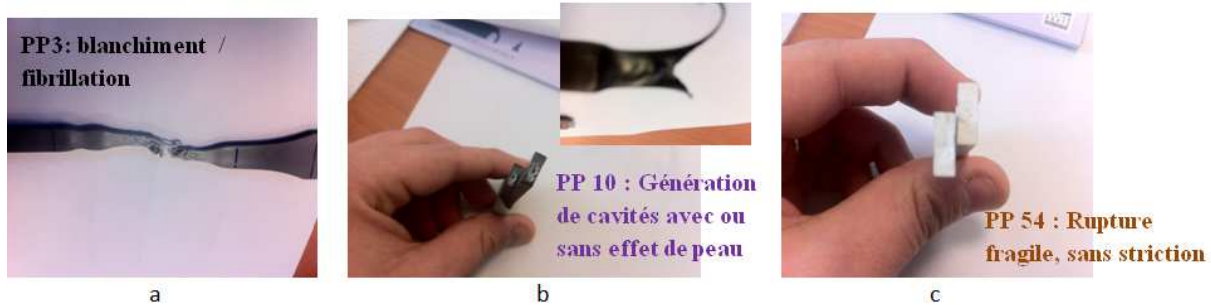


Fig. 4. Mécanismes de rupture : a. Blanchiment et fibrillation PP3, b. Génération de cavités avec ou sans effet de peau PP10, c. Rupture fragile sans striction PP54.

### 3.1 Influence de la vitesse de déformation

Malgré l'origine « déchets » du PP testé dans ce papier, les essais de flexion et traction présentent une reproductibilité assez intéressante. La dispersion des propriétés identifiées à travers les essais ne dépasse pas 2% de leurs valeurs moyennes.

Les courbes de la figure 5 montrent la dépendance des propriétés mécaniques du PP régénérés en traction et en flexion à la vitesse de déformation.

La tendance d'augmentation du module d'Young (Fig. 5-a, Fig. 5-b) est probablement due à la diminution de la mobilité des chaînes moléculaires des polymères à cause de l'augmentation de la vitesse de déformation [12]. Quant à la contrainte seuil, un processus secondaire des molécules peut être à l'origine de l'augmentation de la limite élastique avec la vitesse de déformation (Fig 5-c et Fig. 5-d).

Les figures 5.e et 5.f montrent également une augmentation de la résistance en traction et en flexion avec la vitesse de déformation.

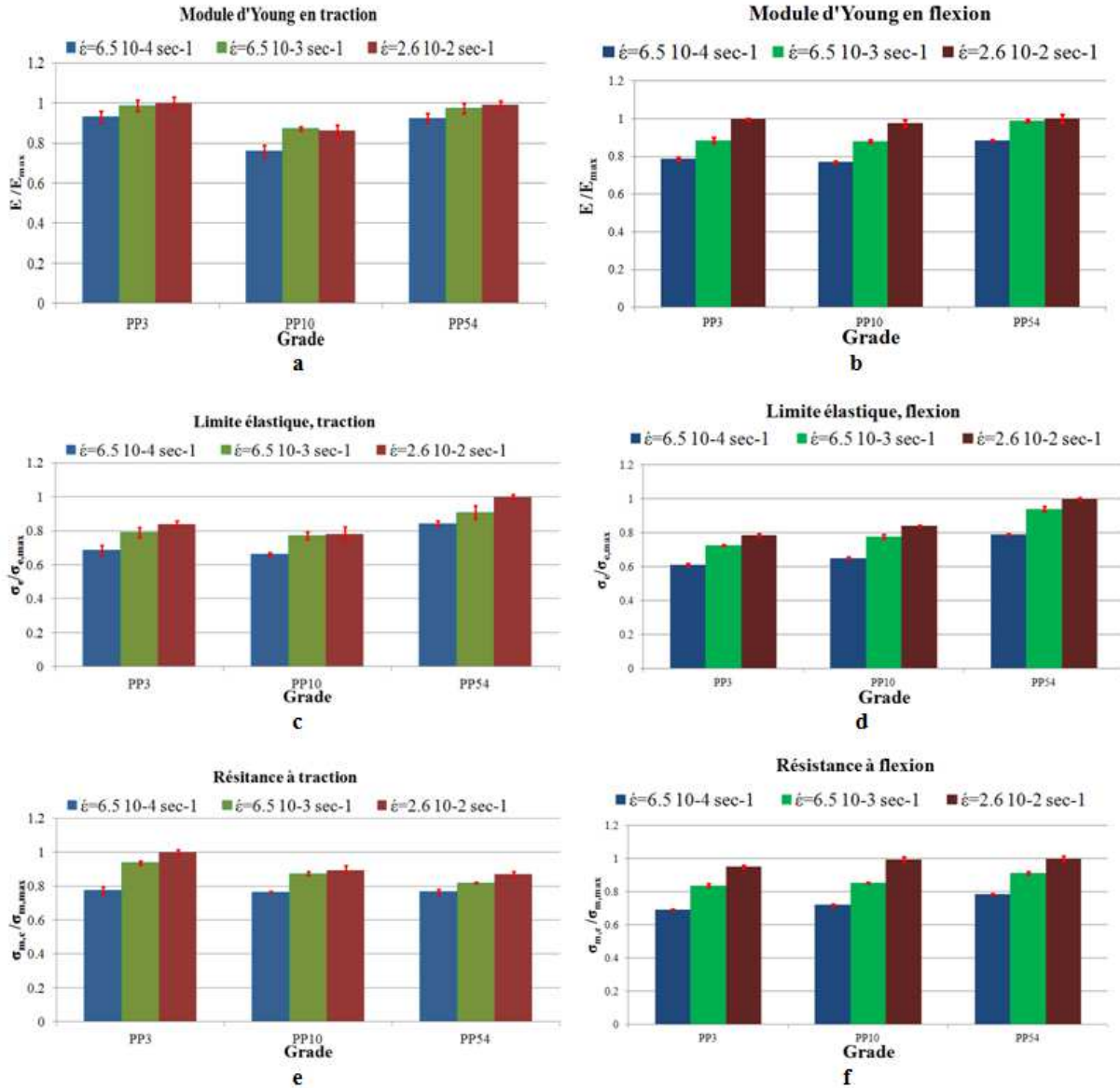


Fig. 5. Influence de la vitesse de déformation sur les propriétés mécaniques des PP régénérés : Module d'Young (a. traction, b. flexion), Limite élastique (c. traction, d. flexion), Résistance (e. traction, f. flexion).

### 3.2 Influence du grade PP

Les essais de traction et de flexion montrent que le PP du grade 10 est le plus souple alors que le PP du grade 54 est le plus rigide (Fig. 6-a et Fig. 6-b). La comparaison des modules d'Young des PP régénérés avec celui du PP vierge montre une différence légère.

Pour une vitesse de déformation donnée, la limite élastique en flexion (Fig. 6-d) et la résistance en flexion (Fig. 6-f) augmentent avec l'indice de fluidité du PP régénérés (grade). Cependant en traction, la résistance diminue avec l'augmentation de l'indice de fluidité (Fig 6-c, vitesses de déformation  $6.5 \cdot 10^{-3} \text{ sec}^{-1}$  et  $2.6 \cdot 10^{-2} \text{ sec}^{-1}$ ). Le PP régénéré de grade 54 offre la limite élastique la plus importante alors que le grade PP 10 présente la limite la plus faible.

Pour expliquer la différence entre la traction et la flexion, il est nécessaire d'identifier en perspective les propriétés en compression des PP régénérés.

Théoriquement [13], l'indice de fluidité de PP vierge (grade) est inversement proportionnel à la masse molaire. L'augmentation de la masse molaire est accompagnée par une augmentation des longueurs des chaînes polymères et du nombre d'enchevêtrement qui sont à l'origine d'une diminution de la mobilité moléculaire. La formation de cristallites devient donc plus difficile et les zones amorphes dans le PP vierge croissent en faveur des zones cristallines. Par conséquent, l'augmentation d'indice de fluidité (grade) du PP vierge implique une augmentation du module d'Young et de densité [13]. Cependant, la densité des PP régénérés (Tab. 1) ainsi que leurs modules d'Young identifiés à travers des essais de flexion (Fig. 6-b) et de traction (Fig. 6-a) ne confirment pas l'analyse théorique [13]. Ceci est expliqué par la présence des additifs et des types de charges et de leurs différentes proportions dans les grades de PP régénérés. Les analyses chimiques menées par nos partenaires du projet ont mis en évidence la présence des particules de carbone dans le PP de grade 10, d'où sa couleur noire et la présence de pigments dans le PP du grade 3.

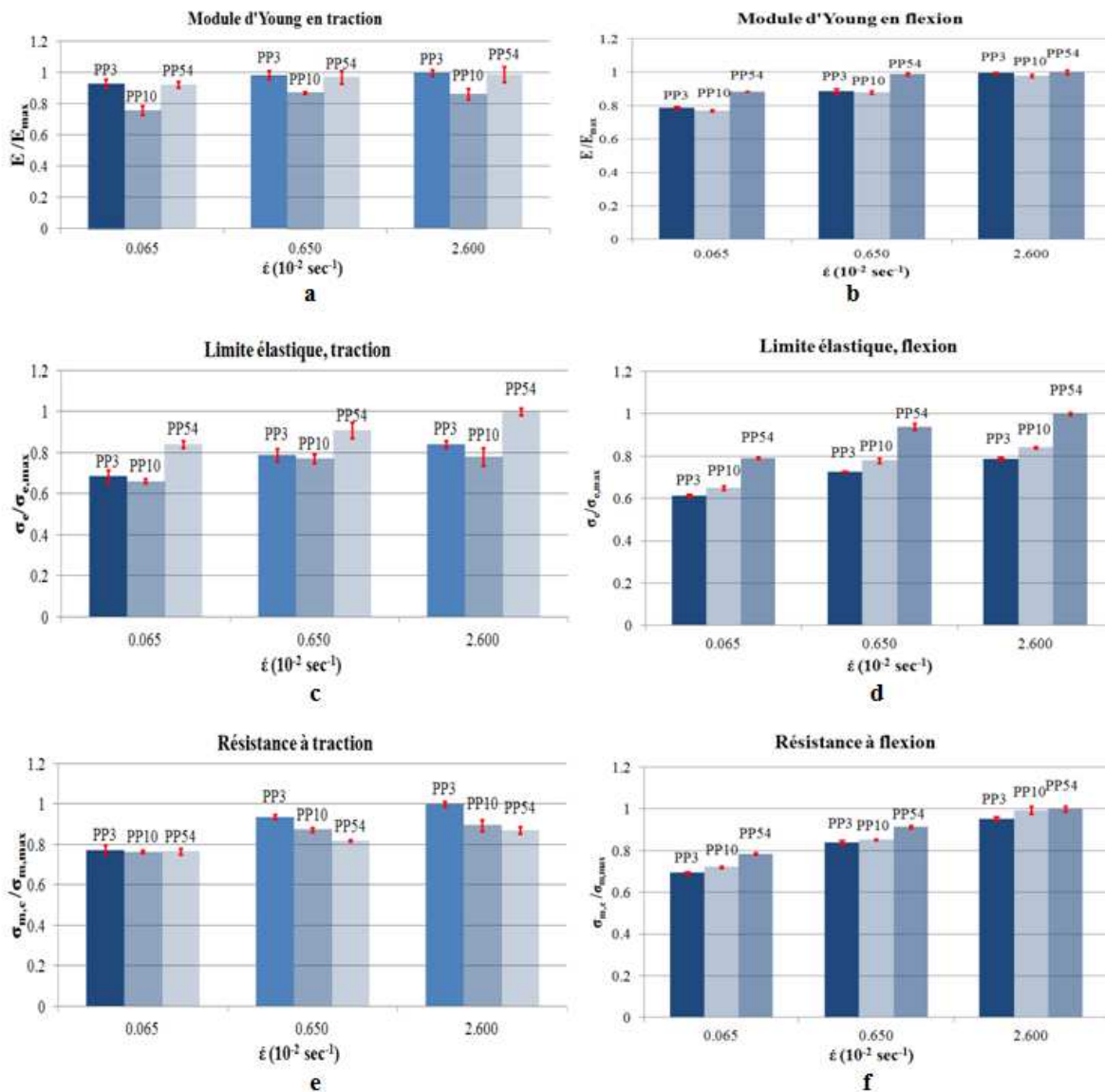


Fig. 6. Influence du grade sur les propriétés mécaniques des PP régénérés : Module d'Young (a. traction, b. flexion), Limite élastique (c. traction, d. flexion), Résistance (e. traction, f. flexion).

#### 4. Conclusions

Les essais de traction et de flexion menés dans ce travail sur des PP régénérés de différents grades et à différentes vitesses de déformation ont mis en évidence la dépendance des propriétés mécaniques à la fois en fonction de la vitesse de sollicitation et de l'indice de fluidité (grade). Le module d'Young, la contrainte limite élastique ainsi que la résistance augmentent avec la vitesse de déformation.

La comparaison avec le PP vierge a montré la sensibilité des propriétés mécanique aux additifs volontairement ajoutés par les recycleurs afin de produire du PP régénérés avec un grade bien défini. Ces additifs ainsi que le processus d'homogénéisation lors de la mise en forme du PP permettent l'obtention des caractéristiques mécaniques reproductibles malgré l'origine « déchets » des PP régénérés.

#### Références

- [1] D. PESSEY, N. BAHLOULI, S. PATTOFATTO, S. AHZI, « Polymer composites for the automotive industry: Characterization of the recycling effect on the strain rate sensitivity». *Int. J. of Crashworthiness*, Vol.13 (4), pp. 411-424, 2008.
- [2] N. BAHLOULI, D. PESSEY, C. RAVEYRE, J. GUILLET, S. AHZI, JM HIVER, A. DAHOUN, « Recycling effects on the rheological and thermomechanical properties of polypropylene-based composites», *Materials and Design*, Vol.33 (1) , pp. 451-458 , 2012.
- [3] C. Rogueda-Berriet, N. Bahlouli, D. Pessey, « Mechanical behavior of recycled PP compounds: tensile, bending and creep tests», *Journal of Engineering Materials and Technology*, Vol.133 (3), 2011.
- [4] N. BAHLOULI, C. ROGUEDA-BERRIET, J. GUILLET, C. RAVEYRE, « Propriétés rhéologiques et mécaniques des composites à matrice polypropylène pour l'automobile: effets couples de la pollution et du recyclage». *Revue des Composites et des Matériaux Avancés*, Vol. 20 n° 3, 2010.
- [5] K. WANG, F ADDIEGO, N BAHLOULI, S AHZI, Y.RÉMOND, V. TONIAZZO, R MULLER, « Analysis of thermomechanical reprocessing effects on polypropylene/ethylene octene copolymer blends ». *Polymer Degradation and Stability*, Vol 97(8), pp. 1475-1484, 2012.
- [6] K. WANG, N. BAHLOULI, F. ADDIEGO, S. AHZI, Y. RÉMOND, D. RUCH, R. MULLER, «Effect of talc content on the degradation of re-extruded polypropylene/talc composites ». *Polymer Degradation and Stability*, accepté en avril 2013.
- [7] K. WANG, F. ADDIEGO, N. BAHLOULI, S. AHZI, Y. RÉMOND, V. TONIAZZO, «Impact response of recycled polypropylene-based composites under a wide range of temperature: effect of filler content and recycling». *Composites Science and Technology*, Vol 95, pp.89-99, 2014.
- [8] M. P. LUDA, G. RAGOSTA, P. MUSTO, D. ACIERNO, L. DI MAIO, G. CAMINO, V. NEPOTE, « Regenerative recycling of automotive polymer components: poly (propylene) based car bumpers», *Macromolecular Materials Engineering*, Vol.288, pp. 613-623, 2003
- [9] M. P. LUDA, G. RAGOSTA, P. MUSTO, A. POLLICINO, G. CAMINOM, A.RECCA, V. NEPOTE, « Natural ageing of automotive polymer components : characterisation of new and used poly(propylene) based car bumpers ». *Macromolecular Materials Engineering*, Vol.287, pp.404-411, 2002
- [10] J. AURREKOETXEA, M.A. SARRIONANDA, I. URRUTIBEASCOA, M. LI MASPOCH, « Effects of recycling on the microstructure and the mechanical properties of isotactic polypropylene ». *Journal of materials science*, Vol.36, pp. 2607-2613, 2001
- [11] G. GUERRICA-ECHEVARRIA, J.I. EGUIAZABAL, J. NAZABAL, « Effects of reprocessing conditions on the properties of unfilled and talc-filled polypropylene». *Polymer degradation and stability*, Vol.53, pp.1-8, 1996.
- [12] J. RICHETON, S. AHZI, K.S. VECCHIO, F.C. JIANG, R.R. ADHARAPURAPU, « Influence of temperature and strain rate on the mechanical behavior of three amorphous polymers: characterization and modeling of the compressive yield stress». *International Journal of Solids and Structures*, Vol. 43:2318-2335, 2006.
- [13] G.W. EHRENSTEIN, F. MONTAGNE, « Matériaux polymers structures, propriétés et applications». *Paris Hermes Science Publications*, ISBN 2-7462-0149-6, 2000.