

---

# Études des voies de revalorisation pour des composites non tissés poly-(propylène)/fibre de lin

**Karim Behloui<sup>1</sup>, Justin Mérotte<sup>1</sup>, Jérémie Le Bihan<sup>2</sup>,  
Nicolas Renouard<sup>3</sup>, Antoine Kervoëlen<sup>3</sup>, Marie Fournet<sup>1</sup>,  
Alain Bourmaud<sup>3</sup>**

1. *Ecotechnilin SAS*

*BP 244, 79197 Yvetot, France*

*karim@eco-technilin.com*

2. *Automotive Performance Materials*

*Rue des Prés Potets, Parc des Cortots, 21121 Fontaine-lès-Dijon, France*

3. *Institut de Recherche Dupuy de Lôme, Université de Bretagne Sud*

*Rue de Saint Maudé BP 92116, 56321 Lorient Cedex, France*

---

*RÉSUMÉ. L'incorporation de fibres végétales dans des composites thermoplastiques se développe et la question du recyclage et de la gestion des chutes de ces matériaux nouveaux se pose. Dans cet article, deux voies technologiques différentes sont étudiées pour valoriser les chutes de découpe de composites non tissés PP-fibres de lin ; ces produits ne sont actuellement pas recyclés. Dans un premier temps, nous avons réintroduit une fraction de chutes broyées dans un non-tissé PP-lin lors de sa fabrication, ce qui constitue un processus de fabrication très novateur. Malgré une baisse significative des longueurs de fibres qui pénalise la tenue au choc des composites non tissés, les caractérisations mécaniques conduites sur ces nouveaux produits ont mis en évidence un bon comportement en flexion jusqu'à un taux d'incorporation de 30 % en masse des broyats. La seconde partie de l'étude est dédiée à la fabrication de compounds à partir des broyats. La rhéologie des produits, leur structure et leurs performances mécaniques permettent d'envisager des usages industriels de ces compounds qui sont en mesure de rivaliser avec des biocomposites existants, en particulier en termes de module de traction et de résistance au choc.*

*ABSTRACT. The incorporation of plant fiber in thermoplastic composites is growing rapidly; the issue of recycling and management of wastes of these new materials arises. In this article, we studied two different technology paths to value of shredded clipping of PP-flax non-woven composites; these products being currently not recycled. Firstly, we reintroduced a fraction of crushed cutting wastes in a nonwoven PP-flax during its manufacture phase, which represents a strongly innovating process. Despite a significant drop in fiber lengths that penalizes the impact strength of the nonwoven composites, mechanical characterization of these new products have shown good behavior in bending until an incorporation rate of 30% by weight of wastes. The second part of the study is dedicated to the manufacture of compounds from cutting wastes. The rheology of the products, their structure and mechanical*

*properties allow to consider industrial uses of these compounds that are able to compete with existing biocomposites, especially regarding their tensile stress and impact energy.*

*MOTS-CLÉS : thermoplastique, fibres végétales, recyclage, propriétés mécaniques, viscosité, injection, analyse de cycle de vie.*

*KEYWORDS: thermoplastic, vegetal fiber, recycling, mechanical properties, viscosity, injection moulding, life cycle analysis.*

---

DOI:10.3166/RCMA.26.295-311 © Lavoisier 2016

### **Extended abstract**

Biocomposites have major advantages in terms of weight saving and reduction of environmental impacts, which are very popular in the automotive industry. In addition, they have good recycling ability which makes possible to consider end-of-life scenarios other than incineration or landfill. In this work, we studied two innovative routes for recycling compression moulding wastes of poly-(propylene)-flax nonwovens. By involving close to 25%-wt of the sold product, these wastes are a main industrial issue.

In a first step, the parts were grinded and reincorporated at different weight fractions into virgin nonwovens. Microscopic analysis evidenced a progressive modification of material structure with reincorporation rate; with 40%-wt granulates, these recycled composites exhibit a sandwich structure with two skins containing mainly long fibres and bundles and a more homogenous core mainly constituted of granulates. Up to a reintroduction rate of 30%-wt; results showed good mechanical performances, especially for stiffness in bending mode and whatever the studied direction. The bending strength exhibits a slight decrease but values remain sufficient for industrial applications. Nevertheless, impact performances of the materials seems to be penalized with introduction of wastes. Fiber resulting from the grinding being therefore much shorter than those within the reference nonwoven. Thus, the energy dissipated by friction is lower, causing loss of resilience as the reincorporation rate increases.

A second route of reincorporation consists of grinding and compounding the scraps for injection moulding applications. Virgin PP was added to granulates in order to obtain fibre loading fraction of 20 and 30%-wt. Logically, fiber lengths within the materials decrease with the reincorporation rate but also with processing cycles (compounding and then injection). However, taking into account the high initial length of the reinforcements, the fibers within the injected composites have high lengths with respect to the reference materials, which is in favor of good mechanical performances. Thus, the compounds have not only good rheological characteristics allowing processing on conventional manufacturing tools but also interesting mechanical performances in tensile and bending modes which allow considering future industrial applications. Compared to reference materials, the stiffness is slightly lower, which is mainly due to the low Young's modulus of the virgin PP used in this study. Furthermore, and for the same reason, the developed materials exhibit improved impact performance which is another positive aspect for their introduction on the market.

## 1. Introduction

### *Généralités composites / auto / législation*

Depuis les années 1950, l'usage des plastiques dans l'industrie automobile est en constante expansion et leur volume atteint aujourd'hui environ 20 % de la masse d'un véhicule. Les principales raisons de ce développement sont leur faible coût, leur capacité à être moulés sous des formes complexes et le gain de masse qu'ils permettent. Ils réduisent ainsi l'impact environnemental des véhicules (PlasticsEurope, 2014) et les émissions de carbone afin de se conformer aux réglementations environnementales européennes fixées à un objectif de 95 g/km d'ici 2020 (Parlement Européen, 2009). Dans ce contexte, l'utilisation de polymères renforcés de fibres est indispensable pour améliorer les propriétés spécifiques de ces matériaux. Aujourd'hui les fibres de verre sont les plus couramment utilisées dans l'industrie des composites (environ 90 %) (Ausias *et al.*, 2013). Elles se rencontrent dans de nombreuses pièces automobiles telles que les plages arrières, les pare-chocs et également les compartiments moteur (Duval, 2007).

Actuellement, de nombreuses recherches et développements industriels sont dédiés à l'usage de fibres végétales pour la substitution des fibres de verre comme renforts de matériaux composites. En effet, ces fibres sont renouvelables, nécessitent 5 à 10 fois moins d'énergie non renouvelable à produire, et par conséquent contribuent à réduire les impacts environnementaux des véhicules (Joshi *et al.*, 2004) ainsi que les émissions de CO<sub>2</sub> grâce à la photosynthèse (Le Duigou *et al.*, 2011 ; Pervaiz et Sain, 2003). Le lin et le chanvre sont les fibres végétales les plus utilisées en Europe en raison de leurs bonnes propriétés mécaniques spécifiques (Beaugrand et Berzin, 2013 ; Bourmaud *et al.*, 2010 ; Lefeuvre *et al.*, 2014) et de leur faible coût. À l'échelle de l'Europe la culture de ces deux plantes représente environ 114 000 hectares par an et la France produit 75 % des fibres européennes de lin. Une expansion de la demande en fibres végétales est prévue dans les 10 prochaines années (FRD, 2011).

Un autre avantage évident pour ces fibres est la gestion de leur fin de vie et en particulier dans le cas où ils sont associés à des matrices biobasées ou biodégradables telles que le poly-(lactide) (PLA) ou le poly-(hydroxy-butyrate) (PHB) (Barkoula *et al.*, 2010 ; Bax et Müssig, 2008) mais ces matrices ne sont pas facilement utilisables dans les applications automobiles (faible stabilité thermique et coût plus élevé) et le PP leur est préféré. Par opposition aux fibres de verre, les fibres végétales peuvent libérer de l'énergie pendant leur combustion, (8.3 MJ/kg contre -1.7 MJ/kg pour les fibres de verre) (Xu *et al.*, 2008) ce qui est un avantage environnemental important. Par ailleurs, les biocomposites montrent un bon comportement au recyclage (Bourmaud et Baley, 2007 ; Le Duigou *et al.*, 2008) qui est une alternative préférable à l'incinération et l'enfouissement car il permet d'économiser des matières premières, tout en maintenant des performances mécaniques satisfaisantes.

L'utilisation de biocomposites non-tissés par thermocompression est très appréciée dans la fabrication des véhicules (principalement pour les pièces

intérieures), car ils combinent à la fois l'absorption des ondes acoustiques (grâce à la présence de porosités contrôlées pendant le processus) et de bonnes propriétés mécaniques (Koenig et Mueller, 2008). Les non-tissés aiguilletés avec des fibres PP sont principalement utilisés en raison de leur bonne capacité de déformation, de leur cycle de traitement court et du coût limité des matières premières (Van de Velde et Kiekens, 2001). En outre, l'utilisation de fibres de lin sous forme de non-tissés semble être une bonne solution pour élaborer des produits semi-manufacturés (Bos *et al.*, 2006 ; Oksman, 2000) ; elles permettent d'améliorer grandement les propriétés en traction (Mieck *et al.*, 1996).

En ce qui concerne le moulage par injection des biocomposites, l'intégration des fibres végétales renforce la matrice thermoplastique en induisant une augmentation de la rigidité et de la contrainte, mais aussi une baisse de l'allongement à la rupture et de la résistance à l'impact. L'étude de la microstructure d'un composite PP-lin (Bourmaud *et al.*, 2013) a mis en évidence une bonne dispersion et individualisation des fibres dans la matrice mais également la présence de faisceaux qui constituent des zones préférentielles de dommages. Un effet cœur peau est présent dans ces composites ; il se caractérise par une bonne orientation des fibres dans le sens de l'écoulement dans la couche de peau ; l'orientation étant plus désordonnée au cœur des pièces. Cet effet cœur peau induit une anisotropie dimensionnelle marquée des éprouvettes.

Par ailleurs, les composites renforcés par des fibres végétales démontrent une bonne stabilité de leurs performances mécaniques après recyclage mécanique. Leur comportement se caractérise par une stabilisation du rapport d'aspect après plusieurs cycles de recyclage comparativement aux fibres de verre pour lesquelles le facteur de forme chute de manière significative (Bourmaud et Baley, 2007). En outre, grâce à l'utilisation d'agent de couplage, l'interface entre les fibres et la matrice évolue peu au cours de ces cycles de process alors que l'ensimage des fibres de verre se dégrade progressivement après plusieurs cycles de broyage et d'injection. Ces tendances sont confirmées par Dickson *et al.* (2014) et Soccalingame *et al.* (2015) qui ont travaillé sur le recyclage de composites PP-lin et PP-bois ; ils ont mis en évidence une stabilité des propriétés mécaniques au cours des cycles confirmant que le rapport d'aspect des fibres change peu avec une baisse d'environ 20 % entre le premier et le sixième cycle de transformation.

Dans ce travail, afin de trouver une alternative à la mise en décharge des déchets industriels de composites lin/PP ou de prolonger la fin de vie des pièces d'automobiles, nous proposons d'étudier deux façons de recycler ces déchets en minimisant l'utilisation de la matière première. Les chutes de découpes ont été réintroduites d'une part dans de nouveaux non-tissés et, d'autre part, dans des compounds injectables. L'influence de la porosité finale et du taux de réincorporation des matériaux non-tissés a été prise en compte et étudiée. Dans le cas des matériaux injectables, l'étude a été conduite sur des composites à différentes fractions volumiques de fibres et leur comportement rhéologique a été déterminé afin de valider l'injectabilité des compounds élaborés. Par ailleurs, des essais de traction, flexion et choc ont permis de caractériser mécaniquement les non-tissés ou les biocomposites injectés.

## 2. Matériaux et méthodes

### 2.1. Matériaux

Le renfort initial composé d'étoupes de lin (*Linum usitatissimum L.*, 50 %wt.) est combiné à des fibres de polypropylène (PP, 50 % wt.) pour former un non-tissé. Ce non-tissé commélé industriel de masse surfacique de 1500 g/m<sup>2</sup> a été fabriqué par la société EcoTechnilin SAS (Yvetot, France) par cardage, nappage puis aiguilletage. Ces non-tissés, une fois thermocomprimés, sont broyés à l'aide d'un broyeur à couteaux de marque I.S.V.E équipé d'une grille tamis de 5 mm. Le recyclage des broyats ainsi obtenus va être étudié, soit par réincorporation dans des non-tissés soit par compoundage en granulés d'injection selon le schéma présenté sur la figure 1.

### 2.2. Réincorporation dans les non-tissés

Les broyats issus des chutes de fabrication sont réintroduits par EcoTechnilin au centre d'un non-tissé commélé constitué de fibres de renfort végétales (lin 25 % wt. et chanvre 25 % wt.) et de PP (50 % wt.) et de masse surfacique totale 1600 g/m<sup>2</sup>. Afin d'étudier l'influence de la quantité de broyat réincorporée sur les propriétés du composite, des non-tissés avec des taux de réincorporation différents (0, 10, 20, 30 et 40 % en masse) ont été fabriqués.

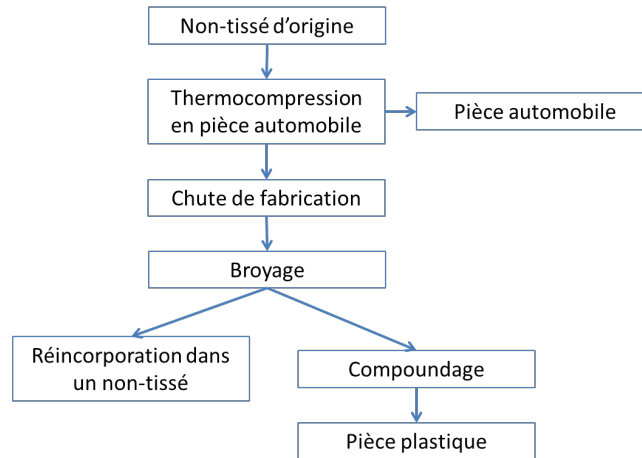


Figure 1. Schéma de principe des modes de recyclage

Les non-tissés ont été moulés en plaques de format A4 par le procédé de thermocompression sur une presse hydraulique Suteau-Anver 40T. Le taux de porosité de 30 % a été obtenu en ajustant l'épaisseur du composite afin d'obtenir une

masse volumique de  $0.8 \text{ g/cm}^3$ . Afin d'être en accord avec les températures et temps de cycles utilisés dans l'industrie, les non-tissés (non étuvés au préalable) ont été chauffés entre des plateaux contact avec un entrefer de 3 mm et à une température de  $200 \text{ }^\circ\text{C}$  pendant 75 s. Les non-tissés chauffés sont ensuite placés entre des plateaux refroidis à l'eau (vitesse de refroidissement de  $4^\circ \text{ C/s}$ ) et pressés pendant 1 min à une épaisseur finale de 2 mm.

### 2.3. Revalorisation par compoundage

Pour étudier la faisabilité d'une revalorisation de ces chutes de non-tissé de PP-lin en granulés d'injection, celles-ci ont été compoundées par *Automotive Performance Materials* (APM, Fontaine Les Dijon, 21) à différents taux de fibres (20 et 30 % en masse). Pour améliorer l'interface entre la fibre de lin et la matrice PP, un compatibilisant a été ajouté. Après une étape de granulation, des échantillons normalisés ont été injectés sur une presse de moulage par injection Battenfeld de 80 tonnes avec une température de moule de  $25 \text{ }^\circ\text{C}$  et de fourreau de  $190 \text{ }^\circ\text{C}$ ; le diamètre de la buse d'injection est de 2 mm. La pression de maintien est de 1600 bars, le temps de refroidissement de 15 s et la pression de commutation est de 2000 bars. Le tableau 1 récapitule l'ensemble des formulations élaborées lors de ce travail. Les valeurs sont indiquées en pourcentages massiques.

Tableau 1. Ensemble des formulations réalisées dans cette étude (% massiques)

Formulation	PP	Compatibilisant	Lin	Chanvre	Non tissé vierge de référence	Broyats
Broyats	50		50			
Non tissé vierge de référence	50		25	25		
Non tissé 10					90	10
Non tissé 20					80	20
Non tissé 30					70	30
Non tissé 40					60	40
Injecté/compoundé 20 % lin	57,6	2,4				40
Injecté/compoundé 30 % lin	37,9	2,1				60

### 2.4. Essais mécaniques sur éprouvettes

Les éprouvettes d'essai issues des plaques non tissées thermocomprimées ont été découpées par fraisage selon les normes d'essais décrites ci-dessous. Le non-tissé étant fabriqué par la technique de cardage/nappage/aiguilletage avec un important

nombre de plis de nappage, il présente une anisotropie forte (S. Russell, n.d.). Ainsi, les essais mécaniques seront donc effectués selon deux directions principale, 0° (sens MD pour « machine direction ») et 90° (sens CD pour « cross-direction ») par rapport à la direction d'avance du non-tissé dans la machine. Toutes les éprouvettes ont été conditionnées sept jours à 20 °C et 50 % RH préalablement aux essais afin d'obtenir un équilibre hydrique au sein des parois végétales des composites caractérisés. Les essais de flexion trois points sur ces non-tissés ont été effectués selon la norme ISO 14125, une cellule de force de 250 N a été utilisée et 5 échantillons ont été caractérisés avec un déplacement de traverse de 2 mm/min.

Les éprouvettes injectées de formes correspondant à la norme ISO 527-2 ont été testées sur une machine de traction MTS Synergie RT/1000 équipée d'une cellule de force de 10 kN et d'un extensomètre de 25 mm. Pour chaque mesure, au moins 5 échantillons ont été caractérisés à une vitesse de traverse de 1mm/min.

Les essais de résistance aux chocs (montage Charpy) sont effectués avec un banc d'essai Tinius Olsen Impact 503 selon la norme ISO 179-3. Pour chaque lot, au moins 10 échantillons ont été caractérisés.

### ***2.5. Observation de la microstructure des pièces***

La structure des biocomposites ainsi que les faciès de rupture des éprouvettes injectées ont été observés par microscopie électronique à balayage (MEB). Les échantillons ont été inclus dans de la résine Epoxy (Epolam 2020) et polies jusqu'à utiliser une solution diamantaire comportant des particules de 3 µm de diamètre. Un métalliseur Edwards a été utilisé pour métalliser les plots à l'or ; ces derniers ont ensuite été observés avec un MEB Jeol JSM 6460V.

### ***2.6. Mesure de la viscosité des compounds***

Pour vérifier la compatibilité avec le processus d'injection classique, les compounds ont été préalablement séchés à 60 °C pendant une période de 15 h. Un rhéomètre capillaire (RG20 Göttfert, Buchen, Allemagne) a été utilisé pour mesurer la viscosité au cisaillement de la masse fondue. La température du cylindre a été pré-réglée à 190 °C. Les échantillons ont été chauffés pendant 400 s et extrudés à travers des filières de 1 mm de diamètre et de 10, 20 et 30 mm de longueur, respectivement. Les expériences ont été réalisées en augmentant les taux de cisaillement aux valeurs suivantes : 50, 100, 500, 1000, 5000 et 10000 s<sup>-1</sup>. Pour chaque taux de cisaillement, les pressions nécessaires pour extruder des matières à travers chacune des filières ont été enregistrées. Les corrections de Bagley et Rabinovich ont été appliquées.

### 2.7. Mesure du rapport d'aspect des fibres

Le rapport d'aspect de la fibre a été mesuré tout au long des étapes de fabrication du compound : du broyat brut à l'éprouvette injectée. Un microscope optique Leica (Microsystems, Wetzlar, Allemagne) couplé à un logiciel d'analyse d'image LEICA QWIN a été utilisé pour mesurer la longueur et le diamètre d'au moins 200 fibres par lot. Les valeurs ont été obtenues après dissolution de la matrice de PP grâce à une immersion pendant 24 heures dans du xylène à 150 °C.

## 3. Résultats et discussion

### 3.1. Revalorisation par réincorporation des broyats dans les non-tissés

La figure 2, présente les différentes microstructures des composites obtenues par microscopie électronique à balayage.

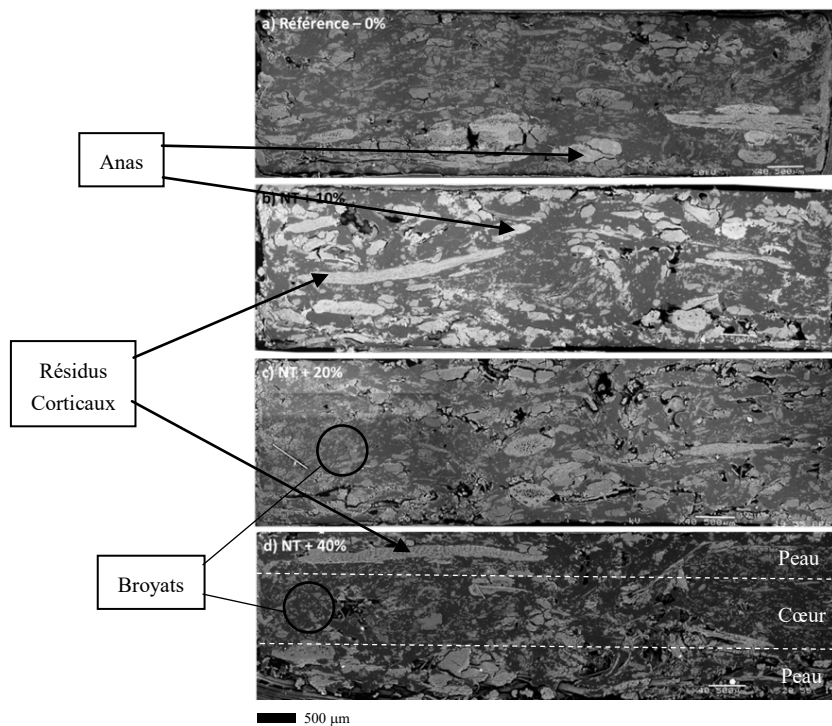


Figure 2. Microstructure des composites à 30 % de porosités pour des taux de réincorporation de 0 % (a) ; 10 % (b), 20 % (c) et 40 % (d)



Nous pouvons noter que les fibres de renfort utilisées dans le non-tissé de référence sont assez peu divisées (figure 2a). Nous pouvons aussi constater la présence de nombreux résidus corticaux et d'anas. Sur les autres clichés, il est possible de distinguer les fibres de renfort issues du broyage des chutes de fabrication car leur division est plus importante (figure 2b). Elles sont localisées principalement au centre du matériau. On peut donc dire que ces produits sont constitués de deux phases prédominantes rappelant une structure sandwich : deux peaux présentant des fibres grossières et un cœur présentant des fibres plus divisées. Il est cependant difficile de déterminer une limite claire entre ces deux phases.

La figure 3 présente les propriétés en flexion de chaque non-tissé dans les directions MD et CD. Les matériaux comportant une fraction de réincorporé ont été comparés avec le même non-tissé vierge ne comportant pas de granulés réincorporés.

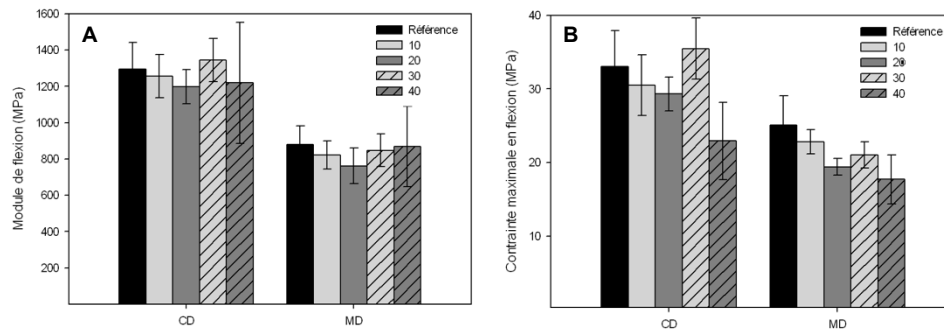


Figure 3. Module de flexion (A) et contrainte maximale de flexion (B) des non-tissés comportant 10, 20, 30 et 40 % de non-tissé broyé

Pour chaque éprouvette, les propriétés en sens MD sont plus faibles qu'en sens CD. Ceci s'explique par la forte anisotropie générée par le nappage. En effet, lors du cardage des fibres, les fibres présentent une orientation privilégiée (Miao et Shan, 2011) qui va être conservée tout au long de la production. Le sens CD présente donc plus de fibres orientées dans le sens de la sollicitation que le sens MD.

La figure 3A indique que la réincorporation de chutes de fabrication jusqu'à des taux de 40 % en masse n'altère pas la rigidité du matériau qui présente des valeurs de modules constantes quel que soit le taux de réincorporation. En revanche, pour les propriétés de résistance du matériau, le taux de réincorporation a un impact négatif croissant. Comme nous le verrons dans la section dédiée à la réincorporation par injection, le broyage du composite modifie la morphologie des fibres, en particulier en diminuant leur longueur et en augmentant leur taux d'individualisation (Bourmaud and Baley, 2007). Cette diminution de longueur peut mener à un phénomène de déchaussement entraînant une rupture prématurée du composite. En effet, Mérotte *et al.*, (2016) ont montré que les performances mécaniques d'un non-

tissé PP-lin étaient conditionnées par la qualité de l'interface fibre/matrice lorsque les composites présentent un taux de porosité élevé. La qualité d'une interface est décrite grâce à deux critères, la surface de contact et l'efficacité du collage entre la fibre et la matrice. Le modèle de Kelly-Tyson décrit dans l'équation (1) quantifie l'implication de la géométrie de la fibre et l'efficacité du collage sur la qualité de l'interface (Kelly and Tyson, 1965).

$$L_c = \frac{\sigma_{fmax}.D}{2.\tau_{IFSS}} \quad (1)$$

où D représente le diamètre de la fibre,  $\sigma_{fmax}$  la contrainte de rupture de la fibre,  $\tau_{IFSS}$  la contrainte interfaciale de cisaillement du système fibre/matrice et  $L_c$  la longueur critique d'enchâssement de la fibre. Plus la fibre sera courte, plus sa longueur d'enchâssement sera réduite et plus les ruptures par déchaussement seront privilégiées, réduisant ainsi l'allongement du matériau et sa valeur de résistance.

La figure 4 présente les résultats des essais de choc Charpy non entaillé sur les différentes formulations en fonction de la direction de sollicitation. Les matériaux comportant une fraction de réincorporé ont été comparés avec le même non-tissé vierge ne comportant pas de granulés réincorporés. Comme nous avons pu le noter pour la contrainte, la réincorporation de chutes au sein du non-tissé détériore sa tenue au choc. Mérotte *et al.* (2016) ont fait l'hypothèse que dans des composites présentant un fort taux de porosité, une fois les fibres déchaussées, la plupart de l'énergie était dissipée par friction entre la fibre et la matrice. Les longueurs moyennes des fibres dans le non-tissé vierge et dans les broyats ont été déterminées ; elles sont respectivement de  $22,3 \pm 8,6$  mm et  $1,63 \pm 0,62$  mm, les fibres issues du broyage étant donc beaucoup plus courtes que celles au sein du non-tissé de référence. Ainsi, l'énergie dissipée par friction est plus faible, induisant une perte de résilience au fur et à mesure que le taux de réincorporation augmente.

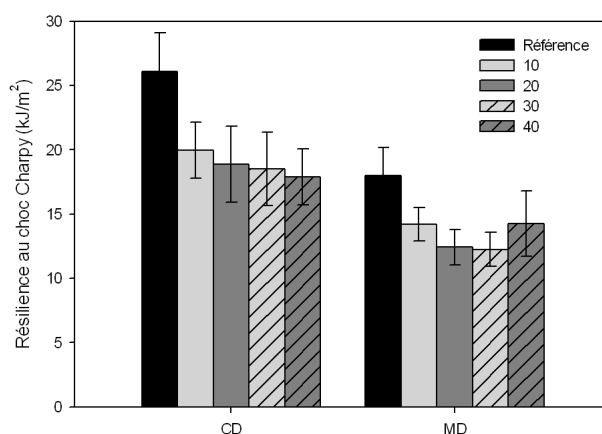


Figure 4. Résilience au choc Charpy non entaillé des non-tissés comportant 0, 10, 20, 30 et 40 % de non-tissé broyé pour un taux de porosité de 30 %

### 3.2. Revalorisation des rebuts par compoundage

Dans un premier temps, les longueurs de fibres ont été mesurées sur les broyats bruts puis à chacune des étapes de recyclage (extrusion puis injection). La figure 5 synthétise ces résultats.

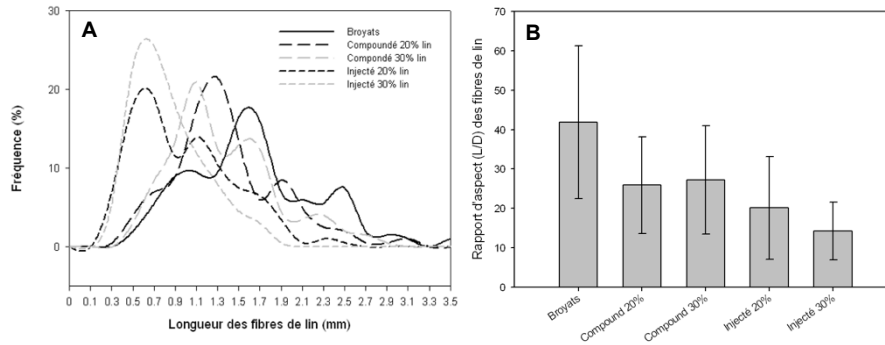


Figure 5. Distribution des longueurs (A) et rapports d'aspects (B) des fibres végétales au sein des broyats, des compounds extrudés et des éprouvettes injectées

La longueur moyenne des fibres au sein des broyats est de  $1,63 \pm 0,62$  mm. Pour les deux taux de fibres, cette longueur moyenne diminue de manière significative après extrusion puis après injection ; ainsi, les longueurs moyennes des fibres au sein des pièces injectées comportant 20 % et 30 % en masse de fibres de lin sont respectivement de  $0,99 \pm 0,32$  mm et  $0,83 \pm 0,34$  mm. Nous observons un décalage progressif des distributions vers les faibles longueurs ; de la même manière les rapports d'aspects des renforts diminuent progressivement au fur et à mesure des cycles de process même si à partir de l'étape de compoundage, leur valeur est relativement stable en raison de l'individualisation des fibres qui engendre une baisse des diamètres compensant celle des longueurs. Nous pouvons noter que l'évolution des rapports d'aspect est très voisine de celle des longueurs de fibres ; en effet, les diamètres restent quasi constants après extrusion et injection. Ils affichent des valeurs voisines de 50 microns qui soulignent la présence majoritaire de faisceaux et non de fibres élémentaires. Ceci peut être dû à la structure spécifique des non-tissés originels qui sont élaborés à partir d'étoupes de lin majoritairement constituées de faisceaux cohésifs.

Nous pouvons noter que les longueurs des fibres au sein des composites comportant 30 % en masse de fibres de lin sont inférieures à celles de ceux qui n'en contiennent que 20 %. Ce résultat a déjà été observé sur des biocomposites (Beaugrand et Berzin, 2013) ; l'augmentation du taux de fibre augmente à la fois la viscosité des compounds mais aussi les interactions fibres-fibres. Ces deux paramètres favorisent les ruptures de fibres lors de la mise en œuvre. Malgré cela, les longueurs de fibres observées après injection restent élevées comparativement à

d'autres travaux (Doumbia *et al.*, 2015), soulignant ainsi la pertinence des paramètres de process utilisés pour le compoundage de PP et fibres végétales.

Afin de statuer sur la processabilité des mélanges réalisés, leur rhéologie a été étudiée par voie capillaire sur granulés extrudés. La figure 6 présente les courbes obtenues pour le PP vierge, les mélanges extrudés à 20 et 30 % de fibres ainsi qu'un matériau de référence de notre partenaire industriel présentant un écoulement optimal dans les outillages de transformation. Nous pouvons noter que de manière logique l'introduction des fibres engendre une forte hausse de la viscosité par rapport au PP vierge et que le mélange comportant 30 % de fibres est plus visqueux que celui à 20 %.

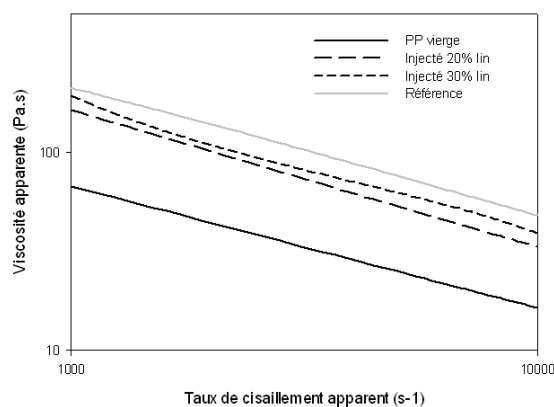


Figure 6. Viscosité mesurée au rhéomètre capillaire pour le PP vierge, le PP 20 et 30 % lin et la référence industrielle

De manière intéressante les compounds réalisés à partir des matériaux recyclés affichent des viscosités significativement inférieures à celle du matériau de référence fourni par notre partenaire industriel. En effet, le recyclage des matériaux provoque à la fois une diminution des longueurs des fibres, mais également des chaînes de polymère (Bourmaud et Baley, 2007) favorable à une diminution de la viscosité des compounds. Ce résultat est positif, il permet l'obtention de matériaux plus facilement injectables.

Dans un dernier temps, les performances mécaniques des compounds réalisés ont été étudiées. La figure 7 regroupe les résultats des essais de traction pour le PP vierge et les PP-lin à 20 et 30 % de taux de fibres. Les valeurs ont été comparées à deux mélanges de la littérature réalisés à partir de PP et de fibres de lin vierges (Ausias *et al.*, 2013) et renforcés à des taux de fibres équivalents.

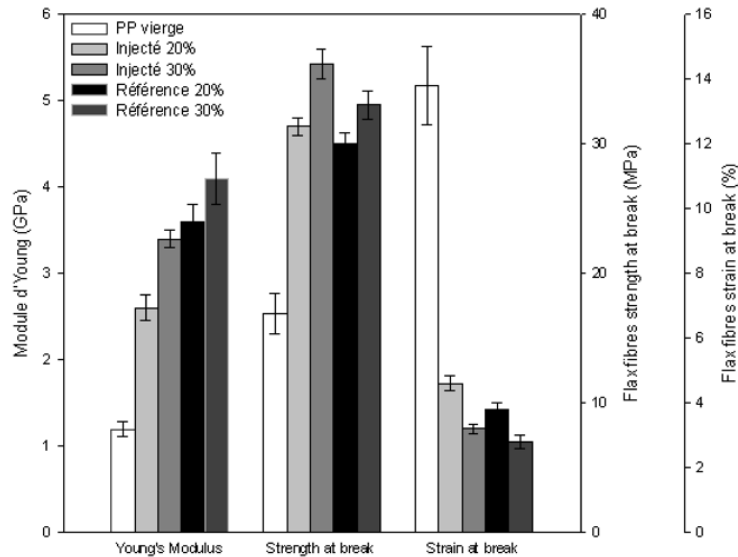


Figure 7. Performances mécaniques en traction du PP vierge, du PP 20 et 30 % lin recyclé et de deux références issues de la littérature (Ausias et al., 2013)

Nous pouvons tout d'abord noter que les modules d'Young des biocomposites issus des produits recyclés se situent en deçà de ceux des références de la littérature. Cette différence peut avoir différentes origines dans le cas des biocomposites ; elle peut être due à la nature de la matrice et du compatibilisant, à des différences en termes de taux de fibres ou en raison des modes d'extraction mécanique des fibres. Les faibles rapports d'aspect, la dispersion de la fibre et la présence de faisceaux peuvent également pénaliser la rigidité des composites.

En revanche, les contraintes à rupture, malgré une résistance modeste de la matrice PP, affichent des valeurs élevées et supérieures à celles des composites de référence. La nature du compatibilisant utilisé ici joue probablement un rôle dans ces performances ainsi que la microstructure des pièces et en particulier les rapports d'aspect des fibres de lin ainsi que leur individualisation. La nature des fibres et leur degré de rouissage peuvent également avoir un impact important sur leur dispersion dans la matrice. Pour aller plus loin dans cette interprétation, il serait nécessaire d'analyser les faciès de rupture, la microstructure des pièces injectées et l'individualisation des fibres de lin au sein de ces dernières. Les allongements à rupture obtenus ici sont également tout à fait comparables avec ceux rencontrés dans des biocomposites issus de matières nobles.

Dans un dernier temps, nous avons caractérisé la tenue au choc des éprouvettes injectées. La figure 8 présente les valeurs d'énergie au choc Charpy non entaillé des deux formulations réalisées comportant 20 et 30 % de lin. Elles sont comparées avec

un matériau de référence de notre partenaire industriel et avec un PP comportant 30 % en masse de fibres de lin issu de la littérature (Bourmaud *et al.*, 2015).

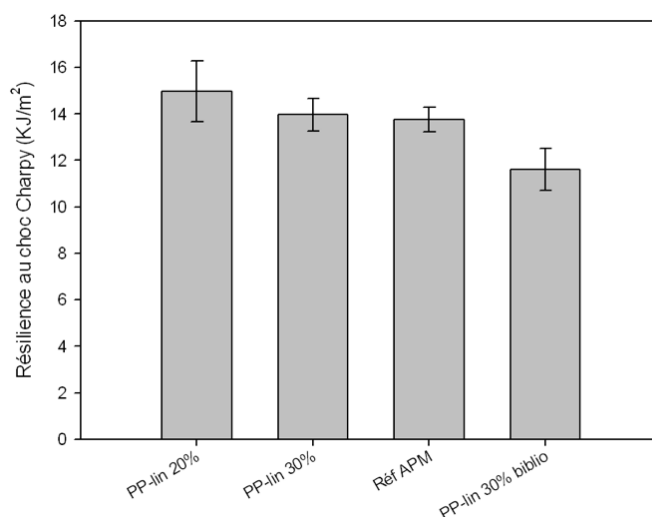


Figure 8. Énergie au choc Charpy du PP 20 et 30 % lin recyclé, d'une référence APM et d'un PP-30 % lin de la littérature (Bourmaud *et al.*, 2015)

Ces résultats mettent en évidence les bonnes performances au choc de nos matériaux. Nous pouvons noter que les meilleures performances sont obtenues avec le composite comportant 20 % de fibres de lin ; il présente un comportement moins fragile compte tenu de sa plus faible rigidité. Les valeurs affichées pour le lot à 30 % de fibres sont similaires à celles de la référence industrielle et significativement supérieures (+ 20,4 %) à la référence PP-30 % lin de la littérature. Elles sont cohérentes avec les valeurs d'allongement à la rupture relevées. En effet, d'une manière générale, la tenue au choc est corrélée de manière positive avec l'allongement à rupture en traction pour les biocomposites thermoplastiques (Bourmaud *et al.*, 2016). Ces bonnes valeurs de résistance au choc peuvent être dues au choix de la matrice PP, relativement peu rigide mais également à la qualité de la compatibilisation et à la dispersion des fibres dans le composite.

#### 4. Conclusion

Au cours de ce travail, deux voies de recyclage pour les chutes de fabrication de composites non tissés PP-lin ont été étudiées.

La réincorporation de chutes broyées dans un non-tissé, jusqu'à un taux de 40 % en masse, a permis de générer une structure sandwich et de maintenir de bonnes

performances mécaniques en flexion, comparables avec celles de matériaux nobles, en particulier en termes de rigidité. Les valeurs de contrainte sont plus affectées pour les hauts taux d'incorporation mais jusqu'à 30 % de réintroduction, la résistance en flexion des pièces est tout à fait satisfaisante.

Dans un second temps, des compounds injectés ont été réalisés à partir des chutes broyées. Nous avons pu relever une baisse modérée des longueurs et rapports d'aspect des fibres de lin au cours des différentes étapes de process. Ces compounds affichent des viscosités voisines de celles des matériaux de référence et leurs performances mécaniques, en particulier en termes de module de traction et de résistance au choc, permettent d'envisager leur usage industriel.

Ce travail exploratoire représente une première phase très encourageante sur le plan mécanique et rhéologique. Il sera néanmoins nécessaire de le compléter par une analyse multicritère intégrant des paramètres technico-économiques industriels afin de valider de manière définitive la faisabilité de l'industrialisation des matériaux.

#### Remerciements

*Les auteurs souhaitent remercier le ministère de la Recherche ainsi que l'Agence pour le Développement et la Maîtrise de l'Énergie (ADEME) pour leur soutien financier.*

#### Bibliographie

- Ausias G., Bourmaud A., Coroller G., Baley C. (2013). Study of the fibre morphology stability in polypropylene-flax composites. *Polym. Degrad. Stab.* 98, 1216-1224.
- Barkoula N.M., Garkhail S.K., Peijs T. (2010). Biodegradable composites based on flax/polyhydroxybutyrate and its copolymer with hydroxyvalerate. *Ind. Crops Prod.* 31, 34-42.
- Bax B., Müssig J. (2008). Impact and tensile properties of PLA/Cordenka and PLA/flax composites. *Compos. Sci. Technol.* 68, 1601-1607.
- Beaugrand J., Berzin F. (2013). Lignocellulosic fiber reinforced composites: Influence of compounding conditions on defibrization and mechanical properties. *J. Appl. Polym. Sci.* 128, 1227-1238.
- Bos H.L., Müssig J., van den Oever M.J.A. (2006). Mechanical properties of short-flax-fibre reinforced compounds. *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 37, 1591-1604.
- Bourmaud A., Akesson D., Beaugrand J., Le Duigou A., Skrifvars M., Baley C. (2016). Recycling of L-Poly-(lactide)-Poly-(butylene-succinate)-flax biocomposite. *Polym. Degrad. Stab.* 128, 77-88.
- Bourmaud A., Ausias G., Lebrun G., Tachon M.L., Baley C., (2013). Observation of the structure of a composite polypropylene/flax and damage mechanisms under stress. *Ind. Crops Prod.* 43, 225-236.
- Bourmaud A., Baley C., (2009). Rigidity analysis of polypropylene/vegetal fibre composites after recycling. *Polym. Degrad. Stab.* 94, 297-305.

- Bourmaud A., Baley C. (2007). Investigations on the recycling of hemp and sisal fibre reinforced polypropylene composites. *Polym. Degrad. Stab.* 92, 1034–1045.
- Bourmaud A., Corre Y.-M., Baley C. (2015). Fully biodegradable composites: Use of poly-(butylene-succinate) as a matrix and to plasticize l-poly-(lactide)-flax blends. *Ind. Crops Prod.* 64, 251–257.
- Bourmaud A., Le Duigou A., Baley C. (2011). What is the technical and environmental interest in reusing a recycled polypropylene–hemp fibre composite? *Polym. Degrad. Stab.* 96, 1732–1739.
- Bourmaud A., Morvan C., Baley C. (2010). Importance of fiber preparation to optimize the surface and mechanical properties of unitary flax fiber. *Ind. Crops Prod.* 32, 662–667.
- Dickson A.R., Even D., Warnes J.M., Fernyhough A. (2014). The effect of reprocessing on the mechanical properties of polypropylene reinforced with wood pulp, flax or glass fibre. *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 61, 258–267.
- Doumbia A.S., Castro M., Jouannet D., Kervoëlen A., Falher T., Cauret L., Bourmaud A. (2015). Flax/polypropylene composites for lightened structures: Multiscale analysis of process and fibre parameters. *Mater. Des.* 87, 331–341
- Duval C. (2010). Plastiques et automobile : D’hier à aujourd’hui. *Tech. l’ingénieur. Plast. Compos. Am5390*
- Meirhaeghe C. (2011). *Evaluation de la disponibilité et de l’accessibilité de fibres végétales à usages matériaux en France*, rapport ADEME.
- Joshi S. V, Drzal L.T., Mohanty A.K., Arora S. (2004). Are natural fiber composites environmentally superior to glass fiber reinforced composites? *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 35, 371–376.
- Kelly A., Tyson W.R. (1965). Tensile properties of fibre-reinforced metals: Copper/tungsten and copper/molybdenum. *J. Mech. Phys. Solids* 13, 329–338.
- Koenig C., Mueller D., (2008). Acoustical Properties of Reinforced Composite Materials Basing on Natural Fibers. *Proceedings of the INTC-International Nonwovens Technical Conference*, Atlanta.
- Le Duigou A., Davies P., Baley C. (2011). Environmental Impact Analysis of the Production of Flax Fibres to be Used as Composite Material Reinforcement. *J. Biobased Mater. Bioenergy*, Vol. 5, 153–165.
- Le Duigou A., Pillin I., Bourmaud A., Davies P., Baley C. (2008). Effect of recycling on mechanical behaviour of biocompostable flax/poly(l-lactide) composites. *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 39, 1471–1478.
- Lefeuvre A., Bourmaud A., Morvan C., Baley C. (2014). Tensile properties of elementary fibres of flax and glass: Analysis of reproducibility and scattering. *Mater. Lett.* 130, 289–291.
- Mérotte J., Le Duigou A., Bourmaud A., Behloul K., Baley C. (2016). Mechanical and acoustic behaviour of porosity controlled randomly dispersed flax/PP biocomposite. *Polym. Test*, 51, 174-180.
- Miao M., Shan M. (2011). Highly aligned flax/polypropylene nonwoven preforms for thermoplastic composites. *Compos. Sci. Technol.* 71, 1713–1718.



- Mieck K.-P., Lützkendorf R., Reussmann T. (1996). Needle-Punched hybrid nonwovens of flax and ppfibers—textile semiproducts for manufacturing of fiber composites. *Polym. Compos.* 17, 873–878.
- Oksman K. (2000). Mechanical properties of natural fibre mat reinforced thermoplastic. *Appl. Compos. Mater.* 7, 403–414.
- Parlement européen (2009). Règlement (CE) No 443/2009 du Parlement européen et du Conseil.
- Pervaiz M., Sain M.M. (2003). Carbon storage potential in natural fiber composites. *Resour. Conserv. Recycl.* 39, 325–340.
- PlasticsEurope (2014). *Les matières plastiques accompagnent la révolution automobile* – [www.plasticseurope.fr](http://www.plasticseurope.fr).
- S. Russell (2006). *Handbook of Nonwovens*, Woodhead Publishing.
- Soccalingame L., Bourmaud A., Perrin D., Bénézet J.-C., Bergeret A. (2015). Reprocessing of wood flour reinforced polypropylene composites: Impact of particle size and coupling agent on composite and particle properties. *Polym. Degrad. Stab.* 113, 72–85.
- Van de Velde K., Kiekens P. (2001). Thermoplastic polymers: overview of several properties and their consequences in flax fibre reinforced composites. *Polym. Test.* 20, 885–893.
- Xu X., Jayaraman K., Morin C., Pecqueux N. (2008). Life cycle assessment of wood-fibre-reinforced polypropylene composites. *J. Mater. Process. Technol.* 198, 168–177.

