

RYAN GOSSELIN

**INJECTION DE MOUSSES COMPOSITES  
BOIS/PLASTIQUES D'ORIGINE  
POST-CONSOMMATION**

Mémoire présenté  
à la Faculté des études supérieures de l'Université Laval  
dans le cadre du programme de maîtrise en génie chimique  
pour l'obtention du grade de maître ès sciences (M.Sc.)

FACULTÉ DES SCIENCES ET DE GÉNIE  
UNIVERSITÉ LAVAL  
QUÉBEC

JUIN 2005

## Résumé

Dans cette étude, des matériaux composites bois/plastiques moussés ont été produits par une méthode de moulage par injection. En particulier, les composites sont constitués de fibres de bois et d'une matrice de polyoléfines recyclées (mélange de HDPE et PP). La décomposition thermique de l'azodicarbonamide (ACA), un agent gonflant chimique, fournit le gaz nécessaire à la formation de la mousse microcellulaire. Afin d'étudier ces composites, nous avons varié la concentration de bois, la température du moule ainsi que la teneur en agent gonflant. La caractérisation microscopique des échantillons comprend l'analyse de la structure cellulaire, de l'épaisseur de peau ainsi que de la morphologie des fibres. Les résultats montrent que la température du moule et la teneur en agent gonflant ont très peu d'influence sur la morphologie cellulaire à l'intérieur de la plage de valeurs étudiées. Par ailleurs, l'augmentation de la teneur en fibres augmente le diamètre cellulaire à cause de la nature de l'interface bois/plastiques. Enfin, les tests mécaniques en flexion, torsion, impact et traction ont pour but de caractériser l'effet du bois et du moussage sur ces matériaux tout en liant les propriétés mécaniques aux analyses microscopiques. On observe que les propriétés des échantillons sont supérieures en présence de fibres de bois mais légèrement inférieures lorsque moussés.

## Remerciements

Ce projet de maîtrise a été réalisé conjointement entre l'Université Laval et la compagnie PBI Industries. Sa réalisation a été rendue possible grâce à l'appui de plusieurs personnes et organismes, que je tiens à remercier chaleureusement.

Je remercie d'abord le CRSNG, le FQRNT et Ressources Naturelles Canada pour leur contribution financière, le CERSIM pour l'utilisation des installations ainsi que les compagnies PBI Industries et Uniroyal Chemicals pour leurs contributions matérielles.

Enfin, en voyant le jour, ce mémoire a durement éprouvé les finances de mon directeur et co-directeur, la patience de mes collègues, les oreilles de mes proches ainsi que la machine à café du département. À tous un gros merci.

Denis Rodrigue pour avoir été présent dans son absence.

Bernard Riedl pour m'avoir ouvert ses laboratoires.

Franck Michaud pour avoir durement éprouvé la petite extrudeuse.

Eddy Twite Kabamba pour m'avoir fait douter.

Vicky Leblanc pour avoir corrigé 42 erreurs de langue.

Simon Leduc pour avoir été un ami.

*A scientist must also be absolutely like a child. If he sees a thing, he must say that he sees it, whether it was what he thought he was going to see or not. See first, think later, then test. But always see first. Otherwise you will only see what you were expecting. Most scientists forget that.*

Douglas Adams

# Table des Matières

Chapitre 1. Introduction.....	1
1.1 Généralités sur les composites bois/plastiques.....	1
1.1.1 Historique.....	1
1.1.2 Situation économique.....	2
1.2 Généralités sur les mousses polymères.....	4
1.2.1 Historique.....	4
1.2.2 Situation économique.....	5
1.3 Matières premières.....	6
1.4 Croissance cellulaire.....	8
1.4.1 Agents gonflants et agents de nucléation.....	8
1.4.2 Nucléation et croissance cellulaire.....	9
1.5 Modification de l'interface.....	10
1.6 Techniques de mise en oeuvre.....	11
1.6.1 Extrusion.....	11
1.6.2 Compression.....	13
1.6.3 Injection.....	13
1.7 Objectifs.....	16
Chapitre 2. Revue de la littérature.....	18
2.1 Mélanges de PP et PE.....	18
2.2 Composites.....	20
2.3 Mousses structurales.....	22
2.4 Mousses composites.....	25
2.5 Injection.....	29
2.5.1 Injection de composites.....	29
2.5.2 Injection de mousses structurales.....	32
2.5.3 Injection de mousses composites.....	35
2.6 Récapitulation.....	39
Chapitre 3. Matériel et méthodes expérimentales.....	40
3.1 Matières premières.....	41
3.1.1 Composition de la résine.....	41
3.1.2 Azodicarbonamide.....	41
3.1.3 Nature de la fibre de bois.....	42
3.2 Production d'échantillons.....	44
3.2.1 Extrudeuse.....	44
3.2.2 Presse à injection.....	46
3.3 Analyse microscopique.....	49
3.4 Tests rhéologiques.....	54
3.5 Tests mécaniques.....	56
3.5.1 Tests en flexion.....	56
3.5.2 Tests en torsion.....	57
3.5.3 Tests en impact.....	59
3.5.4 Tests en traction.....	59
3.6 Analyses thermiques.....	60

3.6.1 Analyses DSC .....	60
3.6.2 Analyse TGA .....	61
Chapitre 4. Résultats .....	62
4.1 Masse volumique .....	62
4.2 Tests rhéologiques .....	64
4.3 Analyse morphologique .....	65
4.3.1 Taille de cellule .....	66
4.3.2 Densité cellulaire et fraction de vide .....	71
4.3.3 Épaisseur de peau .....	73
4.3.4 Taille des fibres .....	76
4.4 Tests mécaniques .....	79
4.4.1 Tests en flexion .....	80
4.4.2 Tests en torsion .....	83
4.4.3 Tests en impact .....	86
4.4.4 Tests en traction .....	88
Chapitre 5. Conclusions et recommandations .....	99
5.1 Conclusion générale .....	99
5.2 Recommandations .....	102
Annexes .....	109
A1. Schémas de montage .....	109
A2. Conditions d'injection .....	114
A3. Analyses thermiques .....	116
A4. Résultats rhéologiques .....	118
A5. Taille de cellule de tous les échantillons .....	120
A6. Densité cellulaire .....	122
A7. Rondeur de polygones .....	123
A8. Résultats en flexion .....	124
A9. Résultats en torsion .....	125
A10. Résultats en traction .....	126

# Liste des Tableaux

Tableau 1.1. Coût de résines vierges et recyclées.....	6
Tableau 3.1. Plan expérimental.....	40
Tableau 3.2. Composition de la résine.....	41
Tableau 3.3. Granulométrie de la fibre de bois séchée.....	42
Tableau 3.4. Température de décomposition (°C) de la fibre de bois.....	43
Tableau 3.5. Conditions d'alimentation de l'extrusion.....	45
Tableau 3.6. Profil de température dans l'extrudeuse.....	45
Tableau 3.7. Spécifications de la presse à injection.....	46
Tableau 3.8. Paramètres d'injection utilisés.....	47
Tableau 4.1. Masse volumique des échantillons.....	63
Tableau A1. Paramètres d'injection utilisés pour 0% bois moussé.....	114
Tableau A2. Paramètres d'injection utilisés pour 0% bois non-moussé.....	114
Tableau A3. Paramètres d'injection utilisés pour 20% bois moussé.....	114
Tableau A4. Paramètres d'injection utilisés pour 20% bois non-moussé.....	114
Tableau A5. Paramètres d'injection utilisés pour 30% bois moussé.....	115
Tableau A6. Paramètres d'injection utilisés pour 30% bois non-moussé.....	115
Tableau A7. Paramètres d'injection utilisés pour 40% bois moussé.....	115
Tableau A8. Paramètres d'injection utilisés pour 40% bois non-moussé.....	115
Tableau A9. Rondeur de polygones réguliers.....	123

## Liste des Figures

Figure 1.01. Schéma d'un échantillon moussé .....	4
Figure 1.02. Propriétés générales en traction.....	7
Figure 1.03. Coûts des additifs .....	8
Figure 1.04. Relation entre la concentration de gaz et la croissance cellulaire .....	10
Figure 1.05. Modification de l'interface bois/plastique.....	11
Figure 1.06. Schéma d'une extrudeuse.....	12
Figure 1.07. Schéma d'une vis d'extrudeuse.....	12
Figure 1.08. Schéma d'une presse à compression .....	13
Figure 1.09. Schéma d'une presse à injection .....	14
Figure 1.10. Schéma du moule d'une presse à injection .....	15
Figure 1.11. Schéma d'un écoulement en fontaine.....	15
Figure 2.01. SEM de la dispersion des phases.....	19
Figure 2.02. Ratios de Trouton pour des composites d'érable et de pin dans du HDPE.....	21
Figure 2.03. Effet de la composition de la matrice sur la résistance en tension .....	22
Figure 2.04. Évolution de la densité cellulaire en fonction du temps et de la température .	24
Figure 2.05. Schématisation des extrudeuses en série .....	26
Figure 2.06. Effets de la teneur en bois sur les propriétés mécaniques .....	30
Figure 2.07. L'effet des paramètres d'injection sur la croissance cellulaire .....	33
Figure 2.08. Résistance à l'impact de mélanges HDPE/PP moussés .....	35
Figure 2.09. Propriétés mécaniques des composites bois/plastiques moussés .....	36
Figure 3.01. Inclusions de non-fondu dans le composite .....	41
Figure 3.02. Molécule d'azodicarbonamide ( $C_2H_4N_4O_2$ ).....	42
Figure 3.03. Prise d'humidité de la sciure de bois après séchage .....	43
Figure 3.04. Fibres de bois, polymère recyclé et composite extrudé.....	46
Figure 3.05. Schématisation des découpes des échantillons.....	50
Figure 3.06. Schématisation des mesures prises sur les épaisseurs de peau.....	50
Figure 3.07. Méthodes photographiques : coupure vs cassure .....	51
Figure 3.08. Évaluation des diamètres de cellules.....	52
Figure 3.09. Détermination de la zone élastique en balayage en déformation .....	55
Figure 3.10. Schéma de l'échantillon de flexion .....	56
Figure 3.11. Détermination de la zone élastique en balayage en déformation .....	57
Figure 3.12. Schéma de l'échantillon de torsion .....	58
Figure 3.13. Détermination de la zone élastique en balayage en déformation .....	58
Figure 3.14. Schéma de l'échantillon d'impact .....	59
Figure 3.15. Schéma du moule de type os de chien.....	60
Figure 4.01. Module complexe fonction de la teneur en bois.....	64
Figure 4.02. Module complexe fonction de la teneur en bois.....	65
Figure 4.03. Photos de cellules produites avec 1 phr ACA .....	66
Figure 4.04. Rondeur des cellules.....	67
Figure 4.05. Diamètre moyen de cellules .....	68
Figure 4.06. Distribution du diamètre moyen de cellule .....	69

Figure 4.07. Distribution du diamètre moyen de cellule .....	70
Figure 4.08. Diamètre moyen de cellules en fonction de la teneur en agent gonflant.....	71
Figure 4.09. Densité de nucléation et densité de cellule.....	72
Figure 4.10. Fraction de vide des mousses .....	73
Figure 4.11. Épaisseurs moyennes de peau .....	74
Figure 4.12. Épaisseurs de peau indiquant une asymétrie .....	75
Figure 4.13. Peau des mousses structurales produites avec 1 phr ACA.....	76
Figure 4.14. Morphologie des fibres de bois .....	77
Figure 4.15. Morphologie des fibres.....	78
Figure 4.16. Longueur équivalente des fibres.....	79
Figure 4.17. Modules complexes réduits ( $EI^*$ ) moyens en flexion .....	81
Figure 4.18. Module complexe réduit ( $EI^*$ ) en flexion à 1 Hz.....	81
Figure 4.19. Modules complexes réduits ( $E2^*$ et $E3^*$ ) en flexion à 1 Hz pour les composites moussés et non-moussés .....	82
Figure 4.20. Modules complexes réduits ( $GI^*$ ) moyens en torsion .....	84
Figure 4.21. Modules en torsion ( $GI^*$ ) pour une fréquence de 1 Hz .....	84
Figure 4.22. Modules en torsion ( $G2^*$ et $G3^*$ ) à une fréquence de 1 Hz pour les composites moussés et non-moussés .....	85
Figure 4.23. Énergie d'impact en fonction de la teneur en bois.....	87
Figure 4.24. Résistance à l'impact en fonction de la teneur en bois pour les échantillons non-moussés.....	87
Figure 4.25. Courbes typiques de traction des échantillons non-moussés.....	89
Figure 4.26. Courbes typiques de traction des échantillons moussés.....	90
Figure 4.27. Comparaison de courbes en traction entre des échantillons moussés et non-moussés.....	90
Figure 4.28. Module élastique réduit ( $EI'$ ) en traction pour les composites moussés et non-moussés.....	91
Figure 4.29. Modules élastiques réduits ( $E2'$ et $E3'$ ) en traction pour les composites moussés et non-moussés .....	92
Figure 4.30. Retrait des fibres en cassure franche .....	93
Figure 4.31. Contrainte maximale en traction pour les composites moussés et non-moussés.....	94
Figure 4.32. Déformation à la contrainte maximale en traction pour les composites moussés et non-moussés .....	94
Figure 4.33. Contrainte maximale en traction pour les composites contenant 30% bois. ....	95
Figure 4.34. Contrainte à la rupture en traction pour les composites moussés et non-moussés.....	96
Figure 4.35. Contrainte à la rupture en traction pour les composites contenant 30% bois..	96
Figure 4.36. Déformation à la rupture en traction pour les composites moussés et non-moussés.....	97
Figure 4.37. Déformation à la rupture en traction fonction de la température du moule ....	98
Figure A1. Photographies de l'extrudeuse Leistritz .....	109
Figure A2. Photographies de la presse à injection Nissei.....	110
Figure A3. Photographies de la presse à compression Carver.....	111
Figure A4. Photographies du Tritec 2000 DMA .....	111
Figure A5. Photographies du microscope Olympus .....	112



Figure A6. Photographies de l'ARES de Rheometric Scientific .....	112
Figure A7. Photographies de l'Instron 5565.....	113
Figure A8. Photographies du Mini-Tower Dynatup de Instron.....	113
Figure A9. Courbe TGA de la sciure de bois séchée.....	116
Figure A10. Courbe TGA de la sciure de bois non-séchée .....	116
Figure A11. Courbe TGA de l'agent gonflant ACA .....	117
Figure A12. Courbe DSC de la résine recyclée.....	117
Figure A13. Module complexe en fonction de la température pour 0% bois.....	118
Figure A14. Module complexe en fonction de la température pour 20% bois.....	118
Figure A15. Module complexe en fonction de la température pour 30% bois.....	119
Figure A16. Module complexe en fonction de la température pour 40% bois.....	119
Figure A17. Taille des cellules de 0% bois .....	120
Figure A18. Taille des cellules de 20% bois .....	120
Figure A19. Taille des cellules de 30% bois .....	121
Figure A20. Taille des cellules de 40% bois .....	121
Figure A21. Polygone à « $n$ » côtés.....	123
Figure A22. $EI^*$ fonction de la température à 1 Hz.....	124
Figure A23. $EI^*$ fonction de la teneur en ACA à 1 Hz.....	124
Figure A24. $GI^*$ fonction de la teneur en ACA à 1 Hz.....	125
Figure A25. $GI^*$ fonction de la température à 1 Hz.....	125
Figure A26. Module élastique fonction de la teneur en ACA.....	126
Figure A27. Module élastique fonction de la température du moule .....	126
Figure A28. Contrainte maximale fonction de la teneur en ACA .....	127
Figure A29. Contrainte maximale fonction de la température du moule .....	127
Figure A30. Déformation à la contrainte maximale en traction fonction de ACA.....	128
Figure A31. Déformation à la contrainte maximale en traction fonction de la température .....	128
Figure A32. Contrainte finale fonction de la teneur en ACA.....	129
Figure A33. Contrainte finale fonction de la teneur température.....	129
Figure A34. Déformation finale en traction fonction de ACA.....	130
Figure A35. Déformation finale en traction fonction de la température .....	130

## Liste des Abréviations

ABS : Terpolymère acrylonitrile-butadiène-styrène.

ACA : L'azodicarbonamide est l'agent gonflant utilisé dans cette recherche.

CBA : Un agent gonflant chimique (*chemical blowing agent*) est un composé qui produit un gaz lors de sa décomposition thermique.

CFC : Chlorofluorocarbone.

DSC : L'analyse calorimétrique différentielle (*differential scanning calorimetry*) mesure les températures de transition et les flux thermiques.

HDPE : Polyéthylène haute densité (*high density polyethylene*).

HIPS : Polystyrène choc (*high impact polystyrene*).

LDPE : Polyéthylène basse densité (*low density polyethylene*).

phr : Le pourcentage massique par rapport à la résine (*parts per hundred resin*) permet de faire abstraction des additifs dans la matrice.

PP: Polypropylène.

PS: Polystyrène.

PVC: Polychlorure de vinyle (*polyvinyl chloride*).

SEM : Un microscope électronique à balayage (*scanning electron micrograph*) permet la création d'images à haute résolution.

TGA : La thermogravimétrie (*thermogravimetric analysis*) mesure les changements de masse occasionnés par un changement de température.

WPC : Un composite bois/plastique (*wood/plastic composite*).

wt.% : Un pourcentage massique (*weight percent*) définit par rapport à l'échantillon total.

## Liste des Symboles

$Cr_n$	Taux de nucléation	(cellules/cm <sup>3</sup> s)
$D$	Diamètre de la fibre	( $\mu\text{m}$ )
$E'$	Module élastique en flexion et en traction	(MPa)
$E''$	Module visqueux en flexion	(MPa)
$E^*$	Module complexe en flexion	(MPa)
$G$	Énergie libre	(J)
$G'$	Module élastique en torsion	(MPa)
$G''$	Module visqueux en torsion	(MPa)
$G^*$	Module complexe en torsion	(MPa)
$H$	Enthalpie	(J)
$k$	Constante de Boltzmann	(J/°C)
$L_c$	Longueur critique de fibre	( $\mu\text{m}$ )
$N$	Taux de nucléation homogène	(cellules/cm <sup>3</sup> s)
$M_T$	Masse de l'échantillon	(g)
$M_P$	Masse de polymère	(g)
$M_B$	Masse de bois	(g)
$N_F$	Densité de cellule	(cellules/cm <sup>3</sup> )
$N_o$	Densité de nucléation	(cellules/cm <sup>3</sup> )
$S$	Entropie	(J)
$V_C$	Volume cellulaire moyen	( $\mu\text{m}^3$ )
$V_T$	Volume de l'échantillon	(cm <sup>3</sup> )
$V_P$	Volume de polymère	(cm <sup>3</sup> )
$V_B$	Volume de bois	(cm <sup>3</sup> )

### Symboles grecs

$\varepsilon_M$	Déformation à la contrainte maximale en traction	(-)
$\varepsilon_R$	Déformation à la rupture en traction	(-)
$\rho_r$	Densité réduite	(-)
$\rho_B$	Masse volumique du bois	(g/cm <sup>3</sup> )
$\rho_P$	Masse volumique du polymère	(g/cm <sup>3</sup> )
$\sigma_f$	Résistance de la fibre	(MPa)
$\sigma_M$	Contrainte maximale en traction	(MPa)
$\sigma_R$	Contrainte à la rupture en traction	(MPa)
$\phi_M$	Fraction de mousse	(-)
$\phi_V$	Faction de vide total	(-)
$\tau_{fm}$	Résistance d'interface en cisaillement	(MPa)
$\gamma$	Tension de surface	(J/cm <sup>2</sup> )

# Chapitre 1

## Introduction

### 1.1 Généralités sur les composites bois/plastiques

#### 1.1.1 Historique

Les composites bois/plastiques (WPC : Wood Plastic Composite) sont composés de polymères thermoplastiques, souvent recyclés, et de fibres de bois en plus ou moins grande proportion. Ce type de matériau tire profit de la densité relativement faible du bois, de son faible coût, de ses propriétés mécaniques ainsi que de sa capacité à être recyclé. La fraction thermoplastique réduit la fragilité tout en procurant une meilleure résistance à la moisissure et aux attaques biologiques. Selon Douglas et al. (2004), le coût d'achat d'un WPC est le double, voir le triple, de celui du bois naturel que l'on utilise des résines recyclées ou des résines vierges. En contrepartie, une longue vie utile et un coût de maintenance significativement inférieur à celui du bois lui permettent d'être économiquement compétitif.

En 1909, un chimiste belge nommé Leo Hendrik Baekeland a annoncé la mise au point de la première résine synthétique qu'il nomma Bakelite. En poussant plus loin ses études, il découvrit que cette résine thermodurcissable pouvait être mélangée à de la farine de bois, de l'amiante ou de l'ardoise. La résine en elle-même fut un succès économique certain. En fait, la Bakelite a été utilisée dans la conception de la plupart des armes durant la Seconde Guerre Mondiale (Inventors, 2004). Le composite bois/plastique a également été commercialisé, mais comme enjoliveur de leviers de transmission à bord des Rolls-Royce 1916 (Gordon, 1988).

De fortes contraintes politiques, environnementales et économiques ont obligé l'industrie forestière américaine de réduire leur consommation de séquoia (*redwood*) et de cèdre, deux espèces traditionnellement utilisées dans la production de patios (Wrap, 2003). Cependant,

le vrai coup d'envoi des WPC devra attendre en 1983. C'est à ce moment que la compagnie American Woodstock, du Wisconsin, entreprend la première application industrielle d'importance des WPC (Clemons, 2002). Il s'agit de l'extrusion de panneaux de polypropylène contenant environ 50% de farine de bois pour le domaine de l'automobile. La première conférence internationale sur les WPC a lieu en 1991 à Madison, au Wisconsin également, permettant une meilleure synergie entre la foresterie et la plasturgie.

Les composites bois/plastiques sont couramment constitués de matériaux recyclés, ou résiduels, et répondent bien aux pressions écologiques. Cependant, la forte croissance de la production de WPC est également motivée par certains facteurs techniques et économiques. Selon Umaine (2003), ils se comparent favorablement au bois traités chimiquement sous plusieurs aspects:

- Meilleure résistance à l'humidité, la pourriture et aux insectes
- Aucune fente, écharde ou gauchissement
- Meilleure stabilité dimensionnelle
- Longue vie
- Moins de maintenance
- Plus écologiques et recyclables

### **1.1.2 Situation économique**

La production mondiale de plastique dépasse maintenant celle de l'acier, de l'aluminium et du cuivre réunis; soit 128 MM kg de thermoplastiques pour 30 MM kg de thermodurcissables en 1998 (Throne, 1996). Aux États-Unis, 80% de la résine post-consommation est enfouie, 8% est incinérée et seulement 7% est recyclée (Waste Watch, 2004). En réaction à ceci, la production des WPC de tout genre a quadruplé entre 1997 et 2000 (Li et Wolcott, 2004). Une étude plus récente faite par Principia Consulting (Business Wire, 2004) estime la demande mondiale de WPC à 0.59 M kg évalués à 750 M \$US annuellement. À 15 M \$US, l'injection représente seulement 2% de ce total. Ils prévoient

cependant que l'injection de WPC atteindra la barre des 300 M \$US en 2007, soit 20 fois sa taille en 2002. Enfin, la demande mondiale de WPC de tout genre devrait atteindre 2,4 MM \$US en 2011 (Wrap, 2003).

L'utilisation des WPC se résume présentement à quatre marchés cibles; soit le jardinage, la construction, l'infrastructure ainsi que la finition (Wrap, 2003). D'abord, le jardinage comprend la production de planches, de patios et de clôtures. Avec une production estimée à 3,4 milliards de pieds planche (*mbf*) annuellement aux États-Unis, ce domaine compte pour environ 60% de la production totale de composites bois/plastiques malgré le fait qu'il ne représente que 8% du marché global du jardinage (Umaine, 2003).

Les infrastructures maritimes et ferroviaires pourraient bénéficier grandement de l'avènement des WPC puisque le bois couramment utilisé à ces fins engendre d'immenses coûts de remplacements. Quelques 520 M \$US annuellement sont alloués à cette tâche dans les ports et marinas américaines seulement. Selon une étude menée par l'Université de l'État de Washington (Wrap, 2003), les WPC pourraient éventuellement accaparer 20% de ce marché. Les installations ferroviaires font face à une situation similaire; environ 2% des dormants sont remplacés annuellement pour un total de 1 MM \$US. À ce sujet, les WPC sont une alternative compétitive si l'on considère que le coût d'un seul dormant en chêne varie entre 30 et 40 \$US.

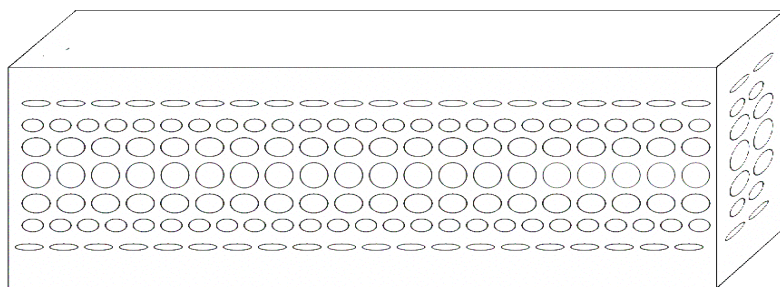
Selon Matsui et al. (2004), les fibres de bois représentent 75% des fibres naturelles utilisées dans l'industrie automobile et de la construction. Les profilés de portes et fenêtres sont les principales applications des WPC en construction. Cependant, ils ne représentent actuellement que 0,3% du marché américain évalué à 22 MM \$US. Les applications en infrastructure restent pour le moment un champ d'avenir puisqu'on en est encore au niveau des projets pilotes. Le marché de la finition représente 8% de la demande en WPC et inclut généralement les applications automobiles ainsi que l'ameublement intérieur. Les opportunités de croissance y sont cependant plus restreintes. Les fibres naturelles, telles le lin, le chanvre, la jute et le kénaf se disputent déjà le marché de l'automobile tandis que le

faible coût des panneaux MDF assure une compétition sévère dans la fabrication de meubles. De plus, des critères esthétiques limiteront parfois leur part de marché.

## 1.2 Généralités sur les mousses polymères

### 1.2.1 Historique

Un plastique alvéolaire consiste en une phase gazeuse dispersée dans une phase solide et tire ses propriétés de ces deux phases. L'élément plastique solide constitue la matrice tandis que la phase gazeuse est contenue à l'intérieur des cavités (IRC, 2004). Ces cavités, souvent nommées cellules, peuvent être ouvertes (éponge) ou fermées (plastique expansé). Le terme « mousse structurale » est communément utilisé pour désigner des plastiques alvéolaires présentant une dualité cœur/peau tels qu'on retrouve dans les échantillons moulés sur une presse à injection (Figure 1.01). Bledzki et Faruk (2004) estiment qu'une réduction de densité d'au moins 10%, sans perte significative des propriétés requises, est une méthode scientifique d'économiser des matériaux tout en protégeant l'environnement.



**Figure 1.01.** Schéma d'un échantillon moussé.

La première application industrielle du polystyrène date de 1933. Onze ans plus tard, en 1944, Ray McIntire cherchait à copolymériser du styrène et de l'isobutène sous pression. Le styrène se polymérisa tandis que l'isobutène se vaporisa. Le résultat, commercialisé sous le nom de Styrofoam, est maintenant reconnu comme la première mousse thermoplastique (SFC, 2004). Par la suite, les premières mousses de LDPE et PP datent respectivement de 1958 et 1964.

Selon Throne (1996), les mousses se comparent favorablement selon plusieurs aspects :

- Réduction de densité
- Amélioration de la rigidité spécifique
- Amélioration de la résistance thermique
- Amélioration de la résistance à l'impact
- Amélioration des capacités d'insonorisation
- Augmentation de la capacité d'absorption

### **1.2.2 Situation économique**

Selon une étude de Business Communications Company, les mousses représentent 10% de la production américaine en polymères de consommation qui était estimée à 3,4 MM kg en 2001 et devrait atteindre 3,9 MM kg en 2006 (BCC, 2001). Cette même étude a estimé le marché des mousses polyoléfiniques à 136 M kg en 2001 ainsi qu'un taux de croissance annuel de 3,8% jusqu'en 2006, soit le plus élevé de toutes catégories de polymères confondues.

Le coeur des mousses structurales permet une réduction importante de la densité tandis que les peaux limitent la perte dramatique de rigidité. Les mousses structurales peuvent donc remplacer divers matériaux classiques. Selon Throne (1996), les mousses structurales offrent une meilleure stabilité à long terme que le bois, une meilleure résistance à la corrosion que le métal de fonte, une meilleure rigidité que les feuilles de métal, un poids inférieur aux polymères standards et ne nécessitent pas l'assemblage manuel souvent exigé des pièces métalliques.

IRC (2004) a identifié les marchés habituels des polymères thermoplastiques les plus communs. D'abord, le polystyrène (PS et HIPS) est la résine thermoplastique la plus communément moussée. Il est utilisé dans la conception de meubles, haut-parleurs, jouets et matériel informatique. Le PP et le LDPE se retrouvent dans les applications automobiles et industrielles. Le HDPE est souvent préféré pour les meules de patio et le « *plastic*



*lumber* ». Le PVC est communément utilisé dans la tuyauterie, les jouets et les applications extérieures tandis que l'ABS sert pour les appareils ménagers et équipements athlétiques.

La structure réticulée des polymères thermodurcissables leur confère la capacité d'atteindre de très hautes fractions de vide lorsque moussés; ils seront donc préférés pour les applications d'isolation et d'emballages. Les résines à base de polyuréthane, phénol-formaldéhyde, urée-formaldéhyde ainsi que les époxydes sont couramment utilisés à ces fins (IRC, 2004). Seule la production de mousses thermoplastiques sera discutée ici car l'expansion des résines thermodurcissables doit être faite en tandem avec la polymérisation et ne se prête pas au recyclage.

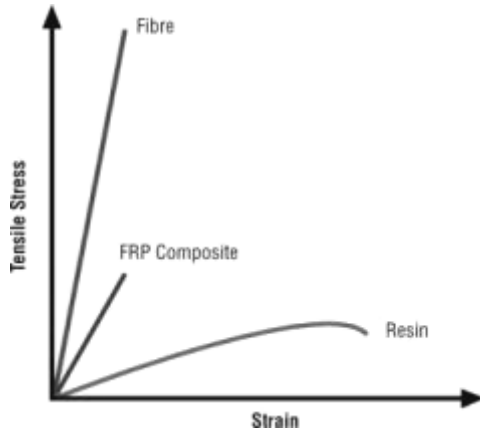
### 1.3 Matières premières

Le polyéthylène haute densité est naturellement translucide mais est couramment coloré lors de la mise en œuvre pour des raisons souvent esthétiques. En tant que résine recyclée, le HDPE translucide ou blanc est plus dispendieux puisqu'il peut être utilisé dans toute application colorée tandis que les résines de couleur ne pourront prendre part qu'aux mélanges foncés. Le HDPE typique utilisé dans les emballages flexibles fond à 135°C et peut être mis en forme entre 150-200°C. Selon Clariant (1998), la production de PE représente 29% des résines vierges produites. Le polypropylène est un des polymères les plus versatiles; autant pour ses bonnes propriétés que son faible coût (Tableau 1.1). Cependant, le PP recyclé est rarement employé seul simplement parce que les installations nécessaires à sa collecte ne sont pas courantes aux États-Unis (Wrap, 2003). Le PP typique utilisé dans les meubles de patio fond à 165°C et peut être mis en forme entre 200-250°C. Selon Clariant (1998), la production de PP représente 16% des résines vierges produites.

**Tableau 1.1.** Coût de résines vierges et recyclées. (Tiré de Umaine, 2003)

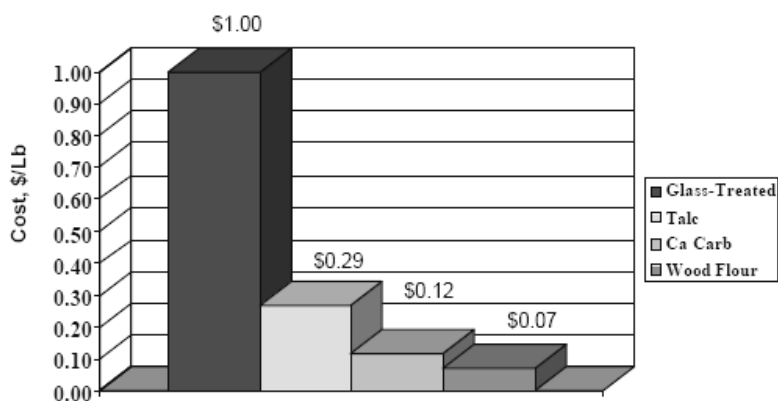
	HDPE	PP	PVC
	Prix en \$US/kg		
Vierge	0,204 - 0,222	0,159 - 0,163	0,177 - 0,186
Recyclé	0,100 - 0,122	0,054 - 0,077	0,082 - 0,095

Le rôle fondamental du renforcement dans un matériau composite est l'augmentation des propriétés mécaniques de la matrice (Net Composites, 2004). Il va de soi que les différents types d'additifs utilisés auront des propriétés distinctes et modifieront le composite d'une façon qui leur est propre. Ceci étant dit, les composites polymères exprimeront habituellement un comportement intermédiaire au plastique et à la fibre testée individuellement tel que montré dans la Figure 1.02. De façon générale, les propriétés du composite sont fonction des propriétés de la fibre, de la résine ainsi que de leur interface. Son comportement dépend également de la géométrie, l'orientation et la fraction volumique de la fibre dans la matrice.



**Figure 1.02.** Propriétés générales en traction. (Tiré de Net Composites, 2004)

La fibre de bois est un matériau commun, abordable et léger. La densité des bois nord-américains varie entre 0,28 et 1,04 (Albert Forest Products, 2003) avec un coût d'achat moyen de 0,032 \$ US/kg. À titre de comparaison, le prix du carbonate de calcium, talc et fibre de verre sont respectivement de 0,054, 0,131 et 0,454 \$ US/kg (Figure 1.03); tandis que leur densité avoisine 2,7.



**Figure 1.03.** Coûts des additifs. (Tiré de Umaine, 2003)

Enfin, la farine de bois augmente la rigidité de l'échantillon mais diminue sa résistance à l'impact tandis que les fibres de bois augmentent la résistance mais sont plus difficiles à incorporer dans la matrice (Wrap, 2003).

## 1.4 Croissance cellulaire

### 1.4.1 Agents gonflants et agents de nucléation

Selon Klempner et Frisch (1991), une structure cellulaire peut être produite soit en moussant le système, en introduisant des micropores dans la phase liquide ou par l'extraction de matériel suite à la solidification. La production des mousses est la plus aisée, et, évidemment, la plus répandue. Les agents gonflants peuvent être classés en trois catégories (Throne, 1996). Les agents gonflants volatils (1) sont incorporés sous forme liquide dans la matrice et dégagent du gaz suite à une augmentation de température ou une diminution de pression de la solution. À ce titre, les hydrocarbures tels le propane et le butane remplacent maintenant les CFC. Les agents gonflants physiques (2) sont des gaz incondensables (i.e. azote et dioxyde de carbone) dissous à haute pression dans la matrice. La faible pression présente dans le moule permettra la dissolution et la formation de cellules. Le gaz peut également être le produit d'une réaction chimique (3) d'un additif incorporé à la matrice. Certains CBA, comme l'azodicarbonamide, libèrent du gaz suite à une dégradation thermique irréversible. Tandis que pour d'autres, le gaz est libéré suite à

une interaction chimique entre les composés. Tel est le cas pour le couple bicarbonate de sodium et acide citrique.

Il existe deux types de nucléation. La formation d'une bulle au sein d'un liquide parfaitement uniforme est dite nucléation homogène. La présence d'une seconde phase, ou simplement un creux dans la tension de surface du polymère, mène nécessairement à la nucléation hétérogène. On nomme agent de nucléation une dispersion de fines particules solides réparties dans la matrice. La formation de bulles occasionne une augmentation dans l'énergie libre du système ( $G$ ). Selon l'Équation (1.1), une diminution de la tension de surface ( $\gamma$ ) favorisera sa formation (Klempner et Frisch, 1991).

$$\Delta G = \gamma A \quad (1.1)$$

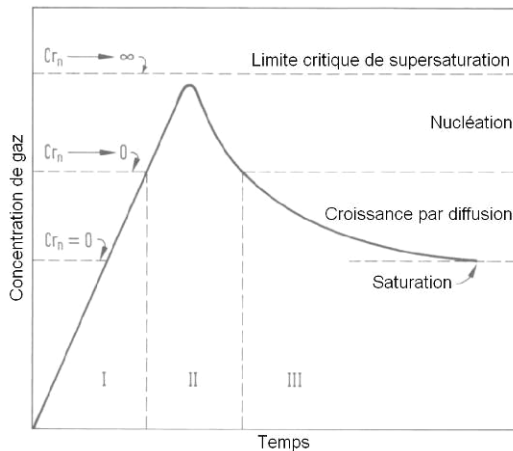
Selon Throne (1996), les résidus solides des agents gonflants, le polymère non fondu, les fibres et additifs de tout genre, même les zones cristallines de la matrice polymère peuvent agir comme agents de nucléation. Il existe cependant deux exceptions notables à cette affirmation : le noir de carbone et le l'oxyde de fer adsorbent les gaz.

### 1.4.2 Nucléation et croissance cellulaire

Des fluctuations thermodynamiques provoquent des agglomérations de molécules gazeuses dans la matrice. Qu'une telle agglomération croisse ou s'effondre dépend seulement de la taille de l'agrégat initial. L'apparition d'un agrégat de taille suffisante se nomme nucléation (Shaft et Flumerfelt, 1997).

La nucléation et croissance cellulaire dans un système contenant une source de gaz (i.e. un agent gonflant chimique) peut être divisée en trois étapes (Figure 1.04). Seul le cas de la nucléation homogène sera abordé ici puisqu'il résume adéquatement le phénomène. D'abord, la concentration du gaz augmente dans l'étape I, dépasse le niveau de saturation de la matrice, pour enfin atteindre le seuil de nucléation. À ce point le taux de nucléation ( $Cr_n$ ) est nul mais marque le début de l'étape II; la nucléation. La seconde étape perdurera

tant que la concentration de gaz demeurera suffisamment élevée. La diminution éventuelle de la quantité de gaz mettra fin à la nucléation sans toutefois retourner le système à l'équilibre. Le gaz dépasse encore le niveau de saturation de la matrice. L'étape III est marquée par la diffusion du gaz vers les cellules. La croissance cellulaire ne prendra fin que lorsque la solution atteindra son niveau de saturation.



**Figure 1.04.** Relation entre la concentration de gaz et la croissance cellulaire. (Adapté de Klempner et Frisch, 1991)

Le taux de nucléation homogène ( $N$ ) est fonction de la concentration du gaz ( $C$ ), l'énergie libre de Gibbs ( $G$ ), la constante de Boltzmann ( $k$ ), la température ( $T$ ) ainsi qu'un paramètre représentant la fréquence d'ajout de molécules de gaz au noyau ( $f$ ) selon: (Trexel, 2003).

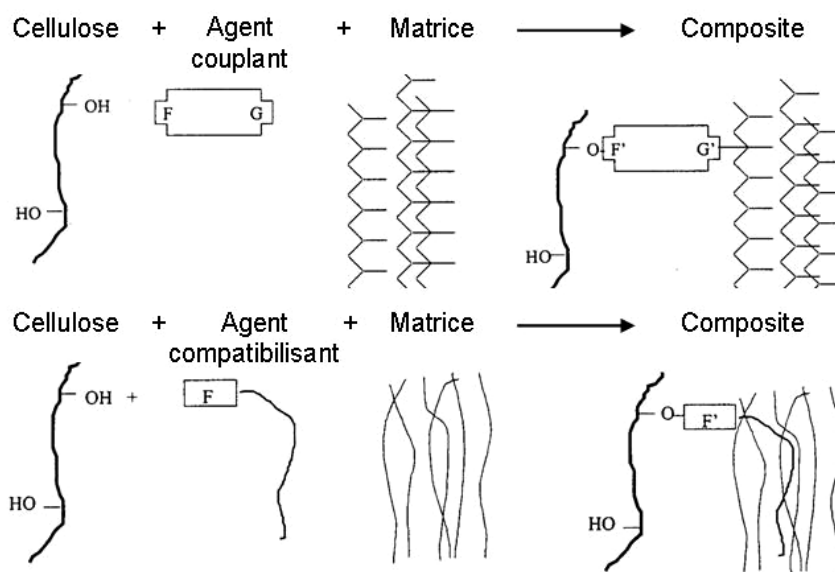
$$N = C f \exp\left(\frac{-\Delta G}{kT}\right) \quad (1.2)$$

## 1.5 Modification de l'interface

La miscibilité, en termes thermodynamiques, est définie comme la présence d'une seule phase jusqu'au niveau moléculaire; l'énergie libre de mélange doit être négative.

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \leq 0 \quad (1.3)$$

Sinon, il y a création d'interfaces. Gao et Tsou (1999) ont déterminé trois facteurs qui affectaient les performances mécaniques d'un composite polymère: (1) la force et le module de la fibre, (2) la stabilité chimique et la force de la matrice, et (3) l'adhésion entre la matrice et la fibre. Ce dernier point souligne l'importance du transfert de contraintes de part et d'autre de l'interface. Plusieurs études portent sur la modification de l'interface dans les WPC pour améliorer l'adhésion entre les fibres de bois hydrophiles et la matrice hydrophobe. Selon Gauthier et al. (1999), deux types d'additifs peuvent améliorer la mouillabilité. Les agents comptabilisants réagissent avec l'une ou l'autre des phases pour améliorer la mouillabilité entre fibre et matrice tandis que les agents couplants réagissent avec les deux phases pour assurer un lien chimique entre fibre et matrice (Figure 1.05).



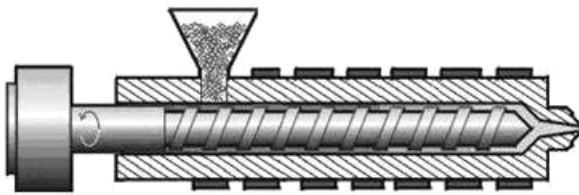
**Figure 1.05.** Modification de l'interface bois/plastique. (Adapté de Gauthier et al. 1999)

## 1.6 Techniques de mise en oeuvre

### 1.6.1 Extrusion

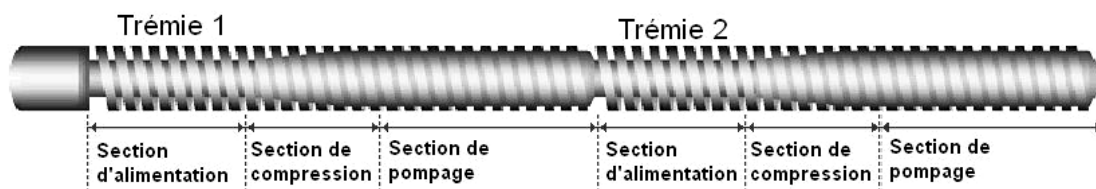
À la base, une extrudeuse est constituée principalement d'une vis d'Archimède tournant en continu à l'intérieur d'un fourreau chauffé (Figure 1.06) et servant à faire des profilés. En

fait, la configuration de la vis est grandement variable; on retrouve également des modèles bi-vis. Dans ce cas, les vis peuvent être co ou contra-rotatives, intercalées ou pas. Peu importe la géométrie, le système se divise habituellement en trois zones: alimentation, compression et pompage. La zone d'alimentation a un grand entrefer et permet la plastification du polymère. Comme l'indique son nom, la zone de compression comprime le polymère maintenant fondu en réduisant l'entrefer et/ou le pas de la vis. Cette étape assure un dégazage adéquat du fondu. Enfin, le polymère est homogénéisé dans la zone de pompage. Cette dernière opération nécessite parfois l'ajout de blocks de malaxage (*kneading blocks*) à même la vis. La sortie de l'extrudeuse se nomme filière et donnera la forme finale à l'extrudé.



**Figure 1.06.** Schéma d'une extrudeuse. (Adapté de IDSA, 2004)

Selon Kasliwal et Jones (2004), un compoundage préliminaire adéquat doit être à la fois dispersif et distributif. Un mélange dispersif désagrège les agglomérations tandis qu'un mélange distributif homogénéise la matrice. Pour arriver à cette fin, l'extrusion de composites nécessite un dédoublement de la vis; la seconde trémie d'alimentation se retrouve dans la seconde zone d'alimentation de la vis (Figure 1.07). Les fibres de bois sont donc ajoutées à un polymère fondu dans une zone de large entrefer. Elles auront donc le temps nécessaire de s'immiscer au fondu sans contraintes mécaniques trop élevées. La température doit être choisie adéquatement pour minimiser la dégradation thermique de la fibre de bois tout en assurant une bonne fluidité du composé.

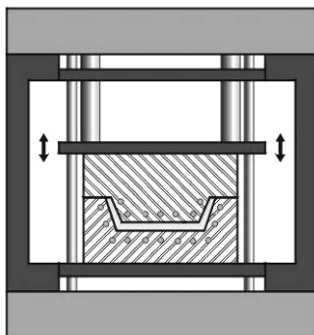


**Figure 1.07.** Schéma d'une vis d'extrudeuse. (Adapté de Soarnol, 2003)

L'extrusion de mousses composites est également possible. Il suffit simplement d'ajouter une quantité adéquate d'agent gonflant dans la seconde trémie. L'inclusion dans la première occasionnerait un moussage précoce dans la seconde zone d'alimentation à cause de la chute de pression associée à l'accroissement de l'entrefer. Évidemment, le profil de température et la vitesse de rotation doivent être optimisés en fonction de la filière et des caractéristiques du profilé recherché.

### 1.6.2 Compression

Le moussage par compression nécessite un pré-mélange du polymère et du bois pour assurer une dispersion adéquate. Le composite et l'agent gonflant sont alors introduits entre deux plaques chauffantes et soumis à de grandes pressions (Figure 1.08). Ici encore la température doit être choisie de façon à assurer une décomposition adéquate de l'agent gonflant et affliger un minimum de dégradation thermique à la fibre. La pression appliquée force la solubilisation du gaz ainsi produit. Le moussage n'aura lieu que suite au retrait de la pression. Le moule doit être refroidit rapidement pour limiter la coalescence des cellules.



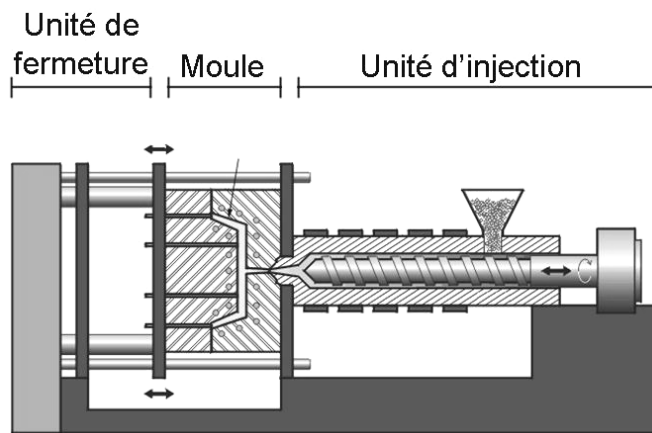
**Figure 1.08.** Schéma d'une presse à compression. (Adapté de IDSA, 2004)

### 1.6.3 Injection

L'injection est un procédé semi-continu dans lequel un polymère fondu est injecté dans un moule tempéré, retenu sous pression et retiré lorsqu'il est solidifié. En fait, une presse à injection peut être représenté comme un hybride entre une extrudeuse et une presse à

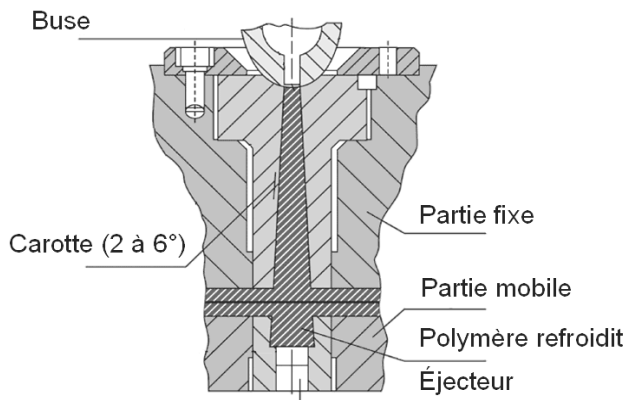


compression (Figure 1.09). Comme l'extrusion, la résine est incorporée dans une trémie et plastifiée par une vis d'accumulation. À la différence de l'extrusion, la vis de la presse recule à mesure que s'effectue la plastification; le polymère fondu et homogénéisé s'entasse à l'avant de la vis dans une zone adéquatement nommée zone d'accumulation. Lorsqu'une quantité prédéterminée de polymère a été plastifié, la vis agit comme piston et injecte la résine à haute pression vers le moule tempéré.



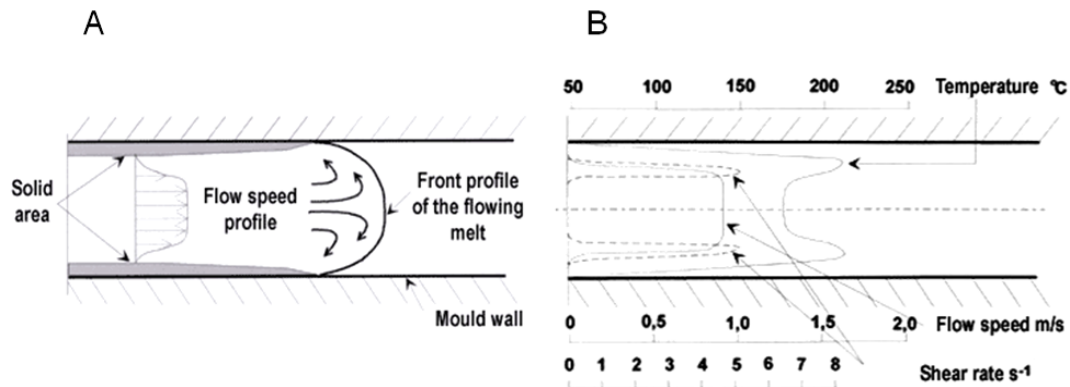
**Figure 1.09.** Schéma d'une presse à injection. (Adapté de IDSA, 2004)

Avant d'atteindre les cavités, le liquide traverse d'abord la carotte, les canaux d'alimentation et enfin les seuils des cavités. La carotte est essentiellement un canal d'alimentation faisant le lien entre la buse de l'unité d'injection et les canaux proprement dits (Figure 1.10). Elle est perpendiculaire au plan d'ouverture du moule et est usinée avec un certain angle pour permettre l'éjection. Le prolongement de la carotte dans la partie mobile assure l'emprisonnement de polymère refroidi. Les canaux d'alimentation, qui sont usinés dans le plan d'ouverture du moule, distribuent le fondu aux cavités et sont usinés pour assurer un remplissage équilibré. L'extrémité étroite du canal le rattachant à la cavité est dite seuil. Il facilite le détachement de la pièce et permet de bâtir un front d'écoulement. Sans une telle précaution, le polymère pourrait plutôt adopter une forme serpentine nommé « *jetting* » qui diminue les propriétés de la pièce. La pression d'injection est maintenue pendant un certain temps après l'étape de remplissage pour assurer un retassement adéquat des chaînes moléculaires. L'éjection de la pièce se fait lorsqu'elle est suffisamment refroidie.



**Figure 1.10.** Schéma du moule d'une presse à injection. (Adapté de DSM, 2004)

L'écoulement normal du polymère, dit écoulement en fontaine, est schématisé dans la Figure 1.11-A. Le profil de vitesse de la résine est de type piston (*plug flow*). Ceci implique donc que la vitesse d'écoulement est maximale au cœur de la pièce et nulle près des parois. En fait, le polymère se solidifie au contact des parois tempérées. Ce profil de vitesse occasionne également d'importantes contraintes de cisaillement aux abords des parois, causant une augmentation locale de la température (Figure 1.11-B). Ce cisaillement entraîne l'orientation des chaînes polymères, conférant au polymère des propriétés accrues. Ainsi, tant que la vitesse de remplissage demeure adéquate, le cisaillement limite la solidification précoce des canaux d'alimentation et permet un remplissage complet.



**Figure 1.11.** Schéma d'un écoulement en fontaine. (Adapté de Tampereen, 2004)

Pfannschmidt et Michaeli (1999) présentent trois méthodes d'incorporation du gaz dans le fondu pour l'injection de mousses polymères: soit (1) mélanger à sec le CBA au polymère avant l'incorporation dans la trémie, (2) précharger les granules d'un agent gonflant physique dans un autoclave avant l'incorporation dans la trémie, et (3) l'injection d'un gaz directement dans le fondu au niveau de la buse. Cette dernière technique nécessite d'importantes modifications. La présence de fibres aura peu d'effets sur ces méthodes de moussage puisqu'elles sont préalablement incorporées au polymère. En fait, un mélange préliminaire est toujours nécessaire lors de l'injection de composites afin d'assurer une dispersion adéquate.

L'expansion précoce d'une matrice thermoplastique saturée en gaz doit être évitée. L'incapacité d'y parvenir mènera à la production d'une mousse aux propriétés diminuées. Indépendamment du type d'agent gonflant choisi, l'injection de mousses nécessite l'installation d'une valve à obstruction sur la buse de la presse. Cette dernière empêchera l'expansion dans le fourreau en permettant l'application d'une contre-pression lors de la plastification sans causer de bavures.

Enfin, les phénomènes de nucléation et croissance cellulaire exigent une diminution de pression à l'intérieur du moule. Deux options sont possibles. L'injection de mousses à haute pression s'apparente énormément à l'injection de pièces non-moussées, à la différence que le moule s'ouvrira pendant le refroidissement de la pièce pour permettre la croissance cellulaire à pression atmosphérique. Par opposition, l'injection de mousses à basse pression ne nécessite pas l'utilisation d'un moule articulé; la chute de pression provient plutôt d'un remplissage partiel de la cavité (*short shot*). Le moussage ainsi amorcé comblera la portion de la cavité laissée vacante.

## **1.7 Objectifs**

Pour faire face à la forte compétition, l'industrie du plastique tente par divers moyens d'augmenter le ratio performance/coût de ses produits. Les mousses composites permettent d'économiser de la matière, d'utiliser des matières premières moins coûteuses, tout en

conservant de bonnes propriétés mécaniques. La conception de composites à base de bois (résidus de sciage) et de plastiques recyclés est une avenue de recherche particulièrement intéressante puisque ces composés ont une faible valeur commerciale pris individuellement et une seconde utilisation contribuerait à résoudre certains problèmes au niveau environnemental (enfouissement de grands volumes et faible biodégradabilité). Par ailleurs, les mousses polymères permettent d'effectuer des économies substantielles de matériel. Enfin, le moulage par injection est une technique éprouvée qui procure latitude, rapidité et reproductibilité.

L'objectif principal du présent travail est de produire et d'évaluer les propriétés morphologiques et mécaniques de mousses composites bois/plastiques moulées sur une presse à injection. Les pièces doivent avoir de bonnes propriétés mécaniques, être uniformes et reproductibles. Le polymère utilisé dans cette étude est un mélange de polyéthylène et de polypropylène d'origine post-consommation, la fibre de bois provient d'une scierie tandis que l'agent gonflant chimique à base d'azodicarbonamide est de grade industriel. Aucun agent de modification d'interface n'a été ajouté afin de limiter l'étendue de cette étude. Un pré-mélange du bois et du polymère sera effectué par extrusion puis moulé à l'aide d'une presse à injection standard munie d'une buse à valve d'obstruction. Les propriétés morphologiques étudiées sont le diamètre et la densité des cellules, l'épaisseur de peau de l'échantillon ainsi que la morphologie des fibres. Les propriétés mécaniques étudiées seront la flexion, la torsion, la traction et l'impact. Ces propriétés seront finalement corrélées aux paramètres de production comme la température du moule d'injection, la concentration de bois ainsi que la teneur en agent gonflant.

## **Chapitre 2**

### **Revue de la littérature**

La littérature au sujet de l'injection de mousses composites bois/plastiques est lacunaire. Ainsi, une revue littéraire doit nécessairement aborder plusieurs sujets connexes. En premier lieu, les mélanges de polymères immiscibles sont mentionnés car ils sont retrouvés dans la mise en œuvre de plastique recyclé. Ensuite, diverses techniques de production de composites, de mousses structurales et de mousses composites sont explorées tour à tour. Finalement, les dernières sections reprennent les sujets abordés précédemment mais portent exclusivement sur le moulage par injection.

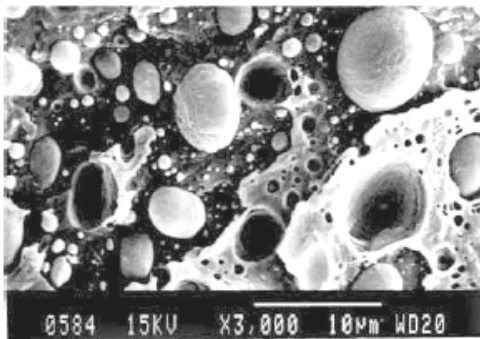
#### **2.1 Mélanges de PP et PE**

Bertin et Robin (2002) ont comparé les mélanges de LDPE/PP vierges et recyclés. Ce type de composé, normalement riche en polyéthylène est souvent rencontré lors du recyclage de polyoléfines post-consommation et est pratiquement impossible à dissocier. Ils ont d'abord mélangé les résines dans une proportion de 90:10 à l'aide d'une extrudeuse avant de mouler les pièces sur une presse à compression à 200°C pendant 5 minutes. Tous les composés ont des propriétés inférieures à celles prédites par les lois d'additivité parce que ces deux polymères sont immiscibles. En fait, à ces concentrations, le PP prend plutôt la forme de gouttelettes dispersées dans une phase continue de LDPE. Les propriétés en traction montrent d'abord que les propriétés des échantillons recyclés sont similaires à celles des échantillons vierges. L'incorporation de PP dans la matrice de LDPE la rend plus rigide, mais également plus fragile. Ils ont observé une amélioration du module de Young et de la résistance à la rupture. Cependant, la présence du PP décroît significativement l'élongation à la rupture et la résistance à l'impact. Ajouté à 5%, le EPDM peut être utilisé comme agent compatibilisant entre le LDPE et le PP. Il améliore la résistance à l'impact et l'élongation à la rupture. Enfin, l'incorporation de courtes fibres peut améliorer les propriétés en tension,

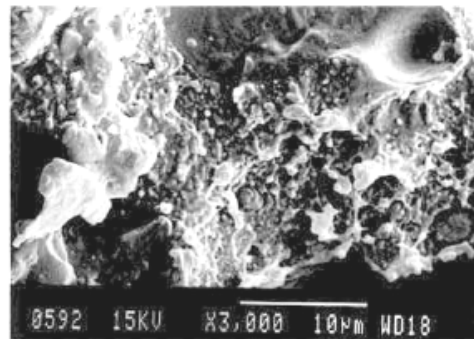
flexion et impact. L'importance de leur effet dépend cependant de l'affinité entre les fibres et la matrice.

Jose et al. (2004) ont étudié l'effet de la morphologie et du degré de cristallisation sur les propriétés mécaniques de mélanges HDPE/PP. Pour ce faire, ils ont moulé les échantillons sur une presse à compression à 185°C en variant la composition de la matrice entre 10:90 à 90:10 en poids. L'augmentation de la teneur en HDPE dans une matrice de PP occasionne l'augmentation de la taille des domaines de polyéthylène simplement par coalescence. Le phénomène a également été remarqué pour des inclusions de PP dans une matrice de HDPE. Cependant, ils ont observé que la taille des inclusions est inférieure lorsque le PP constitue la phase continue parce que sa viscosité supérieure gêne la migration du HDPE. Enfin, le taux de coalescence est directement proportionnel au carré de la concentration des domaines. D'autre part, ils ont observé une relation entre le taux de cristallinité d'un polymère dans un mélange et la morphologie de ce mélange. Le taux de cristallinité d'un mélange de polymères est inférieur à celui des polymères seuls dans les mêmes conditions. De plus, le taux de cristallinité du polymère constituant la phase continue n'est pas significativement influencé par la présence d'une seconde phase. Cependant, un polymère faisant partie d'une matrice co-continue est fortement modifié par la présence d'un second. De façon générale, le taux de cristallinité des deux phases varie proportionnellement. Ils ont observé que les domaines de HDPE et PP sont co-continus uniquement dans l'intervalle 40:60 à 60:40 (Figure 2.01).

A – Phase continue et phase diffuse



B – Phases co-continues



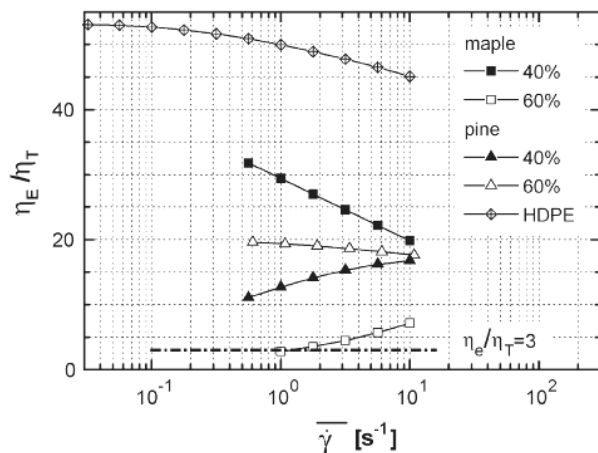
**Figure 2.01.** SEM de la dispersion des phases. A = 30:70, B = 50:50 (Tiré de Jose et al. 2004)

L'incompatibilité du mélange HDPE/PP provoque habituellement une déviation négative des propriétés mécaniques. Par contre, le module de Young fait exception à cette règle puisqu'il est calculé à de faibles contraintes. En fait, il atteint un maximum à 80% PP. L'addition d'une faible quantité de HDPE comble les interstices entre les sphérulites et inhibe l'amorce de fractures. L'incompatibilité empêche cependant le transfert de charges entre les phases à de hautes concentrations de contraintes. Ils affirment cependant qu'une phase diffuse de HDPE améliore la résistance à l'impact du PP à cause de sa faible température de transition vitreuse tandis qu'une phase diffuse de polypropylène nuit simplement à la résistance aux chocs du polyéthylène. La dureté est une propriété de surface et dépend moins fortement de la compatibilité entre les constituants. En fait, la dureté du mélange HDPE/PP est supérieure à celle prédite par la loi des mélanges. Les propriétés finales du matériau sont principalement dictées par la morphologie des phases. À son tour, la morphologie est déterminée par le ratio des polymères, leur viscosité, les paramètres de mise en oeuvre ainsi que la présence d'additifs ou d'impuretés.

## **2.2 Composites**

Pour mieux comprendre la rhéologie des WPC, Li et Wolcott (2004) ont étudié l'écoulement en cisaillement et l'écoulement extensionnel des composites de HDPE/farine de bois en régime stationnaire. Pour ce faire, ils ont utilisé deux essences de bois, l'érable et le pin, à des teneurs de 40 et 60%. La farine de bois, d'une taille moyenne de 0,25 mm, est incorporée au polymère à l'aide d'une extrudeuse contra-rotative à 163°C. D'abord, les tests capillaires ont été effectués à 180°C pour différentes géométries de buse. L'analyse de Mooney a été utilisée pour déterminer la contribution du glissement à la paroi au cisaillement total. L'écoulement extensionnel des WPC a été effectué avec la technique de buse hyperbolique et ils ont analysé les résultats avec le ratio de Trouton. Les tests d'écoulement en cisaillement montrent que l'écoulement des WPC dépend de la géométrie du capillaire, ce qui suggère un glissement à la paroi. Cette dépendance est fonction à la fois de la teneur et de la nature du bois; la vitesse de glissement à la paroi semble être constante pour tous les composites d'érable, mais dépend de la teneur en pin. Ils en

concluent donc que cette couche est principalement constituée de HDPE dans les deux cas, mais que ses propriétés sont influencées par les acides gras de la farine de pin. En effet, cette espèce contient 2-3% d'acides gras qui pourraient migrer à la surface du composé et augmenter le glissement à la paroi. Ils ont observé que la viscosité des WPC est supérieure à celle du HDPE seul et augmente avec la teneur en bois. Cependant, la viscosité est beaucoup plus sensible à la teneur en bois pour les composites d'érable que pour les composites de pin. Contrairement à la viscosité en cisaillement, la viscosité extensionnelle dépend seulement de la teneur en bois, et semble insensible à la nature de la fibre. Enfin, la comparaison des ratios de Trouton a permis d'identifier des comportements soit rhéo-épaississants ou rhéo-fluidifiants selon la teneur et la nature de la fibre de bois utilisée (Figure 2.02).

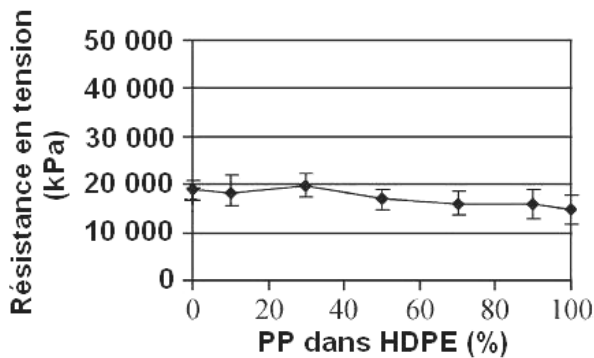


**Figure 2.02.** Ratios de Trouton pour des composites d'érable et de pin dans du HDPE. (Tiré de Li et Wolcott, 2004)

Selke et Wichman (2004) ont étudié les composites à base de fibres de bois et de mélanges de polyoléfinés recyclés. Les échantillons sont produits à l'aide d'une extrudeuse bi-vis co-rotative à double alimentation et moulés sur une presse à compression afin d'effectuer les tests mécaniques. Ils ont d'abord comparé les propriétés des résines recyclées aux résines vierges en produisant des composites HDPE/fibre de cèdre à des teneurs de 0 à 60% bois. Les tests montrent d'abord que le module de Young, la résistance à l'impact ainsi que la résistance à la rupture des résines nettes ne sont pas significativement affectés par le



recyclage. Cependant, l'incorporation de fibres diminue la résistance à l'impact des résines vierges tandis qu'elle améliore celle des résines recyclées. Selon eux, la présence des fibres pourrait palier l'incompatibilité entre les diverses résines présentes dans la matrice recyclée, améliorant ainsi la résistance du composite. Ils ont ensuite étudié des composites HDPE/PP/fibre de tremble, en variant la composition de la matrice de 0 à 100% en polyéthylène tout en maintenant la teneur en bois constante à 40%. La résistance en tension demeure relativement constante sur la plage entière de compositions (Figure 2.03).



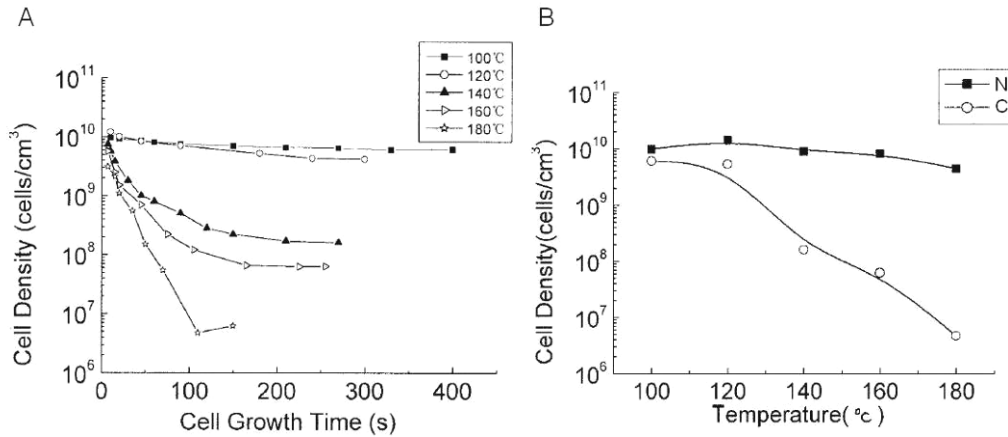
**Figure 2.03.** Effet de la composition de la matrice sur la résistance en tension. (Adapté de Selke et Wichman, 2004)

## 2.3 Mousses structurales

Doroudiani et al. (1996) ont investigué l'effet de la cristallinité sur la structure cellulaire des mousses en moulage par compression. La structure cellulaire des polymères semi-cristallins est plus difficile à contrôler que celle des polymères amorphes parce que le gaz ne se dissout pas dans les cristaux. De plus, la nucléation cellulaire est hétérogène à cause des interfaces entre les domaines cristallins. Dans cette étude, ils ont d'abord moulé les échantillons de HDPE à 150°C pendant 3 minutes puis les ont refroidis à différentes vitesses. Les analyses DSC montrent que le taux de cristallinité croît fortement avec le temps de refroidissement. Ils ont ensuite moussé des échantillons de différents taux de cristallinité afin d'en déterminer l'effet sur la structure cellulaire. Les échantillons ont d'abord été saturés en dioxyde de carbone à haute pression puis plongés dans un bain de glycérine à haute température pendant la durée du moussage. Suite à des tests d'absorption,

ils ont conclu que la solubilité et la diffusivité du CO<sub>2</sub> dans le HDPE sont inversement proportionnels au taux de cristallinité. En fait, ils considèrent qu'un polymère semi-cristallin peut être représenté par une dispersion de cristaux impénétrables dans une matrice caoutchouteuse et amorphe.

Sun et al. (2004) ont examiné la nucléation et la croissance cellulaire d'une mousse thermoplastique en temps réel. La chute rapide et contrôlée de la température pendant l'étape de moussage permet de corrélérer la morphologie cellulaire à l'absorption et la diffusion du gaz dans la matrice. Un copolymère oléfinique (COC) a été saturé en dioxyde de carbone puis injecté à haute pression à des températures variant entre 100-180°C. Le moussage a été initié par une chute de pression, puis interrompu en plongeant l'échantillon dans un bain d'eau glacé. Seuls la température de saturation et le temps de moussage ont été modifiés dans le cadre de cette étude. La densité de cellules finale des échantillons ainsi obtenus dépend fortement de la température d'injection et du temps alloué au moussage (Figure 2.04-A). Afin de comprendre ce comportement, ils ont comparé la densité de nucléation ( $N$ ) à la densité de cellules finale ( $C$ ) en fonction de la température de mise en œuvre (Figure 2.04-B). Une augmentation de la température accélère la diffusion du gaz dans la matrice, diminue la viscosité de la matrice et facilite ainsi la coalescence cellulaire sous la température de transition vitreuse du polymère ( $T_G = 137^\circ\text{C}$ ). Sous cette température, la densité de cellules avoisine celle de la densité de nucléation et ne varie pas significativement en fonction de la température. Ils en concluent que la densité de nucléation a peu d'influence sur la morphologie finale de la pièce au dessus de la  $T_G$ . L'intervalle de temps nécessaire à la désolubilisation du gaz excessif est inversement proportionnel à la diffusivité du gaz dans le polymère. L'équilibre thermodynamique est atteint lorsque la diffusion est contrebalancée par la tension interfaciale. Cet état provoque la stabilisation à la fois de la densité cellulaire et du diamètre cellulaire moyen (Figure 2.04-A).



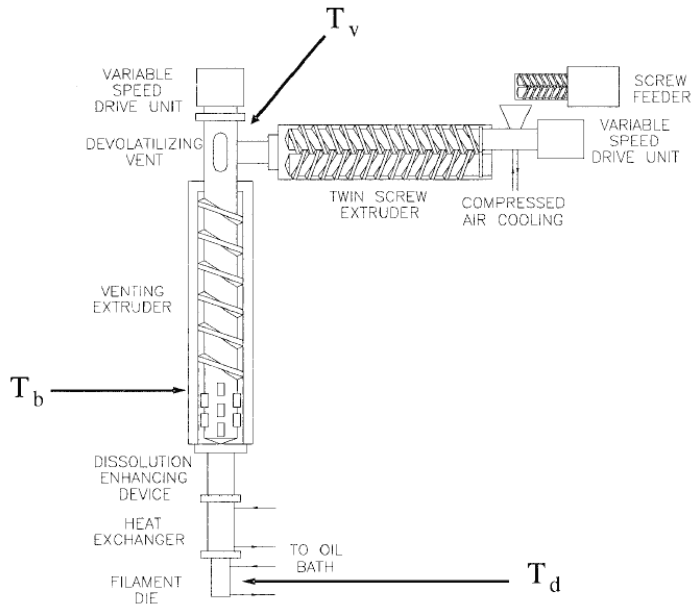
**Figure 2.04.** Évolution de la densité cellulaire en fonction du temps et de la température. (Adapté de Sun et al., 2004)

Rachtanapun et al. (2004) ont déterminé l'effet des méthodes de mise en œuvre sur la morphologie cellulaire et les propriétés mécaniques des mousses polymères. Plus précisément, la composition de la résine, la durée de la période de moussage et la température de moulage ont été modifiées pour connaître leur effet sur le diamètre de cellule, la densité de nucléation et la résistance à l'impact des mousses. Ils ont utilisé un mélange de HDPE/PP vierges dans des proportions de 30:70, 50:50 et 70:30. De façon générale, la production de mousses microcellulaires de HDPE et de PP seuls est difficilement atteignable à cause de leur haut niveau de cristallinité. Une matrice composée d'un mélange de HDPE/PP possède un niveau de cristallinité réduit ce qui permet la production d'une mousse aux cellules fines et uniformes. Les résines ont d'abord été saturées en dioxyde de carbone à 24°C et 800 psi pendant 24 heures avant d'être mélangées avec une extrudeuse co-rotative et moussées dans une presse à compression. Le plan expérimental comporte trois niveaux de température entre 135 et 175°C ainsi que quatre niveaux de temps de moussage entre 5 et 30 secondes. Les échantillons produits avec le HDPE et PP seuls nécessitent l'atteinte de températures relativement élevées afin de diminuer la viscosité suffisamment pour permettre la croissance des cellules. De ce fait, les cellules formées croissent rapidement à cause de la grande diffusivité du gaz dans ces conditions. En comparaison, les mélanges HDPE/PP permettent d'obtenir des mousses à des températures plus faibles et une taille de cellule inférieure. Ces résines immiscibles forment un système multiphasique dans lequel les interfaces polymères diminuent l'énergie

d'activation nécessaire à la nucléation. Ils ont effectivement observé ce type de nucléation hétérogène dans les mélanges HDPE/PP. Les temps de mise en oeuvre plus longs permettent d'atteindre des réductions de densité supérieures mais occasionnent parfois de la coalescence cellulaire lors du moussage à haute température (175°C). Les propriétés d'impact de ces mélanges ne sont généralement pas très élevées en raison des nombreuses interfaces présentes. Dans le cas présent, la résistance à l'impact est fortement influencée par la morphologie cellulaire. Les résultats optimaux ont lieu en présence d'une structure cellulaire bien développée et d'une densité de nucléation élevée. Enfin, la résistance à l'impact des mélanges HDPE/PP ne dépend pas de la composition, mais est favorablement influencée par les températures de moussage plus élevées.

## **2.4 Mousses composites**

Guo et al. (2004a) ont évalué la possibilité d'extruder des composites bois/plastiques moussés en utilisant les volatils du bois comme seuls agents gonflants. L'humidité que contient le bois est communément retirée avant la mise en oeuvre parce qu'elle est insoluble dans le polymère et sa présence mène à la formation de larges cellules dans la matrice. Cependant, le séchage retire également certains volatils solubles dans le polymère. Il s'agit donc de déterminer si un séchage partiel des fibres peut procurer une mousse adéquate, et ce, en présence d'une faible quantité d'eau. Les composites consistent de HDPE, de 50% de fibre de pin et 3% d'agent couplant (MAPE). La fibre est préalablement séchée sous vide à 105°C pendant 12 heures. Les étapes de mélange, de dévolatilisation et de moussage se font de façon simultanée sur deux extrudeuses en série (Figure 2.05).



**Figure 2.05.** Schématisation des extrudeuses en série. (Tiré de Guo et al., 2004a)

Ils ont d'abord vérifié l'effet de la température de vis sur la densité des composites. L'augmentation de la température dans la zone précédant la dévolatilisation augmente la densité finale de l'échantillon en retirant une quantité croissante des volatils du bois. Ils en concluent qu'à ce point il faut opter pour une température inférieure à la température de séchage des fibres pour minimiser la perte de gaz. Par opposition, l'augmentation de la température après la dévolatilisation permet une diminution importante de la densité de la mousse mais mène à la détérioration de la morphologie cellulaire. Ils suggèrent de limiter la température de cette zone à 170°C pour les composites à base de polyéthylène. Ils ont également observé qu'une augmentation du temps de résidence dans l'extrudeuse provoque à la fois un dégagement gazeux et une dégradation des fibres de bois, et ce, même à une température aussi basse que 100°C. En lien avec ces résultats, ils suggèrent de sécher les fibres à une température supérieure à celle de la décomposition de l'agent gonflant lors du moussage de composites bois/plastiques à l'aide de CBA. Cette mesure prévient notamment la formation de larges cellules d'humidité lors de la mise en oeuvre.

Les expériences de Rizvi et al. (2000) portent sur le moussage des composites bois/plastiques utilisant l'humidité du bois comme agent gonflant. La production d'une mousse microcellulaire de ce type est difficile à cause de la faible solubilité de l'eau dans le

plastique. De plus, sa grande tension de surface rend difficile la dispersion de fines gouttelettes dans la matrice. Cette insolubilité accélère également la croissance cellulaire en éliminant la phase de diffusion du gaz dans la matrice. Ainsi, la structure cellulaire résultante possède un diamètre élevé et une distribution évasée. Dans leur étude, les composites ont été produits par extrusion en incorporant des fibres de bois non séchées dans des matrices de PS et HIPS afin de déterminer la morphologie cellulaire et l'expansion volumique des mousses. Ils ont opté pour des matériaux styréniques à cause de leur grande rigidité afin d'assurer une morphologie cellulaire adéquate.

Tous leurs échantillons contenaient 20% de fibres de bois de pin tamisée à 125 microns. Le bois contenait 8% d'humidité relative initialement et l'extrusion a été effectuée à 205°C afin d'assurer la décomposition de l'hydrocérol. Ce composé, utilisé comme agent gonflant chimique, a également été ajouté à certains échantillons pour fins de comparaison. Les analyses TGA montrent que, dans les conditions expérimentales, près de 90% de l'humidité contenue dans les fibres s'échappe au cours des 10 premières minutes. Ils en concluent qu'une portion significative de la vapeur d'eau est perdue par la trémie d'alimentation avant même d'être incorporée au fondu. Les expériences montrent que la fraction de vide obtenue dans les mousses composites PS/fibre de bois est supérieure à celle des échantillons équivalents à base de HIPS. Cette différence est expliquée par la rigidité supérieure du PS. Le refroidissement des mousses produites provoque à la fois la solidification de la matrice et la liquéfaction de la vapeur d'eau utilisée comme agent gonflant. Le vide partiel résultant dans les cellules occasionne à son tour l'effondrement de la morphologie cellulaire. Une matrice plus rigide peut donc mieux résister à ces contraintes et maintenir sa structure initiale. Enfin, l'ajout d'une faible quantité d'hydrocérol aux composites améliore significativement la fraction de vide en augmentant la pression résiduelle dans les cellules. Cette mesure permet ultimement d'éliminer l'effondrement cellulaire en diminuant les contraintes exercées sur la matrice.

Li et Matuana (2003) ont produit des mousses composites HDPE/farine de bois en extrusion pour évaluer les effets des divers types d'agents gonflants chimiques sur la densité des échantillons produits ainsi que sur leur morphologie cellulaire. Le composite est

uniformisé à l'aide d'un mélangeur interne pendant 5 minutes avant d'être extrudé à 190°C. L'incorporation de 40% de farine de bois réduit significativement la fraction de vide pour toutes les mousses, et ce, même en présence de l'agent couplant (MAPE). En effet, les composites ont une capacité d'absorption de gaz inférieure à celle du HDPE seul, ce qui limite nécessairement les réductions de densité possibles. Cependant, la taille moyenne des cellules des composites est inférieure à celle du polymère car l'ajout de la farine de bois augmente la rigidité de la matrice et réduit la croissance cellulaire. La nature endothermique ou exothermique des CBA n'influence pas significativement les mousses produites. En effet, la fraction de vide, le diamètre cellulaire moyen ainsi que la morphologie de la mousse ne sont pas affectés par la nature de l'agent gonflant. Cependant, les CBA caractérisés par un pic de décomposition évasé se décomposent lentement et produisent des mousses de diamètre cellulaire plus élevé. Dans ce cas, la migration du gaz vers les cellules existantes permet de maintenir une concentration dans la matrice suffisamment basse pour réduire le taux de nucléation. Ils ont également déterminé les teneurs optimales d'agent gonflant permettant de maximiser la fraction de vide en minimisant la coalescence cellulaire. Indépendamment du type de CBA utilisé, cette valeur avoisine 1% pour le HDPE et 0,5% pour les composites. Ceci démontre un effet positif de l'incorporation des fibres.

Guo et al. (2004b) ont étudié l'effet de particules nanométriques sur la morphologie d'une mousse WPC extrudée. Ils rapportent qu'un ajout d'argile peut améliorer dramatiquement les modules en tension, traction et flexion, ainsi que la résistance à l'impact, la stabilité thermique et les propriétés barrières des composites. Dans cette étude, la fibre de pin a été préalablement séchée pendant 6 heures à 105°C dans un autoclave. Ensuite, la fibre, l'argile et l'agent couplant ont été incorporés à une matrice de polyéthylène à l'aide d'une extrudeuse bi-vis isotherme. Le composite est ensuite extrudé et granulé. L'agent gonflant chimique est enfin incorporé au composite à l'aide d'une extrudeuse mono-vis et le moussage a lieu à 145°C. Ils ont opté pour un compoundage en deux étapes pour éviter la décomposition de l'agent gonflant avant le dégazage du fondu. L'effet du bois a été étudié à des concentrations variant entre 30 et 50% tandis que les teneurs en agent gonflant et en argile sont maintenues constantes à 1 et 5% respectivement. D'abord, ils ont remarqué que

le taux de cristallinité du polyéthylène diminue avec une augmentation de la teneur en bois. De plus, même si l'incorporation d'argile modifie peu le taux de cristallinité du polyéthylène, sa présence diminue grandement celui des WPC. Sa présence facilite donc le moussage de cette classe de composites. Ensuite, l'ajout de l'argile diminue la densité des mousses indépendamment de la teneur en bois. Ils en concluent que les nano-particules sont adéquatement dispersées dans la matrice, ce qui augmente la rigidité du fondu et minimise les pertes de gaz par diffusivité. La densité des échantillons produits sans agent gonflant a également diminué avec l'ajout de l'argile. En fait, sa présence agit comme agent de nucléation aux volatils du bois encore présents suite au séchage. Ils en concluent que le temps de séchage utilisé demeure insuffisant. La présence d'argile augmente donc la densité de nucléation cellulaire tout en diminuant le diamètre moyen des cellules produites.

## 2.5 Injection

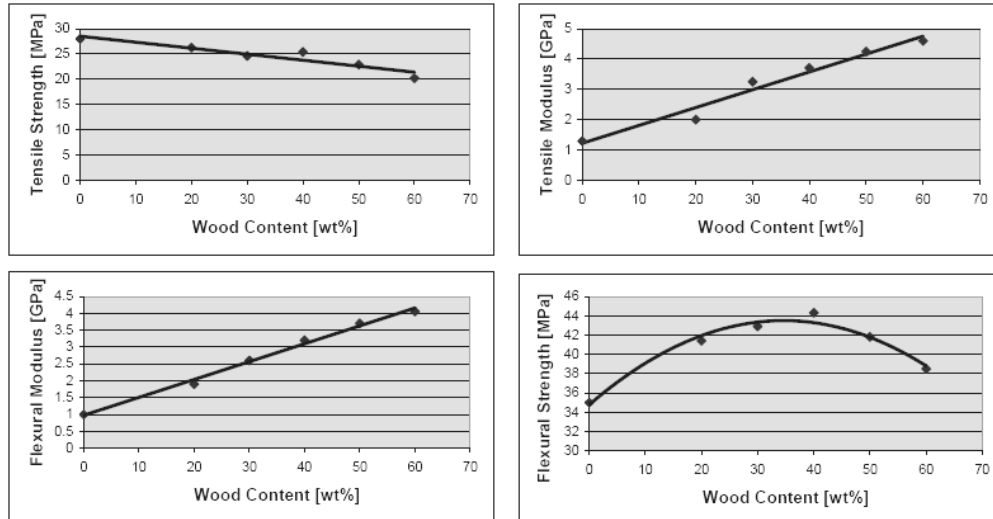
### 2.5.1 Injection de composites

Folkes et Kells (1985) ont étudié l'orientation des fibres lors de l'injection de composites de nylon/fibres de carbone. Les propriétés des composites à base de fibres courtes peuvent, en théorie, avoisiner celles des composites de fibres continues. Mais en pratique les propriétés sont bien moindres à cause de l'orientation et de l'attrition des fibres durant le mélange préliminaire. Une pièce moulée par injection doit généralement faire preuve de rigidité, de résistance mécanique, ainsi que d'une certaine ténacité. Leurs travaux montrent que la rigidité et la résistance augmentent avec la longueur de la fibre lorsque la contrainte est appliquée parallèlement à l'axe des fibres. La résistance et la ténacité augmente avec la longueur des fibres mais sont limitées par la concentration de contraintes aux extrémités des fibres. Une fibre de longueur critique ( $L_c$ ) nécessitera un travail de rupture maximal; une fibre plus courte se retirera intacte de la matrice tandis qu'une fibre plus longue se brisera prématurément. La longueur critique est fonction du diamètre de la fibre ( $D$ ), de sa résistance ( $\sigma_f$ ) et de la résistance en cisaillement de l'interface fibre/polymère ( $\tau_{fm}$ ):

$$L_c = D \frac{\sigma_f}{2\tau_{fm}} \quad (2.1)$$



Stark et Berger (1997) ont étudié l'effet de nature et de la taille des particules de bois dans les composites à base de polypropylène et de farine de bois. Pour ce faire, ils ont d'abord effectué un mélange préliminaire des constituants à l'aide d'une extrudeuse bi-vis de L/D égal à 32. Le profil de température dans l'extrudeuse a été maintenu inférieur à 190°C afin de minimiser la dégradation thermique des fibres. L'extrudé a ensuite été refroidi dans un bain d'eau puis séché dans un four à 105°C avant l'injection à l'aide d'une presse standard de 293,6 kN de force de fermeture. Ils ont d'abord vérifié l'effet de concentration de bois sur les propriétés des échantillons. Des teneurs de 20 à 60% de bois, tous de grade 40 mesh (0,25 mm), ont été testés. L'augmentation de la teneur en bois augmente les modules en tension et en flexion, la densité, la température de déviation et l'énergie d'impact avec entaille tandis qu'il diminue la résistance en traction, l'élongation en traction, le retrait, l'indice de fluidité et l'énergie d'impact sans entaille. La résistance en flexion, quant à elle, atteint un optimum à 40% de bois puis diminue à nouveau. Les résultats de Stark et Berger (1997) ont été repris par Wrap (2003) et sont illustrés dans la Figure 2.06.



**Figure 2.06.** Effets de la teneur en bois sur les propriétés mécaniques. (Tiré de Wrap, 2003)

Ils ont également vérifié l'effet de la nature de la farine de bois sur les composites. Divers types de pins, d'érables et de chênes ont été utilisés. De façon générale, les composites à base de feuillus présentent des meilleures propriétés en tension et en flexion que leurs contreparties à base de bois résineux. Enfin, ils ont étudié l'effet de la taille des particules

sur les propriétés mécaniques. Quatre distributions étroites de tailles de particules, entre 20 et 120 mesh (0,841 et 0,125 mm respectivement), ont été utilisées. Ces tests ont été effectués en maintenant la teneur en bois constante à 40% massique. L'augmentation de la taille de particules accroît l'indice de fluidité et l'énergie d'impact avec entaille tandis qu'elle décroît l'énergie d'impact sans entaille. Pour des particules de taille inférieure à 0,25 mm, les modules en flexion et en tension augmentent avec l'accroissement de la taille des particules. Enfin, la densité des échantillons est indépendante de la taille des particules.

Stark (1999) a évalué la faisabilité d'utiliser du bois de palettes dans la fabrication de composites bois/plastiques. Plus précisément, l'étude compare la fibre à la farine comme additif dans une matrice de polypropylène à des teneurs de 20 et 40%. Elle compare également le bois feuillu au bois résineux comme additif. D'abord, le bois a été séché à 105°C pendant 24 heures. Ensuite, le compoundage a été effectué entre 185 et 193°C dans une extrudeuse co-rotative intercalées de  $L/D = 32$ , puis injecté sur une presse de 293,6 kN. Tous les tests mécaniques ont été faits selon les normes ASTM: les tests d'impact selon la méthode Izod avec et sans encoche, les tests de traction à une vitesse de 5 mm/min, et enfin les tests de flexion par la méthode trois points (*3-point bending*). L'analyse au microscope optique permet de distinguer la morphologie des composites. Bien que tous deux soient tamisés à 0,45 mm, le ratio  $L/D$  de la fibre est de 17 pour les bois, de 14 pour les bois feuillus, tandis que celui de la farine est de seulement 3,35.

Stark (1999) conclut que l'utilisation d'une fibre au lieu d'une farine dans une matrice de polypropylène améliore généralement les propriétés du matériau. En effet, une fibre diminue le retrait, améliore la stabilité dimensionnelle et augmente la résistance en flexion et en tension plus que la farine. L'auteur conclut également que les composites à base de bois feuillus et de bois résineux ont des propriétés similaires. L'effet de deux additifs a également été étudié. L'ajout d'acide stéarique (SA) n'a pas influencé la résistance à l'impact mais a diminué la résistance des échantillons en tension et en flexion. L'inefficacité du SA, utilisé comme agent dispersif, serait expliquée par la dispersion adéquate des fibres lors du mélange préliminaire par extrusion. L'ajout d'un copolymère d'anhydride maléique (MAPP) permet de créer un lien adéquat entre une matrice polymère

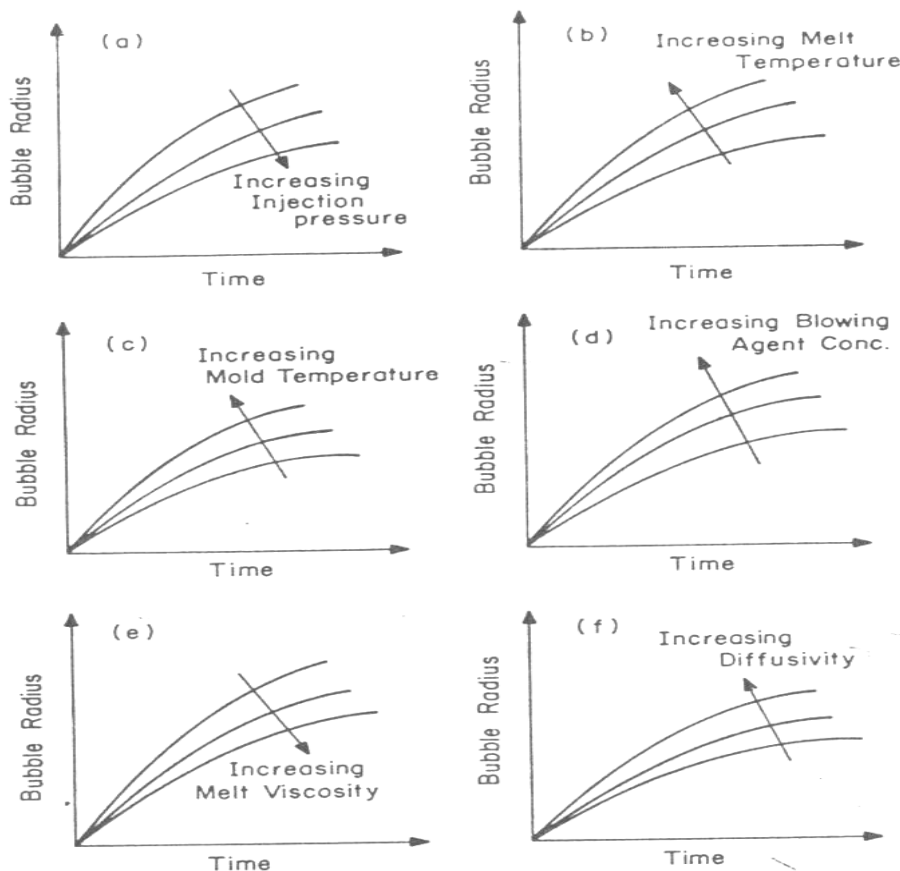
et un additif affichant des groupes hydroxyles à sa surface (i.e. le bois). De plus, le MAPP augmente significativement la résistance à la fois en tension, en flexion et en impact, et ce, surtout à des teneurs de 40% en bois.

### **2.5.2 Injection de mousses structurales**

Villamizar et Han (1978) ont étudié la dynamique de la nucléation et la croissance cellulaire dans l'injection de mousses structurales. Les échantillons ont été injectés à basse pression dans un moule rectangulaire à parois transparentes permettant la prise de photos au cours du procédé. Ils ont utilisé deux types d'agents gonflants chimiques, l'un produisant principalement du dioxyde de carbone et l'autre de l'azote, pour mousser trois thermoplastiques; le polystyrène, le polycarbonate et le polyéthylène haute densité. Les CBA ont été ajoutés à des concentrations de 0,1 et 0,2% respectivement. Ils ont remarqué des inhomogénéités dans la morphologie de la mousse. D'abord, les cellules éloignées des seuils d'injection ont une taille supérieure car la nucléation a lieu au seuil d'injection et les cellules croissent avec l'avancement du front d'écoulement. Ensuite, une mauvaise distribution de l'agent gonflant occasionne la nucléation hâtive dans les zones riches en agent gonflant. Les analyses dynamiques montrent que la structure cœur/peau, caractéristique des mousses structurales injectées, est causée par l'effondrement des cellules au contact du moule tempéré ainsi que de la grande viscosité acquise par le polymère en refroidissant. La nucléation ayant lieu pendant le remplissage, les cellules sont soumises à des contraintes de cisaillement suffisantes pour leur conférer une géométrie ellipsoïdale (déformation). Ils proposent également deux mécanismes distincts de croissance cellulaire. Le premier est dû à une diminution de la pression lors du remplissage de la cavité, l'autre est dû à la diffusion du gaz dans le fondu.

Ils ont également étudié les effets des paramètres de mise en œuvre sur la croissance cellulaire (Figure 2.07). L'augmentation de la pression d'injection favorise la formation des cellules plus petites et plus uniformes. À ce niveau, ils croient que la nucléation prématurée, toujours présente dans les canaux d'alimentation, peut être limitée en augmentant la pression d'injection. Une diminution de la température de mise en œuvre

augmente la viscosité de la résine, diminue la diffusion du gaz et diminue aussi la vitesse de relaxation des contraintes dans l'échantillon. La taille moyenne des cellules sera donc plus faible. La diminution de la température du moule provoque des effets similaires en plus de favoriser la formation d'une peau: c'est-à-dire une zone en surface non-moussée. Enfin, l'ajout d'agent gonflant à la matrice diminue la viscosité du mélange gaz/polymère et provoque la coalescence cellulaire s'il est incorporé en quantité excessive. Ils ont observé que l'azote est moins soluble dans la matrice que le dioxyde de carbone, ce qui accélère le moussage tout en décroissant la quantité d'agent gonflant nécessaire.

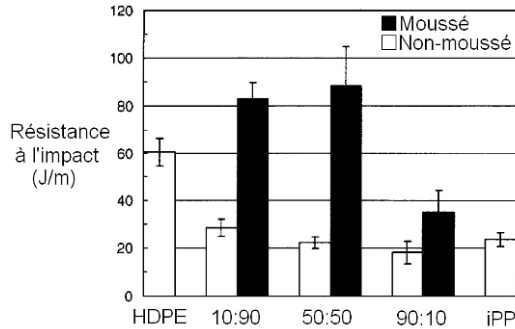


**Figure 2.07.** L'effet des paramètres d'injection sur la croissance cellulaire. (Tiré de Villamizar et Han, 1978)

Doroudiani et al. (1998) ont injecté des mousses structurales à base d'un mélange de HDPE/PP afin d'étudier la croissance cellulaire au sein de mélanges de polyoléfines incompatibles. Les polymères ont été mélangés à des concentrations massiques de 10:90,

50:50 et 90:10. Ils ont également étudié la solubilité du dioxyde de carbone, utilisé comme agent gonflant physique, en fonction de la morphologie et de la cristallinité de la matrice. Dans un mélange de polymères, le taux de cristallinité de chaque phase est inférieur à celui des résines individuelles. De façon générale, la solubilité d'un gaz est faible (quasi nulle) dans les régions cristallines. Ceci implique donc que la fraction amorphe d'un mélange de polymères est supérieure à celle des polymères et par conséquent la solubilité du CO<sub>2</sub> est supérieure à celle prédite par la loi des mélanges.

La morphologie cellulaire et le ratio d'expansion volumique dépendent fortement de la nature de la matrice. Les mélanges HDPE/PP 90:10 obtenus forment une mousse beaucoup plus uniforme que les mélanges 10:90 malgré une réduction de densité comparable; soit de 11 et 14% respectivement. Ils observent cependant que les mélanges 50:50 comportent une morphologie intermédiaire aux cas ci-dessus tout en permettant un ratio d'expansion de 71%. Ils proposent deux explications à ceci. D'abord, les interfaces stables présentes dans les mélanges de polymères immiscibles favorisent la nucléation hétérogène, diminuant ainsi la densité finale de la mousse. De plus, la réduction de la rigidité occasionnée par la diminution du taux de cristallinité facilite la croissance cellulaire. Ils ont ensuite étudié les propriétés mécaniques. D'abord, les propriétés en tension suivent généralement la loi des mélanges. La résistance et le module élastique montrent une synergie positive tandis que l'élongation à la rupture est légèrement détériorée. Les propriétés réduites des mousses en traction avoisinent celles des échantillons non-moussés; exception faite de la résistance à la rupture qui est significativement améliorée par le moussage. Contrairement aux tests en traction, la résistance à l'impact (Izod) est significativement détériorée par l'addition d'une seconde phase polymère. Ils attribuent la diminution des propriétés d'impact des mélanges non-moussés à la faiblesse des interfaces HDPE/PP. Par contre, la présence de cellules empêche la propagation des failles et assure ainsi aux mousses une résistance de 2 à 4 fois supérieure à leur homologue non-moussé (Figure 2.08).



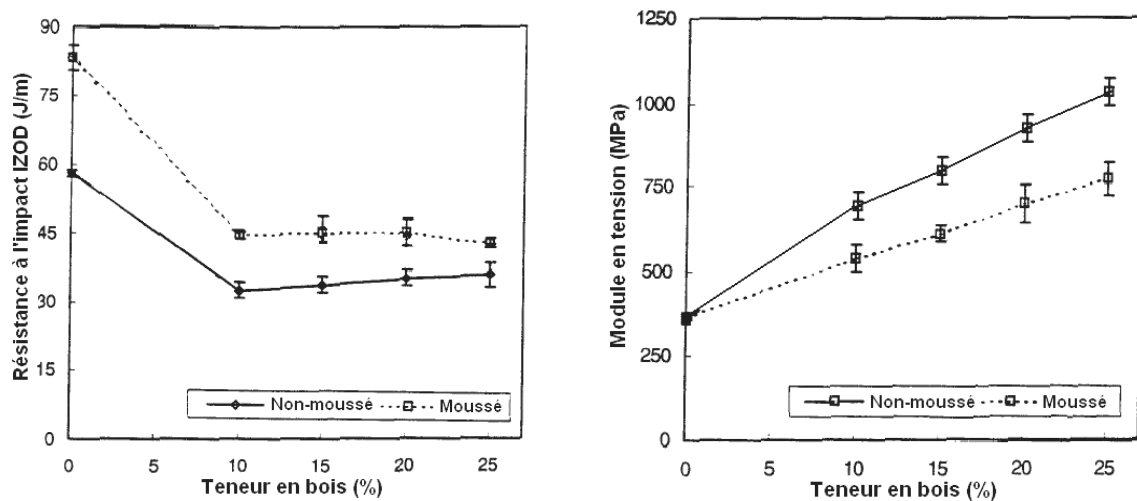
**Figure 2.08.** Résistance à l'impact de mélanges HDPE/PP moussés. (Adapté de Doroudiani et al. 1998)

Pfannschmidt et Michaeli (1999) ont étudié la possibilité d'utiliser le dioxyde de carbone comme agent gonflant physique dans une presse à injection standard. Le  $\text{CO}_2$  est généralement plus soluble dans les matrices polymères que l'azote et permet ainsi de plus grandes modifications de densité. Dans cette étude, le polypropylène est préchargé en gaz dans un autoclave puis alimenté directement dans une presse à injection standard. Ils ont ensuite vérifié l'influence des paramètres d'injection sur la densité et la structure de la mousse. Le plan d'expérience tient compte de la vitesse d'injection et de rotation de la vis, la pression de maintien, la température de la vis et du moule ainsi que le temps de refroidissement. Une diminution de densité aussi grande que 30% peut être obtenue avec l'ajout de 1% de  $\text{CO}_2$ . La présence d'agents de nucléation permet à la fois d'améliorer la structure de la mousse et de diminuer la densité jusqu'à 40%. Une haute vitesse d'injection permet une diminution de la densité globale de la pièce tout en uniformisant sa densité. Une augmentation de la température de la vis et de la vitesse d'injection diminue sensiblement la densité tandis que la pression dynamique et la température du moule n'influencent que très peu la densité; ces derniers causant plutôt une distribution hétérogène des cellules à l'intérieur de la pièce.

### 2.5.3 Injection de mousses composites

La plus ancienne étude trouvée portant sur l'injection de composites bois/plastiques moussés a été menée par Doroudiani et al. (1997). Plus précisément, l'étude concerne les composites à base de HDPE et de farine de bois tamisée à 0,6 mm incorporée à des teneurs

de 0 à 25%. Du dioxyde de carbone a été utilisé comme agent gonflant physique. Les observations microscopiques démontrent la faiblesse de l'interface bois/plastique. D'abord, une cassure franche de l'échantillon permet d'observer la présence de fibres nues dépassant de la surface (*fiber pull-out*). Une bonne adhésion aurait plutôt occasionné la fracture des fibres. Ensuite, ils ont noté la présence de grosses cellules aux interfaces bois/plastique qui suggèrent que la faiblesse des interactions facilite la diffusion du gaz. Tel qu'illustré à la Figure 2.09, la résistance à l'impact augmente lors du moussage mais diminue en fonction de la teneur en bois. Ils ont également observé que l'effet relatif du moussage des composites est diminué par la présence du bois. Ils expliquent ceci en invoquant le faible impact de la morphologie de la mousse haute densité sur la résistance à l'impact. Lorsque la fraction de vide est faible, la résistance dépend plutôt de l'interface bois/plastique ainsi que de la nature rigide de la fibre. Au contraire, les résultats d'impact des mousses faible densité dépendront plutôt de leur morphologie. Les modules en tension et flexion varient tous deux de façon similaire. Ils croissent avec l'augmentation de la teneur en bois, en réaction à la rigidité du bois, mais réagissent défavorablement au moussage (Figure 2.09).



**Figure 2.09.** Propriétés mécaniques des composites bois/plastiques moussés. (Adapté de Doroudiani et al. 1997)

L'étude de Paladugula et Shutov (1998) porte sur l'injection de composites LDPE/farine de bois moussés et non-moussés. Ils ont notamment étudié la densité, les propriétés en traction

ainsi que l'absorption d'eau des échantillons. Le polymère et le bois sont tous deux d'origine post-consommation et ont été moussés à l'aide d'un mélange de sel de sodium et d'acide carbonique. L'injection du composite a lieu sur une presse de 667,2 kN après avoir été mélangé dans une extrudeuse mono-vis pour des teneurs en farine de bois variant de 0 à 30%. Ils ont observé que l'augmentation de la teneur en bois accroît la densité des composites non-moussés, mais diminue celle des composites moussés. Bien que le bois compacté possède une densité supérieure à celle de la matrice polymère, ces fines particules agissent comme agent de nucléation et permettent une diminution de la densité globale du composite. Le diamètre moyen des cellules est également inférieur en présence de la farine. L'élongation à la rupture des mousses augmente en fonction de la teneur en bois et surpasse significativement celle des composites non-moussés: elle est de 6 fois supérieure à une teneur en bois de 30%. Ils expliquent ceci en évoquant la morphologie d'une matrice moussée; le réseau formé par la présence de cellules retarde la propagation macroscopique des fissures. Cependant, la charge ultime et le module décroissent avec l'augmentation de la teneur en bois. Enfin, l'absorption d'eau est directement fonction de la teneur en bois et de la porosité de l'échantillon.

En réponse au faible nombre de travaux sur le sujet, Bledzki et Faruk (2002) ont étudié l'injection de mousses composites. Ils ont incorporé du ACA (2 à 4%) dans une matrice de polypropylène pour produire une mousse microcellulaire au diamètre moyen inférieur à 50 microns. La teneur en bois est de 30 à 60% et ils y ont ajouté du MAPP (5% par rapport à la fibre) comme agent couplant. Les fibres de bois sont initialement séchées à 80°C pendant 24 heures puis incorporées à la matrice dans une extrudeuse avant d'être injectées. Le profil de température de la vis atteint au maximum 180°C tandis que le moule est maintenu entre 80 et 110°C. Ils ont mesuré la densité et la taille de cellule en plus d'entreprendre des tests en tension et en flexion. La diminution maximale de densité obtenue est de 24% lorsque la teneur en bois est minimale et que l'agent couplant est utilisé. Ils observent que les résistances spécifiques en traction et en flexion décroissent proportionnellement à l'ajout de fibres et à la réduction de densité en l'absence du MAPP. Enfin, la masse volumique minimale obtenue de 770 kg/m<sup>3</sup> représente une diminution de densité de 24%.



Pour faire suite à leurs recherches, Bledzki et Faruk (2004) ont étudié les propriétés physico-mécaniques de composites PP/fibre de bois moussés en fonction de la technique de mise en œuvre, de la concentration de divers CBA et de l'ajout d'un agent couplant. Cette étude permet donc de comparer les mousses produites en extrusion à celles produites en moulage par injection. D'abord, la fibre de bois feuillu est séchée à 80°C pendant 24 heures, puis incorporée à 30% dans la matrice de polypropylène à laquelle ils ajoutent également du MAPP à 5% par rapport à la fibre comme agent couplant. Le tout est mélangé puis séché à nouveau. L'agent gonflant n'est ajouté, dans une teneur de 4%, que pendant l'étape de moussage pour prévenir sa décomposition prématurée. L'effet de la nature exothermique ou endothermique des CBA a également été étudié.

La morphologie, taille, forme et distribution des cellules ont été analysées à l'aide d'un SEM. Les propriétés mécaniques des échantillons ont été analysées en flexion et en traction. Les tests de traction ont été effectués à 2 mm/min selon la norme ISO 527 alors que les tests de flexion répondent à la norme ISO 178. En général, les propriétés des mousses injectées sont supérieures à celles des mousses extrudées. D'abord, la présence de peau non-moussée en injection diminue le retrait des fibres (*fiber pull-out*) en surface. Ensuite, les mousses injectées présentent une meilleure stabilité puisque la teneur en agent gonflant influence peu les densités obtenues alors qu'elles influencent fortement les résultats obtenus en extrusion. De plus, les mousses injectées affichent une masse volumique inférieure à teneur égale en CBA; soit 740 kg/m<sup>3</sup> contre 830 kg/m<sup>3</sup> en extrusion. D'autre part, les CBA exothermiques produisent des cellules plus fines que les CBA endothermiques dans les deux techniques de mise en œuvre. Malgré tout, les propriétés mécaniques des composites moussés varient très peu en fonction du type d'agent gonflant utilisé, en injection comme en extrusion. Enfin, l'ajout de MAPP diminue la taille moyenne des cellules, permet une plus grande diminution de densité ainsi qu'une amélioration générale des propriétés mécaniques.

## 2.6 Récapitulation

Un matériau composite est nécessairement composé de plusieurs phases différentes. Notre application comprend une phase gazeuse encapsulée par trois phases solides; deux résines polyoléfiniques immiscibles ainsi que des fibres de bois. Afin de mieux visualiser ce système, nous avons approfondi individuellement chacun des concepts de base impliqués avant de le reconstituer.

Il faut d'abord examiner la nature des interactions HDPE/PP ainsi que ses répercussions sur les propriétés mécaniques du matériau. Ensuite, il faut s'attarder aux effets des fibres de bois sur le polymère. Le but premier d'incorporer des fibres dans une matrice est de transférer la charge du matériau le plus faible au matériau le plus fort. Il faut cependant réaliser que leur interface ne sera pas parfaite puisque le polymère est hydrophobe et le bois est hydrophile. Le bois améliore non seulement la rigidité du matériau, mais il modifie également les interfaces plastique/plastique. De plus, la théorie au sujet des mousses doit également être étudiée. Il est alors question des phénomènes de nucléation et de croissance cellulaire ainsi que de leur relation avec les propriétés finales de la pièce.

Les phénomènes traités ci-dessus dépendent cependant de la méthode de mise en œuvre utilisée. Bien qu'il faille considérer toutes les sources d'information à notre disposition, la discussion tendra nécessairement vers le moulage par injection. Ceci permettra en effet de mieux représenter les mousses structurales, l'orientation des fibres et la morphologie cellulaire des échantillons produits. Cette méthode indirecte permet de reconstituer la littérature sur le sujet car aucun article portant sur l'injection de mousses composites bois/plastiques d'origine post-consommation n'a été trouvé. En visualisant indépendamment les phénomènes de base, il est possible d'expliquer le comportement des mousses composites structurales produites en moulage par injection.

## Chapitre 3

### Matériel et méthodes expérimentales

Cette section a pour but de définir la démarche expérimentale utilisée afin de mener à bien cette étude. Pour ce faire, il faut d'abord définir les caractéristiques des matériaux utilisés. Ensuite, les étapes de la mise en œuvre sont expliquées afin d'assurer la reproductibilité des résultats. Cette portion a également comme utilité d'élucider certaines techniques inhabituelles qui peuvent nécessiter l'injection de mousses composites. Enfin, il sera également question des méthodes de caractérisation morphologique et mécanique des échantillons.

Cette étude a pour but principal d'étudier l'effet du bois, de l'agent gonflant (ACA) et de la température du moule sur des mousses composites moulées par un procédé d'injection. Pour arriver à cette fin, un plan expérimental complet comportant 36 expériences a été mis au point (Tableau 3.1). Par ailleurs, vingt échantillons ont été produits pour chacune des conditions énumérées.

**Tableau 3.1** Plan expérimental.

Paramètres indépendants	Unités	Niveaux			
Teneur en bois	(% poids)	0	20	30	40
Teneur en agent gonflant	(phr)	0	1	1,5	
Température du moule	(°C)	40	60	80	

D'abord, l'injection d'échantillons non-moussés permet de déterminer les propriétés réelles du polymère recyclé et des composites bois/plastiques. Ces valeurs serviront de base de comparaison afin de déterminer l'effet réel de la fibre de bois. Par la suite, les échantillons moussés seront injectés de manière à assurer que les pièces comportant 1 et 1,5 phr ACA (*parts per hundred resin*) aient la même densité. Ceci permet de comparer la structure et les propriétés mécaniques dans des conditions similaires.

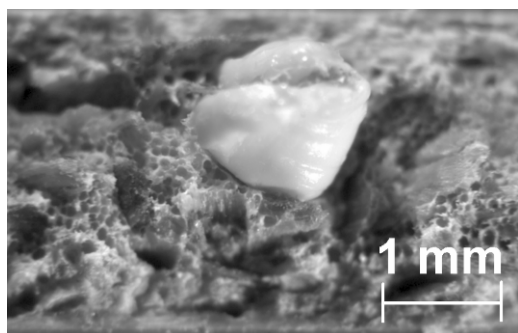
## 3.1 Matières premières

### 3.1.1 Composition de la résine

La résine utilisée dans ce projet est un mélange de polyéthylène et de polypropylène d'origine post-consommation. Bien que certaines inclusions non fondues de polymères aient été observées à l'intérieur des échantillons (Figure 3.01), les analyses en DSC (Annexe A3, Figure A12) montrent que la résine, dont la masse volumique est de  $893 \text{ kg/m}^3$ , est composée en quasi-totalité de HDPE et de PP (Tableau 3.2).

**Tableau 3.2.** Composition de la résine.

Résine	Fraction (%)	Pic de fusion (°C)
Polyéthylène	82	131
Polypropylène	18	163

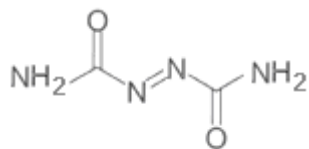


**Figure 3.01.** Inclusions de non-fondu dans le composite.

### 3.1.2 Azodicarbonamide

Le Celogen AZ199 de Uniroyal a été utilisé comme agent gonflant. Son agent actif, l'azodicarbonamide (ACA), est couramment utilisé et permet facilement la mise à l'échelle industrielle (Figure 3.02). Sa température de décomposition, qui varie généralement entre  $190$  et  $220^\circ\text{C}$  (Uniroyal Chemical, 1997), avoisine la température de mise en œuvre de la majorité des thermoplastiques. Toutefois, les analyses en TGA montrent que cet agent gonflant se décompose plutôt vers  $230^\circ\text{C}$  (Annexe A3, Figure A11). La décomposition exothermique du ACA produit  $30$  à  $40 \text{ kcal/gmol}$  et libère de l'azote, de l'oxyde et du

dioxyde de carbone, de l'ammoniaque et des traces d'acide cyanhydrique. Par ailleurs, les résidus solides sont principalement de l'urazole, de la biurée, de la cyamélide et de l'acide cyanurique (Throne, 1996).



**Figure 3.02.** Molécule d'azodicarbonamide ( $C_2H_4N_4O_2$ ).

### 3.1.3 Nature de la fibre de bois

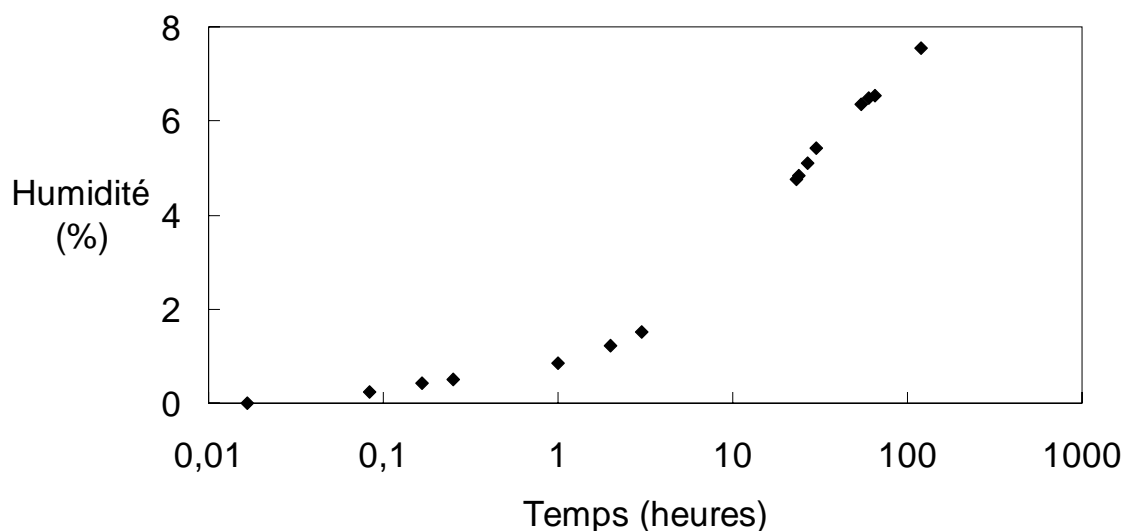
La fibre de bouleau jaune a été utilisée dans ce projet parce qu'elle est abondante, peu dispendieuse et contient relativement peu d'espèces volatiles. Le bouleau est relativement léger sans comporter de résidus résineux. Ces résidus sont difficiles à extraire du bois et leur présence modifie les propriétés des composites. Les fibres, obtenues dans une scierie sous forme de sciure de bois, ont été tamisées afin d'en contrôler la granulométrie. La distribution de taille de particules est illustrée au Tableau 3.3.

**Tableau 3.3.** Granulométrie de la fibre de bois séchée.

Tamis (mesh Tyler)	Taille de particule (micron)	Fraction massique (%)
35 - 28	425 - 600	18
28 - 24	600 - 710	19
24 - 20	710 - 850	25
20 - 16	850 - 1168	38

Guo et al. (2004a) suggèrent de sécher les fibres à une température supérieure à celle de la décomposition de l'agent gonflant afin de prévenir la formation de cellules d'humidité au cours de la mise en œuvre. Cependant, cette technique n'est pas applicable dans notre cas puisque la température de décomposition du ACA est supérieure à celle du bois. Ainsi, les conditions de séchage optimales dans les circonstances sont de 24 heures dans une étuve Fisher, à une température de 103°C. Dans le but de déterminer le taux de reprise d'humidité du bois, la masse d'un échantillon de fibres sèches (dont la masse initiale est de 4 grammes)

a été mesurée à intervalles réguliers. Ces mesures ont été faites à température et pression ambiante (60% d'humidité relative) et sont présentées à la Figure 3.03. La mise en œuvre des composites a toujours lieu le jour même de la fin du séchage; il s'en suit que l'humidité maximale des fibres dans la matrice est d'environ 2%.



**Figure 3.03.** Prise d'humidité de la sciure de bois après séchage.

Enfin, la température de décomposition thermique du bois est rapportée au Tableau 3.4. Ces résultats proviennent d'analyses TGA présentées à l'Annexe A3 (Figures A09 et A10). D'abord, les courbes de décomposition thermique des fibres initiales, séchées et humides, sont similaires. Bien que la décomposition des fibres sèches débute à 172°C, elle ne devient marquée que vers 250°C. Ainsi, les températures atteintes par le composite durant l'injection (courts laps de temps) ne dégradent pas significativement les fibres.

**Tableau 3.4.** Température de décomposition (°C) de la fibre de bois.

Température de décomposition (°C)	Fibre de bois séchée	Fibre de bois humide
Début	172	200
Point d'inflexion	316	316
Fin	380	373

## 3.2 Production d'échantillons

La mise en œuvre de mousses structurales comporte quatre étapes. Il faut d'abord sécher les fibres de bois jusqu'à l'état anhydre afin de minimiser le dégagement d'eau et de produits volatils lors de la plastification. Ensuite, les fibres sont mélangées à la résine dans une extrudeuse munie de deux trémies d'alimentation. Le polymère est incorporé dans la première trémie afin de le fondre seul avant l'introduction du bois dans la seconde trémie. Le composite extrudé est refroidit dans un bain d'eau puis granulé. La troisième étape consiste à effectuer un mélange à sec des granules extrudées et de l'agent gonflant. Le ACA, sous forme de poudre, est ajouté aux granules dans un béccher fermé hermétiquement à l'aide de papier paraffine. L'homogénéisation du mélange est assurée par agitation manuelle. La dernière étape consiste au moulage par injection. Le mélange à sec est introduit dans la trémie d'alimentation, fondu, puis injecté dans la cavité. La pièce refroidie est retirée du moule, détachée des canaux d'alimentation et découpée pour permettre l'analyse des propriétés mécaniques et morphologiques.

### 3.2.1 Extrudeuse

L'injection de composites nécessite un mélange préliminaire afin d'assurer une homogénéisation adéquate des fibres dans la matrice. Les presses à injection standard ne sont pas conçues pour cette tâche et sont incapables de procurer un mélange à la fois dispersif et distributif. L'extrudeuse utilisée à cette fin est une Leistritz corotative intercalée possédant une longueur équivalente ( $L/D$ ) de 40 et un diamètre de vis de 27 mm (Annexe A1, Figure A01). Cette extrudeuse comporte également une alimentation secondaire latérale munie d'une vis sans fin à température ambiante. Les deux trémies d'alimentation sont situées vis-à-vis les zones 1 et 4 respectivement.

La méthode d'alimentation a un impact majeur sur la qualité du composite produit. D'abord, la fibre de bois a été tamisée afin de faciliter son introduction dans le système d'alimentation. Ensuite, le polymère est introduit dans l'alimentation primaire tandis que le bois est alimenté par la trémie secondaire afin d'éviter la détérioration mécanique des fibres. Cette méthode minimise les contraintes mécaniques infligées aux fibres en les

incorporant directement dans le polymère plastifié. Le système d'alimentation massique permet, après calibration, de fournir un débit approprié de plastique et de bois vers les trémies d'alimentation assurant ainsi la production d'un extrudé de composition connue (Tableau 3.5).

**Tableau 3.5.** Conditions d'alimentation de l'extrusion

		0%	20%	30%	40%
		bois	bois	bois	bois
Vitesse de l'extrudeuse	rpm	95	60	60	60
Vitesse de l'alimentation secondaire	rpm	0	30	35	60
Débit de bois	kg/h	0	1,1	1,9	3,0
Débit de polymère	kg/h	6,6	4,5	4,5	4,5
Proportion réelle de bois	%	0	19,6	29,7	40,0

Le profil de température dans la vis doit être adéquatement choisi pour minimiser la dégradation thermique de la fibre de bois tout en assurant une bonne fluidité du composé. Le profil choisi augmente de 150 à 185°C pendant la plastification du polymère puis demeure stable à 185°C jusqu'à la filière (Tableau 3.6).

**Tableau 3.6.** Profil de température dans l'extrudeuse

Zone	-	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Température	°C	150	160	170	180	185	185	185	185	185	185

L'extrudé ainsi produit est granulé (Figure 3.04) et mis en contact avec le ACA par mélange à sec et alimenté à la presse à injection. L'agent gonflant n'est pas mélangé au composite à même l'extrudeuse puisque les températures atteintes sont suffisantes pour entraîner sa décomposition.





**Figure 3.04.** Fibres de bois, polymère recyclé et composite extrudé.

### 3.2.2 Presse à injection

La presse à injection utilisée dans cette étude est une Nissei PS-E de type conventionnel (Annexe A1, Figure A02) possédant les spécifications décrites au Tableau 3.7. La mise en oeuvre d'une mousse composite structurale nécessite une optimisation judicieuse des paramètres de la presse à injection afin d'obtenir une mousse de qualité constante (Tableau 3.8).

**Tableau 3.7.** Spécifications de la presse à injection.

Paramètres	Valeurs
Force de fermeture	551,6 kN
Capacité d'injection	114 cm <sup>3</sup> /injection
Pression d'injection	147,6 MPa
Débit d'injection	109 cm <sup>3</sup> /s
Diamètre de vis	36 mm
Vitesse de rotation de vis	180 rpm

**Tableau 3.8.** Paramètres d'injection utilisés.

Paramètres	Valeurs
Contre-pression	30%
Courses de vis	[31,5 – 37,5 mm]
Pression d'injection	[30 - 90%]
Température du cylindre arrière	149°C
Température du cylindre milieu	171°C
Température du cylindre avant	210°C
Température de la buse	229°C
Temps de refroidissement	15 s
Temps mort entre chaque cycle	0,2 s
Vitesse de rotation de la vis	[30 - 35%]
Vitesse d'injection	[30 - 90%]

Le profil de température dans le cylindre de la presse joue un rôle décisif sur la qualité du produit. Une température adéquate maximise l'activation de l'agent gonflant tout en minimisant la dégradation du bois et de la résine. Pour y arriver, le profil de température doit être suffisamment abrupte pour atteindre les températures requises tout en minimisant le temps d'exposition. En pratique, seules les zones 3 et 4 ont des températures suffisantes pour affecter le fondu; les zones 1 et 2, plus froides, servent en quelque sorte de préchauffage. Comme la décomposition de l'ACA suit les règles traditionnelles de réaction exothermique, plus la température est élevée, plus le temps de décomposition sera court. Ainsi, les températures atteintes lors du passage dans la buse sont suffisantes pour décomposer l'agent gonflant sans significativement dégrader le bois. Enfin, comme la différence de température entre les zones 3 et 4 est importante, le polymère ne pourra pas atteindre une température de 229°C à cause du faible temps de résidence dans la buse.

La croissance des cellules dépend fortement de la chute de pression à l'intérieur du moule. Ainsi, l'utilisation d'une pression d'injection élevée assure la formation d'une structure cellulaire plus fine. Dans ce cas, une valeur de 90% de la valeur maximale de la machine a été préférée. Cependant, une pression d'injection de 50% a été utilisée lors de l'injection

des échantillons non-moussés parce qu'une valeur plus élevée provoque des bavures à l'intérieur du moule. Le système de contrôle de la presse utilisée ne permet pas l'application d'une pression de maintien inférieure à la pression d'injection. De ce fait, il est nécessaire de remplir le moule en entier à une pression d'injection égale à la pression de maintien, ici égale à 50%.

Le fondu doit être maintenu à haute pression à l'intérieur du fourreau afin de minimiser la désolubilisation du gaz avant l'injection. L'ajout d'une buse à valve d'obstruction de type ressort (Annexe A1, Figure A02) a été nécessaire afin de maintenir une contre-pression suffisante lors de la plastification. Cette pièce peut supporter une pression maximale de 30% de la pression maximale d'injection, l'application d'une contre-pression supérieure cause des bavures (*drooling*).

La vitesse de rotation de la vis est également un important facteur à considérer lors de la mise en œuvre. La pression de maintien est appliquée sur le fondu tant que s'effectue l'accumulation. Par contre, dès que la quantité adéquate de polymère a été accumulée et que le système passe en mode refroidissement, cette contre-pression cesse d'être appliquée sur le fondu. Dans ce cas, le gaz produit par la décomposition de l'agent gonflant se désolubilise et provoque un moussage dans la vis. Afin de minimiser ce phénomène, il est nécessaire d'ajuster les paramètres d'injection pour que la pression de maintien soit appliquée le plus longtemps possible à l'intérieur du cylindre. Autrement dit, la vitesse de rotation de la vis doit être ajustée de sorte que le temps d'accumulation soit supérieur au temps de refroidissement. Ceci implique que la fin de la période d'accumulation provoque l'éjection de la pièce refroidie et l'injection de la pièce suivante.

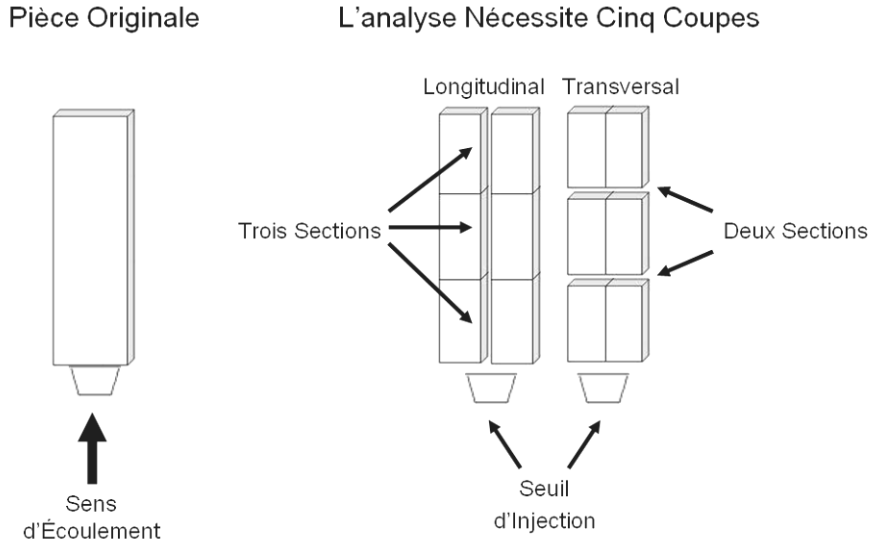
Le taux d'accumulation de matière à l'avant de la vis dépend à la fois de la vitesse de rotation de la vis et de la nature du composite alimenté. Les mélanges contenant une faible teneur en bois sont facilement emportés par la vis de la presse à injection. Par contre, les mélanges contenant une plus forte teneur en bois nécessitent une vitesse de rotation inférieure pour assurer que les fibres prennent place entre les filets de la vis. À défaut de le faire, elles ont plutôt tendance à refouler à l'intérieur de la trémie. Ainsi, les différentes

vitesse de rotation choisies procurent des temps d'accumulation équivalents pour les différents composites.

Afin d'obtenir des mousses comparables, la fraction thermoplastique des composites doit subir une réduction de densité constante et indépendante de la teneur en bois. Il faut donc ajuster la concentration en ACA et la course totale de la vis en fonction de la composition. Autrement dit, un échantillon contenant 40% de bois contiendra moins de ACA et aura une course de vis plus grande qu'un échantillon équivalent contenant 0, 20 ou 30% de bois (Annexe A2, Tableaux A1 à A8).

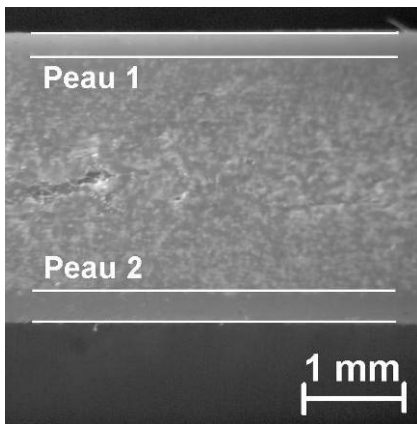
### **3.3 Analyse microscopique**

Les échantillons doivent d'abord être découpés de façon à évaluer les variations dans la morphologie cellulaire et l'épaisseur de peau à l'intérieur de l'échantillon. Les images ont été prises à l'aide d'un stéréomicroscope de marque Olympus SZ-PT couplé à une caméra numérique Spot Insight (Annexe A1, Figure A05). Le logiciel Spot Advanced version 3.2.4 de Diagnostic Instruments a été utilisé pour numériser l'image. Des photos ont été prises transversalement et longitudinalement au sens de l'écoulement afin d'évaluer l'isotropie et l'uniformité des échantillons (Figure 3.05). Les cinq sections analysées permettent notamment de déterminer si les cellules présentent une élongation longitudinale. L'image numérisée est ensuite analysée à l'aide du logiciel de traitement d'images Image Pro Plus version 4.5 de Media Cybernetics.



**Figure 3.05.** Schématisation des découpes des échantillons.

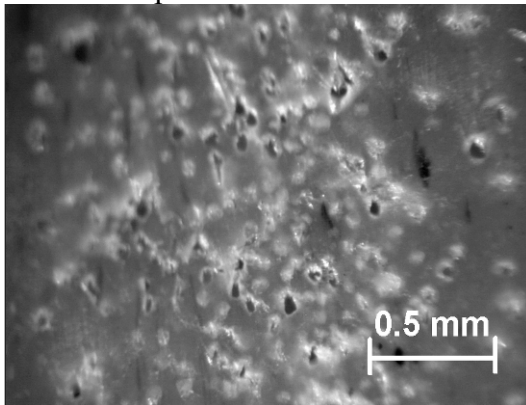
À la base, ces échantillons ont une structure de type sandwich constituée d'un cœur moussé entouré de peaux non-moussées. Les échantillons ne comportent aucune ligne de soudure ou insert pouvant compliquer l'analyse. Ainsi, cette géométrie permet de ne prendre que deux valeurs d'épaisseur de peau pour chaque section analysée (Figure 3.06). La mesure de l'épaisseur de peau nécessite un faible grossissement (20X) afin d'englober une grande portion de la surface à analyser. Il suffit de tracer des lignes parallèles aux frontières de la peau pour permettre au logiciel de déterminer la distance réelle entre ces lignes lorsqu'il est adéquatement calibré.



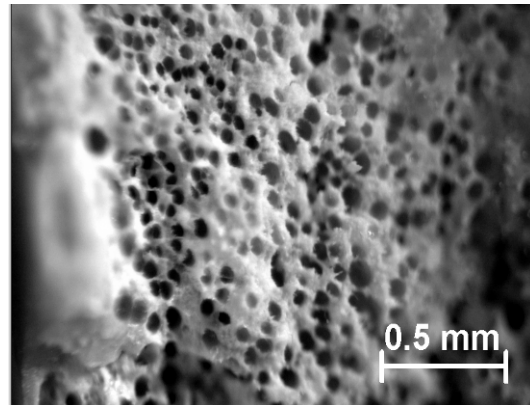
**Figure 3.06.** Schématisation des mesures prises sur les épaisseurs de peau.

L'étude de la morphologie cellulaire nécessite un plus fort grossissement (60X) afin d'obtenir une image suffisamment nette du contour des cellules. Afin de permettre une meilleure analyse, les échantillons ont été minutieusement cassés au lieu d'être coupés avec une lame de rasoir (Figure 3.07). Cette méthode est applicable à température ambiante parce que la fragilité inhérente de la matrice recyclée permet une fracture franche qui expose la structure cellulaire sans la distordre. De plus, la cassure franche des échantillons permet d'obtenir directement le diamètre réel des cellules. Une fracture passera nécessairement par les faiblesses du matériau, pour ainsi dire le diamètre maximal de la cellule, tandis qu'il est impossible de prédire la section qui sera mise en relief par la découpe avec une lame. Dans ce dernier cas, le diamètre observé sous-estime nécessairement le diamètre réel des bulles.

Section coupée

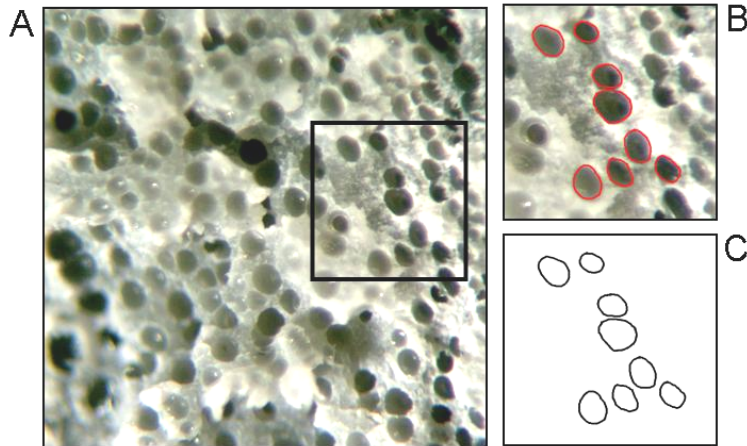


Section cassée



**Figure 3.07.** Méthodes photographiques: coupure vs cassure.

Les images ont ensuite été analysées avec le logiciel Image Pro Plus. Par contre, les cellules demeurent toutefois trop difficiles à distinguer de leur environnement pour que le logiciel puisse les identifier automatiquement. Il faut donc tracer le contour des cellules à la main avant de les analyser (Figure 3.08). Ensuite, il est possible de convertir le tracé en image monochrome suffisamment contrastée pour permettre au logiciel d'analyser les cellules.



**Figure 3.08.** Évaluation des diamètres de cellules.

- A : Sélection de la zone d'analyse  
 B : Traçage manuel des cellules  
 C : Génération du tracé sur fond blanc

Dans un premier temps, la forme des cellules a été vérifiée. La rondeur des cellules est une comparaison adimensionnelle entre le périmètre réel de la cellule et le périmètre si elle avait une section parfaitement circulaire:

$$Rondeur = \frac{(\text{périmètre})^2}{4\pi(\text{aire})} \geq 1 \quad (3.1a)$$

Dans le cas d'un cercle parfait, la rondeur vaut:

$$Rondeur = \frac{(2\pi R)^2}{4\pi(\pi R^2)} = 1 \quad (3.1b)$$

La méthode de moussage utilisée produit des cellules relativement sphériques parce que la croissance cellulaire a lieu à faible taux de cisaillement après l'immobilisation de la matrice. Ainsi, selon l'hypothèse que la section des cellules est toujours circulaire (vérifié par la rondeur), on peut directement convertir la surface calculée ( $A$ ) en diamètre moyen ( $d$ ) par l'équation suivante:

$$d = \sqrt{\frac{4A}{\pi}} \quad (3.2)$$

Ensuite, la densité cellulaire a été calculée à partir des photos utilisées dans l'analyse de la morphologie cellulaire. Deux types de densité ont été calculés. La densité de nucléation ( $N_o$ ) est définie comme le nombre de cellules à l'intérieur d'un volume initial de polymère tandis que la densité de cellule ( $N_F$ ) est définie comme le nombre de cellules à l'intérieur d'un volume de mousse expansé. Le développement complet de ces équations est présenté dans l'Annexe A6.

$$N_o = \frac{\text{Nombre de bulles}}{\text{Volume de polymère}} = \left( \frac{\rho_P}{\rho_F} - 1 \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) \quad (3.3)$$

$$N_F = \frac{\text{Nombre de bulles}}{\text{Volume de mousse}} = \left( 1 - \frac{\rho_F}{\rho_P} \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) \quad (3.4)$$

L'étude des fibres de bois faisant partie des composites nécessite la dissolution du polymère. Selon Brinkmann (2004) et Naval (1998), le toluène chaud est un bon solvant pour le polyéthylène et le polypropylène sans toutefois affecter significativement le bois. La procédure consiste de tremper les échantillons dans le toluène en ébullition (110,6°C) afin de partiellement dissoudre le polymère. Le retrait de la couche de surface permet d'observer les fibres sans les retirer de la matrice. Ceci limite les manipulations et minimise la dégradation mécanique du bois. La dissolution complète du polymère a été envisagée mais cette technique complique la dissociation et l'isolation des fibres.

Enfin, la fraction de vide total ( $\phi_V$ ) représente la proportion du volume total de l'échantillon occupé par le gaz. Elle peut être directement calculée à partir de la densité réduite ( $\rho_r$ ) des échantillons:

$$\phi_V = 1 - \rho_r \quad (3.5)$$



où

$$\rho_r = \frac{\text{Masse de l'échantillon moussé}}{\text{Masse de l'échantillon non - moussé}} \quad (3.6)$$

La fraction de vide peut également être estimée à partir des analyses microscopiques en combinant le volume cellulaire moyen ( $V_C$ ), la densité de bulle ( $N_F$ ) et la fraction de mousse ( $\phi_M$ ) à l'intérieur de l'échantillon.

$$\phi_V = V_C N_F \phi_M \quad (3.7)$$

où

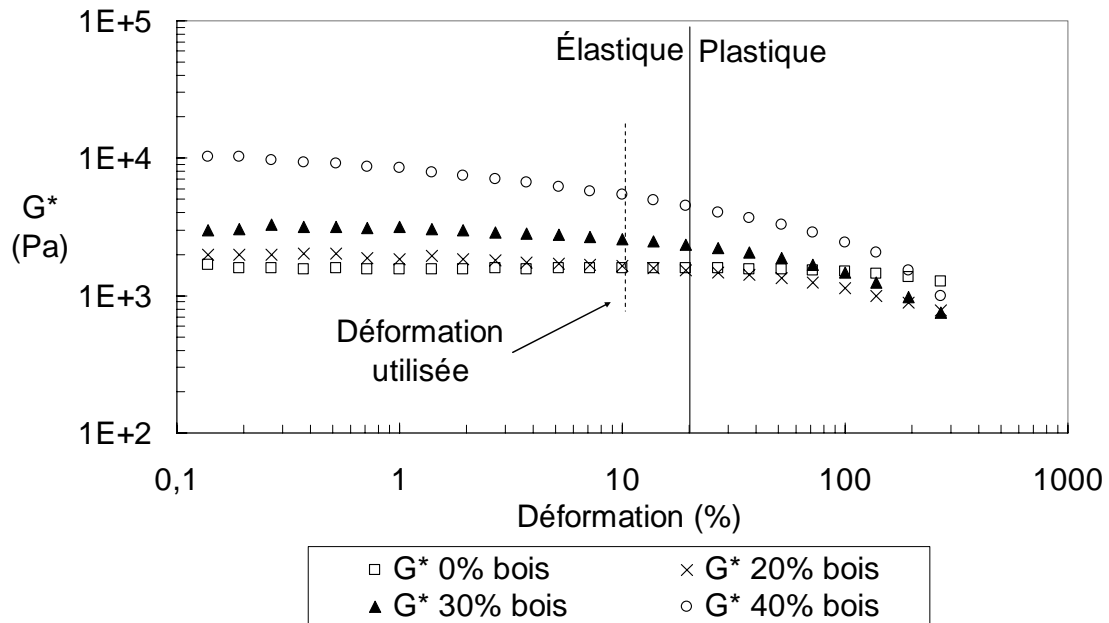
$$V_C = \frac{\pi d^3}{6} \quad (3.8)$$

$$\phi_M = \frac{\text{Volume de mousse}}{\text{Volume de l'échantillon}} \quad (3.9)$$

### 3.4 Tests rhéologiques

Les tests rhéologiques ont été effectués à partir de disques de 25 mm de diamètre préalablement moulés sur une presse hydraulique Carver à 180°C pendant 10 minutes sous une pression de 62,3 kN (Annexe A1, Figure A03). Ces tests ont été réalisés à l'aide d'un rhéomètre de plaques parallèles ARES (Advanced Rheometric Expansion System) de Rheometric Scientific (Annexe A1, Figure A06). Le diamètre des plaques utilisées est de 25 mm et l'entrefer a été maintenu constant à 1,45 mm. Les températures testées sont de 171, 210 et 229°C. Elles correspondent aux zones 2, 3 et 4 du cylindre de la presse à injection et représentent le comportement rhéologique lors de la plastification. La première zone n'a cependant pas été testée en rhéologie parce que le polymère demeure solide à une température de 149°C. Tous les tests ont été effectués sous atmosphère d'azote afin de minimiser la dégradation thermique des échantillons.

Un premier test en déformation dynamique a permis d'évaluer les zones de déformation élastique et plastique (Figure 3.09). Ce test est nommé DSST (*Dynamic Strain Sweep Test*) et a été fait à une fréquence d'oscillation constante de 1 rad/s pour les différents teneurs en bois étudiées.



**Figure 3.09.** Détermination de la zone élastique en balayage en déformation.  $T = 229^\circ\text{C}$

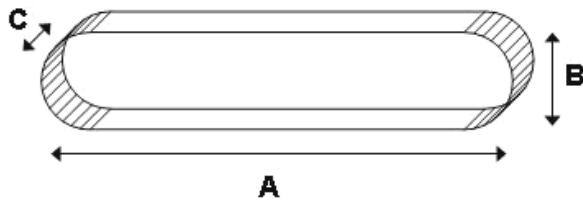
Un composite fondu peut être considéré comme une suspension de fibres de bois à l'intérieur d'un polymère liquide. Il est souvent difficile d'atteindre le plateau newtonien pour des suspensions puisque leur rhéologie dépend de la taille, géométrie, concentration et orientation des fibres dans le polymère. Ainsi, les analyses rhéologiques réalisées ne permettent pas d'identifier de plateau pour les composites contenant 40% de bois. On observe cependant qu'il y a un point d'inflexion commun à toutes les courbes rhéologiques. Ce point correspond à la zone de transition plastique des échantillons. En s'assurant un certain facteur de sécurité, une déformation de 10% permet d'analyser les échantillons sur une plage de fréquences tout en demeurant dans le domaine élastique.

### 3.5 Tests mécaniques

Les propriétés mécaniques des mousses composites ont été quantifiées par quatre types de tests. Une analyse conjointe en flexion, torsion, impact et traction permet d'évaluer la viabilité de cette classe de matériaux. Les échantillons ont d'abord été découpés en compression à l'aide d'un gabarit puis laissés au repos pendant deux semaines pour relaxer les contraintes internes. Ce temps de repos a été jugé tout à fait suffisant puisqu'il dépasse largement le délai de 12 heures accordé par Guo et al. (2004a).

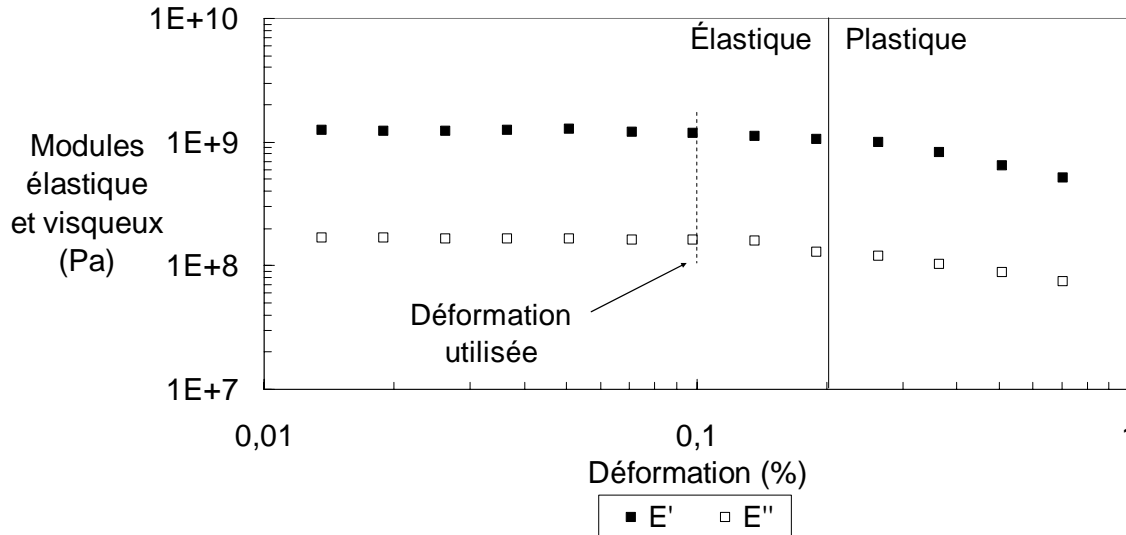
#### 3.5.1 Tests en flexion

Les tests en flexion trois-points (*three-point bending*) ont été faits sur un Tritec 2000 DMA. Les tests ont été effectués sur des échantillons de forme prismatique (Figure 3.10).



**Figure 3.10.** Schéma de l'échantillon de flexion.  
Dimensions (mm): A = 50, B = 4,5 et C = 3,18.

En premier lieu, il est nécessaire d'effectuer un balayage en déformation afin d'évaluer la limite de déformation élastique. Cette manipulation s'apparente aux étapes préliminaires des tests rhéologiques. Il s'agit d'utiliser une déformation se situant dans le plateau avant la diminution drastique du module élastique tout en s'assurant d'un certain facteur de sécurité. Une déformation de 0,1%, soit un déplacement de 0,05 mm, est adéquat pour les tests de balayage en fréquence (Figure 3.11).

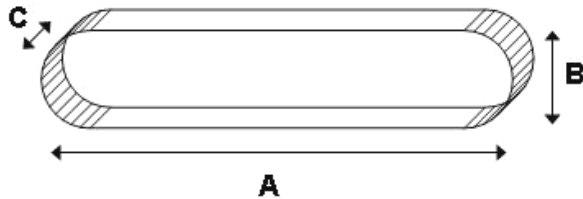


**Figure 3.11.** Détermination de la zone élastique en balayage en déformation.  
0% bois,  $T = 22^\circ\text{C}$

Cet aspect de l'étude permet de quantifier les modules complexe ( $E^*$ ), visqueux ( $E''$ ) et élastique ( $E'$ ) en flexion. Comme les tests en flexion sont non destructifs, seulement trois répétitions ont été effectuées pour chaque échantillon. Les résultats présentés graphiquement illustrent les valeurs moyennes accompagnées de leur écart type respectif.

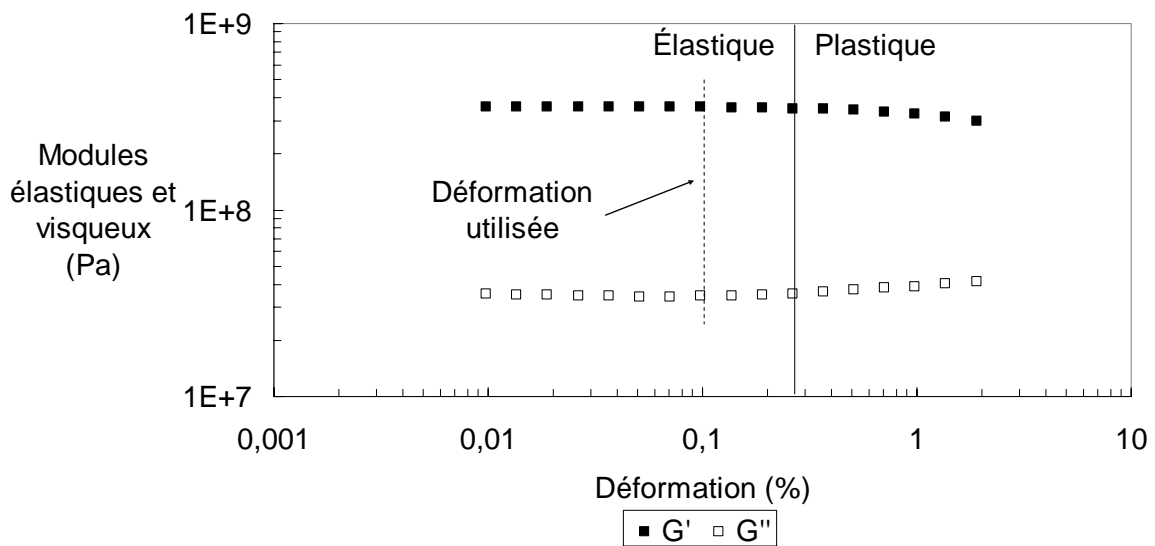
### 3.5.2 Tests en torsion

L'analyse en torsion a été effectuée à l'aide d'un rhéomètre ARES de Rheometric Scientific muni d'un mandrin pour la torsion rectangulaire (Annexe A1, Figure A06). Tous les tests en torsion rectangulaire (Figure 3.12) ont été faits à température ambiante parce que les dimensions du four ne permettaient pas d'accommoder des échantillons de cette taille. D'abord, l'arrimage de l'échantillon est faite en compression. Le mandrin supérieur de l'ARES est descendu jusqu'à l'application d'une force de 200 g sur le spécimen. Les mandrins ont été munis de pinces de serrage à fermeture variable (Annexe A1, Figure A06) afin d'assurer un contact parfait avec les échantillons d'épaisseur non-standard. Une fois fixé, l'échantillon est soumis à 200g en tension. Les tests peuvent débuter à la condition que le montage n'exerce aucune contrainte initiale en torsion sur la pièce.



**Figure 3.12.** Schéma de l'échantillon de torsion.  
Dimensions (mm): A = 75, B = 11,3 et C = 3,18.

Le premier test à exécuter est un balayage en déformation dans le but d'identifier, ici encore, la limite de la région élastique. Ce test est effectué à une fréquence de 1 rad/s. Selon la Figure 3.13, une déformation de 0,1% permet de tester les échantillons en déformation élastique seulement. Cette valeur a été ensuite utilisée dans tous les tests successifs en balayage en fréquence à déformation constante. Ce type d'étude permet de quantifier les modules complexe ( $G^*$ ), visqueux ( $G''$ ) et élastique ( $G'$ ) en torsion. À cette fin, trois répétitions seulement ont été nécessaires pour chaque échantillon puisqu'il s'agit d'un test non destructif. Les résultats présentés graphiquement illustrent les valeurs moyennes accompagnées de leur écart type respectif.

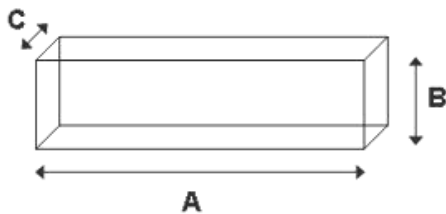


**Figure 3.13.** Détermination de la zone élastique en balayage en déformation.  
0% bois, T = 22°C.

### 3.5.3 Tests en impact

Les tests en impact ont été exécutés selon la méthode Charpy sans entaille à l'aide d'une tour Dynatup Mini-Tower de Instron (Annexe A1, Figure A08). L'acquisition de données a été faite à l'aide du logiciel Impulse Impact Data Acquisition version 1.1. Bien que la norme ASTM D256 fait normalement appel à une entaille, nous avons préféré faire abstraction de la norme sur ce point afin de préserver la peau des échantillons. Cette méthode a également été adoptée par Stark et Berger (1997). En effet, la peau est à l'origine d'une grande partie des propriétés mécaniques de ces matériaux hétérogènes. Dans tous les cas, un marteau de 4,245 kg a fracturé l'échantillon verticalement à une vitesse de 2,7 m/s selon l'axe C de la pièce (Figure 3.14). Les tests d'impact ont été effectués à -10°C afin de permettre la rupture fragile des échantillons. Cette température s'est avérée adéquate puisqu'elle s'approche de la température de transition vitreuse du polypropylène qui est de -18°C (Plymouth, 2005). Enfin, les échantillons sont comparés en fonction de leur résistance à l'impact ( $R$ ); cette valeur est définie comme le rapport entre l'énergie absorbée durant l'impact ( $E$ ) et l'épaisseur ( $C$ ) de la pièce (Équation 3.10). Les résultats présentés graphiquement illustrent les valeurs moyennes accompagnées de leur écart type respectif.

$$R = \frac{E}{C} \quad (3.10)$$

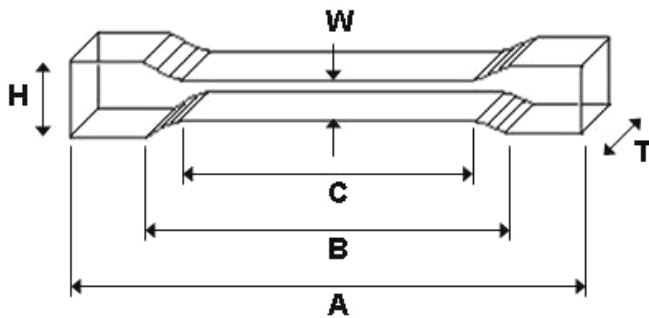


**Figure 3.14.** Schéma de l'échantillon d'impact.  
Dimensions (mm): A = 55, B = 11,3 et C = 3,18.

### 3.5.4 Tests en traction

En complémentarité avec les tests en flexion et torsion, les tests en traction permettent d'étudier les mousses composites à de hautes contraintes en déformation; bien au-delà du

seuil d'élasticité. Le gabarit utilisé cette fois a une forme d'os de chien (Figure 3.15). Les tests ont été effectués sur une machine à traction de marque Instron 5565 possédant une cellule de 500 Newtons. En se basant sur les travaux de Bledzki et Faruk (2004), la vitesse de déformation utilisée est de 2 mm/min; ce qui est une faible vitesse pour des polyoléfines. Généralement, le comportement des mélanges de polymères immiscibles est beaucoup plus fragile que celui du polyéthylène seul, ceci est également vrai pour les mousses et les composites.



**Figure 3.15.** Schéma du moule de type os de chien.

Dimensions (mm): A = 45, B = 33, C = 20, T = 3,18, W = 2,83 et H = 7,54.

Les tests en traction ont pour but de quantifier le module élastique ( $E$ ), la contrainte maximale ( $\sigma_M$ ) ainsi que la contrainte à la rupture ( $\sigma_R$ ), de même que la déformation à laquelle se produisent ces contraintes ( $\varepsilon_M$  et  $\varepsilon_R$  respectivement). Comme les tests sont destructifs, cinq répétitions par échantillon ont été jugées suffisantes. Les résultats présentés graphiquement illustrent les valeurs moyennes accompagnées de leur écart type respectif.

## 3.6 Analyses thermiques

### 3.6.1 Analyses DSC

L'analyse calorimétrique différentielle (DSC: *differential scanning calorimetry*) permet de caractériser les changements qui ont lieu dans une substance lorsqu'on augmente sa température. Dans le cas présent, elle permet de déterminer la température de fusion des polymères semi-cristallins en plus de la composition de la résine utilisée. Cette dernière

information est importante puisque la nature d'un mélange de polymères recyclés ne peut être connu a priori. L'analyse DSC mesure les températures de transition et les flux thermiques à partir du principe de Boersma. À la base, une analyse DSC permet de mesurer l'énergie absorbée, ou dégagée, par un échantillon durant un balayage en température. Pour cela, on utilise un montage comportant deux cellules de mesure. Dans la première cellule on place l'échantillon à analyser tandis que la seconde, restée vide, sert de référence. Les deux cellules sont ensuite chauffées à un rythme tel que la différence entre les deux cellules est nulle. Les mesures DSC sont effectuées en comparant l'énergie requise pour chauffer chacune d'entre elles. L'appareil utilisé dans le cas présent est DSC822° de Mettler-Toledo. Les échantillons ont été chauffés à un taux de 10°C/min, entre 25 et 240°C, sous atmosphère d'azote.

### **3.6.2 Analyse TGA**

L'analyse thermogravimétrie (TGA: *thermogravimetric analysis*) mesure le changement de masse en fonction de la température ou du temps. Selon Industrial Research (2004), ce type d'analyse peut être utilisé pour déterminer la température de décomposition d'une substance, la quantité d'eau liée dans un échantillon ou la fraction organique dans un matériau autrement inorganique. L'appareil utilisé dans le cas présent, le TGA/SDTA851° de Mettler-Toledo, a permis de déterminer la température de décomposition des fibres de bois. Le balayage en température a été effectué à un taux de 5°C/min, entre 25 et 500°C, sous atmosphère d'air.



## **Chapitre 4**

### **Résultats**

La caractérisation des mousses composites peut être divisée en deux volets. D'abord, l'étude microscopique comprend l'analyse de la morphologie cellulaire, de la densité de nucléation, de l'épaisseur de peau et des dimensions des fibres de bois. Les propriétés mécaniques sont étudiées dans le second volet. Il s'agit ici de caractériser les échantillons selon leurs propriétés en flexion, torsion, traction et impact. Dans les pages qui suivent, tous les aspects abordés seront analysés de façon à isoler l'effet de la mousse et des fibres sur ces matériaux.

L'analyse quantitative qui suit sera basée sur les valeurs moyennes ainsi que l'écart type associé plutôt que sur une analyse de variance complète. Le plan expérimental choisi initialement ne se prête pas facilement à une analyse ANOVA. Ce plan comporte trois niveaux de température de moule (40, 60 et 80°C), trois niveaux de concentration en agent gonflant (0, 1 et 1,5 phr ACA) ainsi que quatre niveaux de bois (0, 20, 30 et 40 wt.%). Bien que le plan soit adéquat pour l'analyse des tests mécaniques, il ne se prête pas à l'analyse morphologique des mousses parce qu'il ne comporte que deux niveaux de concentration en agent gonflant (1 et 1,5 phr ACA). En effet, les échantillons produits avec 0 phr ne sont pas des mousses. Par ailleurs, une analyse ANOVA nécessite que chaque paramètre varie selon au moins trois niveaux pour être applicable. Ainsi, aucune analyse de variance n'a été réalisée dans les circonstances.

#### **4.1 Masse volumique**

En premier lieu, on présente au Tableau 4.1 les masses volumiques de chacun des échantillons. Chaque valeur représente une moyenne calculée sur une base de vingt échantillons et un écart-type est utilisé pour représenter la dispersion des valeurs.

**Tableau 4.1** Masse volumique des échantillons

Teneur en bois (%)	Masse volumique non-moussé (kg/m <sup>3</sup> )	Masse volumique moussé (kg/m <sup>3</sup> )	Densité réduite des mousses (-)	Densité apparente du bois (kg/m <sup>3</sup> )
0	893 ± 9	772 ± 9	0,864 ± 0,006	-
20	943 ± 12	825 ± 11	0,875 ± 0,006	1202 ± 28
30	967 ± 8	887 ± 8	0,917 ± 0,003	1260 ± 10
40	1052 ± 11	983 ± 11	0,934 ± 0,003	1440 ± 12

On observe d'abord que la masse volumique des composites augmente avec la teneur en bois pour les échantillons moussés et non-moussés. Stark et Berger (1997) ont également obtenu ce type de corrélation avec des WPC non-moussés. Cependant, la masse volumique initiale du bouleau est de 649 kg/m<sup>3</sup> seulement (Jessome, 1977). Cette valeur est donc inférieure à celle du polymère et leur présence ne devrait pas accroître la densité finale du composite. On en conclut que les grandes pressions présentes lors de la mise en œuvre compriment la structure cellulaire du bois ce qui provoque un effet de densification de la fibre dans son ensemble. Afin de vérifier ceci, la masse volumique apparente des fibres à l'intérieur de la matrice non-moussée a été calculée selon la loi des mélanges (Équation 4.1). Cette relation permet d'estimer la masse volumique du bois ( $\rho_B$ ) à partir de la masse et du volume de l'échantillon ( $M_T$  et  $V_T$ ) et de la masse et masse volumique du polymère ( $M_P$  et  $\rho_P$ ) contenu dans l'échantillon. Nos résultats montrent que la densité apparente du bois à l'intérieur des composites atteint 1440 kg/m<sup>3</sup> lorsque 40 wt.% de bois est présent dans la matrice. Par ailleurs, cette valeur avoisine celle de la structure cellulaire du bois évaluée à 1450 kg/m<sup>3</sup> (Jessome, 1977). Ceci implique que la structure du bois s'effondre totalement sous la pression d'injection utilisée.

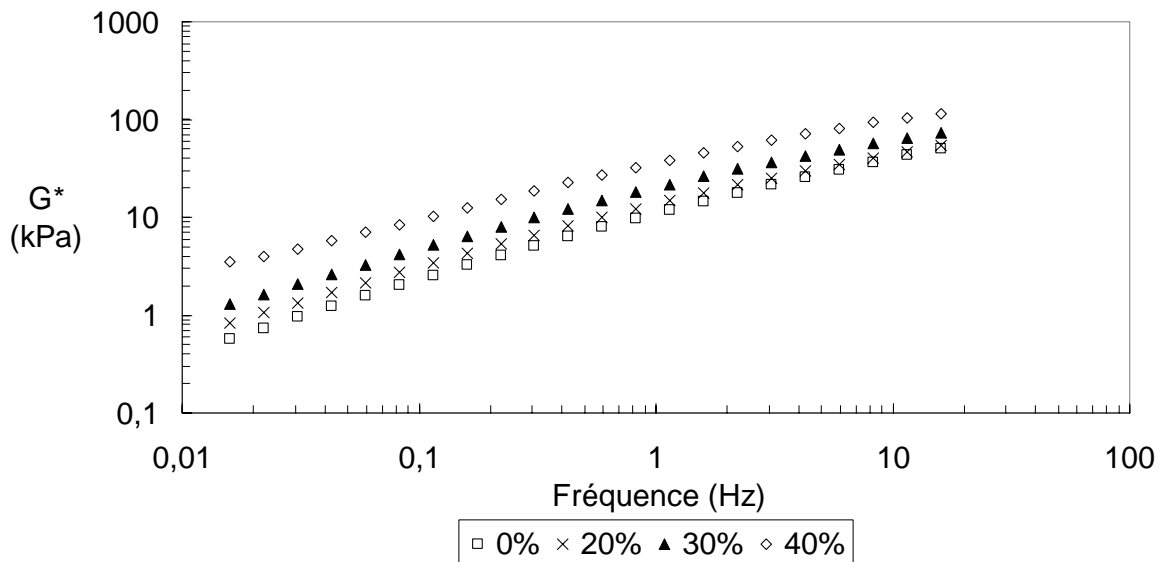
$$\rho_B = \frac{\text{Masse de bois}}{\text{Volume de bois}} = \frac{M_T - M_P}{V_T - V_P} = \frac{M_T - M_P}{V_T - \frac{M_P}{\rho_P}} \quad (4.1)$$

Enfin, la densité réduite représente la densité de la mousse par rapport à celle de l'échantillon non-moussé de même teneur en bois. Son augmentation signifie que la fraction de vide des échantillons varie inversement à la teneur en bois. Selon Li et Matuana

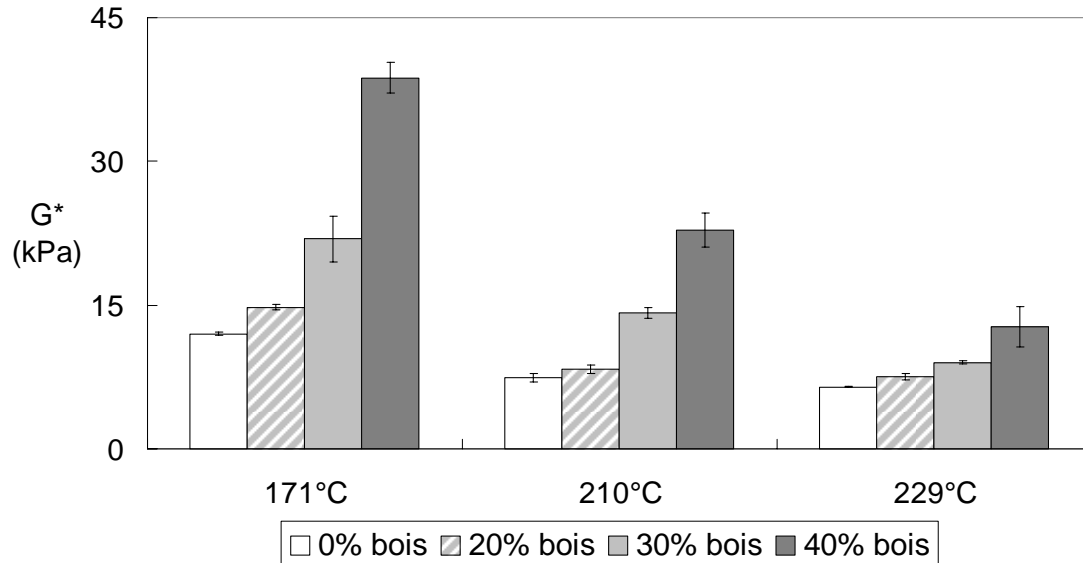
(2003), les composites ont une capacité d'absorption de gaz inférieure à celle du polymère seul, ce qui limite nécessairement la réduction de densité possible. Ceci est relié au fait que le gaz ne peut se solubiliser dans la fibre et seulement dans la matrice polymère.

## 4.2 Tests rhéologiques

Un premier test en déformation dynamique a permis d'évaluer les zones de déformation élastique et plastique des WPC produits. On a conclu qu'une déformation de 10% (Figure 3.09) est adéquate pour effectuer les tests rhéologiques de balayage en fréquence. L'analyse en fréquence a ensuite été réalisée en fonction des diverses températures de moule et teneurs en fibres de bois. On voit dans la Figure 4.01 qu'il existe une relation entre les courbes sur la plage étudiée, c'est-à-dire qu'une courbe peut être obtenue par une translation verticale d'une autre. L'analyse des résultats peut donc être basée sur une seule fréquence, au lieu de la courbe entière, afin d'en simplifier la représentation. À cette fin, une fréquence de 1 Hz a été choisie (Figure 4.02).



**Figure 4.01.** Module complexe fonction de la teneur en bois. T = 171°C



**Figure 4.02.** Module complexe fonction de la teneur en bois à 1 Hz.

Comme prévu, les Figures 4.01-02 montrent que le module complexe des échantillons diminue avec la température mais augmente avec la concentration de bois en accord avec les observations de Li et Wolcott (2004). Les résultats rhéologiques supplémentaires peuvent être consultés dans l'Annexe A4. De plus, la Figure 4.02 montre que le module des composites diminue avec la température et qu'il semble varier exponentiellement avec la teneur en bois. Selon Zhang (2004), le module demeure relativement constant à des concentrations inférieures à 20% massique. Dans notre cas, un maximum de 18,9% de variation est obtenu entre le module des échantillons contenant 0 et 20% de fibre.

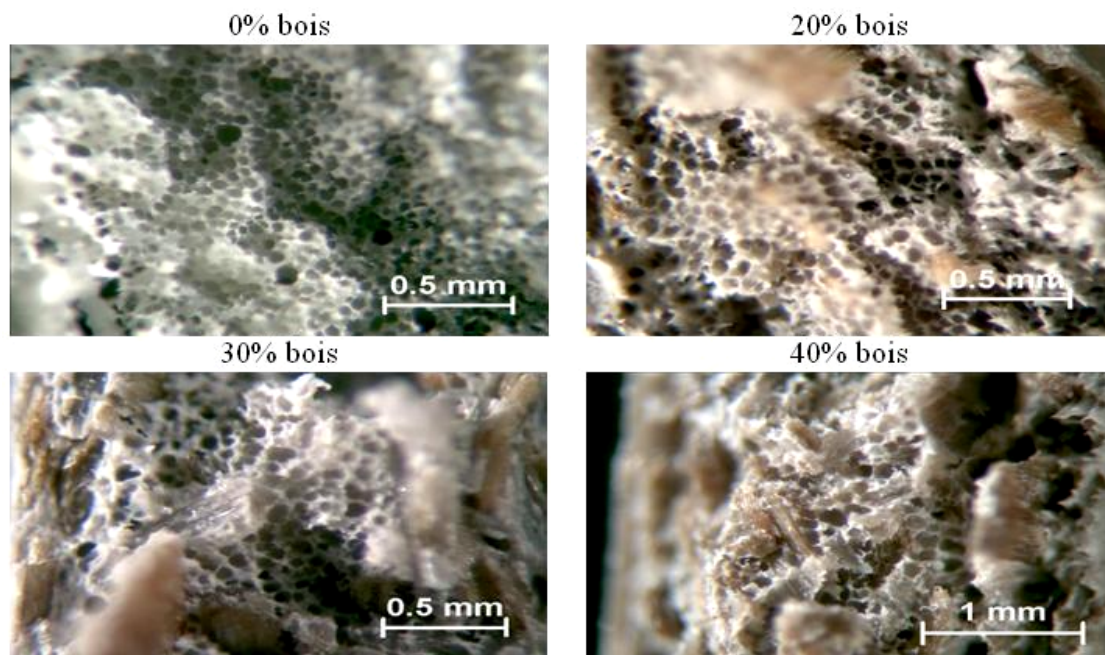
### 4.3 Analyse morphologique

L'étude du comportement des mousses composites passe par l'analyse morphologique des échantillons; c'est-à-dire la structure cellulaire, l'épaisseur de peau ainsi que la dimension des fibres de bois. Dans un premier temps, l'étude microscopique des cellules nécessite la photographie d'un grand nombre d'échantillons afin d'obtenir des populations de cellules suffisantes pour permettre une analyse statistique fiable. Chaque valeur rapportée est donc basée sur un minimum de 100 cellules. Pour y arriver, un grossissement de 60X a été utilisé pour étudier les échantillons contenant 0, 20 et 30% de bois tandis qu'un grossissement de

40X a été préféré pour les échantillons contenant 40% de bois. Les grandes concentrations de fibres compliquent l'analyse en diminuant le nombre de cellules par unité de volume tout en augmentant le caractère irrégulier des cassures. Ainsi, un grossissement de 40X a été préféré afin de faciliter l'analyse des échantillons à hautes teneurs en bois. Enfin, l'étude des épaisseurs de peau nécessite une vue d'ensemble de l'échantillon moussé. Dans ce cas, un grossissement de 20X a été jugé optimal.

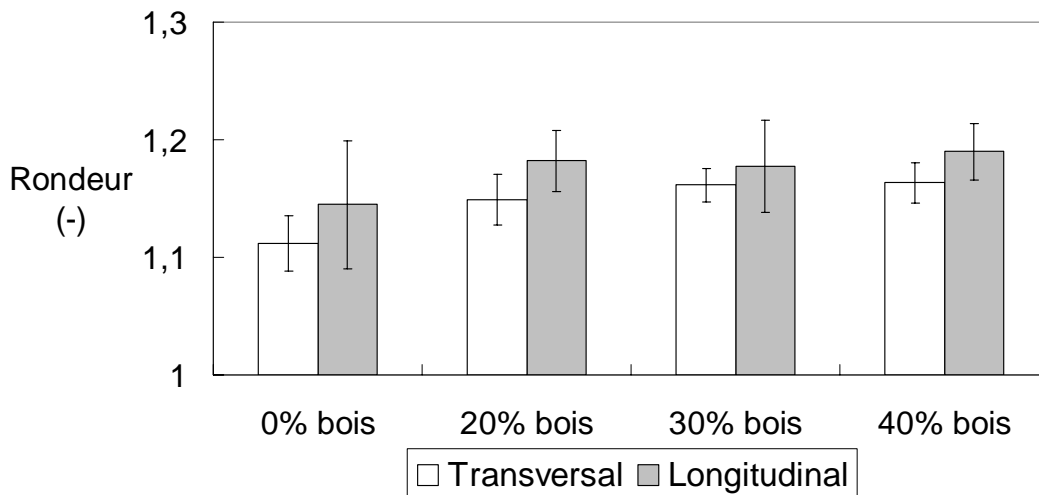
### 4.3.1 Taille de cellule

La morphologie cellulaire des 24 types de mousses explicitées dans le plan expérimental a été étudiée. De plus, chacune d'entre elles a été analysée selon cinq sections (voir Section 3.3) afin d'évaluer l'isotropie et l'uniformité des échantillons. Les micrographies présentées à la Figure 4.03 illustrent des morphologies cellulaires pour les quatre concentrations de bois. On y voit d'abord que l'augmentation du taux de bois restreint le développement des zones moussées en limitant à la fois la diffusion de gaz dans la matrice et la croissance cellulaire.



**Figure 4.03.** Photos de cellules produites avec 1 phr ACA.

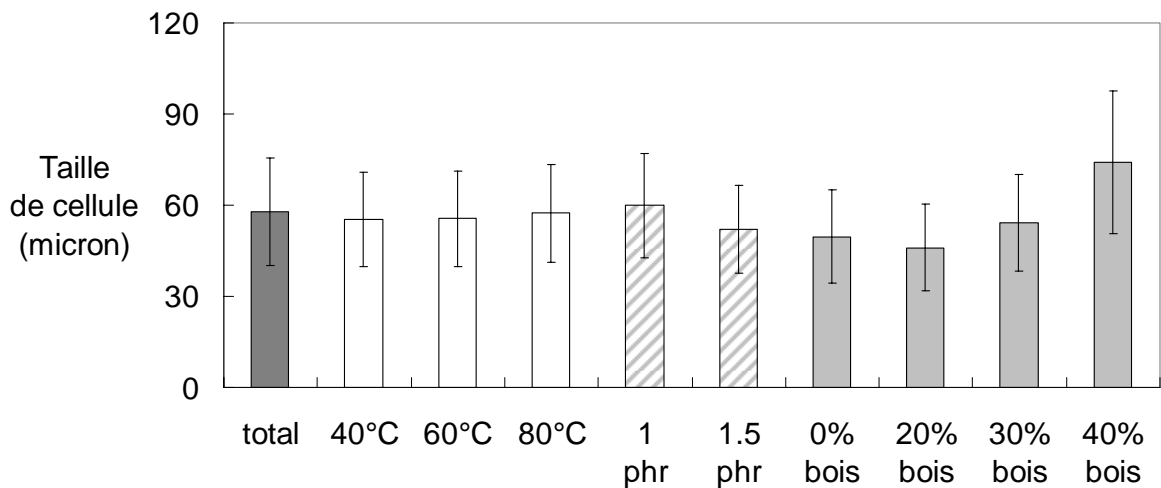
Le calcul du diamètre d'une cellule est effectué à partir de l'aire de la section de cette cellule (Équation 3.2). Ce calcul repose donc sur la prémisse qu'elles sont sphériques (i.e. de section circulaire); c'est-à-dire que la croissance a lieu dans un fluide au repos ou en présence de faibles contraintes de cisaillement. Ainsi, selon l'Équation 3.1b, une cellule parfaitement sphérique doit avoir une section de rondeur unitaire. La rondeur des cellules a été mesurée sur des plans parallèles et perpendiculaires à la direction d'écoulement.



**Figure 4.04.** Rondeur des cellules.

La Figure 4.04 illustre la rondeur des cellules selon les plans transversal et longitudinal. L'indice de rondeur compare le périmètre réel de la cellule à celui d'un cercle parfait de surface égale. Ainsi, une cellule parfaitement sphérique aurait une rondeur unitaire selon les deux plans. Les analyses de morphologie montrent que les sections des cellules sont relativement circulaires, mais subissent une légère élongation selon le plan longitudinal tel que décrit par Villamizar et Han (1978). En effet, les indices moyens de rondeur cellulaire sont de  $1,15 \pm 0,02$  et  $1,17 \pm 0,04$  respectivement et avoisinent celle d'un pentagone régulier (Annexe A7). On peut donc en conclure que la croissance cellulaire débute peu de temps avant l'immobilisation complète de la matrice malgré les grandes vitesses d'injection utilisées. Cette élongation n'est cependant pas significative et ne permet pas de rejeter l'hypothèse initiale à propos de la sphéricité des cellules. Par ailleurs, la forme des cellules demeure constante quelle que soit leur position dans l'échantillon, sans être influencée par la teneur en ACA, la température de moule ou la position dans l'échantillon.

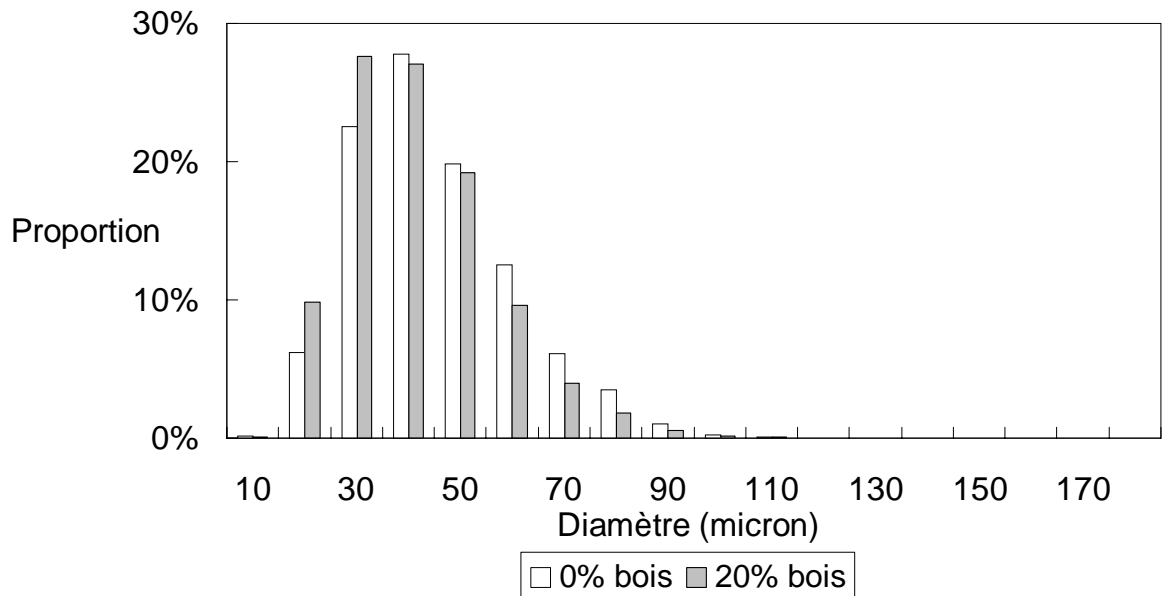
Suite à cette conclusion, le diamètre des cellules peut directement être calculé à partir des données expérimentales. La taille moyenne des cellules est de 58 microns. L'Annexe A5 présente la taille des cellules de chacune des cinq coupes étudiées, et ce, pour chaque type d'échantillon produit. On y voit que la taille moyenne des cellules est constante à l'intérieur d'un même échantillon. L'utilisation de grandes vitesses d'injection uniformise les conditions de croissance cellulaire à l'intérieur de l'échantillon (Pfannschmidt et Michaeli, 1999). De plus, la répartition uniforme des cellules signifie que le mélange à sec est suffisant. Le diamètre cellulaire moyen pour chaque condition expérimentale a donc été compilé et est résumé à la Figure 4.05.



**Figure 4.05.** Diamètre moyen de cellules.

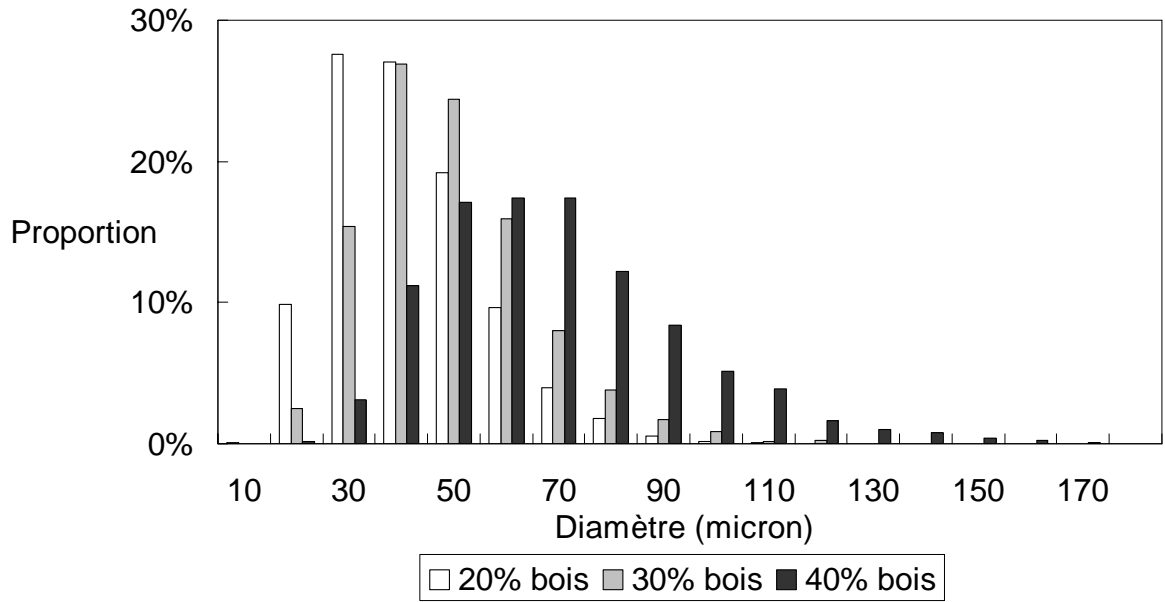
La Figure 4.05 compare les diamètres cellulaires en fonction de la température du moule, de la concentration de l'agent gonflant et des fibres de bois. D'abord, la taille de cellule ne semble aucunement affectée par la température du moule. Ceci est contraire aux attentes puisque l'augmentation de cette température diminue la viscosité de la matrice tout en augmentant le taux de cristallinité final de l'échantillon. De plus, une température de moule plus élevée implique un refroidissement plus lent de l'échantillon dans le moule, laissant plus de temps aux cellules pour croître avant la solidification du polymère. On en conclut que la plage de température étudiée est trop étroite pour adéquatement observer ces effets dans le couple HDPE/PP. En effet, l'immiscibilité des polymères empêche l'atteinte de hauts taux de cristallisation lorsque le taux de refroidissement est faible. Par contre,

l'incorporation de fibres de bois augmente le diamètre cellulaire moyen. Des fibres auraient donc un effet contraire à celui d'une farine. Li et Matuana (2003) affirment que la taille moyenne des cellules des composites est inférieure à celle d'un polymère seul parce que l'ajout de la farine de bois augmente la rigidité de la matrice et réduit la croissance cellulaire. De plus, l'interface bois/polymère peut servir à favoriser la nucléation hétérogène des cellules. À cet effet, Doroudiani et al. (1997) ont noté la présence de grosses cellules aux interfaces bois/plastique et suggèrent que la faiblesse des interactions facilite la diffusion du gaz vers l'interface. Donc l'accroissement de diamètre cellulaire moyen qui accompagne l'augmentation de la teneur en bois serait provoqué par la faible interface bois/plastiques qui facilite la croissance cellulaire au détriment de la nucléation. Les Figures 4.06-07 illustrent la distribution de taille de cellules en fonction de la teneur en bois.



**Figure 4.06.** Distribution du diamètre moyen de cellule.

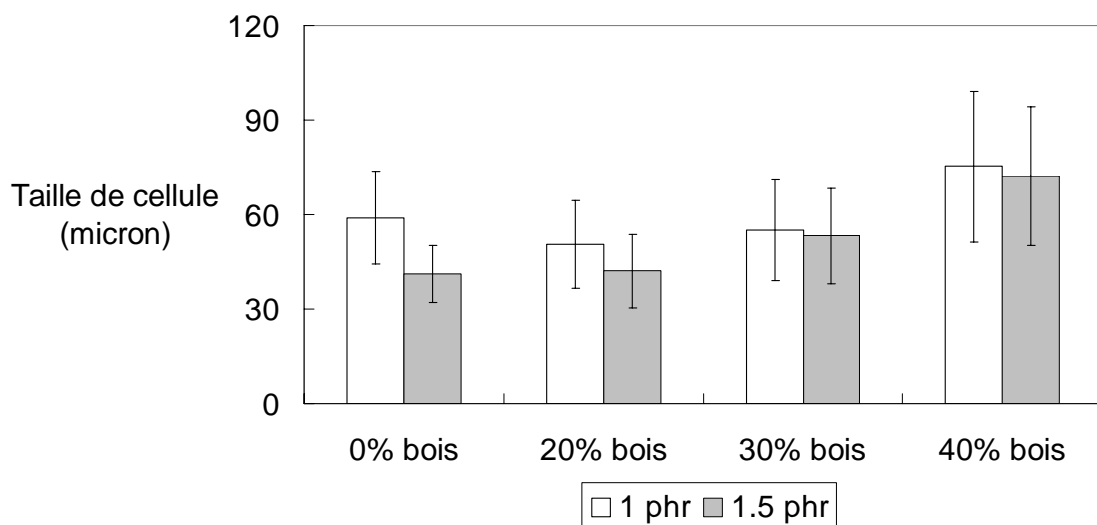




**Figure 4.07.** Distribution du diamètre moyen de cellule.

Sur les Figures 4.06-07, on voit clairement que les distributions de taille de cellule des échantillons contenant 0% et 20% bois sont presque identiques:  $50 \pm 15$  et  $46 \pm 14$   $\mu\text{m}$  respectivement. Ceci implique que l'incorporation de faibles quantités de bois ne modifie pas significativement la structure cellulaire. Cependant, l'incorporation d'une plus grande quantité de bois augmente le diamètre cellulaire moyen tout en élargissant la distribution. En effet, les échantillons contenant 40% de bois sont caractérisés par de nombreuses cellules disproportionnées. Tel que mentionné, les cellules de diamètres dépassant les 170 microns ne seraient pas dues à la coalescence cellulaire mais à la faible cohésion interfaciale. Ces résultats concordent avec les analyses rhéologiques (Figure 4.02). À l'aide d'un pyromètre, nous avons observé que la température du fondu est de  $230^{\circ}\text{C}$  à la sortie de la buse tandis que la température de surface de la pièce avoisine  $130^{\circ}\text{C}$  après 5 secondes de refroidissement dans un moule à  $60^{\circ}\text{C}$ . Ceci porte à croire que les propriétés du fondu au moment de la croissance cellulaire avoisinent celles obtenues lors des tests rhéologiques à  $210^{\circ}\text{C}$ . À cette température, la viscosité similaire des échantillons contenant 0 et 20% bois serait à l'origine de leur morphologie similaire. Par ailleurs, la grande variation de viscosité observée lors des tests rhéologiques combinée avec la faible interface bois/plastiques, serait à l'origine de l'augmentation de la taille des cellules à plus hauts taux de bois.

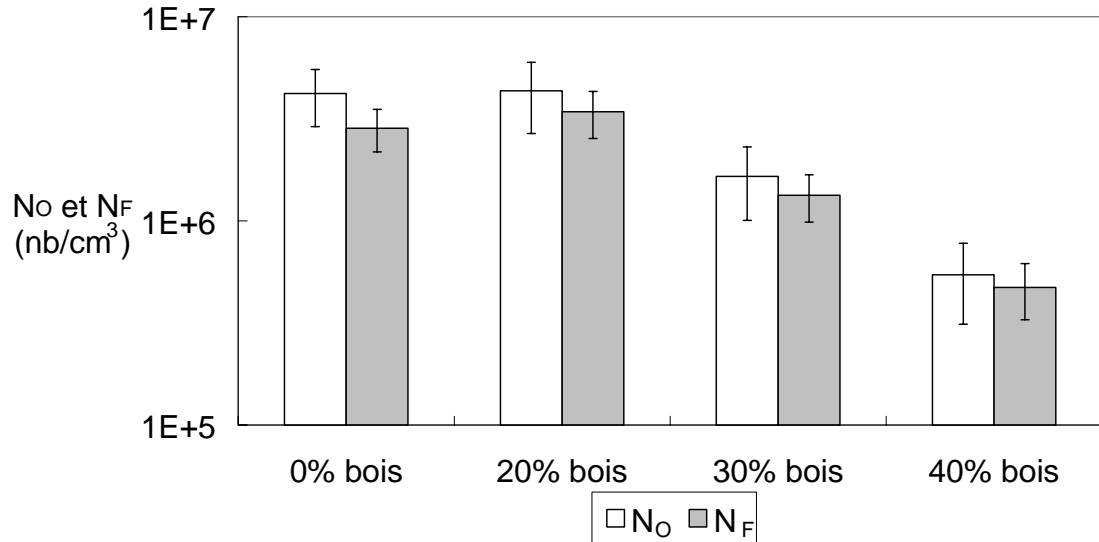
Enfin, la teneur en agent gonflant diminue légèrement la taille des cellules (Figure 4.08). À densité égale, les échantillons de polymère moussés avec 1,5 phr de ACA ont un diamètre significativement inférieur à ceux moussés avec 1 phr. Il est possible que les résidus solides résultants de la décomposition de l'agent gonflant agissent comme agent de nucléation. Cependant, cette différence de diamètre cellulaire s'estompe avec l'augmentation de la teneur en bois. On en conclut que les interfaces créées par l'ajout des fibres dans la matrice agissent également comme agents de nucléation ce qui amoindrit l'effet des résidus de ACA.



**Figure 4.08.** Diamètre moyen de cellules en fonction de la teneur en agent gonflant.

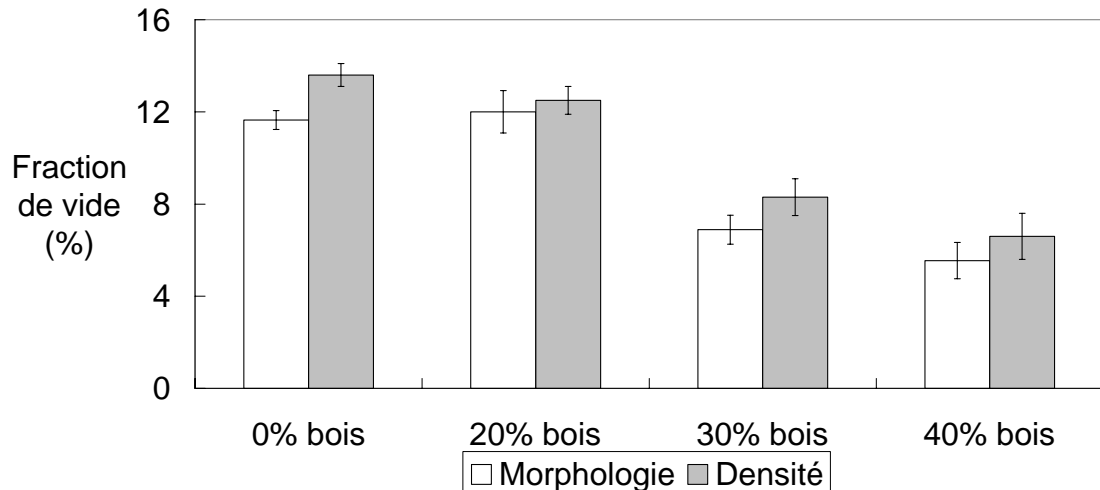
### 4.3.2 Densité cellulaire et fraction de vide

La valeur de la densité cellulaire dépend du volume de référence sur laquelle elle est basée. La densité de nucléation ( $N_0$ ) est définie comme étant le nombre de cellules par unité de volume initial de polymère; tandis que la densité de cellule ( $N_F$ ) est définie comme le nombre de cellules par unité de volume de mousse expansée. Ainsi,  $N_F$  est nécessairement inférieure à  $N_0$  (Figure 4.09).



**Figure 4.09.** Densité de nucléation et densité de cellule.

Selon la Figure 4.09, on voit que la densité cellulaire varie entre  $5 \times 10^5$  et  $3 \times 10^6$  cellules/cm<sup>3</sup> selon la teneur en bois. Pour un système fermé pour lequel la quantité de gaz est constante, la densité cellulaire varie inversement au cube du diamètre des cellules. En combinant ces paramètres, on peut évaluer la proportion de vide dans les échantillons. Telle que définie, la fraction de vide peut être estimée à partir du volume cellulaire moyen, de la densité de cellule et de la fraction de mousse à l'intérieur de l'échantillon (Équation 3.7). Toutefois, la fraction de vide peut aussi être calculée directement à partir de la densité réduite des échantillons (Équation 3.5). Cette seconde méthode est cependant plus simple et n'est pas basée sur des hypothèses à propos de la morphologie cellulaire. La Figure 4.10 compare ces deux méthodes.

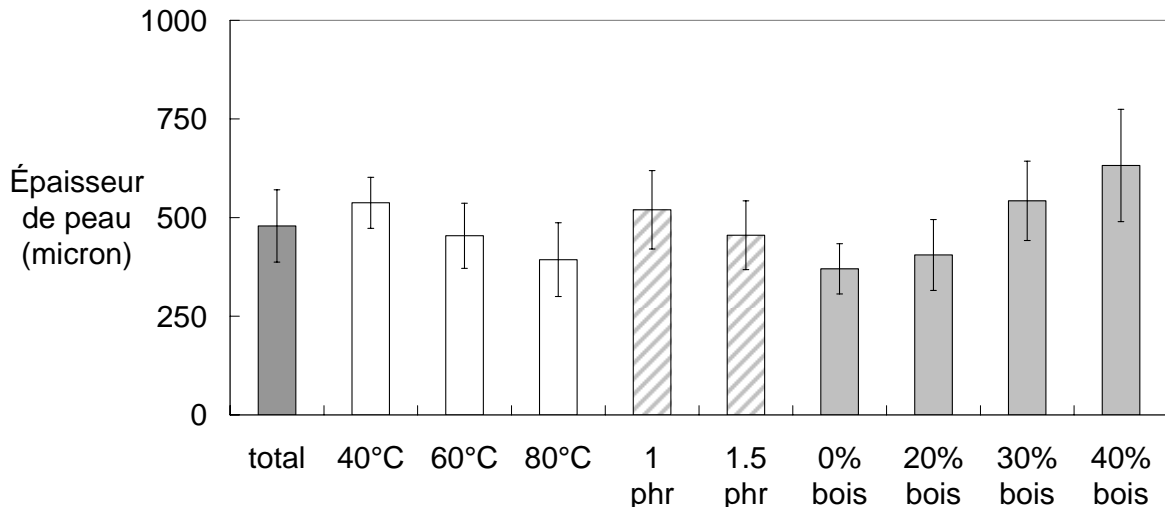


**Figure 4.10.** Fraction de vide des mousses.

La fraction de vide a été calculée à partir de la morphologie cellulaire et de la densité des échantillons. Bien que ces deux méthodes arrivent sensiblement aux mêmes résultats, la première fournit toujours une valeur inférieure à la seconde. Tel que discuté, la méthode basée sur la densité des échantillons est directe et devrait offrir une meilleure estimation de la fraction de vide. On en conclut que la méthode fondée sur les analyses morphologiques sous-estime légèrement la fraction réelle de vide (13% en moyenne). Ceci implique qu'un, ou plusieurs, des paramètres microscopiques étudiés sont légèrement biaisés. L'épaisseur de peau, présentée à la Section 4.3.3, pourrait être surestimée tandis que la densité de nucléation et le diamètre cellulaire moyen pourraient être sous-estimés. On considère cependant que l'analyse microscopique représente adéquatement les échantillons produits compte tenu des hypothèses encourues.

### 4.3.3 Épaisseur de peau

L'épaisseur de peau joue un rôle important sur les propriétés mécaniques des mousses structurales. En effet, la rigidité de la peau est significativement supérieure à celle du cœur et contribue fortement aux propriétés du matériau. L'épaisseur de peau moyenne est présentée à la Figure 4.11.

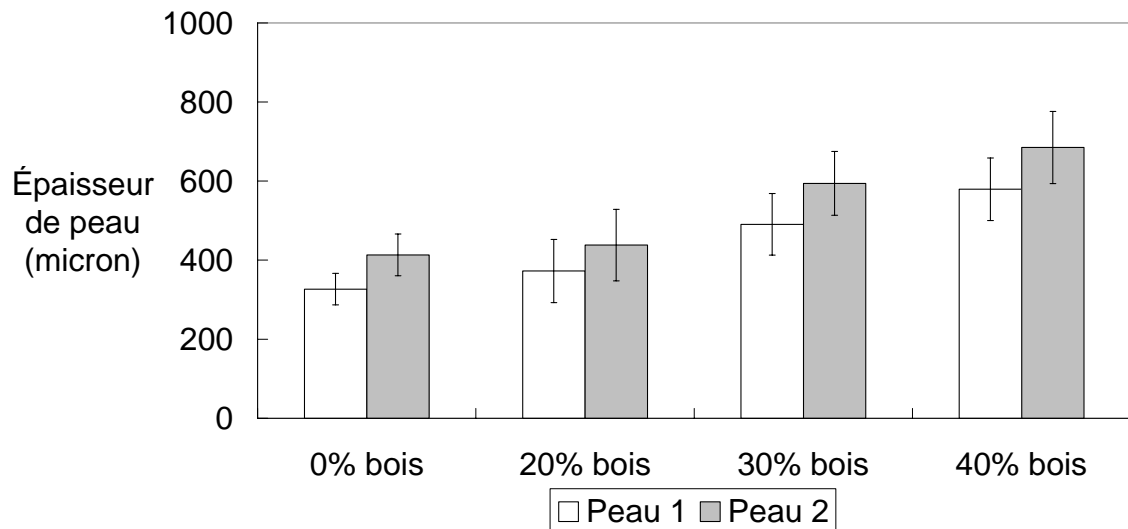


**Figure 4.11.** Épaisseurs moyennes de peau.

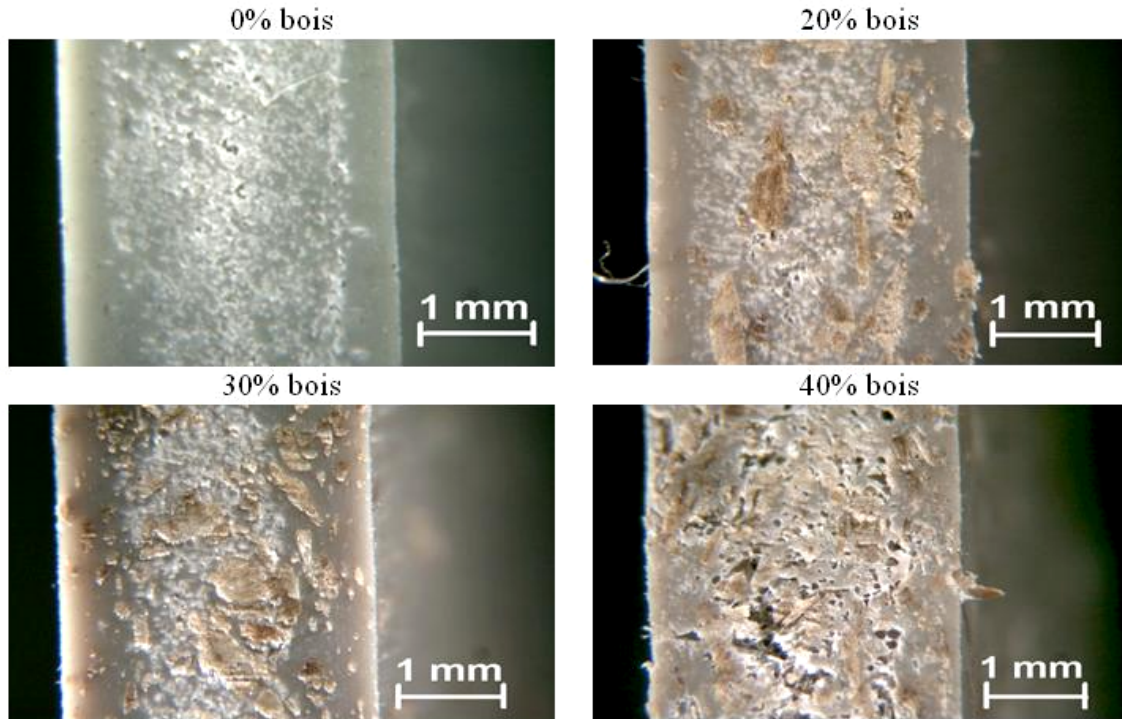
Bien que la Figure 4.11 compare les diverses épaisseurs de peau, elle est similaire à son homologue sur la taille des cellules (Figure 4.05). Les mécanismes de formation de peau sont directement liés à la croissance cellulaire. En fait, il y a présence de peau lorsque la viscosité est trop élevée pour permettre la nucléation et/ou croissance cellulaire avant la solidification de la matrice. Donc l'épaisseur de peau croît avec l'augmentation de la viscosité de la matrice. On observe effectivement que l'épaisseur de peau croît avec la teneur en bois et diminue avec l'augmentation de la température du moule. Enfin, l'augmentation de la teneur en agent gonflant diminue légèrement l'épaisseur de peau. À densité égale, les échantillons contenant une plus grande quantité de ACA ont une peau légèrement plus mince. Selon Rodrigue et Leduc (2003), une augmentation de la teneur en agent gonflant diminue l'épaisseur de peau en provoquant une augmentation de la pression interne du fondu. Ainsi, le surplus de gaz dissout cause la nucléation et la croissance des cellules aux abords des parois ; aucun changement morphologique d'importance n'accompagne l'amincissement de la peau. Le diamètre cellulaire moyen ainsi que la densité des échantillons ne sont pas significativement modifiés par la teneur en agent gonflant. On assiste plutôt à une dispersion des cellules sur un volume plus élevé.

L'analyse des résultats met également en valeur une asymétrie entre les épaisseurs de peau. On remarque que la paroi non-moussée en contact avec la surface mobile du moule (Figure 1.09) est significativement plus épaisse que sa consœur, en moyenne de 17% (Figure 4.12).

Ce comportement peut être occasionné par un refroidissement inégal du moule ainsi que par la présence d'irrégularités sur la surface du moule ce qui influence le transfert de chaleur vers ce dernier. Cette hétérogénéité dans l'épaisseur de peau cause inévitablement une asymétrie dans le comportement de la pièce et accroît la variabilité des résultats. Enfin, la Figure 4.13 illustre la peau des échantillons pour chaque concentration de bois.



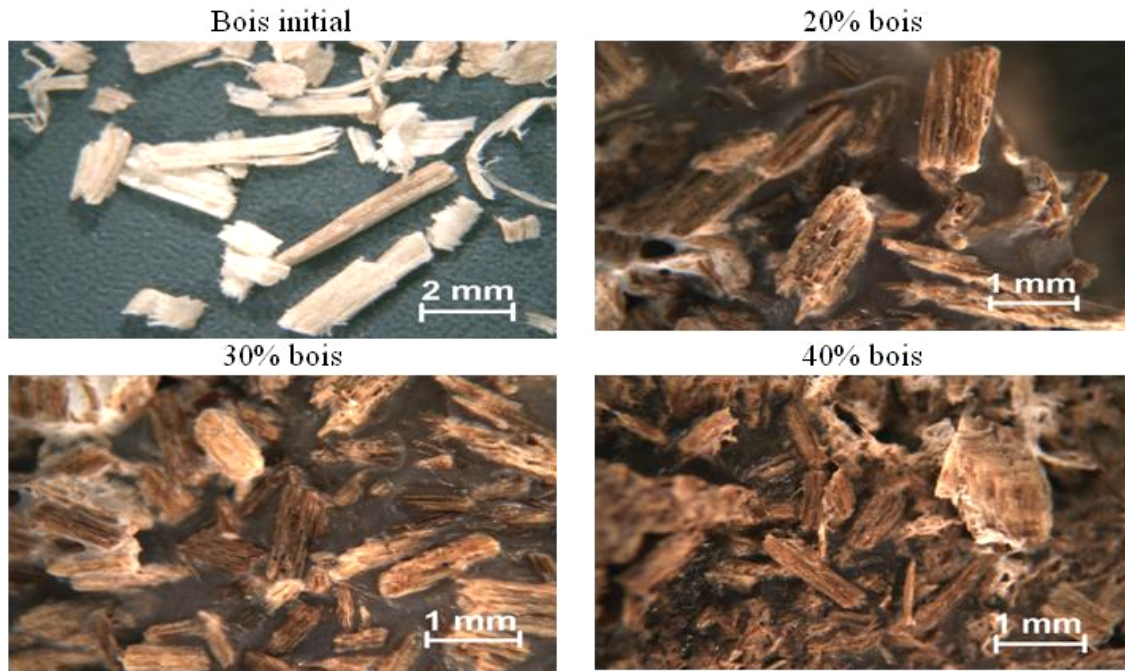
**Figure 4.12.** Épaisseurs de peau indiquant une asymétrie. Peau 1: surface du moule fixe et peau 2: surface du moule mobile.



**Figure 4.13.** Peau des mousses structurales produites avec 1 phr ACA.

#### 4.3.4 Taille des fibres

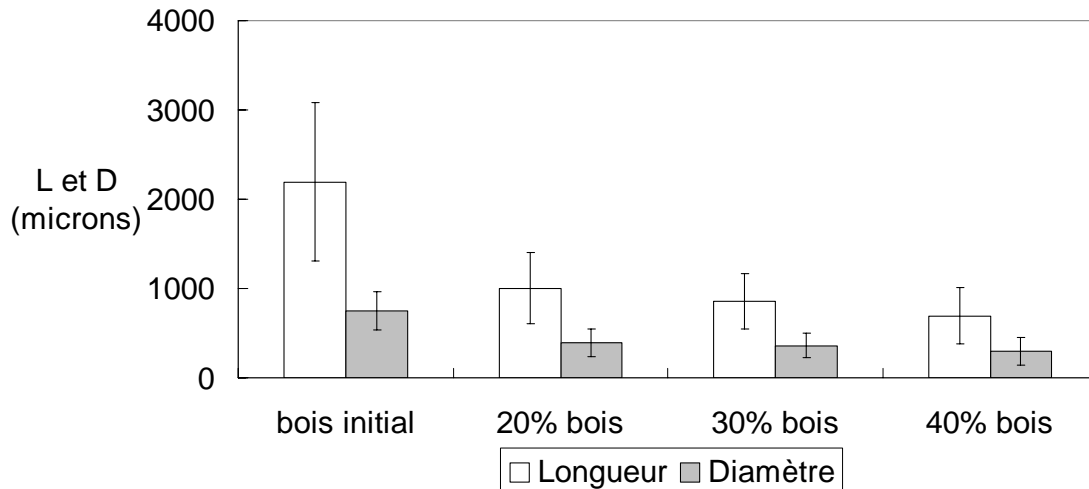
Le but premier de l'incorporation de fibres dans une matrice est de transférer la charge du matériau le plus faible au plus fort. Par contre, les grandes contraintes en cisaillement présentes dans le moulage par injection effritent les fibres et amoindrissent leur effet bénéfique. Selon Gutowski (2002), les taux de cisaillement typiques dans un procédé d'injection sont dix fois supérieurs à ceux rencontrés en extrusion. Toute fibre incorporée dans la matrice subit donc une certaine dégradation mécanique: principalement dans la vis, dans la buse et dans le seuil de la pièce. On rapporte ici la morphologie des fibres injectées en relation avec la nature du composite dans lequel elles prennent place, ainsi que la morphologie initiale des fibres. D'abord, des micrographies typiques des fibres sont présentées à la Figure 4.14.



**Figure 4.14.** Morphologie des fibres de bois.

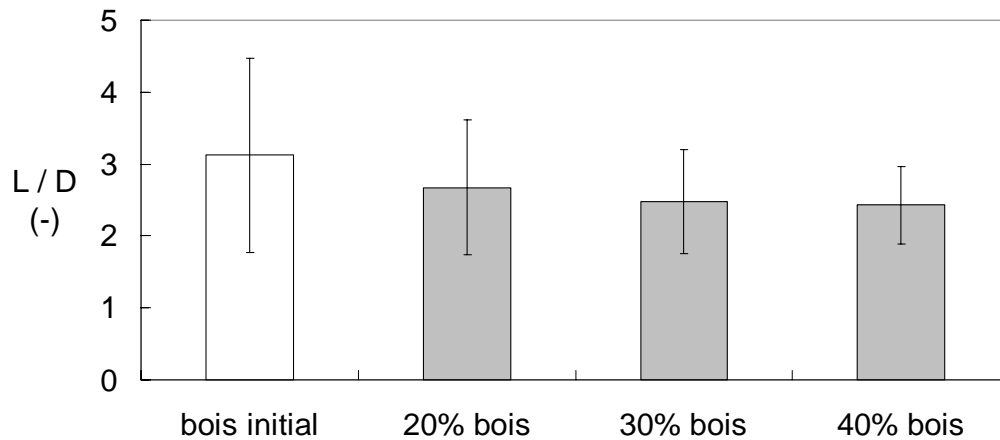
On remarque que la solution de toluène a dissout le polymère sans significativement attaquer le bois. Cette méthode a efficacement permis de mettre à nu les fibres faisant partie des composites non-moussés sans en modifier leur morphologie. Cependant, la porosité inhérente aux mousses a permis au toluène d'infiltrer la matrice et de la désagréger par l'intérieur avant que la peau ne soit suffisamment dissoute pour permettre l'analyse microscopique. Ainsi, l'analyse présente ne porte que sur les fibres de bois faisant partie d'échantillons non-moussés. La longueur et le diamètre moyens des fibres résultantes sont illustrés à la Figure 4.15.





**Figure 4.15.** Morphologie des fibres.

La Figure 4.15 illustre la dégradation des dimensions des fibres, et ce, proportionnellement à la teneur en bois présente dans l'échantillon. Les fibres ont initialement une longueur moyenne de  $2,20 \times 10^3$  microns pour un diamètre de  $0,75 \times 10^3$  microns. On observe que plus le polymère est chargé, plus les fibres subiront un cisaillement élevé en raison de l'augmentation de viscosité du fondu. Ainsi, la taille réelle des fibres diminue avec l'augmentation de la teneur en bois pour atteindre des longueurs de  $1,00 \times 10^3$ ,  $0,85 \times 10^3$  et  $0,70 \times 10^3$  microns respectivement. Cependant, la longueur adimensionnelle, définie comme le rapport entre la longueur de la fibre et son diamètre, demeure relativement constante dans tous les cas. Cette valeur est de 3 et implique que non seulement les fibres sont détériorées dans le sens de la longueur, mais qu'elles le sont également dans le sens de la largeur (Figure 4.16). Ce comportement pourrait être provoqué par la nature fibreuse du bois qui provoque une certaine délamination sous contrainte. Par ailleurs, les fibres subissent une compaction importante sous la pression qui leur est imposée qui diminue également leur taille (Section 4.1). On conclut donc que la mise en oeuvre diminue la dimension des fibres sans grandement modifier leur géométrie.



**Figure 4.16.** Longueur équivalente des fibres.

#### 4.4 Tests mécaniques

De façon générale, la résistance mécanique d'un WPC augmente avec la teneur en fibres simplement parce que les propriétés mécaniques des fibres sont grandement supérieures à celles de la résine (Wrap, 2003). Il y a cependant des limites à ce phénomène puisque les fibres doivent être totalement recouvertes de polymère pour être efficaces (adhésion parfaite). Selon Net Composites (2004), la limite en injection se situe entre 30 et 40% du volume total du composite. Dans le cas présent, des fractions massiques de 30 et 40% représentent des fractions volumiques respectives de 37 et 48%. Ceci implique qu'il est possible que le transfert de charge soit restreint suite à une adhésion imparfaite entre la matrice et les fibres. L'analyse suivante s'attarde notamment sur l'impact de la teneur en bois sur les propriétés des composites moussés et non-moussés.

Les résultats des tests mécaniques ne peuvent pas toujours être comparés directement. L'utilisation de modules réduits permet d'isoler l'effet de la fibre et de la mousse de façon indépendante. Dorénavant, les modules réduits ( $M1$ ,  $M2$  et  $M3$ ) seront préférés aux modules réels ( $M$ ). D'abord,  $M1$  est défini comme le module du composite divisé par la densité de l'échantillon (Équation 4.2). Ensuite, le module réduit  $M2$  est défini comme étant le module de l'échantillon non-moussé divisé par celui du polymère non-moussé (Équation 4.3). De façon similaire,  $M3$  est défini comme le module du composite moussé divisé par celui du composite non-moussé de même teneur en bois (Équation 4.4).

L'utilisation de  $M2$  permet d'isoler directement l'effet de la présence des fibres dans les échantillons non-moussés tandis que  $M3$  permet ensuite d'isoler l'effet du moussage pour une même teneur en bois.

$$M1 = \frac{M(\text{échantillon})}{\text{Densité}} \quad (4.2)$$

$$M2 = \frac{M(\text{échantillon non - moussé})}{M(\text{polymère non - moussé})} \quad (4.3)$$

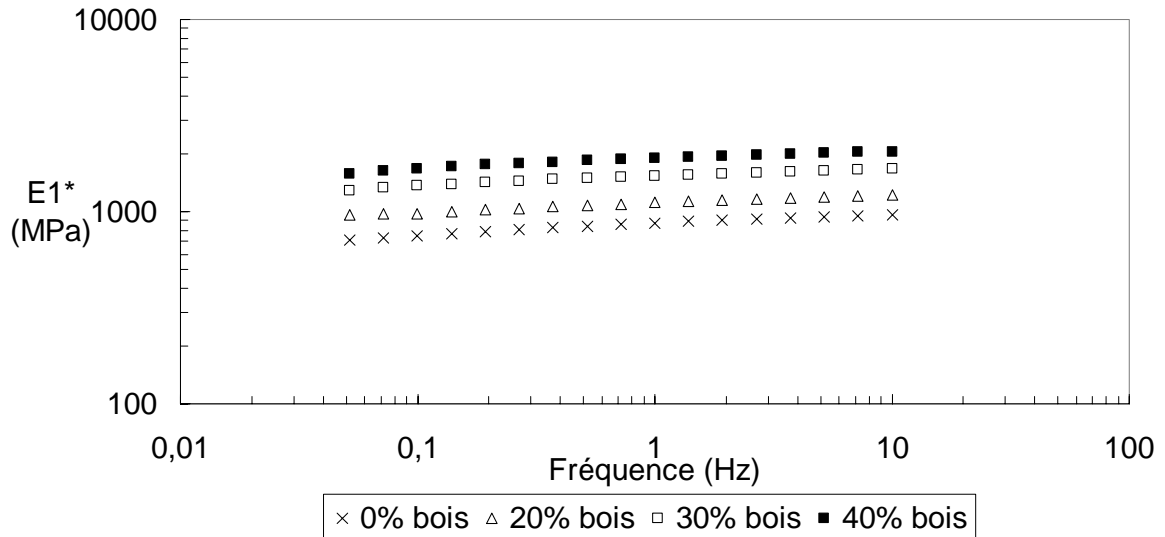
$$M3 = \frac{M(\text{échantillon moussé})}{M(\text{composite équivalent non - moussé})} \quad (4.4)$$

Dans le cas de tests dynamiques en oscillation, le module complexe ( $M^*$ ) est défini à partir des modules élastique ( $M'$ ) et visqueux ( $M''$ ):

$$M^* = \sqrt{(M')^2 + (M'')^2} \quad (4.5)$$

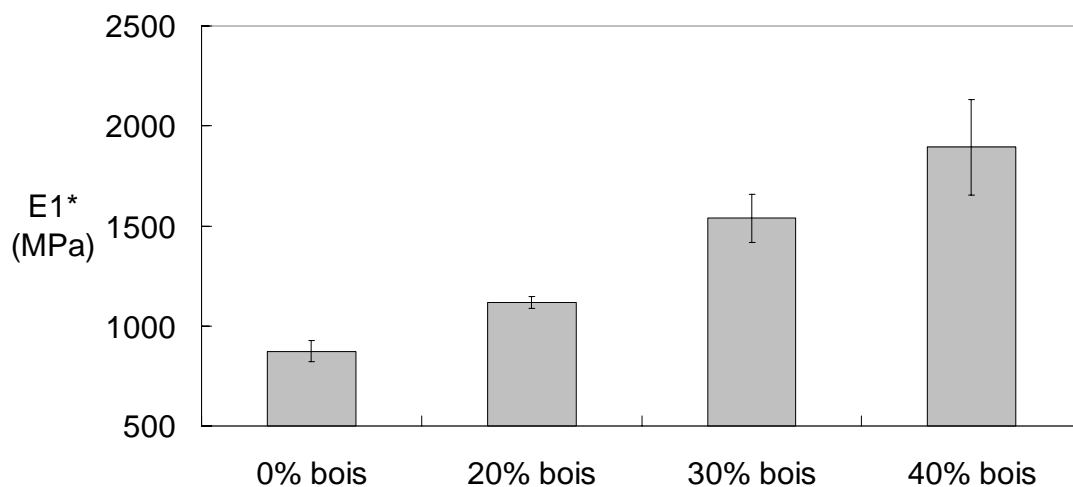
#### 4.4.1 Tests en flexion

Les tests en flexion ont été faits en mode dynamique par un balayage en fréquence à déformation constante. Ce type de test permet d'étudier les propriétés mécaniques des composites à de faibles contraintes ou déformations. Selon Doroudiani et al. (1997), le module en flexion croît avec l'augmentation de la teneur en bois mais diminue lors du moussage en relation avec la réduction de densité. Dans un premier temps, la Figure 4.17 présente les résultats pour les modules réduits à diverses teneurs en bois.



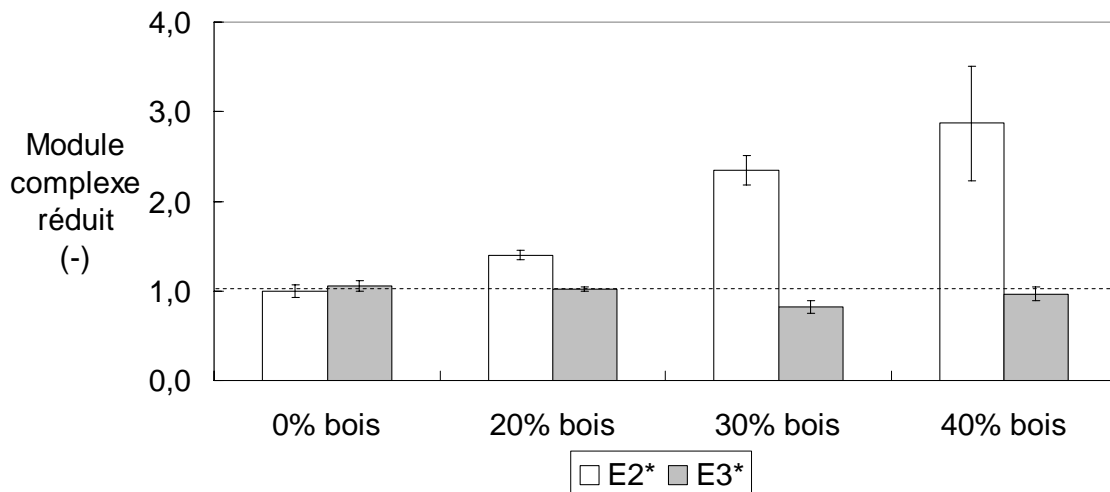
**Figure 4.17.** Modules complexes réduits ( $E1^*$ ) moyens en flexion.

La Figure 4.17 illustre les modules réduits moyens des composites sur une plage de fréquences dans lequel le module en flexion croît avec l'augmentation de la teneur en fibres de bois. À ce sujet, Stark (1999) affirme qu'une fibre augmente la résistance en flexion plus que ne le fait une farine. Le module croît également en fonction de la fréquence à cause du caractère viscoélastique intrinsèque aux polymères. On voit qu'il existe une relation entre les courbes sur la plage étudiée, c'est-à-dire qu'une courbe peut être obtenue par une translation verticale d'une autre. Cette similarité permet de baser l'analyse sur une seule fréquence. À cette fin, une fréquence de 1 Hz a été choisie. La Figure 4.18 représente ces données sous forme d'histogramme.



**Figure 4.18.** Module complexe réduit ( $E1^*$ ) en flexion à 1 Hz.

La Figure 4.18 illustre les modules complexes réduits ( $E1^*$ ) des composites en fonction de la teneur en bois. Cette méthode permet efficacement de comparer ces matériaux sans tenir compte de la densité. On observe que la rigidité des composites dépend de la teneur en bois mais demeure insensible à la teneur en agent gonflant et à la température du moule (Annexe A8). Ces résultats diffèrent toutefois de nos attentes. Les résultats de Steinbichler et al. (1999) montrent que la rigidité d'une mousse dépend fortement de son épaisseur de peau. Par ailleurs, nous avons montré à la Section 4.3.3 que l'épaisseur de peau varie proportionnellement à la teneur en bois, varie peu avec la teneur en ACA, mais varie inversement à la température du moule. Ainsi, la rigidité de ces matériaux devrait dépendre de la température du moule. Puisque ce n'est pas le cas, on suppose que la peau ne confère pas les propriétés de support prédites par Steinbichler et al. (1999). En effet, il se pourrait que l'immiscibilité naturelle entre le HDPE et le PP empêche la répartition adéquate des charges à l'intérieur de la matrice. L'effet des fibres et de la densité des échantillons décrit précédemment peut ensuite être mis en valeur en utilisant les modules réduits  $E2^*$  et  $E3^*$  (Figure 4.19).



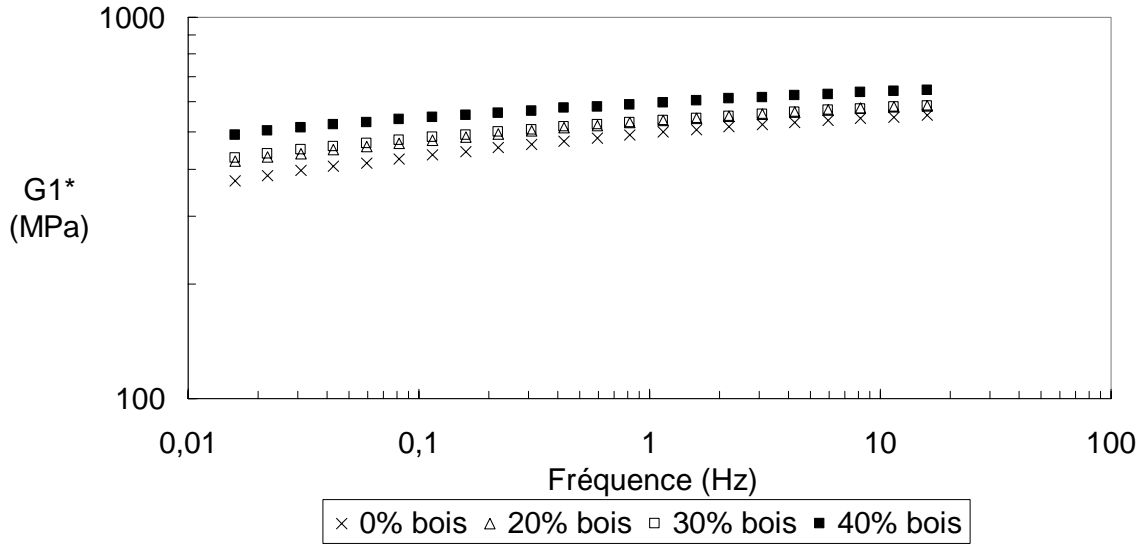
**Figure 4.19.** Modules complexes réduits ( $E2^*$  et  $E3^*$ ) en flexion à 1 Hz pour les composites moussés et non-moussés.

Tel que défini, le module  $E2^*$  permet d'isoler directement l'effet de la présence des fibres dans les polymères non-moussés tandis que  $E3^*$  permet ensuite d'isoler l'effet du

moussage pour une même teneur en bois. L'augmentation du module  $E2^*$  montre que la concentration de bois a un effet marquant sur le module des composites non-moussés. À ce niveau, Bertin et Robin (2002) ainsi que Stark et Berger (1997) ont également observé une corrélation entre la rigidité et la teneur en bois. Il est donc clair qu'il y a un certain transfert de contraintes entre la matrice et les fibres malgré leur immiscibilité inhérente. Le module  $E3^*$ , quant à lui, montre que le module en flexion des échantillons moussés n'est pas significativement inférieur à celui des composites non-moussés: en moyenne, la valeur est de 0,96 avec un écart type de 0,06. L'équivalence entre les modules est expliquée par les faibles diminutions de densité atteintes dans ce projet. En effet, la densité réduite des échantillons varie seulement entre 86 et 93% selon la fraction de bois présente.

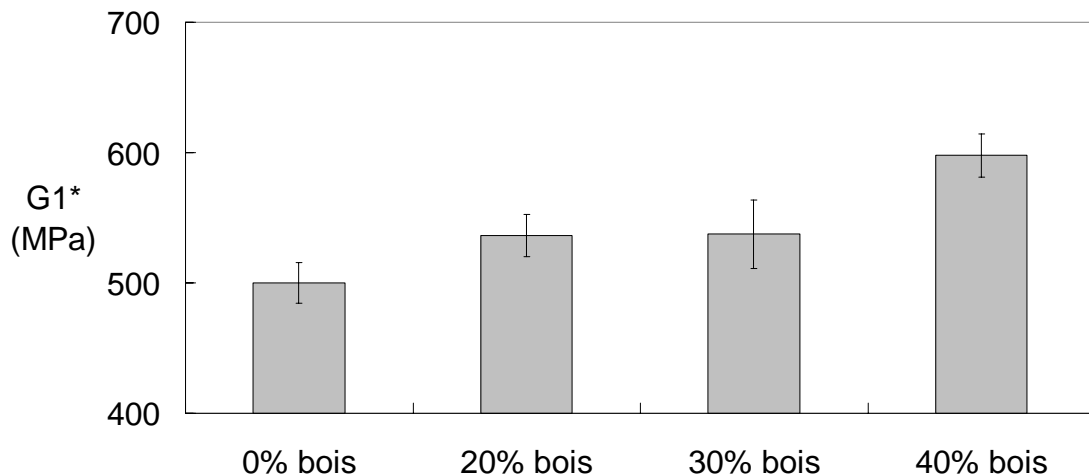
#### **4.4.2 Tests en torsion**

La littérature est lacunaire au sujet du comportement des composites en torsion. Ce type d'analyse peut cependant révéler des informations au sujet du transfert de charge vers les fibres. Selon Zhang et Rodrigue (2005), le rapport entre le module de la mousse composite et celui de l'échantillon non-moussé équivalent est indépendant du taux de cisaillement. Ils en concluent que le comportement des mousses composites est similaire à celui des composites non-moussés. Par ailleurs, ils ont également observé ce comportement en l'absence de fibres (Zhang et al., 2003). Dans le cas présent, les tests en torsion ont été faits par un balayage en fréquence à déformation constante (Figure 4.20). Selon la démarche précisée, une déformation de 0,1% permet de tester les échantillons en déformation élastique seulement.



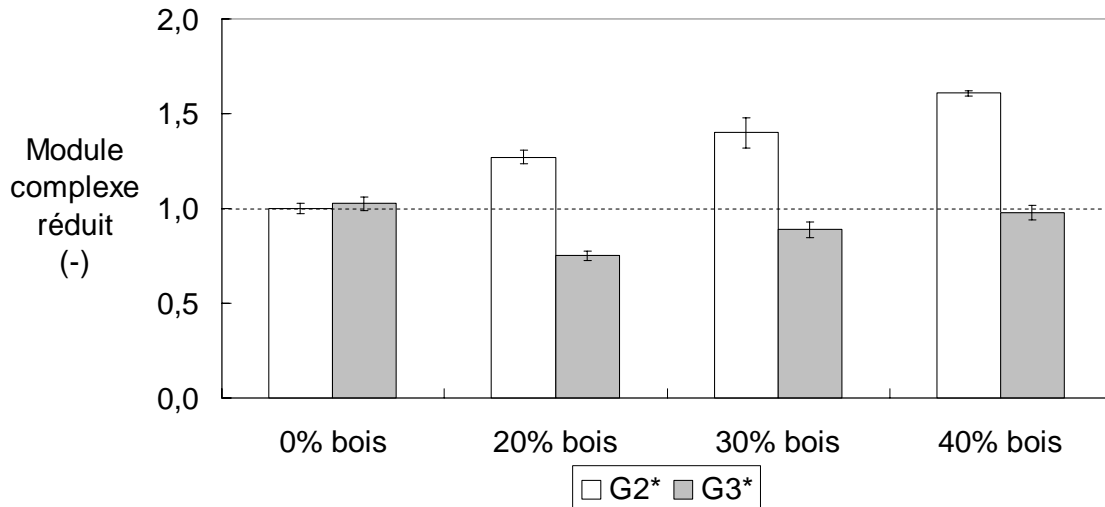
**Figure 4.20.** Modules complexes réduits ( $G1^*$ ) moyens en torsion.

La Figure 4.20 illustre les modules réduits moyens des composites sur une plage de fréquences couvrant trois décades. Tout comme en flexion, le module en torsion croît en fonction de la fréquence à cause des propriétés viscoélastiques des polymères. De plus, la corrélation entre la teneur en bois et le module signifie que l'interface bois/plastiques assure un certain transfert de charge vers les fibres. Le degré de similarité existant entre les courbes expérimentales permet, ici aussi, d'effectuer l'analyse sur une seule fréquence. L'analyse des valeurs des modules complexes réduits en torsion ( $G1^*$ ) est donc effectuée à une fréquence de 1 Hz. La Figure 4.21 représente ces données sous forme d'histogramme.



**Figure 4.21.** Modules en torsion ( $G1^*$ ) pour une fréquence de 1 Hz.

La Figure 4.21 illustre les modules complexes réduits ( $G1^*$ ) des composites en fonction de la teneur en bois. Tel qu'observé en flexion, la teneur en bois augmente les propriétés mécaniques réduites du matériau tandis que la température du moule et la teneur en agent gonflant ne jouent pas de rôle significatif (Annexe A9). La Figure 4.22 met en évidence l'effet des fibres et de la densité sur le module complexe.



**Figure 4.22.** Modules en torsion ( $G2^*$  et  $G3^*$ ) à une fréquence de 1 Hz pour les composites moussés et non-moussés.

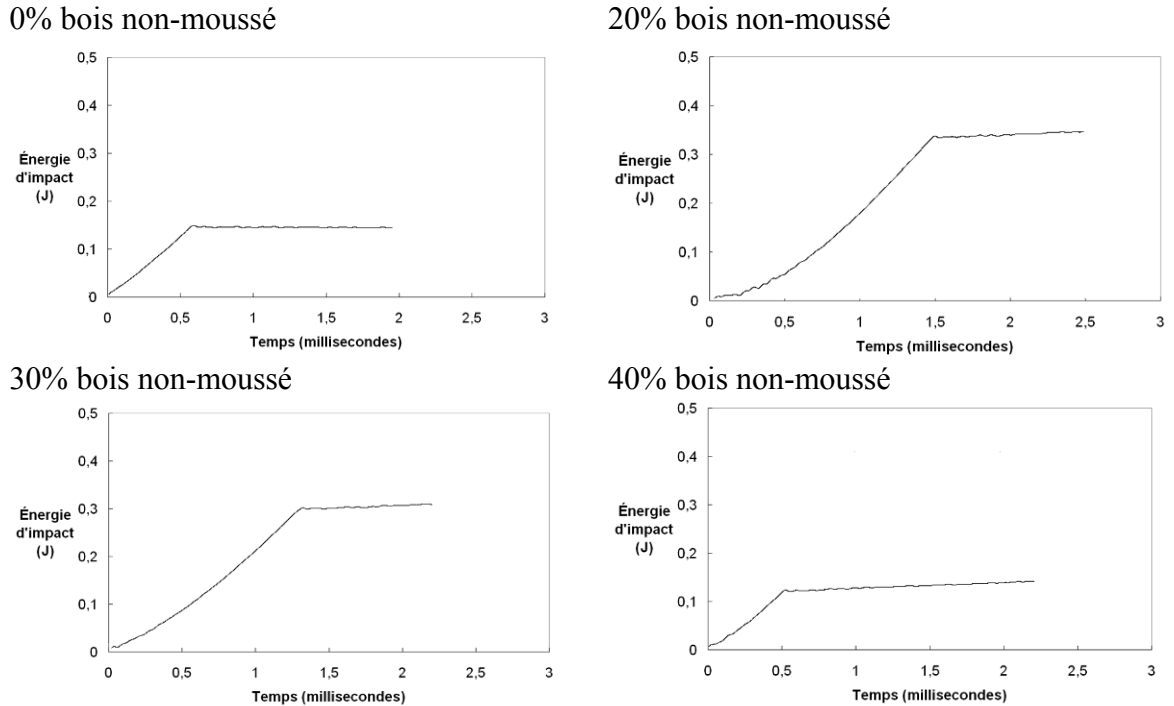
La Figure 4.22 illustre les modules réduits en torsion de manière à permettre une comparaison avec les tests en flexion. Les résultats pour les modules  $G2^*$  et  $G3^*$  en torsion sont analogues aux modules  $E2^*$  et  $E3^*$  en flexion. On voit d'abord que l'augmentation relative du module  $G2^*$  avec la teneur en fibres de bois est significative mais demeure 50% inférieure aux résultats en flexion. Ainsi, les fibres de bois n'augmentent pas la rigidité en torsion autant qu'en flexion. Ceci serait dû à un transfert de contraintes inadéquat en torsion. Selon Folkes et Kells (1985) et Net Composites (2004), la géométrie des fibres dans un composite détermine les propriétés du matériau puisque les fibres présentent des propriétés mécaniques maximales lorsqu'elles sont exercées selon leur longueur. Ceci mène donc à une anisotropie des propriétés lorsque la pièce est injectée. Le transfert interne de contraintes (i.e. la contrainte transférée par la matrice sur la fibre) est donc plus efficace lorsque celles-ci sont distribuées sur la longueur de la fibre; tel est le cas en flexion. En effet, un test en flexion étire légèrement la matrice et exerce une contrainte longitudinale



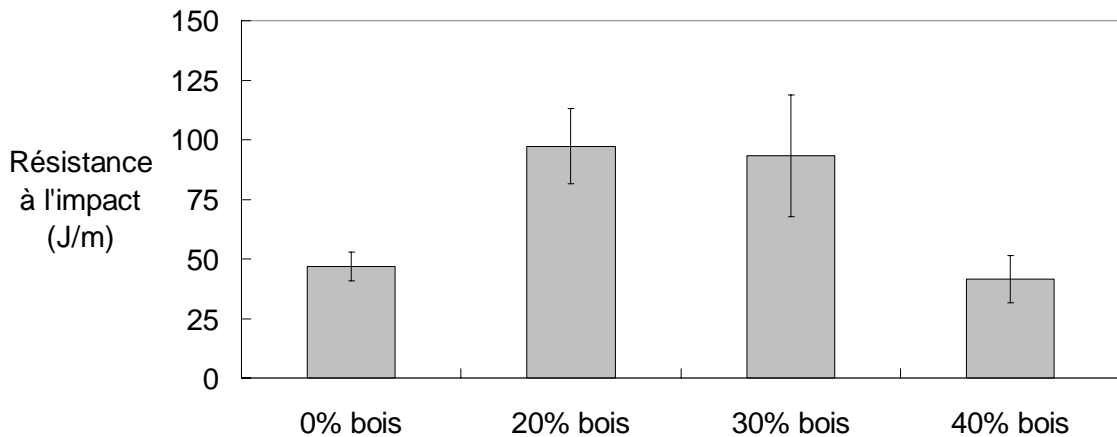
sur la fibre entière. Par contre, une analyse en torsion exerce une contrainte sur les fibres de façon radiale, leur axe de faiblesse naturel, et cause une certaine délamination du bois. Il est donc normal que les fibres procurent un meilleur renfort en flexion qu'en torsion. Enfin, la valeur de  $G3^*$  est légèrement inférieure à l'unité; sa valeur est de 0,91 avec un écart type de 0,03. Ainsi, les propriétés des mousses sont légèrement inférieures à leur homologue non-moussé.

#### **4.4.3 Tests en impact**

Les tests d'impact ont été faits selon la méthode Charpy sans entaille. Ce type de test permet d'étudier les propriétés mécaniques des composites à de grandes concentrations de contraintes. D'abord, tous les résultats expérimentaux obtenus avoisinent la limite de détection de l'appareil utilisé. Ainsi, seuls les échantillons non-moussés ont produit des résultats reproductibles tandis que toutes les mousses nécessitent moins de 0,1 J pour fracturer, soit l'énergie minimale perçue par l'appareil. Ceci équivaut, dans le cas présent, à une résistance à l'impact inférieure à 30 J/m. La Figure 4.23 représente la forme typique des courbes d'impact obtenues. On observe d'abord une zone de déformation élastique caractérisée par une absorption progressive d'énergie. Ensuite, l'initiation de la fracture occasionne une discontinuité dans la courbe. À partir de ce point, la rupture de la pièce a lieu sans accumulation d'énergie supplémentaire. Les résultats sont présentés à la Figure 4.24.



**Figure 4.23.** Énergie d'impact en fonction de la teneur en bois.



**Figure 4.24.** Résistance à l'impact en fonction de la teneur en bois pour les échantillons non-moussés.

Selke et Wichman (2004) affirme que l'incorporation de fibres améliore la résistance à l'impact des résines recyclées. Selon la Figure 4.24, on observe en effet que cette valeur double lorsqu'on ajoute 20% bois à la matrice. La résistance à l'impact atteint cependant un optimum. Ceci concorde avec le phénomène de recouvrement partiel des fibres mentionné précédemment (Net Composites, 2004). En effet, une adhésion imparfaite entre la matrice

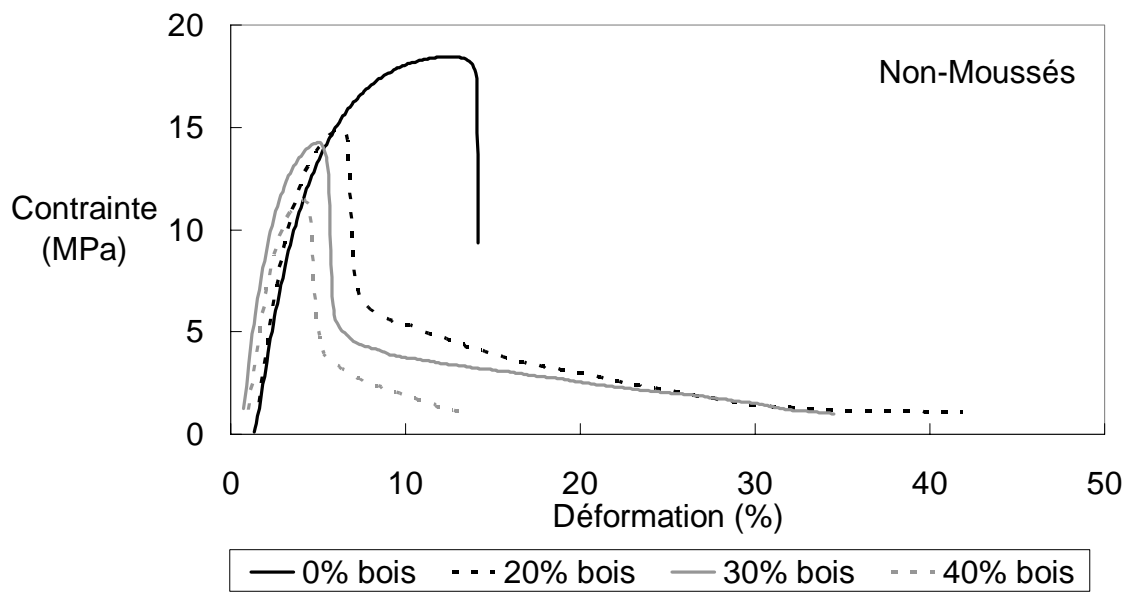
et les fibres dans les composites à hautes teneurs en bois (au moins 30% volumique) se fait principalement sentir à grande déformation.

Par ailleurs, Doroudiani et al. (1998) ainsi que Rachtanapun et al. (2004) affirment qu'une structure cellulaire bien développée peut augmenter la résistance à l'impact des échantillons. Nous avons cependant conclu que les mousses testées ont une résistance à l'impact inférieure à celle des échantillons non-moussés. La situation présente diffère parce que les échantillons utilisés n'ont pas subi d'entaille latérale. La présence d'une entaille diminue la résistance de l'échantillon en agissant comme site initiateur de faille lors de l'impact. De plus, une faille peut facilement se propager dans une matrice non-moussée mais est perturbée par la présence des cellules dans une mousse (Doroudiani et al. 1998). Ainsi, les propriétés d'un échantillon non-moussé, par opposition à celles d'une mousse, dépendent fortement de la surface de l'échantillon. Il est donc possible que la résistance à l'impact des échantillons non-moussés soit supérieure ou inférieure à celle de la mousse équivalente selon qu'il y ait présence d'une entaille ou pas. Enfin, les tests d'impact sont utilisés pour déterminer le caractère fragile ou ductile de la fracture. Une fracture ductile est hautement énergétique tandis qu'une fracture fragile est faiblement énergétique. Selon Manchester (1997), une fracture ductile faiblement énergétique peut également avoir lieu lorsqu'il y a présence de coalescence de microporosités dans le matériau.

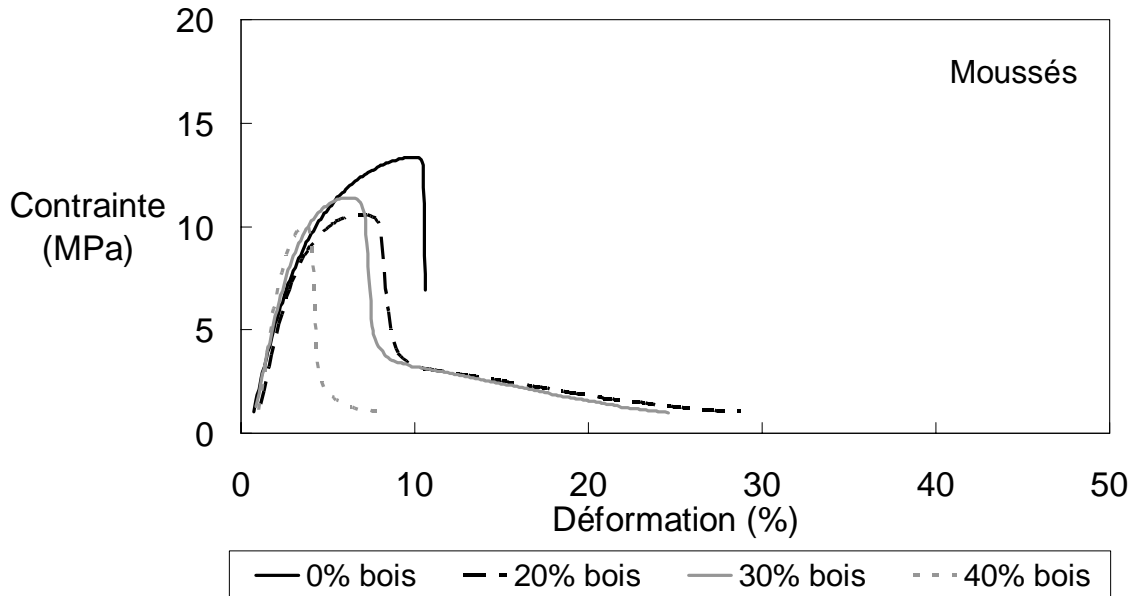
#### **4.4.4 Tests en traction**

Les tests en traction sont complémentaires aux tests en flexion, en torsion et en impact puisqu'ils permettent d'étudier les matériaux à grande déformation jusqu'à leur rupture. Ces tests permettent d'évaluer le module élastique ( $E$ ), la contrainte maximale ( $\sigma_M$ ), la contrainte à la rupture ( $\sigma_R$ ) ainsi que leur déformation correspondante ( $\varepsilon_M$  et  $\varepsilon_R$ ). Les tests en traction ont été faits à une vitesse constante de 2 mm/min, ce qui représente une faible vitesse pour des échantillons polyoléfiniques (ASTM D 638). La raison est que le comportement des mélanges de polymères immiscibles est beaucoup plus fragile que celui d'un polyéthylène seul. En effet, Jose et al. (2004) affirment que l'incompatibilité entre le HDPE et le PP empêche le transfert de charges à hautes concentrations de contraintes. Ceci

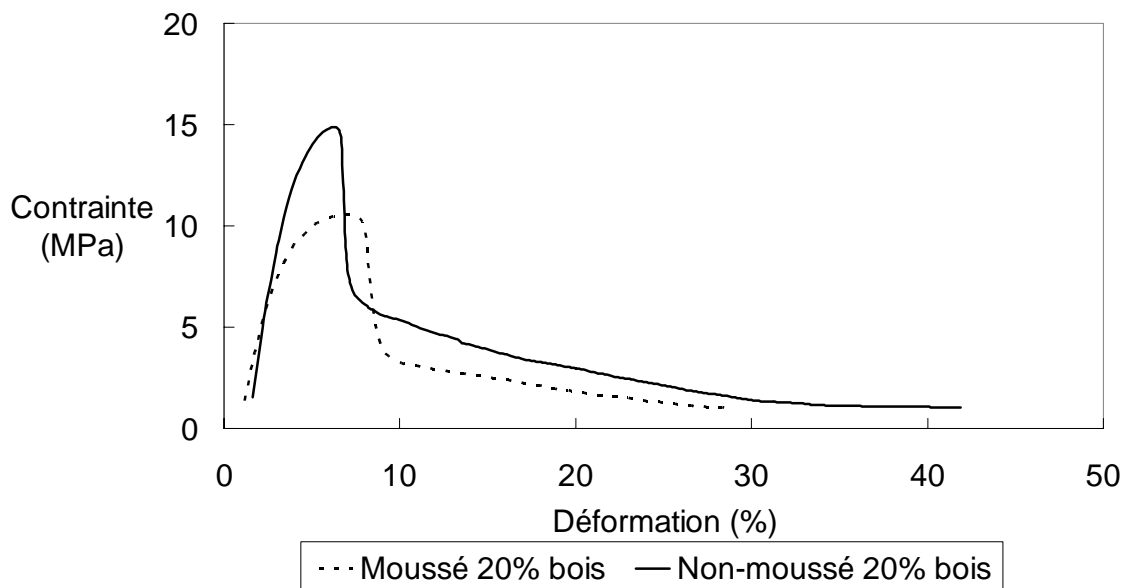
est également vrai pour les mousses et les composites. Par opposition au polyéthylène qui peut subir une élongation de plus de 1000% avant la rupture, tous les échantillons testés présentent un comportement fragile malgré le fait que l'incorporation de courtes fibres améliore les propriétés en traction (Bertin et Robin, 2002). Les Figures 4.25 à 4.27 représentent les courbes de contrainte en fonction de la déformation des échantillons moussés et non-moussés.



**Figure 4.25.** Courbes typiques de traction des échantillons non-moussés.



**Figure 4.26.** Courbes typiques de traction des échantillons moussés.

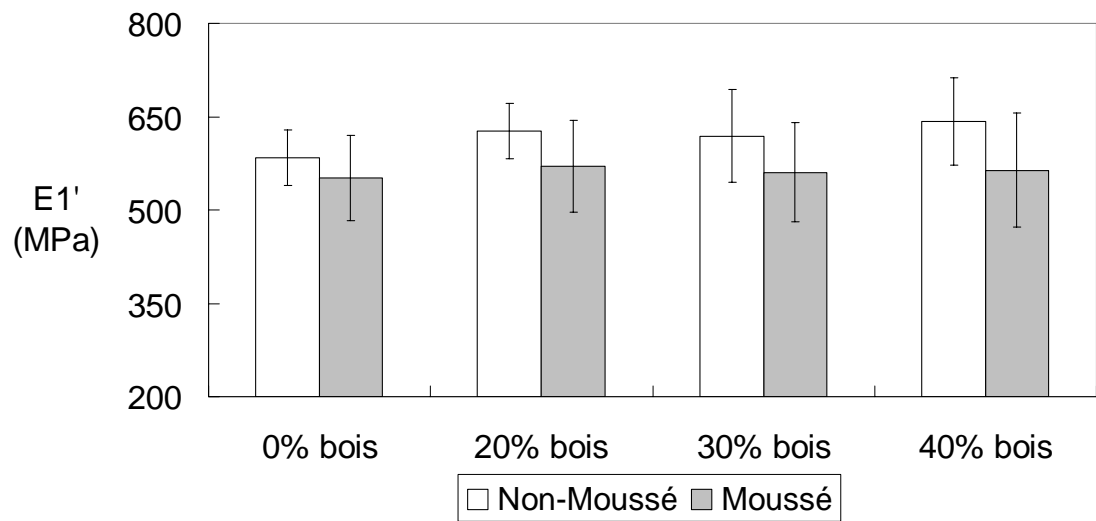


**Figure 4.27.** Comparaison de courbes en traction entre des échantillons moussés et non-moussés.

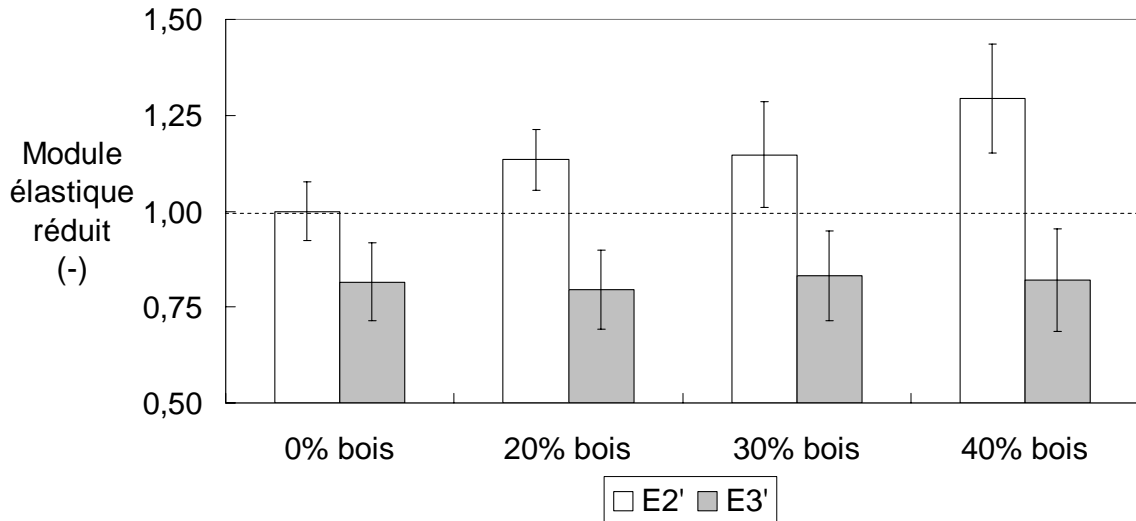
Les courbes de traction typiques illustrent quelques caractéristiques marquantes des composites bois/plastiques. D'abord, les WPC présentent une certaine déformation plastique absente dans la résine recyclée (Figures 4.25-27). La présence des fibres diminue cependant la valeur de la contrainte maximale en traction, mais en augmente le module

élastique. On remarque également que la contrainte maximale et l'élongation ultime, diminuent lorsque l'échantillon est moussé (Figure 4.27).

Jose et al. (2004) affirment que le module élastique (module de Young) est peu affecté par l'immiscibilité des polymères puisqu'il est calculé à de faibles concentrations de contraintes. En effet, le module représente la pente de la courbe dans les tous premiers instants de la déformation. À ce moment, l'échantillon n'a pas encore subi de déformation plastique; la présence des interfaces ne s'est pas encore fait sentir. Les Figures 4.28 et 4.29 illustrent les modules élastiques réduits des différents composites.



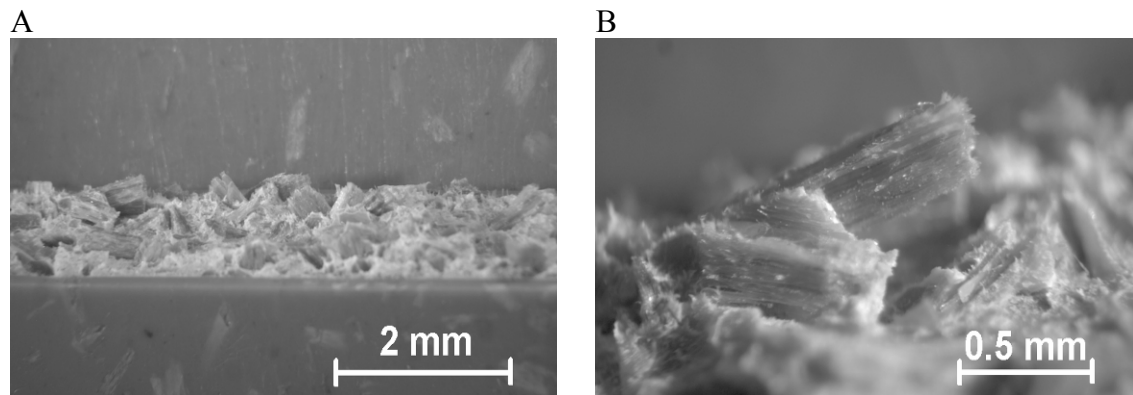
**Figure 4.28.** Module élastique réduit ( $E1'$ ) en traction pour les composites moussés et non-moussés.



**Figure 4.29.** Modules élastiques réduits ( $E2'$  et  $E3'$ ) en traction pour les composites moussés et non-moussés.

Selon la Figure 4.28, on voit que les modules élastiques réduits ( $E1'$ ) des échantillons moussés sont légèrement inférieurs aux modules des échantillons non-moussés. De plus, les modules réduits demeurent constants sur la plage entière de teneurs en bois étudiée. Ainsi, l'augmentation de la rigidité avec la teneur en bois serait due à l'augmentation de la densité finale de l'échantillon plutôt qu'aux propriétés de la fibre proprement dite. Tel que présenté en flexion et torsion, les modules réduits en traction montrent qu'un ajout de fibres de bois dans ce type de matrice permet une augmentation du module des composites non-moussés ( $E2'$ ). Selon Doroudiani et al. (1997), le module en tension croît avec l'augmentation de la teneur en fibres, en réaction à la rigidité du bois, mais réagit défavorablement au moussage. Ici par contre, l'augmentation relative du module est faible. En fait, la faible cohésion entre le polymère et le bois permet aux fibres de se retirer de la matrice ( *fibre pull-out* ) sans se fracturer lorsque l'échantillon est soumis à une grande contrainte longitudinale (Figure 4.30). Ceci implique que l'interface bois/plastiques ne permet pas à la matrice de tirer profit du plein potentiel des fibres. Enfin, toutes les mousses ont un module élastique  $E3'$  environ 20% inférieur à celui des échantillons non-moussés. En effet, Bledzki et Faruk (2002) ont observé que les modules spécifiques en traction décroissent proportionnellement à la réduction de densité en l'absence d'agent couplant. Dans le cas présent, les échantillons ont été moussés de manière à assurer une diminution de densité constante du polymère à

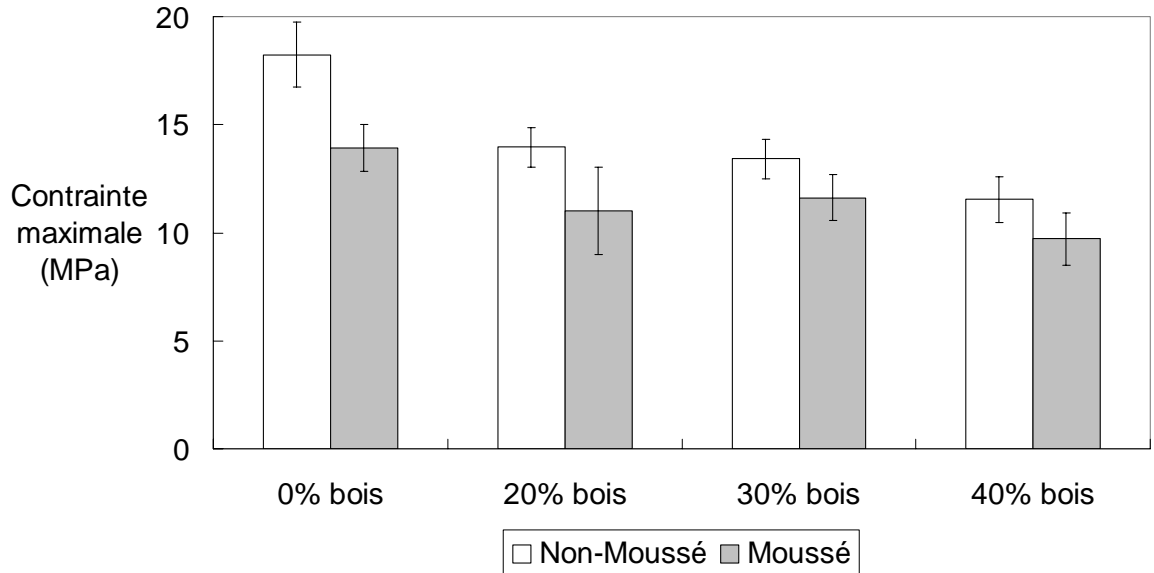
l'intérieur du composite. Il est donc normal qu'ils se comportent de façon similaire sous contrainte.



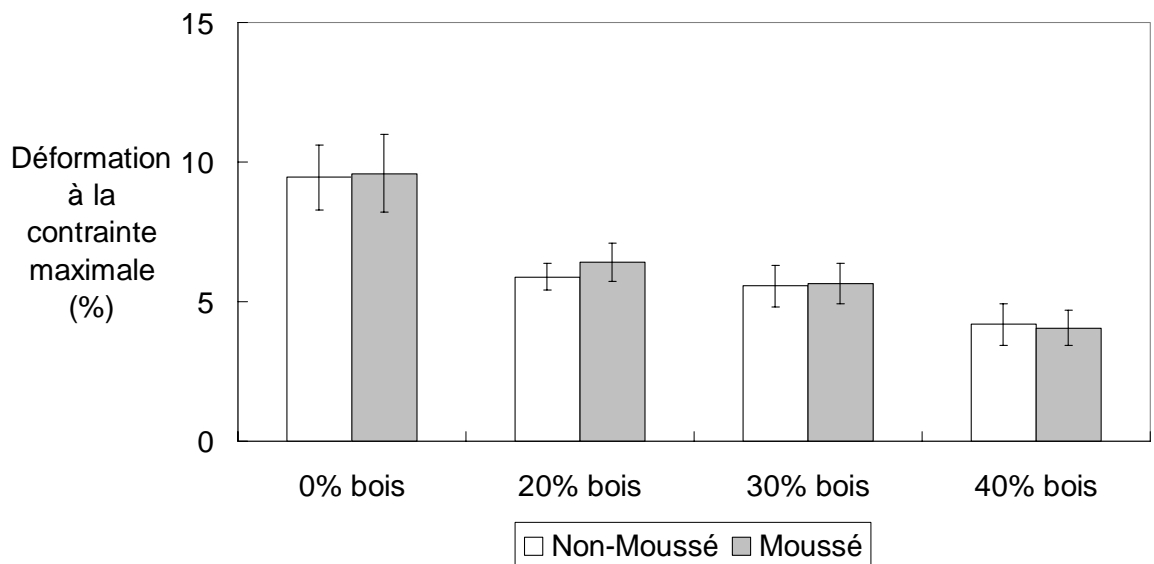
**Figure 4.30.** Retrait des fibres en cassure franche.

L'évaluation de la contrainte maximale atteinte lors des tests en traction a également été étudiée (Figure 4.31 et 4.32). Globalement, l'augmentation de la proportion de bois a un effet négatif sur cette valeur et diminue à la fois la contrainte en elle-même ainsi que la déformation correspondante. À titre indicatif, la contrainte et la déformation des composites contenant 40% de bois sont toutes deux de 50% inférieures à celles de la matrice polymère. Selon Stark et Berger (1997), la contrainte maximale décroît avec la teneur en fibres, et ce, pour toutes les essences de bois qu'ils ont étudiées. Il se pourrait que la présence des fibres accroisse l'inhomogénéité de l'échantillon de façon à devancer le phénomène d'écrouissage.





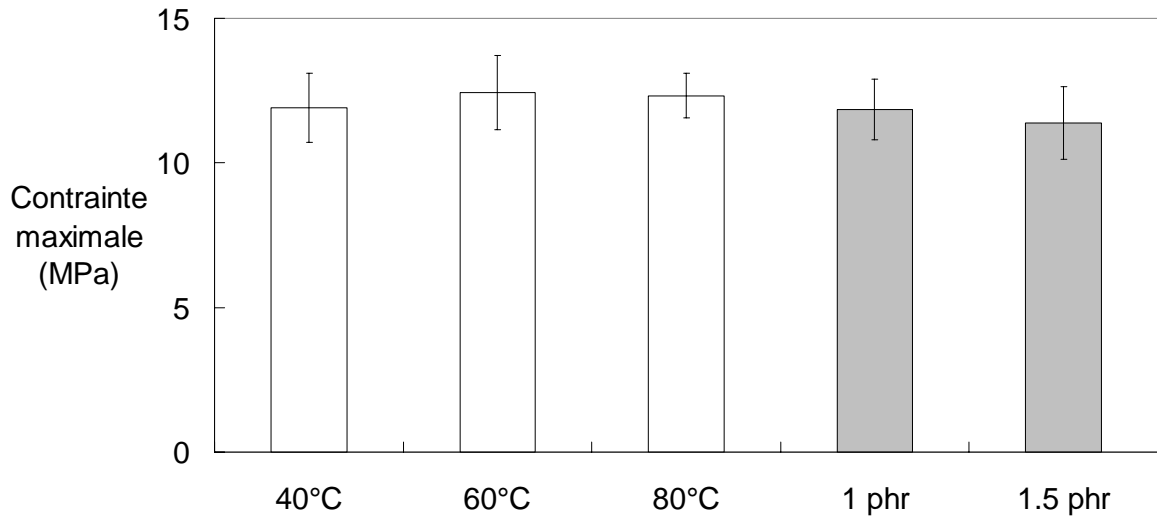
**Figure 4.31.** Contrainte maximale en traction pour les composites moussés et non-moussés.



**Figure 4.32.** Déformation à la contrainte maximale en traction pour les composites moussés et non-moussés.

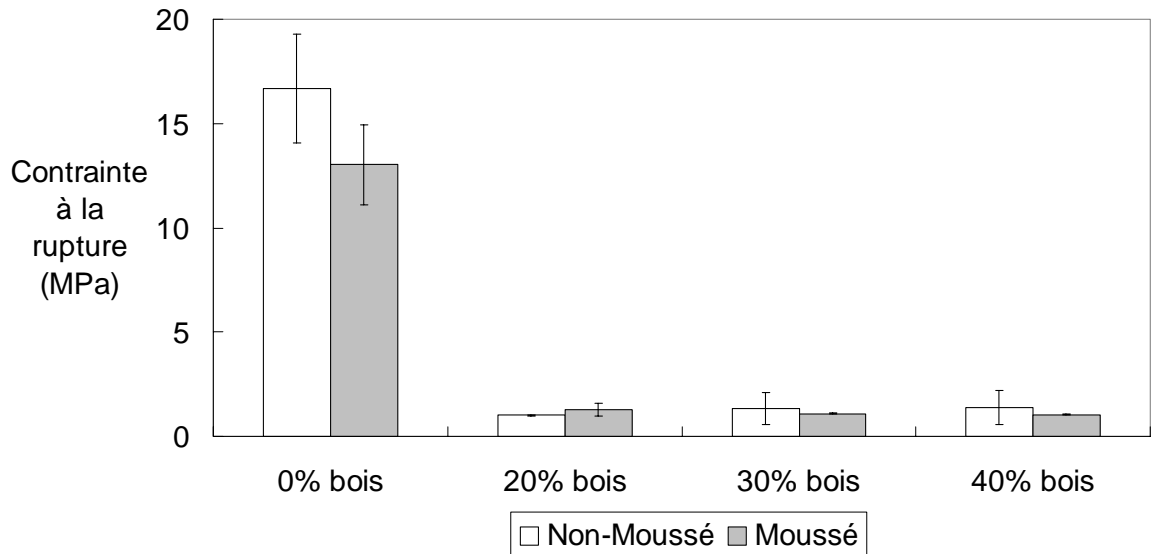
En relation avec les courbes de traction présentées aux Figures 4.25-27, le moussage diminue significativement la valeur de la contrainte maximale ( $\sigma_M$ ). En effet, la diminution relative de la contrainte maximale varie entre 15 et 23% selon la nature du composite et serait liée à la fraction de vide dans l'échantillon. Contrairement à la contrainte maximale elle-même, la déformation à la contrainte maximale ( $\varepsilon_M$ ) n'est aucunement influencée par le moussage. Autrement dit, la déformation élastique des échantillons est insensible à la

densité bien que la valeur de la contrainte le soit. Enfin, on observe également que la température du moule et la teneur en agent gonflant n'ont pas d'effet sur la contrainte maximale atteinte (Figure 4.33 et Annexe A10).

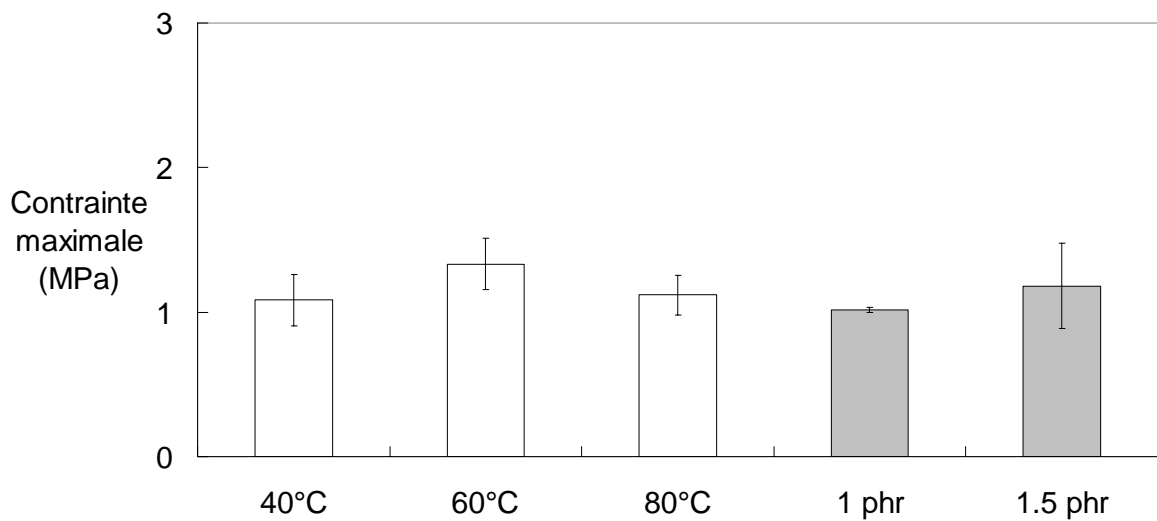


**Figure 4.33.** Contrainte maximale en traction pour les composites contenant 30% bois.

La relation entre la contrainte à la rupture et la teneur en bois a aussi été évaluée (Figure 4.34). On observe une différence remarquable entre le comportement de la matrice polymère et celui des WPC. En effet, la contrainte à la rupture moyenne des échantillons ne contenant pas de bois est de 14,5 MPa tandis qu'elle est de 1,5 MPa pour les composites. Comme la contrainte maximale et la contrainte à la rupture de la matrice polymère ont des valeurs très rapprochées, on peut conclure qu'il exprime un comportement fragile, et ce, qu'il soit moussé ou non. Ce comportement est principalement dû à l'immiscibilité entre le polyéthylène et le polypropylène. Selon Jose et al. (2004), l'incompatibilité entre ces polymères empêche le transfert de charges entre les phases à de hautes concentrations de contraintes. Par ailleurs, la grande différence entre la contrainte maximale et la contrainte ultime des WPC implique que la présence des fibres infère une qualité ductile à la matrice. Enfin, on observe également que la température du moule et la teneur en agent gonflant n'ont pas d'effet sur la contrainte finale atteinte (Figure 4.35 et Annexe A10).

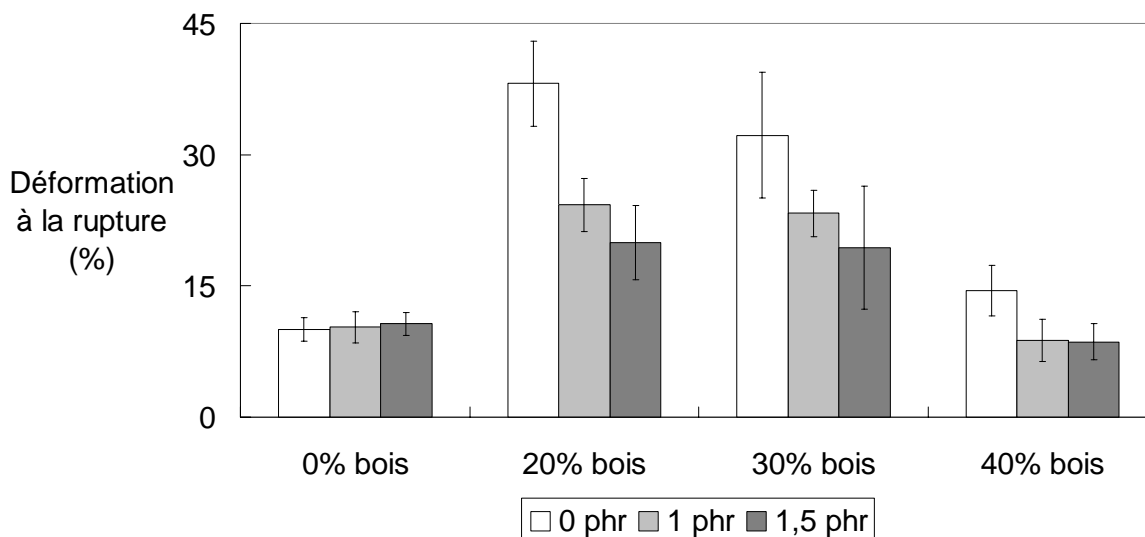


**Figure 4.34.** Contrainte à la rupture en traction pour les composites moussés et non-moussés.



**Figure 4.35.** Contrainte à la rupture en traction pour les composites contenant 30% bois.

Les résultats de déformation à la rupture sont illustrés à la Figure 4.36. Cette information est complémentaire à la contrainte à la rupture et facilite la caractérisation des matériaux. Une valeur élevée est habituellement associée à une déformation plastique de l'échantillon.

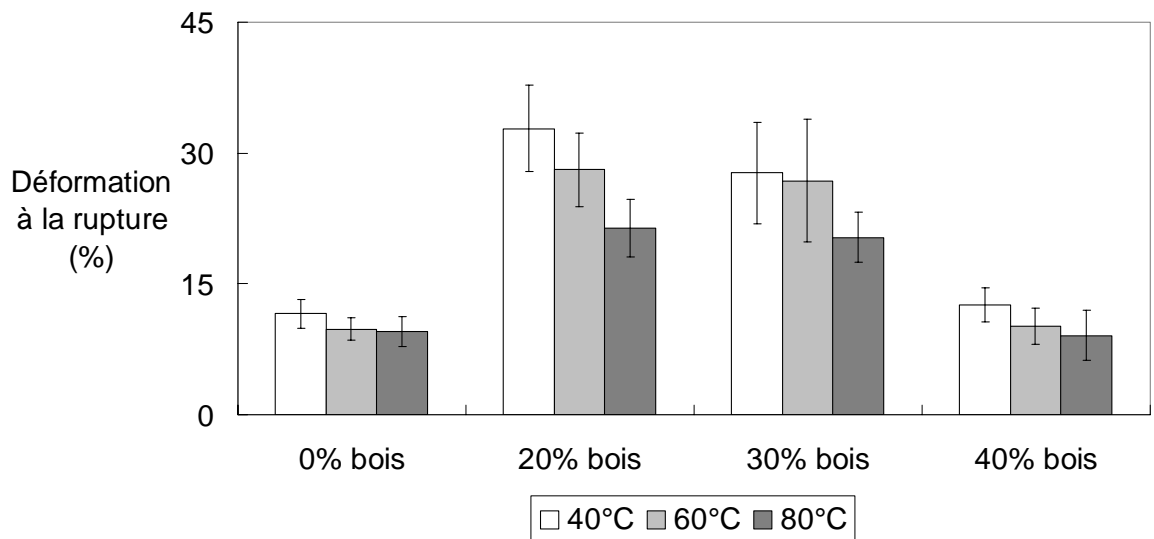


**Figure 4.36.** Déformation à la rupture en traction pour les composites moussés et non-moussés.

On voit d'abord que tous les échantillons ont un comportement fondamentalement fragile pour des matériaux thermoplastiques (valeurs faibles). Par contre, l'incorporation de fibres de bois permet une augmentation significative de l'élongation à la rupture en transférant une partie de la charge aux fibres. Bien que l'interface bois/plastiques soit relativement faible, l'incorporation de 20% de bois permet notamment de tripler l'élongation à la rupture lorsque non-moussé. La présence des fibres joue également un rôle bénéfique, bien que moins important, à l'intérieur des mousses. À ce sujet, les résultats de Paladugula et Shutov (1998) montrent que la déformation à la rupture des mousses augmente en fonction de la teneur en farine de bois et surpasse significativement celle des composites non-moussés lorsqu'elles sont moulées avec un agent couplant. Nos résultats montrent que les échantillons contenant 20% de bois subissent la plus grande déformation avant de céder. Un ajout supplémentaire de bois réduit cependant cette valeur en diminuant la composante viscoélastique du composite. De plus, la teneur en agent gonflant n'a pas d'effet sur la déformation à la rupture des mousses.

Par contre, on observe que la déformation ultime diminue avec la température du moule (Figure 4.37). Ceci est le seul paramètre mécanique étudié qui présente une sensibilité envers la température: le temps de refroidissement. Selon Doroudiani et al. (1996), le taux

de cristallinité croît fortement avec le temps de refroidissement. De surcroît, Thomas et al. (2004) affirment que la déformation plastique des polymères semi-cristallins est gouvernée par la phase amorphe. Selon eux, les bandes de cisaillement se forment et croissent d'abord dans les zones amorphes avant de traverser les zones cristallines. Ainsi, les composites injectés dans un moule plus chaud présentent de plus faibles déformations plastiques.



**Figure 4.37.** Déformation à la rupture en traction fonction de la température du moule.

# **Chapitre 5**

## **Conclusions et recommandations**

### **5.1 Conclusion générale**

Cette étude avait pour but de produire et d'étudier des mousses composites bois/polymère produites par une méthode de moulage par injection. Ces composites sont constitués de résidus de sciure (fibres de bouleau jaune) et d'une matrice de polyoléfines recyclées (HDPE/PP). Un agent gonflant chimique à base d'azodicarbonamide (ACA) a été utilisé dans le cadre de cette recherche. Les travaux avaient également pour but d'analyser l'effet des paramètres de mise en œuvre sur la morphologie cellulaire et les propriétés mécaniques des échantillons. Des mousses injectées à différents teneurs en bois, températures de moule et concentrations d'agent gonflant ont été produites. Des échantillons non-moussés ont également été moulés dans un but de comparaison. Les matières premières ont d'abord été mélangées dans une extrudeuse Leistritz bi-vis puis injectées sur une presse à injection Nissei de 551,6 kN de force de fermeture. Les échantillons ont été moussés à basse pression par expansion libre dans un moule partiellement rempli.

Afin d'étudier ces matériaux, un plan expérimental de 36 niveaux a été choisi. L'effet des fibres a d'abord été analysé en variant la teneur en bois de 0, 20, 30 et 40%. Cette plage a été jugée suffisante puisque les fibres ne sont pas parfaitement encapsulées par la résine lorsque la teneur en bois est supérieure à 40% en volume. Trois températures de moule (40, 60 et 80°C) ont également été étudiées afin de déterminer l'effet de la vitesse de refroidissement et du taux de cristallisation incident sur les propriétés mécaniques. Enfin, trois teneurs en agent gonflant ont été comparées (0, 1 et 1,5 phr). Les échantillons moussés ont été injectés de manière à assurer que les pièces comportant 1 et 1,5 phr ACA aient la même densité. On peut ainsi comparer leur structure et propriétés dans des conditions similaires.

L'analyse microscopique des mousses avait pour but de déterminer le diamètre cellulaire, la densité de nucléation ainsi que la morphologie des fibres de bois. Dans un premier temps, la rondeur des cellules a dû être évaluée afin de valider la méthode utilisée pour estimer le diamètre cellulaire. Nous avons montré que les cellules étaient caractérisées par un léger allongement dans le sens de l'écoulement mais qu'il était insuffisant pour rejeter l'hypothèse de sphéricité des cellules. Ainsi, le diamètre cellulaire moyen a été estimé à 58 microns. La morphologie cellulaire diminue légèrement avec la teneur en ACA, varie peu avec la température du moule et augmente significativement avec la teneur en bois. Cette augmentation est associée à l'augmentation de la viscosité du fondu observée lors de l'analyse rhéologique des composites. La densité de nucléation a ensuite été analysée. Ces mousses dénombrent entre  $5 \times 10^5$  et  $3 \times 10^6$  cellules/cm<sup>3</sup>; la densité de nucléation variant inversement à la fraction de bois présente dans la matrice. Par ailleurs, l'épaisseur de peau moyenne est de 478 microns. Elle est proportionnelle à la teneur en bois mais varie inversement à la température du moule et de la concentration en ACA.

La justesse des observations microscopiques a pu être vérifiée en calculant la fraction de vide des mousses. En effet, la fraction de vide peut être obtenue par deux méthodes. Soit elle est obtenue à partir de la densité réduite des échantillons ou en la calculant à partir d'analyses microscopiques. Bien que ces méthodes fournissent des estimations similaires de la fraction de vide, la méthode basée sur les paramètres microscopiques fournit des résultats 13% inférieurs. On peut donc conclure que l'analyse microscopique fournit généralement une bonne représentation de la morphologie cellulaire. Enfin, les fibres de bois faisant partie des composites ont également été observées. La longueur des fibres passe de  $2,20 \times 10^3$  microns initialement à  $1,00 \times 10^3$ ,  $0,85 \times 10^3$  et  $0,70 \times 10^3$  microns pour des teneurs de bois respectives de 20, 30 et 40%. Par ailleurs, la longueur adimensionnelle (rapport L/D) des fibres demeure relativement inchangée par la mise en œuvre quelle que soit la charge de bois utilisée.

Finalement, les propriétés mécaniques en flexion, torsion, impact et traction des composites ont été évaluées. L'utilisation de modules réduits a permis de mettre en valeur l'effet des

fibres de bois et des cellules de gaz. Les tests de flexion et de torsion peuvent être analysés simultanément. On voit que le module réduit augmente significativement avec la teneur en bois et est relativement insensible au moussage. Par contre, cette augmentation est six fois supérieure en flexion qu'elle ne l'est en torsion; ceci implique que le transfert de charge entre la matrice et les fibres dépend fortement de la nature de la contrainte appliquée.

Les tests en traction montrent que le module élastique augmente faiblement avec la présence du bois tandis qu'il diminue de 20% lorsque l'échantillon est moussé, et ce, indépendamment de la quantité de bois présente. La contrainte maximale, ainsi que la déformation qui lui est associée, est diminuée de moitié lorsqu'on compare la matrice polymère au composite contenant 40% bois. Par ailleurs, les tests en impact et en traction fournissent des informations sur le comportement des échantillons à de grandes concentrations de contraintes. Les tests de résistance à l'impact et de déformation à la rupture en traction atteignent des valeurs maximales pour des concentration de 20 à 30% bois mais diminuent lorsque la concentration de bois atteint 40%. Ce comportement met en évidence la faiblesse de l'interface bois/plastiques en l'absence d'un agent de modification d'interface.

Enfin, la teneur en azodicarbonamide influence légèrement la morphologie cellulaire. Son augmentation agit à la fois comme agent gonflant et comme agent de nucléation. Cependant, sa concentration n'influence pas les propriétés mécaniques. À l'intérieur de la plage de concentrations étudiée, il semblerait que les propriétés en flexion, torsion, traction et impact soient uniquement dictées par la densité finale de la pièce à l'intérieur. Contrairement aux résultats de Bledzki et Faruk (2004), nos résultats ne permettent pas d'affirmer que la température du moule soit un facteur important dans le moulage par injection de mousses composites recyclées. En fait, seules l'épaisseur de peau et la déformation finale en traction semblent sensibles à ce paramètre.



## 5.2 Recommandations

Un approvisionnement de matériaux post-consommation ne peut demeurer parfaitement constant. Ainsi, pour assurer la validité des résultats obtenus dans ce travail, il faudrait varier la composition de la résine utilisée en plus de vérifier l'effet de diverses essences de bois. En effet, Jose et al. (2004) ainsi que Bertin et Robin (2002) ont observé que les propriétés des mélanges de polymères sont sensibles à la proportion dans laquelle se retrouvent les constituants tandis que Li et Wolcott (2004) ont notés des grandes différences de comportement causées par la nature du bois utilisé.

Par ailleurs, l'utilisation d'un agent gonflant doté d'une température de décomposition inférieure minimiserait la décomposition du bois. Khodabakhsh (2004), par exemple, a utilisé un agent gonflant chimique à base de ACA activé par un oxyde de zinc. Dans ce cas, la température de décomposition varie entre 165 et 180°C seulement.

La méthode préconisée lors de nos expériences faisait appel au séchage des fibres au moment de l'extrusion préliminaire. Cette méthode est basée sur la croyance que les fibres demeureraient parfaitement anhydre à l'intérieur de l'extrudé à cause de l'effet encapsulant du polymère. Bledzki et Faruk (2004) proposent cependant d'effectuer un second séchage au moment de l'injection afin d'éliminer toute accumulation d'humidité post-extrusion.

Par la suite, Douglas et al. (2004) proposent d'effectuer le mélange préliminaire avec une extrudeuse mono-vis afin de minimiser le cisaillement et la dégradation mécanique des fibres. En effet, la géométrie de la vis utilisée comporte des blocs de malaxage (*kneading blocks*) qui assurent l'uniformisation de fondu en créant de forts cisaillements. L'adoption d'une géométrie moins agressive pourrait conserver la taille des fibres dans le produit fini et ultimement en améliorer les propriétés.

Aucune estimation du taux de cristallinité n'a été fait. Il est raisonnable de croire qu'il est influencé par la température du moule (i.e. le taux de refroidissement), la proportion dans laquelle se retrouvent les divers constituants ainsi que la présence des cellules. Par ailleurs,

le taux de cristallinité pourrait avoir un effet significatif sur la structure cellulaire ainsi que les propriétés mécaniques des échantillons.

De plus, aucun critère statistique n'a été employé dans l'analyse des résultats parce que le plan expérimental n'a pas été conçu à cet effet. Ni une analyse de type ANOVA ou t-test ne se prêtait facilement à l'analyse. Nous avons analysé l'effet de deux niveaux de ACA et trois niveaux de température de moule sur la morphologie cellulaire. Bien que le t-test soit adéquat pour étudier l'influence de l'agent gonflant, il n'est pas adéquat pour la température du moule. Le contraire est également vrai pour l'analyse ANOVA. Il faudrait donc uniformiser le nombre de niveaux compris dans chaque test afin d'appliquer un critère statistique commun.

Enfin, ce type de matériau pourrait un jour trouver des applications industrielles. Si tel est le cas, il sera durement éprouvé et devra répondre adéquatement aux méthodes de manutentions inhérentes au domaine. Il faudrait donc effectuer des tests d'impact sous différentes conditions sur tous les échantillons produits, qu'ils soient moussés ou non, afin d'assurer la fiabilité. Par ailleurs, la grande variabilité observée dans cette étude peut directement être liée au faible rapport entre la taille des échantillons produits et celle des fibres de bois incorporées dans la matrice. Toute production industrielle destinée à la fabrication de pièces de dimension plus élevée ne serait vraisemblablement pas affligée par une telle variabilité.

## Bibliographie

- Albert Forest Products : [www.city-net.com](http://www.city-net.com) (2003), dernière visite : 27 septembre 2004.
- BCC : [www.bccresearch.com](http://www.bccresearch.com) (2001), dernière visite : 28 septembre 2004.
- Bertin S. et Robin J., *Study and characterization of virgin and recycled LDPE/PP blends*, European Polymer Journal, **38**, 2255-2264 (2002).
- Bledzki A.K. et Faruk O., *Microcellular wood fibre reinforced polypropylene composites in an injection moulding process*, Cellular Polymers, **21**, 417-428 (2002).
- Bledzki A.K. et Faruk O., *Microcellular wood fiber reinforced polypropylene composites : A comparative study between injection molding and extrusion process*, ANTEC Annual Technical Conference, 503 (2004).
- Brinkmann : [www.brinkmann.com](http://www.brinkmann.com) (2004), dernière visite : 18 novembre 2004.
- Business Wire : [www.composite.about.com](http://www.composite.about.com) (2004), dernière visite : 23 septembre 2004.
- Clariant : [www.flameretardants-online.com](http://www.flameretardants-online.com) (1998), dernière visite : 23 septembre 2004.
- Clemons : [www.fpl.fs.fed.us](http://www.fpl.fs.fed.us) (2002), dernière visite : 23 septembre 2004.
- Douglas P., Murphy W.R. et McNally G.M., *The effect of surface active agent on the mechanical properties of wood-polymer composites*, ANTEC Annual Technical Conference, 310 (2004).
- Doroudiani S., Park C.B. et Kortschot M.T., *Effect of the crystallinity and morphology on the microcellular foam structure of semicrystalline polymers*, Polymer Engineering and Science, **35**, 2645-2642 (1996).
- Doroudiani S., Kortschot M.T. et Park C.B., *Structure and mechanical properties study of foam wood fiber/polyethylene composites*, ANTEC Annual Technical Conference, 541 (1997).
- Doroudiani S., Park C. et Kortschot M.T., *Processing and characterization of microcellular foamed high-density polyethylene/isotactic polypropylene blends*, Polymer Engineering and Science, **38**, 1205-1215 (1998).
- DSM : [www.dsm.com](http://www.dsm.com) (2004), dernière visite : 7 octobre 2004.
- Folkes M.J. et Kells D., *Fundamental considerations in the injection processing of fibre reinforced thermoplastics*, Plastics and Rubber Processing and Applications, **5**, 125-131 (1985).

- Gao Z. et Tsou A.H., *Mechanical properties of polymers containing fillers*, Journal of Polymer Science, Part B: Polymer Physics, **37**, 155-172 (1999).
- Gauthier R., Gauthier H. et Joly C., *Compatibilization between lignocellulosic fibers and a polyolefin matrix*, The fifth international conference on woodfiber-plastic composites, 153-163 (1999).
- Gordon J.E., *The New Science of Strong Materials (or Why You Don't Fall Through the Floor)*. 2<sup>e</sup> Ed., Princeton University Press, Princeton, NJ, 179 (1988).
- Guo G., Rizvi G.M., Park C.B. et Lin W.S., *Critical processing temperature in the manufacture of fine-celled plastic/wood-fiber composite foams*, Journal of Applied Polymer Science, **91**, 621-629 (2004a).
- Guo G., Wang, K.H., Park C.B. Kim Y.S. et Li G., *Effects of nano-particles on density reduction and cell morphology of extruded MPE/wood-fiber/nanocomposites*, ANTEC Annual Technical Conference, 495 (2004b).
- Gutowski : [www.mit.edu](http://www.mit.edu) (2002), dernière visite : 13 décembre 2004.
- IDSA: [www.idsa-mp.org](http://www.idsa-mp.org) (2004), dernière visite : 22 septembre 2004.
- Industrial Research : [www.irl.cri.nz](http://www.irl.cri.nz) (2004), dernière visite : 19 février 2005.
- Instron : [www.instron.com](http://www.instron.com) (2005), dernière visite : 23 mars 2005.
- Inventors : [www.inventors.about.com](http://www.inventors.about.com) (2004), dernière visite : 29 septembre 2004.
- IRC : [www.irc.nrc-cnrc.gc.ca](http://www.irc.nrc-cnrc.gc.ca) (2004), dernière visite : 1 octobre 2004.
- Jessome A.P., *Résistance et Propriétés Connexes des Bois Indigènes au Canada*, Rapport Technique de Foresterie, Ottawa, 18 (1977).
- Jose S., Aprem A.S., Francis B., Chandy M.C., Werner P., Alstaedt V. et Thomas S., *Phase morphology, crystallisation behaviour and mechanical properties of isotactic polypropylene/high density polyethylene blends*, European Polymer Journal, **40**, 2105-2115 (2004).
- Kasliwal S.G. et Jones J.W., *Gentle compounding of natural fibre filled PVC composites*, ANTEC Annual Technical Conference, 052 (2004).
- Klempner D. et Frisch K.C., *Handbook of Polymeric Foams and Foam Technology*, Hanser Publishers, Munich (1991).
- Khodabakhsh R., *Extrusion of a chemically foamed thermoplastic elastomer*, Mémoire de M.S., Département de génie chimique, Université Laval, Canada (2004).

- Li Q. et Matuana L.M., *Foam extrusion of high density polyethylene/wood-flour composites using chemical foaming agents*, Journal of Applied Polymer Science, **88**, 3139-3150 (2003).
- Li T.Q. et Wolcott M.P., *Rheology of HDPE – wood composites. I. Steady state shear and extensional flow*. Composites: Part A, **35**, 303-311 (2004).
- Manchester : [www.umist.ac.uk](http://www.umist.ac.uk) (1997), dernière visite : 17 mars 2005.
- Mathematica : [www.efunda.com](http://www.efunda.com) (2005), dernière visite : 19 février 2005.
- Matsui H., Kitagawa K., Semba H., Okumara U., Ishiaku S. et Hamada H., *Mechanical properties of carbonized bamboo fiber reinforced biodegradable polymer composite*, ANTEC Annual Technical Conference, 311 (2004).
- Naval : [www.enviro.nfesc.navy.mil](http://www.enviro.nfesc.navy.mil) (1998), dernière visite : 27 novembre 2004.
- Net Composites : [www.netcomposites.com](http://www.netcomposites.com) (2004), dernière visite : 24 septembre 2004.
- Paladugula J. et Shutov F., *Study of porous artificial wood based on foamable composites of LDPE wood flour*, ANTEC Annual Technical Conference, 44 (1998).
- Pfannschmidt O. et Michaeli W., *Foam injection molding of thermoplastics loaded with carbon dioxide prior to processing*, ANTEC Annual Technical Conference, 27 (1999).
- Plymouth : [www.plymouth.ac.uk](http://www.plymouth.ac.uk) (2005), dernière visite : 15 mars 2005.
- Rachtanapun P., Selke S.M. et Matuana L.M., *Relationship between cell morphology and impact strength of microcellular foamed high-density polyethylene/polypropylene blends*, Polymer Engineering and Science, **44**, 1551-1560 (2004).
- Rizvi G., Matuana L.M. et Park C.B., *Foaming of PS/wood fiber composites using moisture as a blowing agent*, Polymer Engineering and Science, **40**, 2124-2132 (2000).
- Rizvi G.M. et Park C.B., *Production of fine-celled HDPE/wood-fiber composite foams using an innovative system design*, Cellular and Microcellular Materials, 83-92 (2000).
- Rodrigue D. et Leduc S., *The influence of injection molding conditions and polymer composition on skin thickness and flexural properties of HDPE structural foams*, PPS-19, Polymer Processing Society, 41 (2003).
- Selke S.E. et Wichman I., *Wood fibre/polyolefin composites*, Composites : Part A, **35**, 321-326 (2004).
- SFC : [www.sfc.fr](http://www.sfc.fr) (2004), dernière visite : 1 octobre 2004.

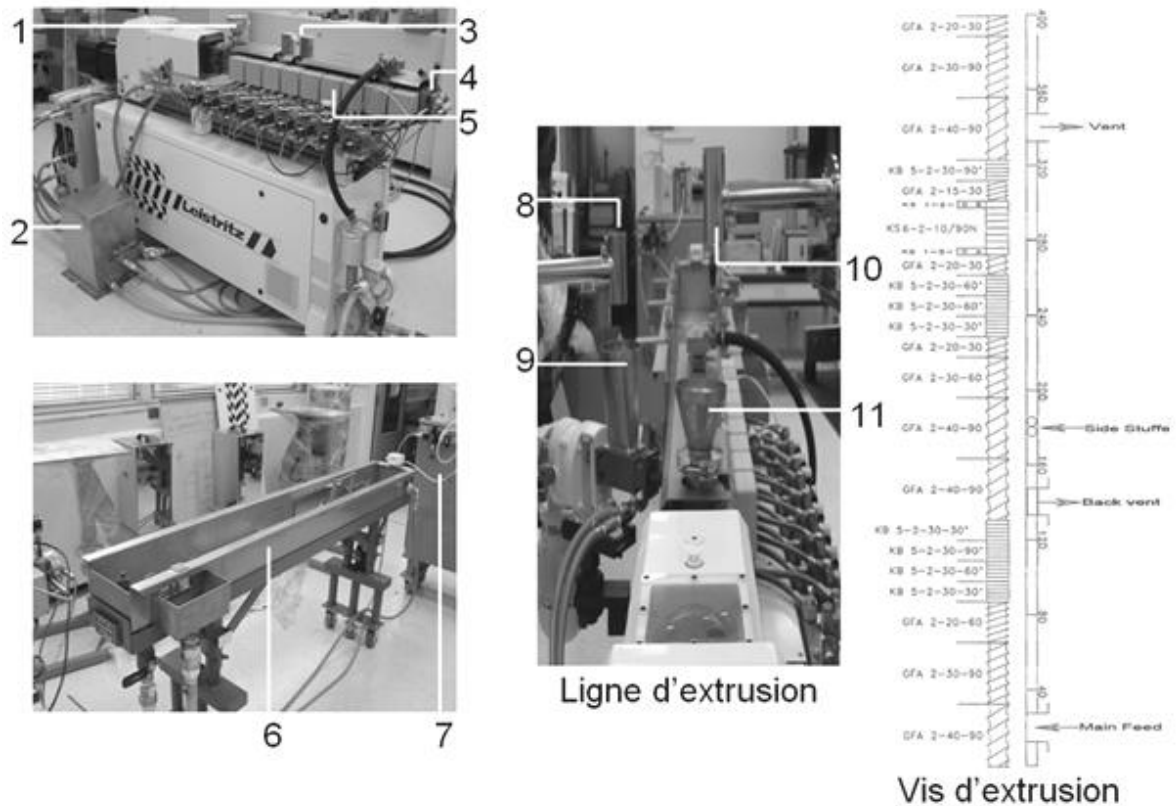
- Shaft M.A. et Flumerfelt R.W.: *Initial bubble growth in polymer foam processes*, Chemical Engineering Science, **52**, 627-633 (1997).
- Soarnol : [www.soarnol.com](http://www.soarnol.com) (2003), dernière visite : 30 septembre 2004.
- Stark N.M., *Wood fiber derived from scrap pallets used in polypropylene composites*, Forest Products Journal, **49**, 39-46 (1999).
- Stark N. et Berger M., *Effect of species and particle size on properties of wood-flour- filled polypropylene composites*, Conference Proceedings: Functional Fillers for Thermoplastics and Thermosets, Madison, 119 (1997).
- Steinbichler G., Kragl J., Pierick D. et Jacobsen K., *Injection moulding of structural foam*, Kunststoffe Plastic Europe, **89**, 15-17 (1999).
- Sun X., Liu H., Li G., Liao X. et He J., *Investigation on the cell nucleation and cell growth in microcellular foaming by means of temperature quenching*, Journal of Applied Polymer Science, **93**, 163-171 (2004).
- Tampereen : [www.tut.fi](http://www.tut.fi) (2004), dernière visite : 4 octobre 2004.
- Thomas C., Ferreiro V. et Coulon G., *Influence du taux de cristallinité sur les nanomécanismes de plasticité dans les polymères semi-cristallins*, Forum des microscopies à sonde local, 38 (2004).
- Throne J.L., Thermoplastic Foams, Sherwood Publishers, Hinckley, OH, 125-362 (1996).
- Trexel : [www.trexel.com](http://www.trexel.com) (2003), dernière visite : 7 octobre 2004.
- Umaine : [www.umaine.edu](http://www.umaine.edu) (2003), dernière visite : 24 août 2004.
- Uniroyal Chemical : [www.harwickstandard.com](http://www.harwickstandard.com) (1997), dernière visite : 16 février 2005.
- Villamizar C.A. et Han C.D., *Studies on structural foam processing II. Bubble dynamics in foam injection molding*, Polymer Engineering and Science, **18**, 699-710 (1978).
- Waste Watch : [www.wasteonline.org.uk](http://www.wasteonline.org.uk) (2004), dernière visite : 16 novembre 2004.
- Wrap : [www.wrap.org.uk](http://www.wrap.org.uk) (2003), dernière visite : 24 août 2004.
- Zhang S., Preparation and Characterization of Polypropylene/Wood Composite Foams, Mémoire de M.S., Département de génie chimique, Université Laval, Canada (2004).
- Zhang Y., Rodrigue D. et Aït-Kadi A., *Torsion properties of high density polyethylene foams*, Journal of Cellular Plastics, **39**, 451-474 (2003).

Zhang Y. et Rodrigue D., *Polyethylene-Kevlar composite foams III: Torsion properties*, Cellular Polymers, **24**, 1-14 (2005).

# Annexes

## A1. Schémas de montage

### Extrudeuse

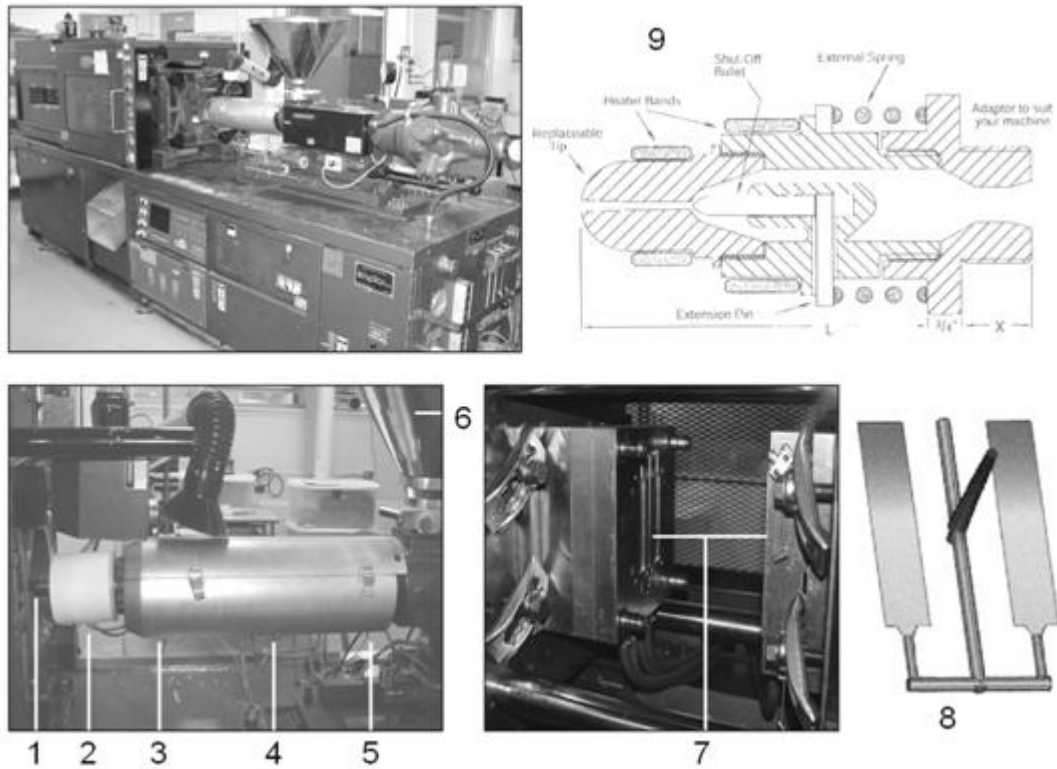


**Figure A01.** Photographies de l'extrudeuse Leistritz.

1. Trémie d'alimentation primaire
2. Circuit de refroidissement d'eau
3. Trémie d'alimentation secondaire
4. Filière
5. Fourreau
6. Bain d'eau
7. Granulateur
8. Alimentateur secondaire
9. Trémie d'alimentation secondaire
10. Alimentateur primaire
11. Trémie d'alimentation primaire



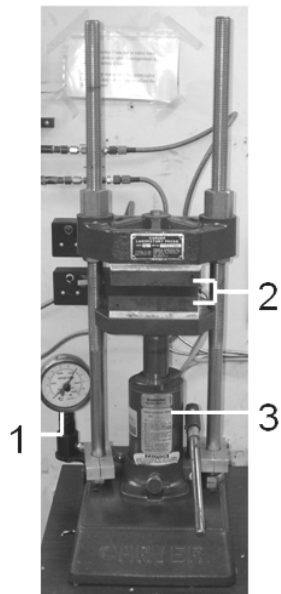
## Presse à injection



**Figure A02.** Photographies de la presse à injection Nissei.

1. Buse machine
2. Zone 4, « *Nozzle* »
3. Zone 3, « *Front* »
4. Zone 2, « *Middle* »
5. Zone 1, « *Rear* »
6. Trémie d'alimentation
7. Surfaces du moule
8. Schéma de l'empreinte du moule
9. Schéma de la buse à valve d'obstruction

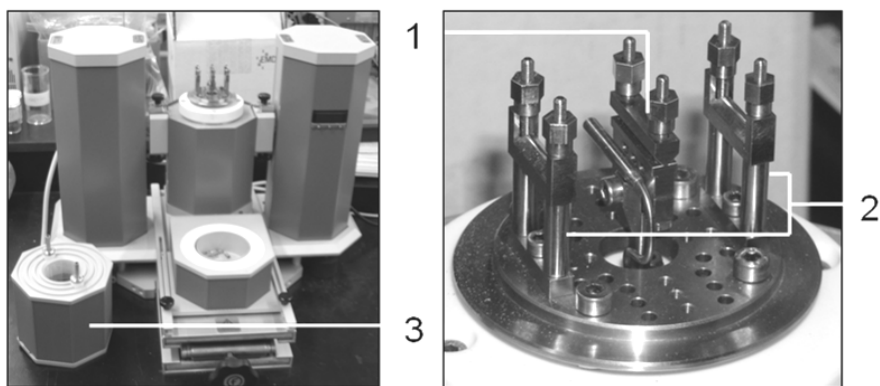
## Presse à compression



**Figure A03.** Photographies de la presse à compression Carver.

1. Manomètre
2. Plaques chauffantes
3. Piston hydraulique

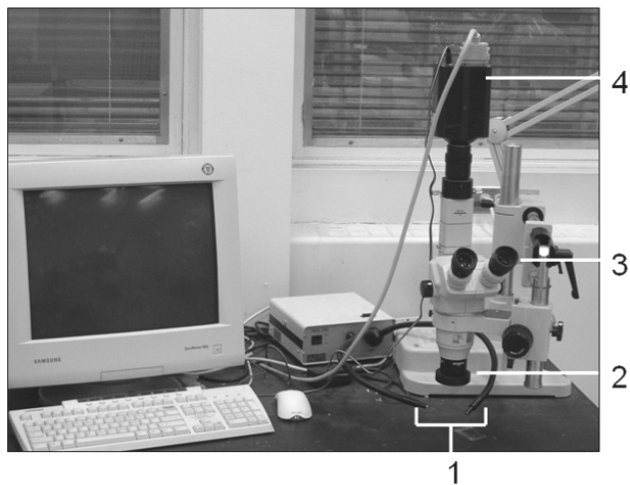
## Flexion



**Figure A04.** Photographies du Tritec 2000 DMA.

1. Pince dynamique
2. Pinces statiques
3. Four

## Microscope



**Figure A05.** Photographies du microscope Olympus.

1. Source d'illumination (fibre optique)
2. Lentille
3. Oculaires
4. Caméra numérique

## Rhéologie et torsion



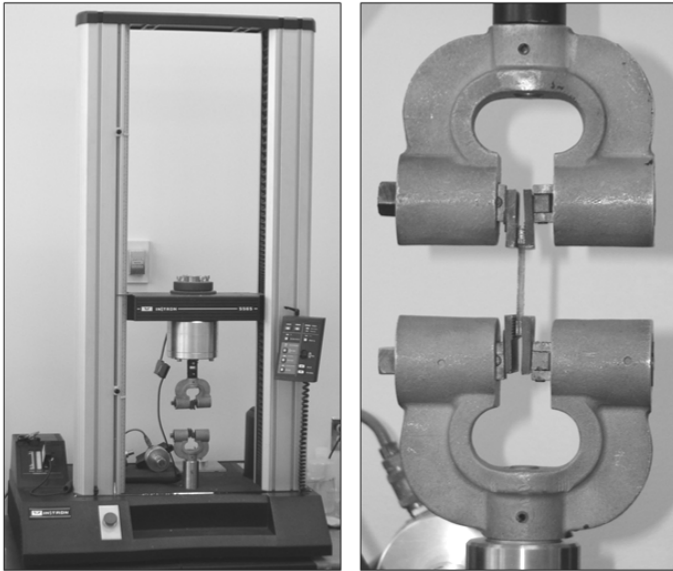
Tests en  
torsion



Tests  
rhéologiques

**Figure A06.** Photographies de l'ARES de Rheometric Scientific.

## Traction



**Figure A07.** Photographies de l'Instron 5565.

## Impact



**Figure A08.** Photographies du Mini-Tower Dynatup de Instron (Tiré de Instron, 2005)

## A2. Conditions d'injection

**Tableau A1.** Paramètres d'injection utilisés pour 0% bois moussé.

Temps d'injection	1 s
Vitesse de rotation de la vis	35%
Course totale de la vis	31,5 mm
Distance de recul de la vis après l'accumulation	0 mm
Pression d'injection [P3, P2, P1]	[30-30-90%]
Vitesse d'injection [V4, V3, V2, V1]	[90-90-90-90%]

**Tableau A2.** Paramètres d'injection utilisés pour 0% bois non-moussé.

Temps d'injection	3 s
Vitesse de rotation de la vis	35%
Course totale de la vis	37,5 mm
Distance de recul de la vis après l'accumulation	1 mm
Pression d'injection [P3, P2, P1]	[30-30-50%]
Vitesse d'injection [V4, V3, V2, V1]	[90-90-90-90%]

**Tableau A3.** Paramètres d'injection utilisés pour 20% bois moussé.

Temps d'injection	1 s
Vitesse de rotation de la vis	30%
Course totale de la vis	31 mm
Distance de recul de la vis après l'accumulation	0 mm
Pression d'injection [P3, P2, P1]	[30-30-90%]
Vitesse d'injection [V4, V3, V2, V1]	[90-90-90-90%]

**Tableau A4.** Paramètres d'injection utilisés pour 20% bois non-moussé.

Temps d'injection	3 s
Vitesse de rotation de la vis	30%
Course totale de la vis	37,5 mm
Distance de recul de la vis après l'accumulation	1 mm
Pression d'injection [P3, P2, P1]	[30-30-50%]
Vitesse d'injection [V4, V3, V2, V1]	[90-90-90-90%]

**Tableau A5.** Paramètres d'injection utilisés pour 30% bois moussé.

Temps d'injection	1 s
Vitesse de rotation de la vis	30%
Course totale de la vis	32,5 mm
Distance de recul de la vis après l'accumulation	0 mm
Pression d'injection [P3, P2, P1]	[30-30-90%]
Vitesse d'injection [V4, V3, V2, V1]	[90-90-90-90%]

**Tableau A6.** Paramètres d'injection utilisés pour 30% bois non-moussé.

Temps d'injection	3 s
Vitesse de rotation de la vis	30%
Course totale de la vis	37,5 mm
Distance de recul de la vis après l'accumulation	1 mm
Pression d'injection [P3, P2, P1]	[30-30-50%]
Vitesse d'injection [V4, V3, V2, V1]	[90-90-90-90%]

**Tableau A7.** Paramètres d'injection utilisés pour 40% bois moussé.

Temps d'injection	1 s
Vitesse de rotation de la vis	30%
Course totale de la vis	34 mm
Distance de recul de la vis après l'accumulation	0 mm
Pression d'injection [P3, P2, P1]	[30-30-90%]
Vitesse d'injection [V4, V3, V2, V1]	[90-90-90-90%]

**Tableau A8.** Paramètres d'injection utilisés pour 40% bois non-moussé.

Temps d'injection	3 s
Vitesse de rotation de la vis	30%
Course totale de la vis	37,5 mm
Distance de recul de la vis après l'accumulation	1 mm
Pression d'injection [P3, P2, P1]	[30-30-50%]
Vitesse d'injection [V4, V3, V2, V1]	[90-90-90-90%]

### A3. Analyses thermiques

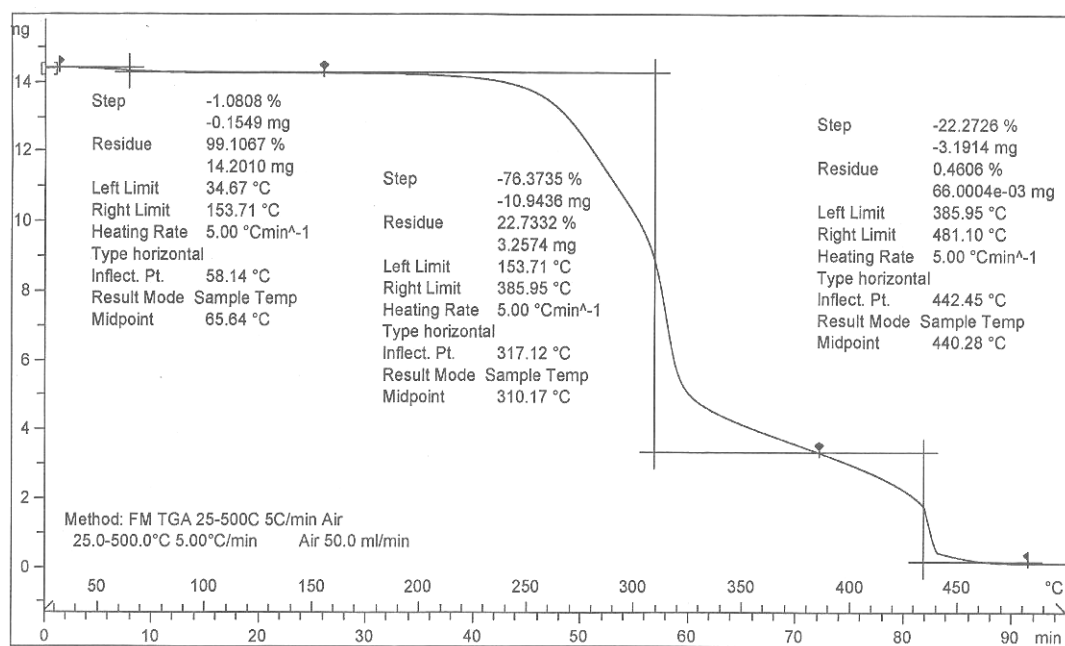


Figure A09. Courbe TGA de la sciure de bois séchée.

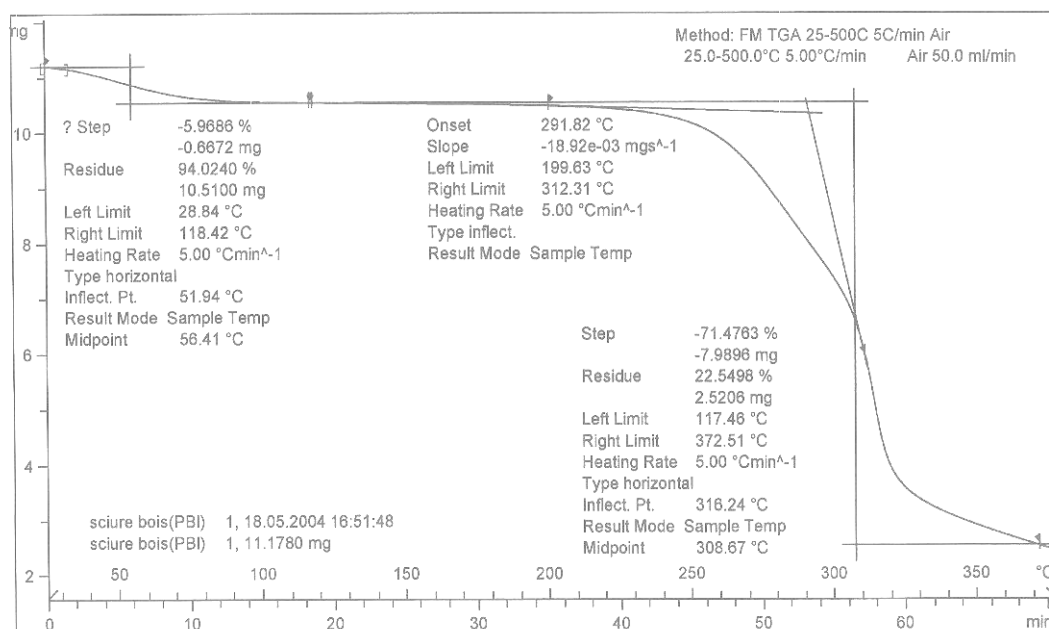


Figure A10. Courbe TGA de la sciure de bois non-séchée.

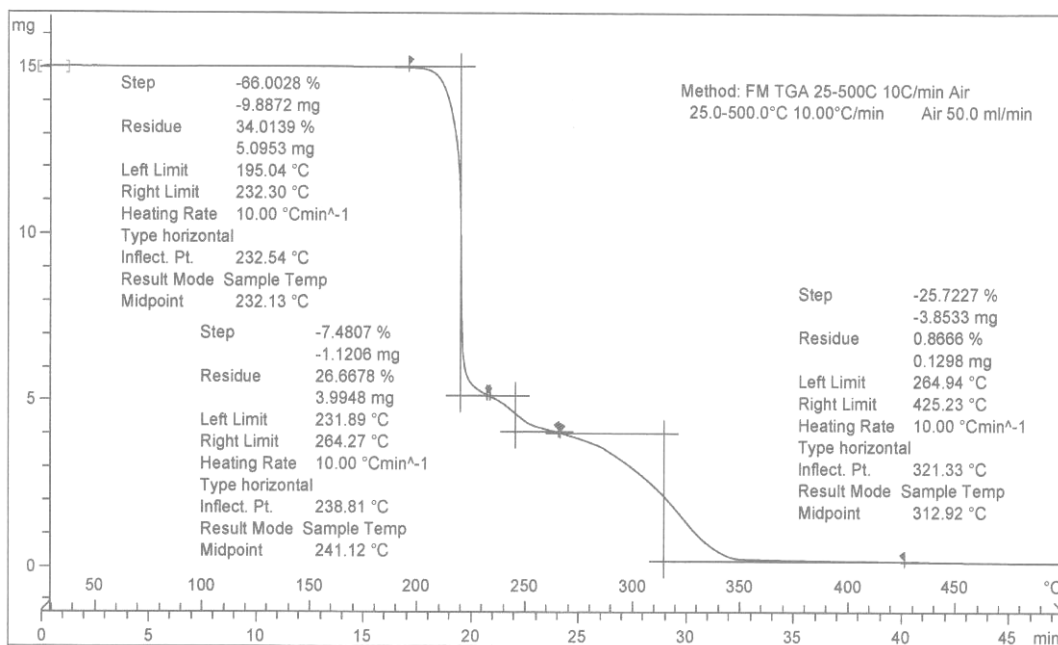


Figure A11. Courbe TGA de l'agent gonflant ACA.

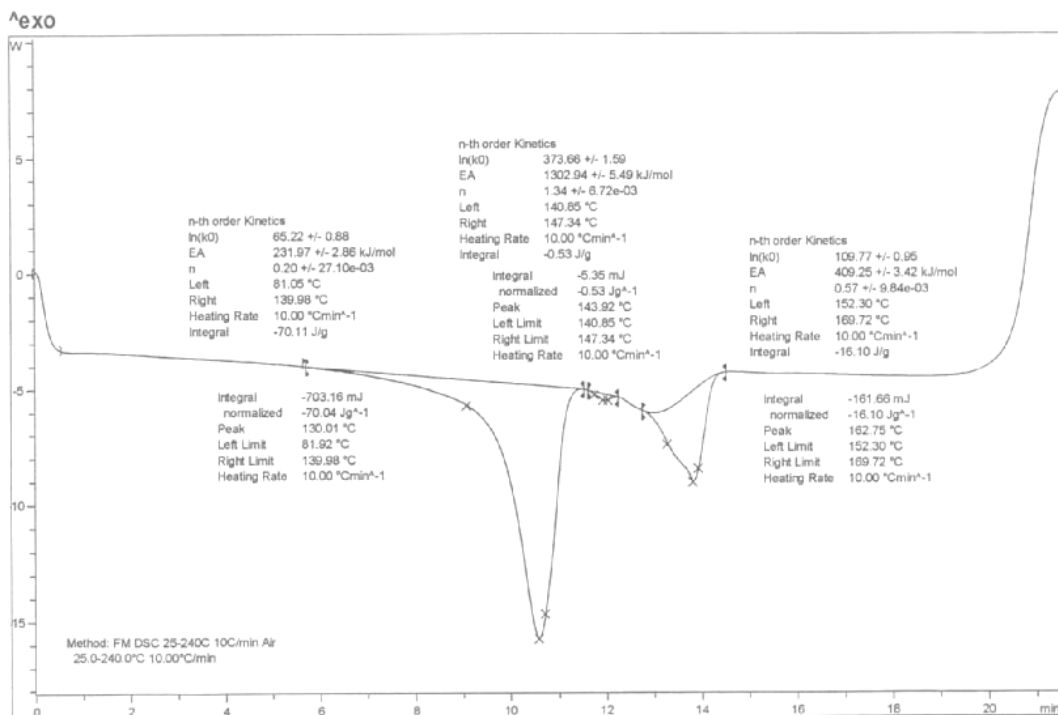


Figure A12. Courbe DSC de la résine recyclée.



#### A4. Résultats rhéologiques

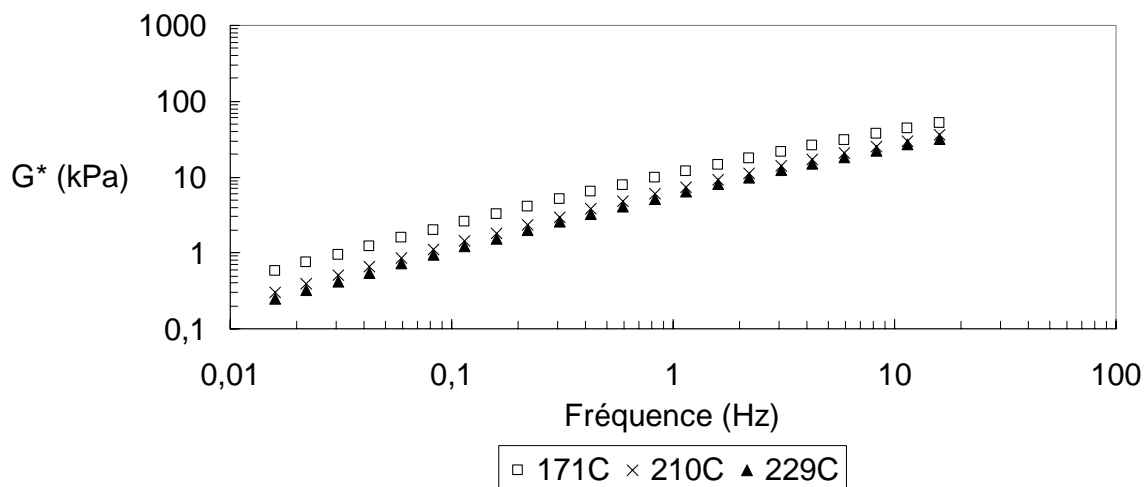


Figure A13. Module complexe en fonction de la température pour 0% bois.

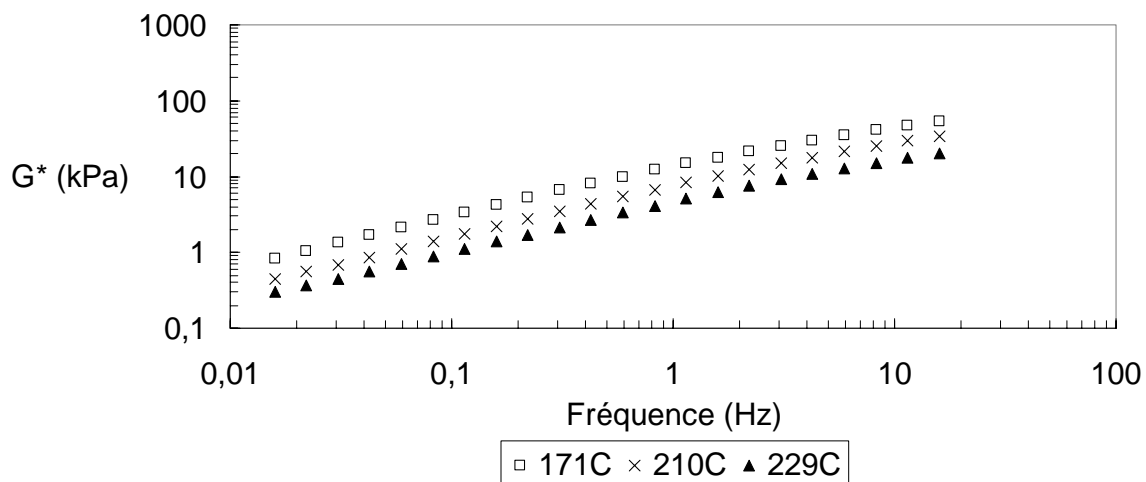
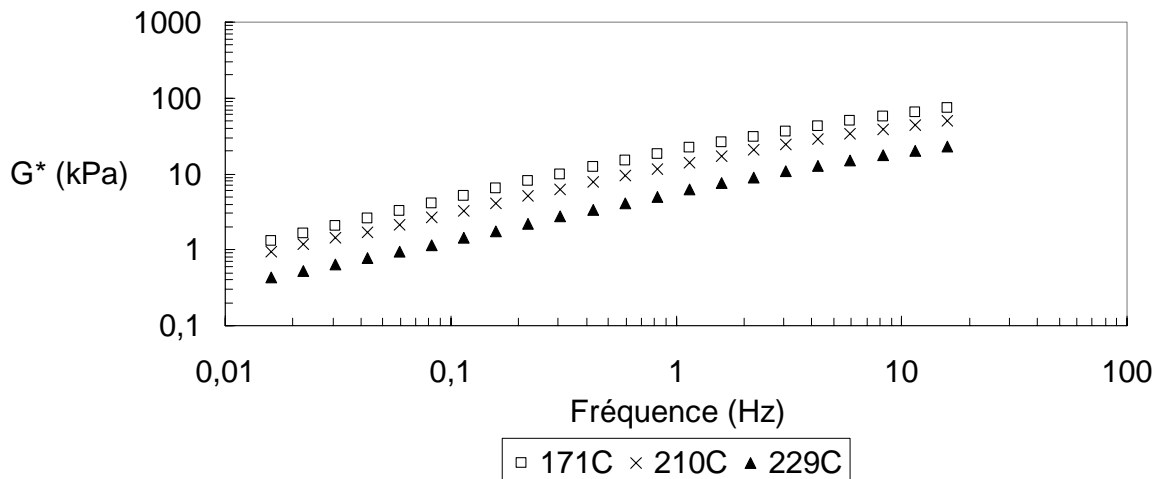
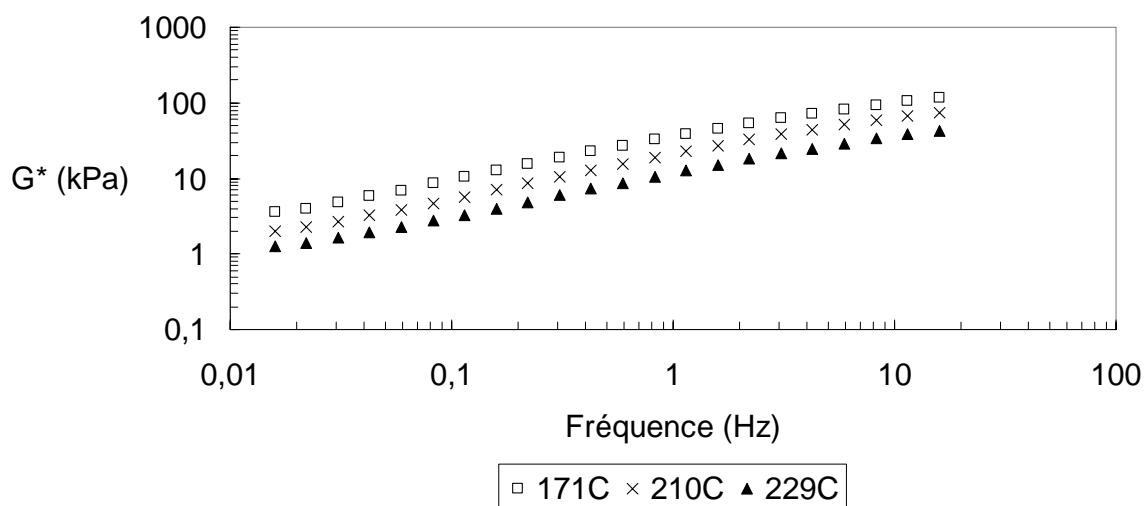


Figure A14. Module complexe en fonction de la température pour 20% bois.

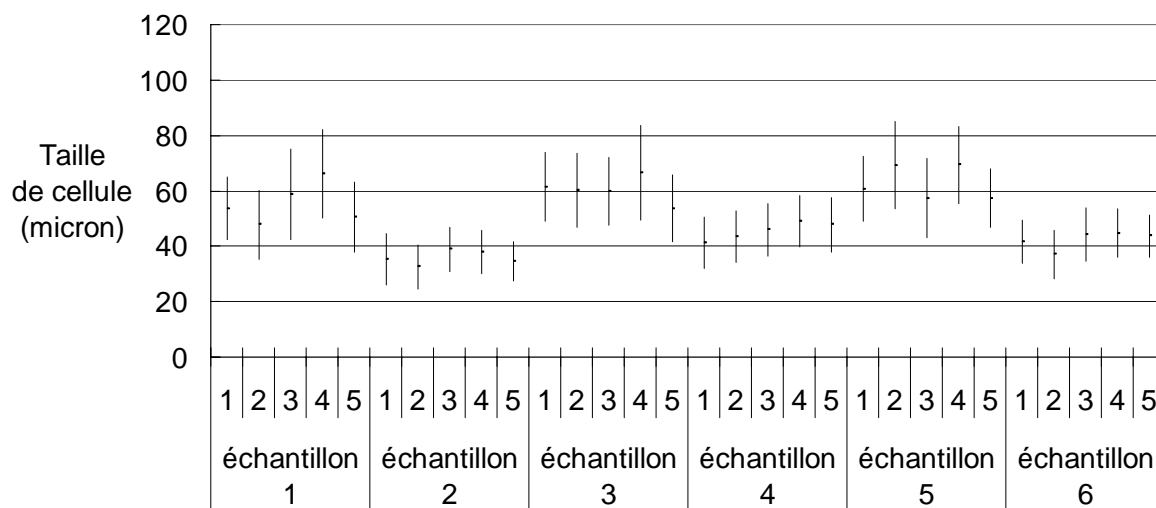


**Figure A15.** Module complexe en fonction de la température pour 30% bois.

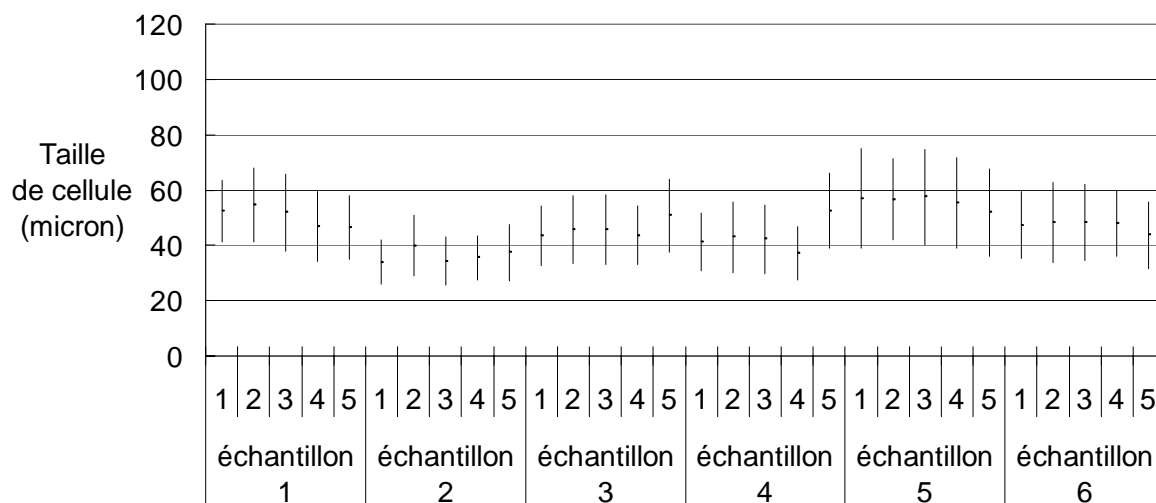


**Figure A16.** Module complexe en fonction de la température pour 40% bois.

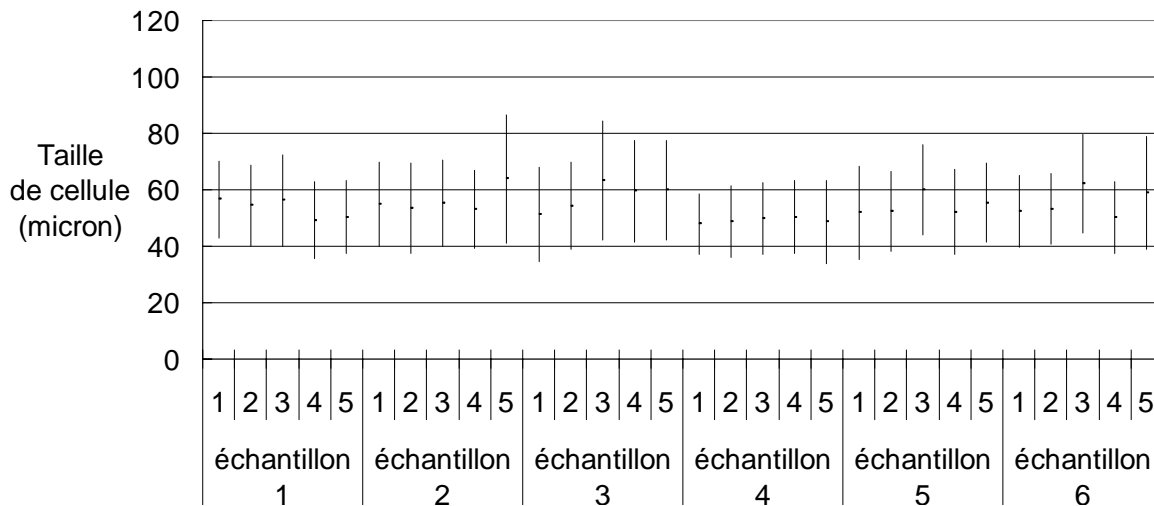
### A5. Taille de cellule de tous les échantillons



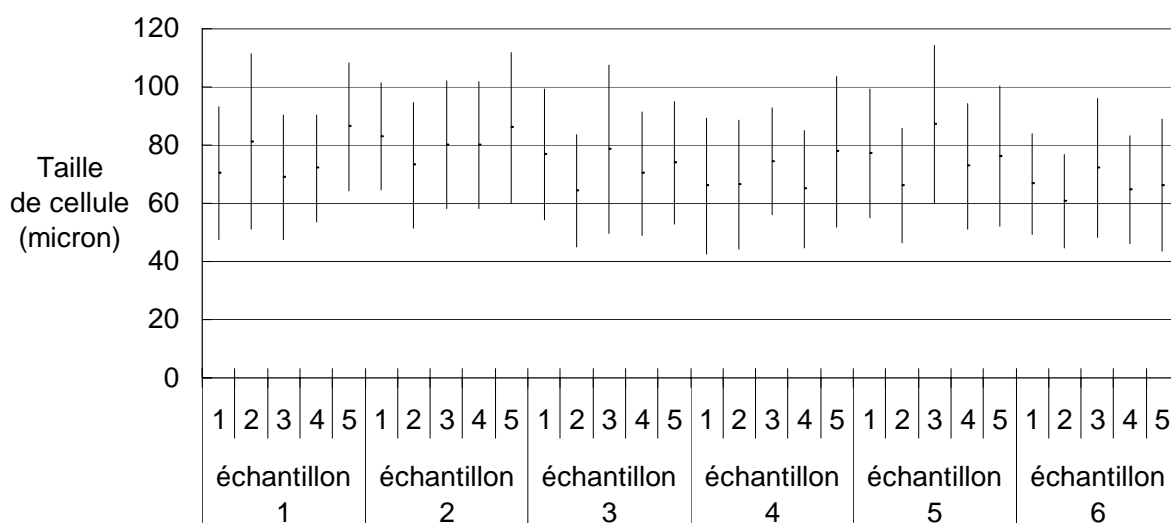
**Figure A17.** Taille des cellules de 0% bois.



**Figure A18.** Taille des cellules de 20% bois.



**Figure A19.** Taille des cellules de 30% bois.



**Figure A20.** Taille des cellules de 40% bois.

## A6. Densité cellulaire

Densité de nucléation:  $N_o = \frac{\text{Nombre de cellules}}{\text{Volume de polymère}}$

$$N_o = \frac{V_G / V_{bulle}}{V_P} = \frac{V_G}{V_P} \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) = \frac{V_F - V_P}{V_P} \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) = \left( \frac{V_F}{V_P} - 1 \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right)$$

$$N_o = \left( \frac{V_F / m_P}{V_P / m_P} - 1 \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) = \left( \frac{1 / \rho_F}{1 / \rho_P} - 1 \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) = \left( \frac{1 / \rho_F - 1 / \rho_P}{1 / \rho_P} \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right)$$

$$N_o = \left( \frac{\rho_P - \rho_F}{\rho_F} \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) = \left( \frac{\rho_P}{\rho_F} - 1 \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right)$$

$$\boxed{N_o = \left( \frac{\rho_P}{\rho_F} - 1 \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right)} \quad (\text{A1})$$

Densité de cellule:  $N_F = \frac{\text{Nombre de cellules}}{\text{Volume de mousse}}$

$$N_F = \frac{V_G / V_{bulle}}{V_F} = \frac{V_G}{V_F} \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) = \frac{V_F - V_P}{V_F} \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) = \left( 1 - \frac{V_P}{V_F} \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right)$$

$$N_F = \left( 1 - \frac{V_P / m_P}{V_F / m_P} \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) = \left( 1 - \frac{1 / \rho_P}{1 / \rho_F} \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) = \left( \frac{1 / \rho_F - 1 / \rho_P}{1 / \rho_F} \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right)$$

$$N_F = \left( \frac{\rho_P - \rho_F}{\rho_P} \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right) = \left( 1 - \frac{\rho_F}{\rho_P} \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right)$$

$$\boxed{N_F = \left( 1 - \frac{\rho_F}{\rho_P} \right) \left( \frac{6}{\pi d^3} \right)} \quad (\text{A2})$$

## A7. Rondeur de polygones

**Tableau A9.** Rondeur de polygones réguliers.

Forme	Nombre de cotés	Rondeur
Triangle	3	1,654
Carré	4	1,273
Pentagone	5	1,156
Hexagone	6	1,103
Heptagone	7	1,073
Cercle	$\infty$	1,000

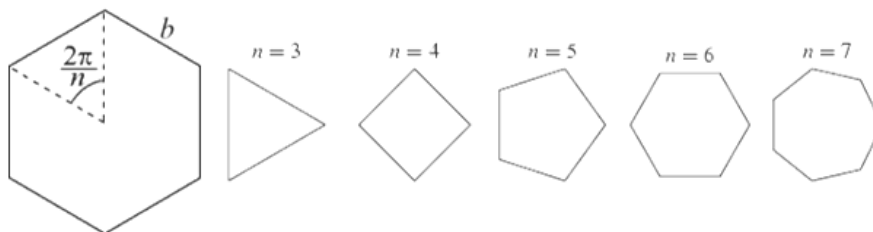
Nombre de cotés :  $n$

Longueur d'un côté :  $b$

$$\text{rondeur} = \frac{(\text{périmètre})^2}{4\pi(\text{aire})} \quad (\text{A3})$$

$$\text{périmètre} = nb \quad (\text{A4})$$

$$\text{aire} = \frac{1}{4}nb^2 \frac{\cos\left(\frac{\pi}{n}\right)}{\sin\left(\frac{\pi}{n}\right)} = \frac{nb^2}{4 \tan\left(\frac{\pi}{n}\right)} \quad (\text{A5})$$



**Figure A21.** Polygone à «  $n$  » côtés.  
Adapté de Mathematica (2005).

## A8. Résultats en flexion

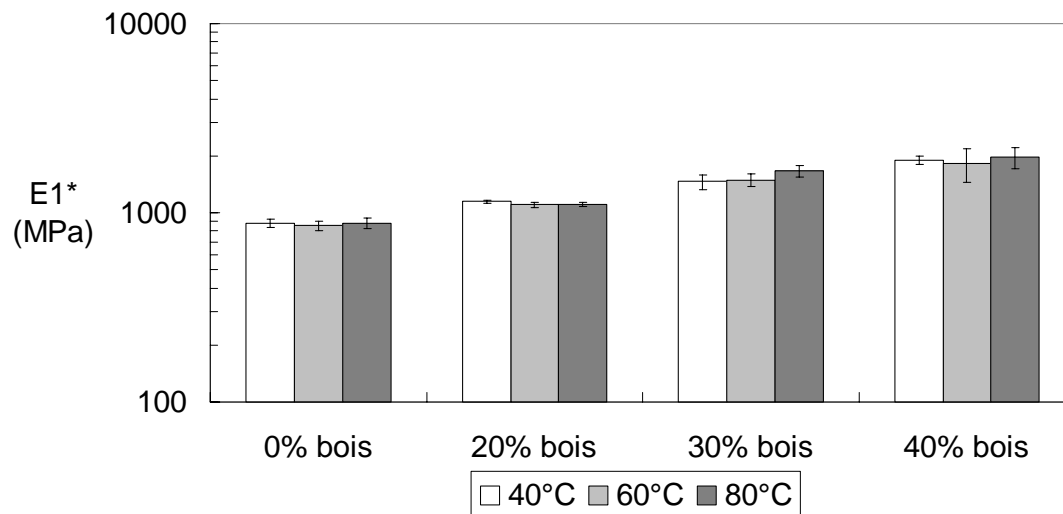


Figure A22.  $E1^*$  fonction de la température à 1 Hz.

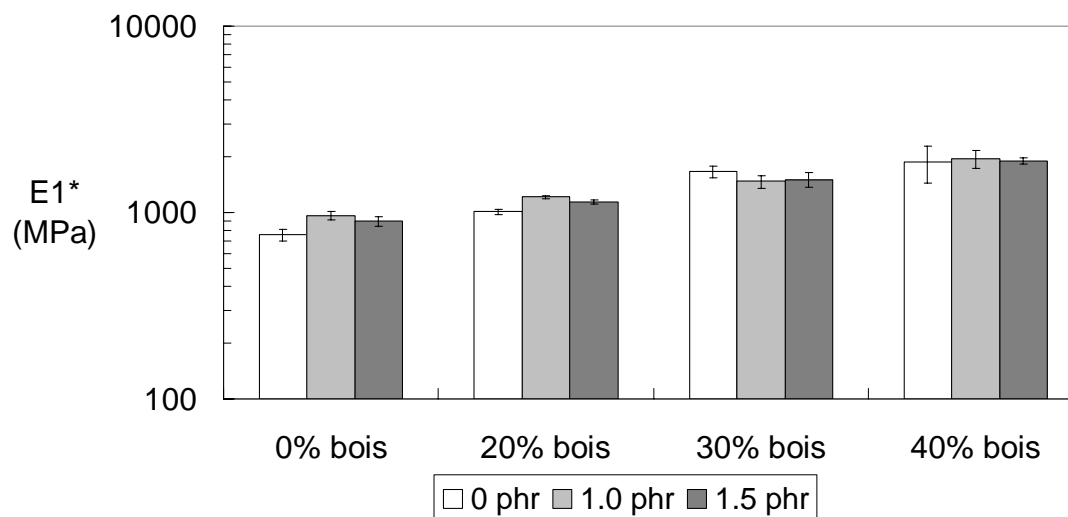
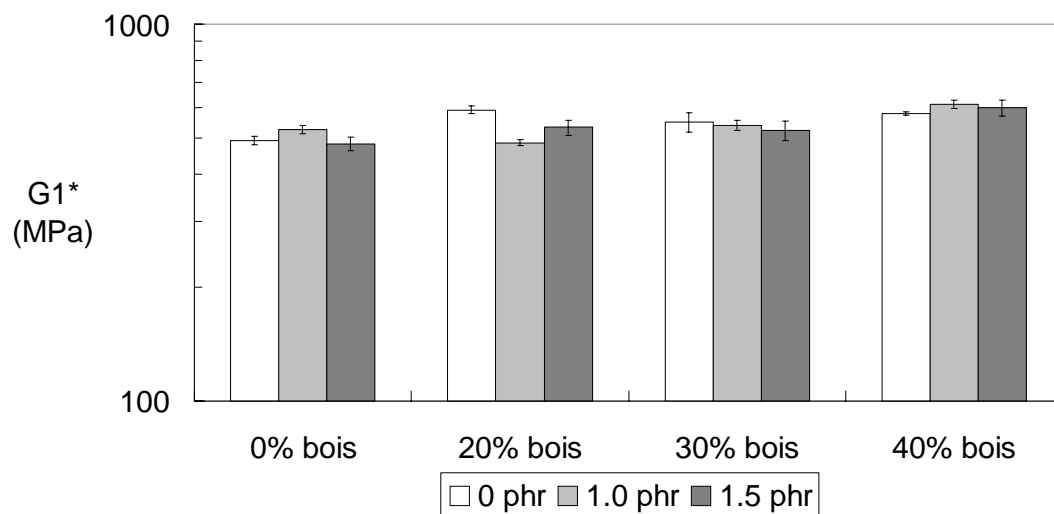
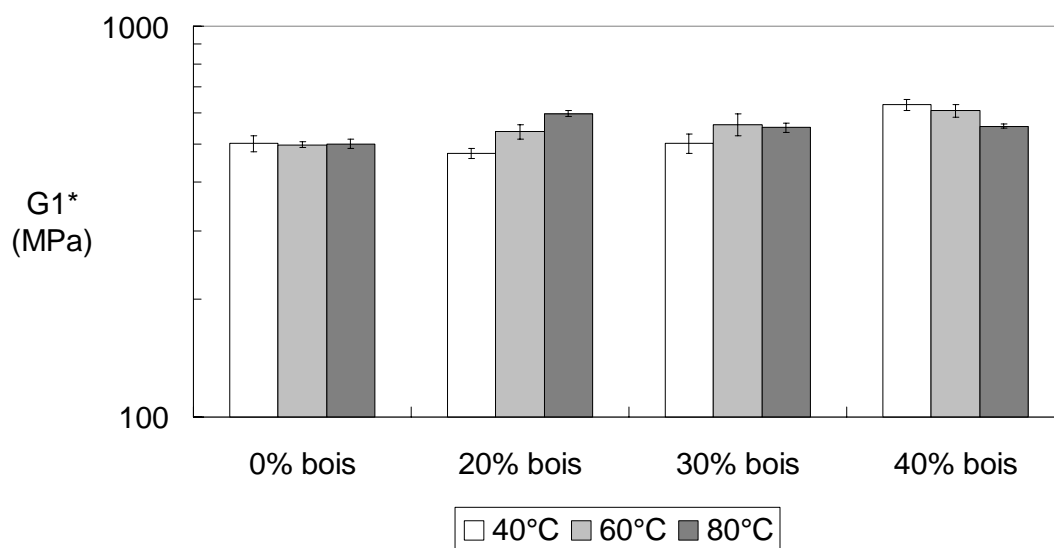


Figure A23.  $E1^*$  fonction de la teneur en ACA à 1 Hz.

## A9. Résultats en torsion



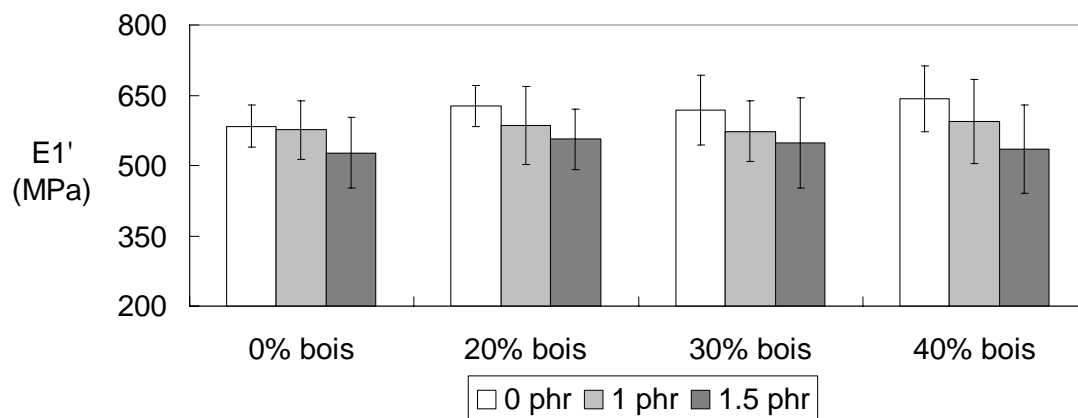
**Figure A24.**  $G1^*$  fonction de la teneur en ACA à 1 Hz.



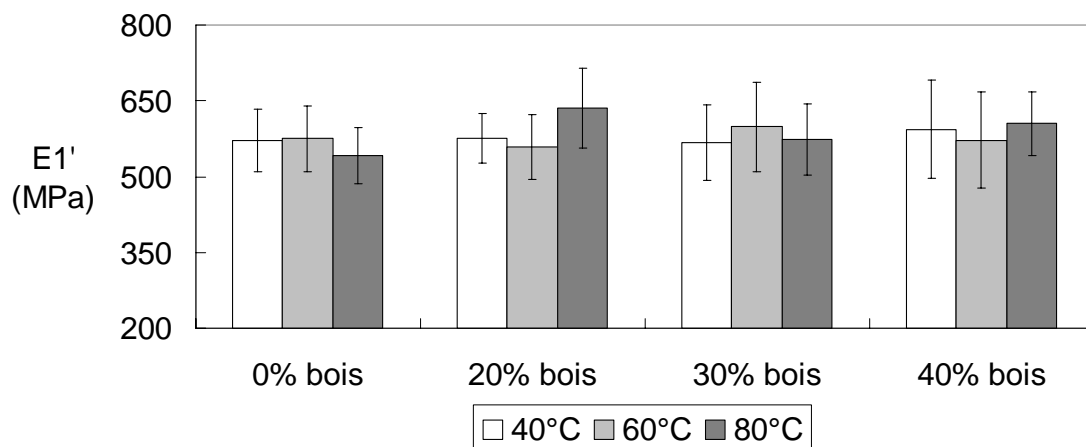
**Figure A25.**  $G1^*$  fonction de la température à 1 Hz.



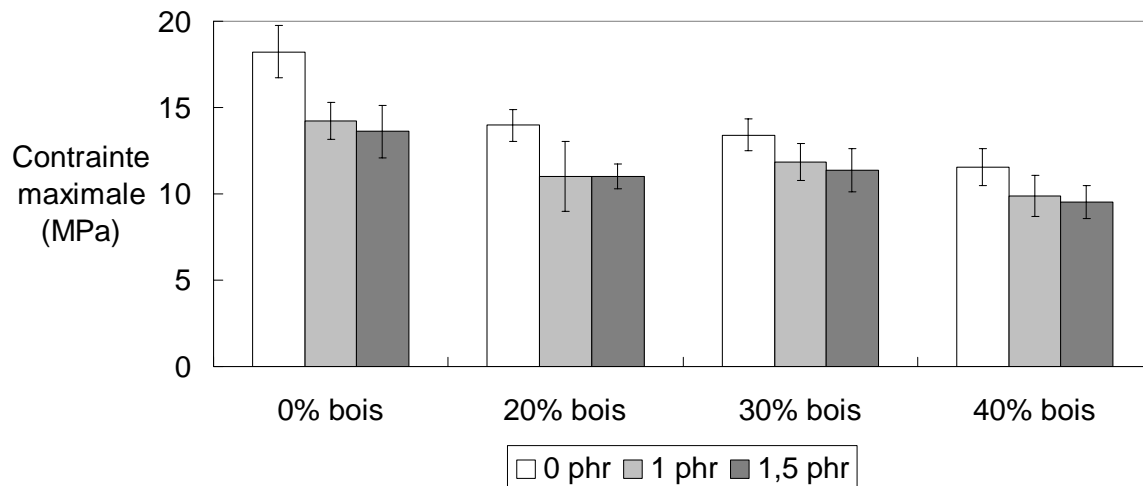
## A10. Résultats en traction



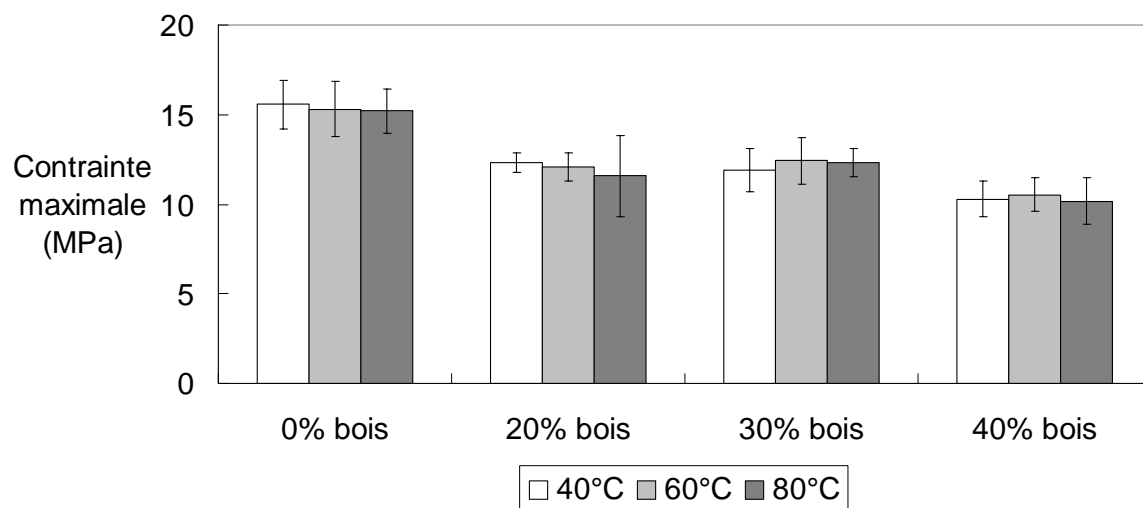
**Figure A26.** Module élastique fonction de la teneur en ACA.



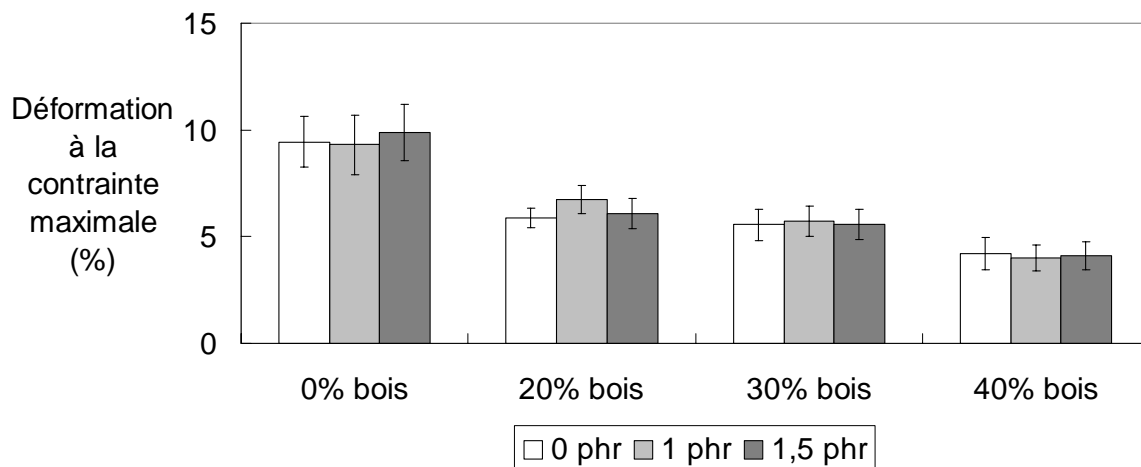
**Figure A27.** Module élastique fonction de la température du moule.



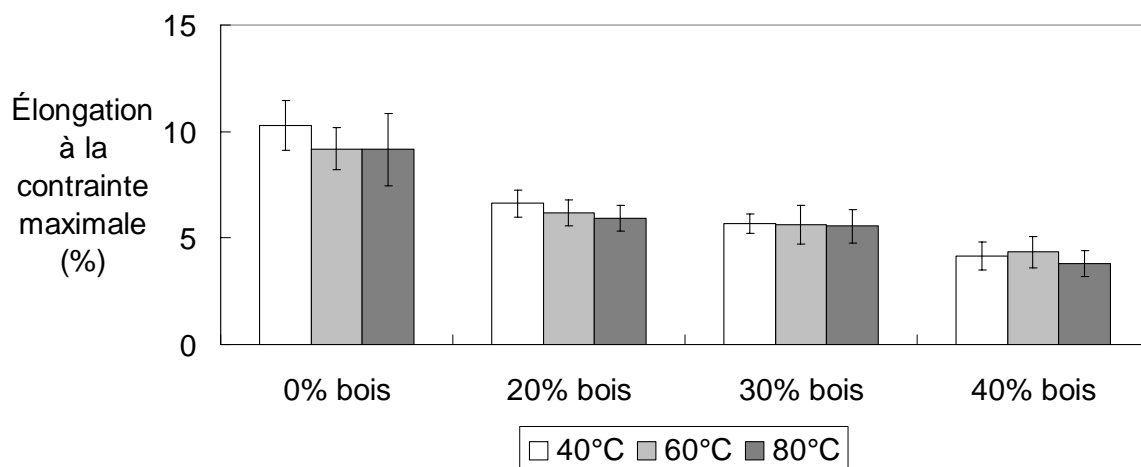
**Figure A28.** Contraite maximale fonction de la teneur en ACA.



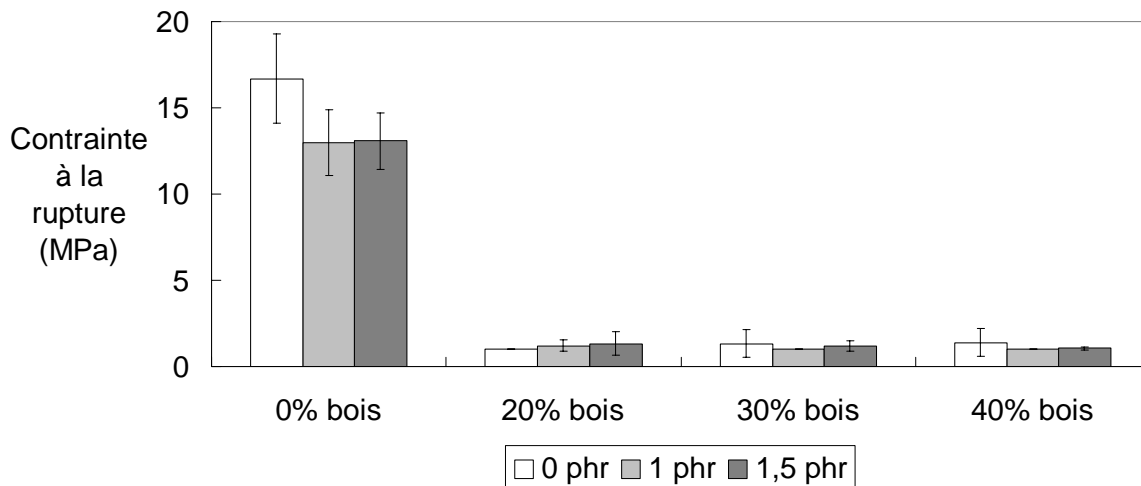
**Figure A29.** Contraite maximale fonction de la température du moule.



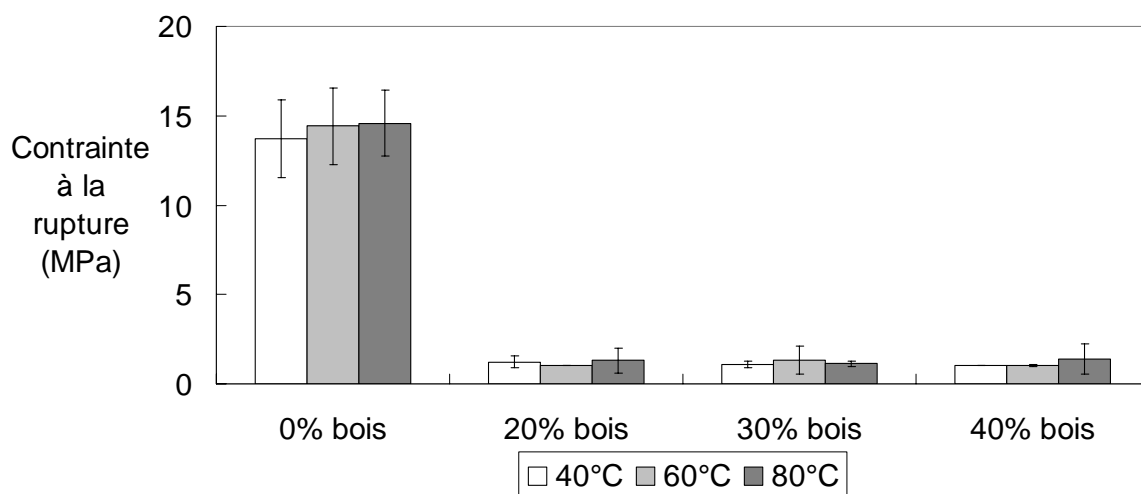
**Figure A30.** Déformation à la contrainte maximale en traction fonction de ACA.



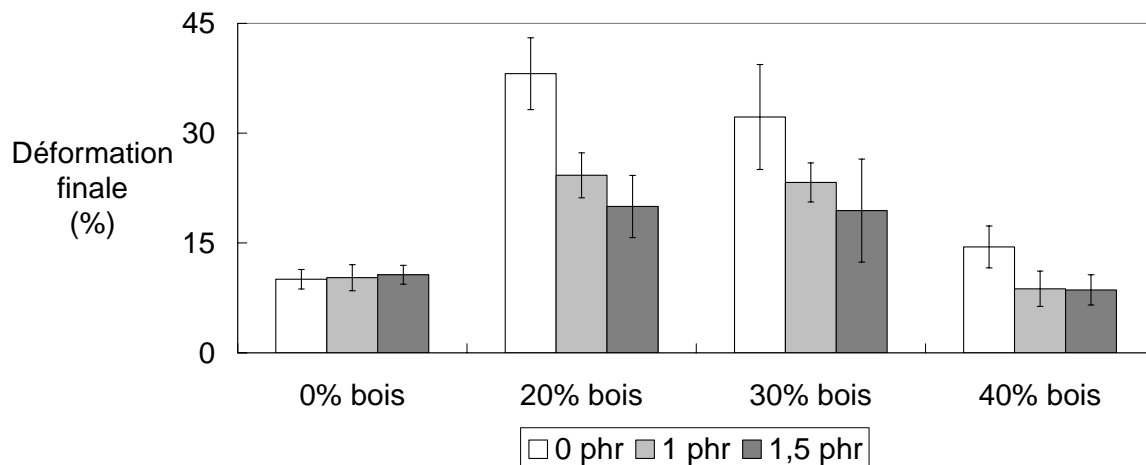
**Figure A31.** Déformation à la contrainte maximale en traction fonction de la température.



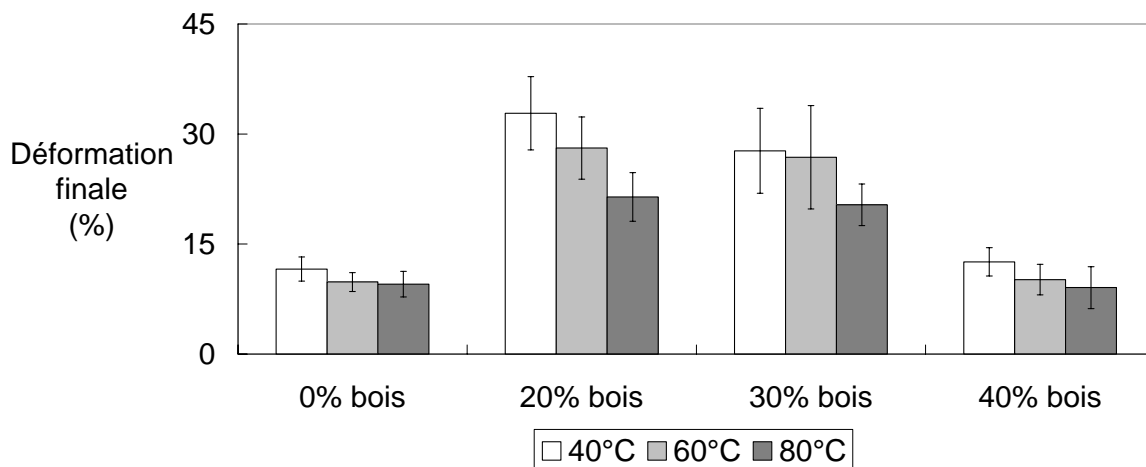
**Figure A32.** Contraite finale fonction de la teneur en ACA.



**Figure A33.** Contraite finale fonction de la teneur température.



**Figure A34.** Déformation finale en traction fonction de ACA.



**Figure A35.** Déformation finale en traction fonction de la température.