



**HAL**  
open science

## Determination of the energy efficiency in mixing of PLA/cellulose biocomposites

P.E. Le Marec, J.-C. Bénézet, Laurent Ferry, Jean-christophe Quantin, Marie Helene Morel, Stephane Guilbert, Anne Bergeret

► **To cite this version:**

P.E. Le Marec, J.-C. Bénézet, Laurent Ferry, Jean-christophe Quantin, Marie Helene Morel, et al..  
Determination of the energy efficiency in mixing of PLA/cellulose biocomposites. *Matériaux et Techniques*, 2012, 100 (5), pp.437-449. 10.1051/mattech/2012014 . hal-03272192

**HAL Id: hal-03272192**

**<https://imt-mines-ales.hal.science/hal-03272192v1>**

Submitted on 25 May 2022

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

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

# Méthode de détermination de l'efficacité énergétique d'un procédé de mélangeage d'un biocomposite PLA/cellulose

P.E. Le Marec<sup>1,2</sup>, J.-C. Bénézet<sup>1</sup>, L. Ferry<sup>1</sup>, J.-C. Quantin<sup>1</sup>, M.-H. Morel<sup>2</sup>, S. Guilbert<sup>2</sup> et A. Bergeret<sup>1</sup>

<sup>1</sup> École des Mines d'Alès, Centre CMGD, École des Mines d'Alès, 6 avenue de Clavières, 30319 Alès Cedex, France

<sup>2</sup> UMR 1208 Ingénierie des Agropolymères et Technologies Emergentes (IATE), INRA/Agro.M/UM2/

CIRAD, Campus de la Gaillarde, 2 place Pierre Viala, 34060 Montpellier Cedex 01, France  
e-mail : anne.bergeret@mines-ales.fr

## Mots-clés :

Biocomposite ; fibres de cellulose ; PLA ; extrusion ; efficacité énergétique

**Résumé** – Afin de mettre en place une méthode de détermination de l'efficacité énergétique du procédé de mélangeage d'un bio<sup>3</sup>composite PLA renforcé de fibres courtes de cellulose, nous avons d'abord dressé le bilan énergétique de ce procédé dans le cas du polymère pur. Le processus se déroule en deux phases : la fusion et le mélange. Dans la phase de fusion, le polymère doit fondre et atteindre la température de consigne ; une fois cette température atteinte, la phase de mélange démarre. L'efficacité dans la phase de fusion est définie par le rapport entre l'énergie théorique nécessaire pour atteindre la température de consigne et l'énergie réellement consommée au moment où cette température est atteinte. Il a été montré que l'efficacité de la phase de fusion augmente avec la température de consigne et diminue avec la vitesse de rotation. Dans le cas présenté ici, l'efficacité de la phase de mélange est nulle puisqu'il n'y a qu'un constituant. Quelques essais sur des composites ont également été réalisés. Il a été montré que la consommation énergétique augmente fortement avec le taux de fibres dans le cas de suspensions concentrées et qu'elle varie peu avec le facteur de forme dans le cas de suspensions diluées et semi-diluées. Il a également été montré que l'influence de la vitesse de rotation est similaire dans le cas du polymère pur et dans le cas des composites.

## Key words:

Biocomposites; cellulose fibres; PLA; extrusion; energy efficiency

## Abstract – Determination of the energy efficiency in mixing of PLA/cellulose bio-composites

. In order to set up a method to determine the energy efficiency of a cellulose fibres reinforced PLA biocomposite compounding process in a batch mixer, it was necessary to study the energy balance of mixing in the case of pure PLA. The process consists in two steps: (1) melting and (2) mixing. In the melting phase, the polymer pellets has to melt and to reach the mixing set temperature; once this temperature is reached, the mixing phase starts. Energy efficiency of the melting phase is defined as the ratio between the theoretical energy consumed by the material to reach the mixing set temperature and the energy consumed the temperature is reached. It appears that melting efficiency increases with the missing temperature and decreases with rotor speed. Reinforced composites having different concentration regime were also studied. In the case of concentrated suspensions, it appears that the total energy input increases with the fibre content. Aspect ratio has no significant influence on energy consumption for diluted and semi-diluted suspensions but strongly increases the energy consumption in the case of concentrated suspensions.

L'industrie des polymères et composites est confrontée à de nombreux problèmes depuis que le développement durable rentre dans les mœurs. Les nouvelles méthodes d'éco-conception appelle à la mise sur le marché de nouveaux matériaux à durabilité (ou soutenabilité) améliorée. Cette soutenabilité doit s'ar-

ticuler autour des trois points suivants. Pour commencer, cette industrie s'est développée sur l'utilisation de matières premières d'origine fossile : les gisements renouvelables de matières premières doivent être promus. Actuellement, l'utilisation d'agromatériaux tels que l'amidon ou la cellulose pour fabriquer des polymères et des composites

bio-sourcés s'intensifie. Par ailleurs, la gestion de la fin de vie doit être améliorée afin de réduire la quantité de déchets. Le rapport temporel entre l'utilisation du produit et la durée de gestion de la fin de vie doit être optimisé et, particulièrement pour le secteur de l'emballage où la durée d'utilisation se compte en jours voire en heures (emballage de restauration rapide par exemple), la durée de cette phase de gestion de fin de vie doit être réduite autant que possible. Dans cette optique, les polymères et composites biodégradables sont attractifs. Finalement, les procédés de mise en œuvre doivent être repensés afin de minimiser la consommation énergétique dans le but de réduire les coûts, qu'ils soient économiques ou écologiques.

Les composites dont une partie des constituants est biosourcée sont généralement appelés biocomposites. Cette dénomination recouvre des réalités très différentes et ne permet pas de juger de l'efficacité environnementale des matériaux au regard des trois critères mentionnés précédemment (biosourçabilité, fin de vie, consommation énergétique de la mise en œuvre). Ce constat établi, afin de clarifier leur appellation, il est nécessaire de classer ces différents matériaux et trois niveaux de biocomposites peuvent alors être distingués :

- bio<sup>1</sup>composites pour les composites dont les matières premières sont totalement extraites de ressources renouvelables ;
- bio<sup>2</sup>composites pour les bio<sup>1</sup>composites dont la fin de vie peut être gérée de façon « éco-respectueuse » (compostage, méthanisation, recyclage...);
- bio<sup>3</sup>composites pour les bio<sup>2</sup>composites dont les procédés de transformation successifs depuis l'extraction des matières premières jusqu'à l'expédition du produit sont respectueuses de l'environnement (consommation énergétique et émissions réduites).

Cette nouvelle classification des biocomposites pose un problème de taille : si on peut imaginer caractériser un bio<sup>1</sup>composite par son taux de matières renouvelables et un bio<sup>2</sup>composite par son rapport temps d'utilisation/ temps de gestion de fin de vie, comment peut-on caractériser l'efficacité environnementale d'un bio<sup>3</sup>composite ?

L'efficacité environnementale d'un composite va pouvoir être déterminée, entre autres, lors du mélange des différents constituants, souvent l'extrusion bi-vis dans le cas des thermoplastiques renforcés. Les proportions de chacun des constituants du mélange sont prises en compte pour déterminer l'impact environnemental du matériau avant mélange et le bilan énergétique de l'opération de mélange donnera l'impact environnemental du composite. Il serait donc concevable de jouer sur la formulation du matériau et sur les paramètres de l'opération de mélange afin d'optimiser l'impact environnemental en fonctions des propriétés souhaitées pour le matériau. Nous ne traiterons pas ici la partie d'analyse de cycle de vie relative aux matières premières.

Dans une extrudeuse bi-vis, les vis transmettent une énergie mécanique via leur mouvement de rotation, cette énergie est fonction du couple et de la vitesse de rotation des vis (Éq. (1)) [1]. Le fourreau (et quelquefois les vis) régulé en température permet un transfert d'énergie thermique qui peut être positif si le polymère est plus froid que le fourreau, soit négatif dans le cas inverse (Éq. (2)) [2].

$$SME = \frac{\omega}{m} \int_0^{t_{\max}} \Gamma(t) dt \quad (1)$$

où SME est l'énergie mécanique spécifique,  $\omega$  est la vitesse de rotation des vis,  $m$  est la masse de produit extrudé,  $t_{\max}$  est la durée d'extrusion (très supérieure au temps de séjour) et  $\Gamma(t)$  le couple exercé sur les vis.

$$STE = \frac{1}{m} \int_0^{t_{\max}} [h_B (T_B - \bar{T}) S_{B,int} + h_S (T_S - \bar{T}) S_S] dt \quad (2)$$

où STE est l'énergie thermique spécifique en considérant un échange purement convectif,  $h_B$  (resp.  $h_S$ ) est le coefficient d'échange convectif entre le fourreau (resp. vis) et le polymère,  $T_B$  (resp.  $T_S$ ) est la température du fourreau sur la zone considérée (resp. vis),  $\bar{T}$  est la température moyenne du polymère sur la zone considérée et  $S_{B,int}$  (resp.  $S_S$ ) est la surface intérieure du fourreau (resp. vis).

L'extrusion étant un procédé de mélange en continu, plusieurs phénomènes se déroulent en même temps et sont donc difficiles à découpler. En effet, au cours de leur

avancée le long des vis, les granulés vont d'abord fondre puis la charge sera incorporée et mélangée dans le polymère fondu. Afin d'étudier séparément la phase de fusion et la phase de mélange, il est possible de procéder au mélangeage à l'aide d'un mélangeur interne. Lors de la phase de fusion, on observe un pic de couple, une forte montée en température ainsi qu'une augmentation de la pression dans la chambre de mélange. Ceci traduit une forte dissipation d'énergie de déformation plastique (PED) des granulés et d'énergie de friction entre granulés (FED) sous forme de chaleur. Selon Gogos et Qian [3], le bilan énergétique sur un élément de volume  $V$  et de surface  $S$  lors de la phase de fusion est donné par l'équation (3).

$$\int_V \rho C_p \frac{dT}{dt} dV = \int_S \text{div}(k \vec{g} \text{grad} T) dS + \int_{V_{\text{fondu}}} \eta \dot{\gamma}^2 dV_{\text{fondu}} + \int_{V_{\text{solide}}} \text{PED} dV_{\text{solide}} + \int_{V_{\text{solide}}} \text{FED} dV_{\text{solide}} + \int_V \dot{S} dV \quad (3)$$

où  $\rho$  est la masse volumique du polymère,  $C_p$  est la capacité calorifique du polymère,  $dT/dt$  est la dérivée particulaire de la température ( $\frac{dT}{dt} = \frac{\partial T}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{g} \text{grad} T$  où  $\vec{v}$  est le vecteur vitesse de la particule considérée),  $k$  est la conductivité thermique du polymère,  $V_{\text{fondu}}$  et  $V_{\text{solide}}$  sont les volumes de matière en phase fondue et solide respectivement ( $V_{\text{fondu}} + V_{\text{solide}} = V$ ),  $\eta$  est la viscosité du polymère décrite par une loi-puissance ( $\eta = K \dot{\gamma}^{n-1}$ , avec  $K$  la consistance et  $n$  l'indice de pseudoplasticité),  $\dot{\gamma}$  est le taux de cisaillement et  $\dot{S}$  représente les autres apports de chaleur par réactions chimiques et transitions de phase (par exemple cristallisation et fusion dans le cas d'un polymère thermoplastique semi-cristallin). Le terme de gauche correspond à l'énergie absorbée par le matériau, le premier terme à droite est le transfert de chaleur à travers la surface de l'élément considéré, le second terme est la dissipation d'énergie par frottement visqueux dans la phase fondue et le dernier terme correspond aux énergies de réaction ou de transitions de phase pouvant avoir lieu pendant la phase de mélange.

L'efficacité de l'opération de fusion sera définie comme le rapport entre l'énergie spé-

cifique théoriquement absorbée par le polymère et l'énergie spécifique apportée au système (Éq. (4)).

$$\eta_{\text{fus}} = \frac{\int_{T_{\text{amb}}}^{T_c} C_p(T_p) dT_p + \Delta H_m}{\text{SME} + \text{STE}} \quad (4)$$

où  $T_c$  est la température de consigne,  $T_{\text{amb}}$  est la température ambiante,  $T_p$  est la température du polymère et  $\Delta H_m$  est l'enthalpie de fusion du polymère. Le terme au numérateur sera noté SDE.

Une fois la phase de fusion terminée, le couple et la température atteignent un palier et la pression retombe, c'est le début de la phase de mélange. Le palier de température est supérieur à la température de consigne à cause de la dissipation de chaleur par frottement visqueux. La température atteint une valeur constante lorsque le transfert de chaleur du polymère vers les parois de la chambre est compensé par la dissipation visqueuse. Afin de pouvoir écrire ce bilan énergétique, il est nécessaire de poser une condition sur le transfert de chaleur avec les rotors qui ne sont pas régulés. Trois hypothèses sont possibles :

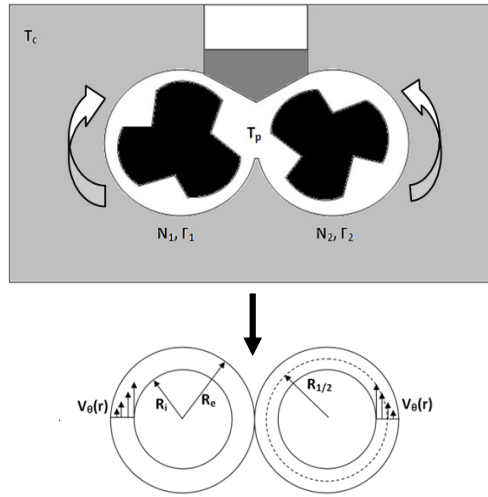
- les rotors sont à la température du polymère, il n'y a pas d'échange à la surface des rotors ;
- les rotors sont à la température de consigne, on peut calculer un coefficient de transfert thermique équivalent pour le fourreau et les rotors ;
- la température des rotors varie au cours de l'essai entre une valeur initiale et une valeur finale.

Les équations (5a), (5b) et (5c) correspondent respectivement à chacune de ces hypothèses.

$$\eta \dot{\gamma}^2 V - m_p \int_{T_p} C_{pp}(T_p) \frac{dT}{dt} = h_C (T_C + T_p) S_C \quad (5a)$$

$$\eta \dot{\gamma}^2 V - m_p \int_{T_p} C_{pp}(T_p) \frac{dT}{dt} = h_{C+R} (T_{C+R} - T_p) S_{C+R} \quad (5b)$$

$$\eta \dot{\gamma}^2 V - m_p \int_{T_p} C_{pp}(T_p) \frac{dT_p}{dt} - m_R \int_{T_R} C_{pR}(T_R) \frac{dT}{dt} = h_C (T_C - T_p) S_C \quad (5c)$$



**Fig. 1. Approximation de double Couette pour le mélangeur interne.**

*Fig. 1. Double-Couette approximation for batch mixer.*

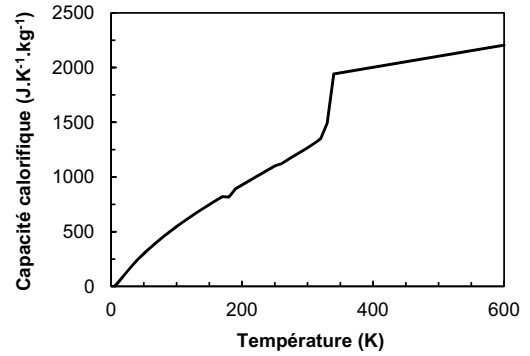
où les termes  $m_i$ ,  $h_i$ ,  $T_i$  et  $S_i$  correspondent respectivement aux masses, coefficients de convection, températures et surfaces d'échange de chaleur (les indices  $P$ ,  $C$  et  $R$  désignant le polymère, la chambre et les rotors respectivement).

Afin de déterminer le coefficient d'échange convectif entre le polymère et la chambre de mélange et d'en déduire l'énergie thermique spécifique, il est donc nécessaire de déterminer la viscosité du polymère. Bousmina et al. [4] ont proposé une méthode de détermination de la viscosité à partir de la mesure du couple exercé sur les rotors dans un mélangeur interne en utilisant une approximation de double Couette (Fig. 1). Cette méthode considère un écoulement laminaire et isotherme en régime permanent pour un fluide incompressible décrit par une loi-puissance et ayant une adhérence parfaite aux parois de la chambre de mélange ainsi qu'aux rotors.

Dans le cas d'un entrefer étroit ( $R_i/R_e > 0,85$ ) et d'un polymère modérément rhéofluidifiant ( $n > 0,2$ ), les équations (6) et (7) permettent de calculer la viscosité et le taux de cisaillement.

$$\eta = \frac{\Gamma}{N} \frac{(\beta^2 - 1)}{8\pi^2 L R_e^2 (1 + g^2)} \quad (6)$$

$$\dot{\gamma} = 16\pi N \frac{\beta^2}{(1 + \beta)^2 (\beta^2 - 1)} \quad (7)$$



**Fig. 2. Capacité calorifique du PLA 7000D en fonction de la température [5,6].**

*Fig. 2. Heat capacity of PLA 7000D as a function of temperature [5,6].*

où  $N$  est la vitesse de rotation (exprimée en  $\text{tr.s}^{-1}$ ),  $\beta = R_e/R_i$ ,  $R_e$  est le diamètre de la chambre de mélange,  $R_i$  est le diamètre équivalent des rotors pour l'approximation de Couette,  $L$  est la longueur des rotors et  $g$  est le rapport de vitesse entre les rotors.

Le but de cette étude est de déterminer le bilan énergétique dans la chambre de mélange au cours de l'opération de mélangeage afin d'obtenir des valeurs d'efficacité pour différents paramètres de mise en œuvre et différentes formulations de matériaux.

## 1 Matériaux et méthodes

Le PLA utilisé est un grade commercial de NatureWorks® LLC (type Ingeo™ 7000D). Selon les données du fournisseur, son enthalpie de fusion est de  $31,1 \text{ kJ.kg}^{-1}$  à une température  $T_f = 153,7 \text{ °C}$ . La variation de la capacité calorifique en fonction de la température est donnée en figure 2.

Des essais de calorimétrie différentielle à balayage (Perkin Elmer Diamond DSC) ont également été réalisés pour vérifier ces valeurs. Ils conduisent à une valeur  $C_p$  variant de  $1350$  à  $1850 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$  entre l'état solide et l'état fondu et à une enthalpie de fusion de  $25 \text{ kJ.kg}^{-1}$  à une température de  $148,7 \text{ °C}$ . Ces résultats seront soumis à publication ultérieurement et ne seront pas utilisés ici.

Les fibres de cellulose (pureté supérieure à 99 %) sont fournies par la société JRS Rettenmaier. Quatre types de fibres de la gamme Arbocel, ayant différentes longueurs moyennes  $L$  pour un même diamètre moyen

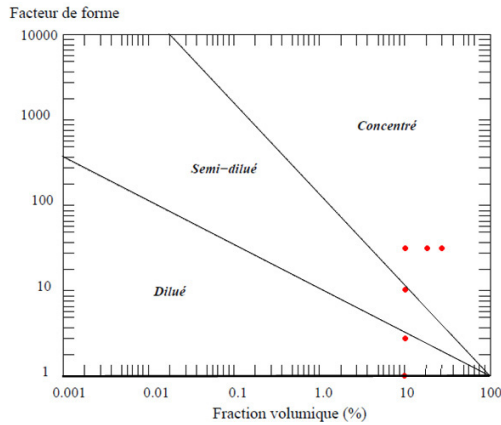


Fig. 3. Régime de concentration en fonction du taux de fibres et du facteur de forme [8].

Fig. 3. Concentration regime of suspensions as a function of fibre volume fraction and aspect ratio [8].

$D$  de 20  $\mu\text{m}$ , ont été utilisées : BC 1000 ( $L = 700 \mu\text{m}$ ,  $L/D = 35$ ), BWW40 ( $L = 200 \mu\text{m}$ ,  $L/D = 10$ ), B600 ( $L = 60 \mu\text{m}$ ,  $L/D = 3$ ) et B600-10TG ( $L = 18 \mu\text{m}$ ,  $L/D = 1$ ). Elles sont incorporées à des taux de 10, 20 et 30 % en masse dans le cas des fibres BC1000, on sera alors dans le cas de suspensions concentrées (Fig. 3). Pour les autres fibres, seul un taux de fibres de 10 % sera étudié et les suspensions seront alors diluées pour les fibres B600-10TG et B600 et semi-diluées pour les fibres BWW40. Elles seront incorporées dès le début de l'essai de façon à avoir des mesures reproductibles.

Selon Hatakeyama et al. [7], la capacité calorifique (en  $\text{kJ}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ) de la cellulose issue de bois entre 350 et 450 K se calcule en utilisant l'équation (8) :

$$C_p(T) = 1,364 + 5,06 \times 10^{-3}(T - 350) \quad (8)$$

où  $T$  est la température en Kelvin.

La capacité calorifique des composites sera calculées en utilisant la loi des mélanges (Éq. (9)) :

$$C_{p_{\text{comp}}} = w_m C_{p_m} + w_f C_{p_f} \quad (9)$$

où  $w_m$  et  $w_f$  sont respectivement les taux massiques de PLA et de fibres,  $C_{p_{\text{comp}}}$ ,  $C_{p_m}$  et  $C_{p_f}$  sont les capacités calorifiques respectivement du composite, de la matrice et des fibres.

Le mélangeur interne est un Haake Rheomix de 300  $\text{cm}^3$ . Le rayon équivalent des rotors a été calibré selon la méthode proposée par Bousmina et al. [4] à 29,7 mm pour

un rayon extérieur de 34 mm. La longueur de la chambre est de 84,1 mm et le rapport de vitesse de rotation des rotors est de 2/3. La masse de matière incorporée dans le mélangeur est de 250 g, ce qui correspond à taux de remplissage de l'ordre de 70 % considéré comme optimum par la littérature [4,9]. Les essais ont été réalisés pour des températures de consigne variant entre 170 et 190 °C et des vitesses de rotation variant de 40 à 150  $\text{tr}\cdot\text{min}^{-1}$ . Les granulés sont introduits dans la chambre de mélange avant le départ des rotors, la mesure de couple et de température du polymère commence au démarrage des rotors.

## 2 Résultats et discussion

### 2.1 PLA pur

Afin de traiter les données, un programme a été écrit sous Matlab. Il se déroule en 4 phases :

- correction des mesures et séparation fusion/mélange ;
- calcul de la SME et de la viscosité ;
- détermination du coefficient d'échange convectif et calcul de la STE ;
- calcul de l'efficacité pour chaque phase.

#### 2.1.1 Correction des mesures et séparation fusion/mélange

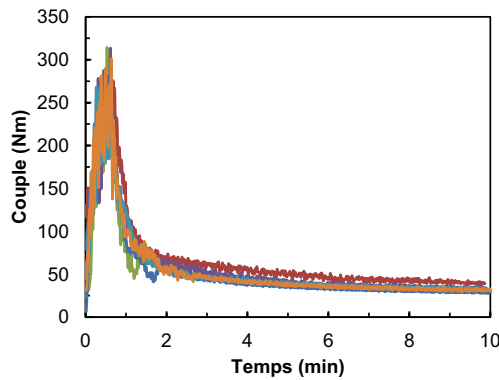
Un minimum de 4 essais a été réalisé pour chaque couple de température et vitesse de rotation [ $T$ ;  $N$ ]. Afin de calculer une moyenne des différents essais sans réduire la valeur du pic, il faut calculer un temps au pic moyen  $t_{\text{pic}}$  et caler toutes les données par rapport à cette valeur. Les données sont ensuite lissées en calculant une moyenne locale sur 7 pas de temps puis moyennées entre elles. La figure 4 présente des courbes de couple avant et après correction.

La mesure de température sert à séparer la phase de fusion de la phase de mélange. Quand la température du polymère atteint la température de consigne, on considère la phase de fusion terminée ( $t = t_1$ ). Cependant, cette mesure n'est pas fiable dans la phase de fusion (Fig. 5) et nécessite d'être corrigée. On considère que la température

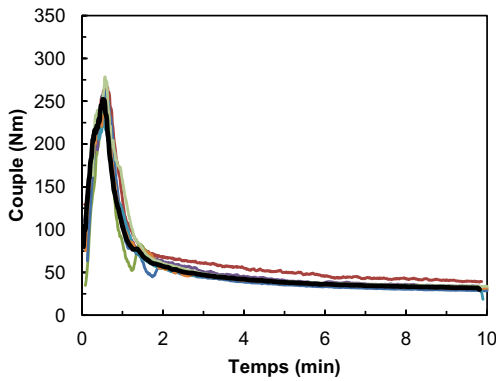
**Tableau 1. SME apportée au PLA en  $\text{kJ.kg}^{-1}$  à la fin de la phase de fusion.**

Table 1. SME input for PLA in  $\text{kJ.kg}^{-1}$  at the end of the melting phase.

[T ; N]	40 tr/min	50 tr/min	75 tr/min	100 tr/min	150 tr/min
170 °C	266,4	295,0	303,2	323,2	390,6
180 °C	213,1	295,0	321,1	290,3	351,1
190 °C	266,1	246,7	332,5	371,4	375,7



(a)



(b)

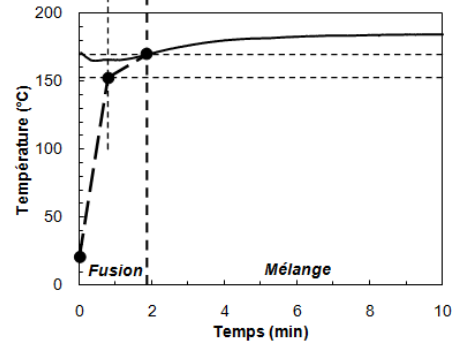
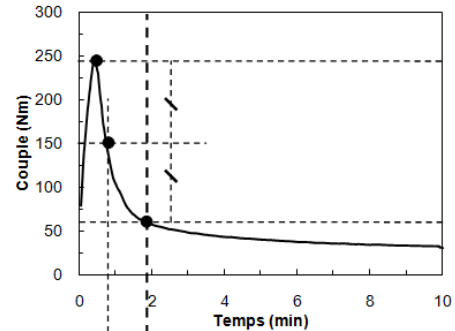
**Fig. 4. Correction des courbes de couple (ici sur 6 essais à 170 °C et 40  $\text{tr.min}^{-1}$ ). En noir, la courbe moyenne utilisée pour les calculs.**

Fig. 4. Torque evolution correction (6 tests at 170 °C and 40 rpm). In black the average curve used for the calculations.

moyenne du polymère atteint la température de fusion quand le couple diminue à  $\Gamma(t_{\text{fus}}) = [\Gamma(t_{\text{pic}}) + \Gamma(t_1)]/2$ ; en effet, on peut alors supposer que la moitié du polymère est fondu et que sa température moyenne est la température de fusion.

### 2.1.2 Calcul de la SME et de la viscosité

La SME et la viscosité sont calculées en utilisant respectivement les équations (1) et (6).



**Fig. 5. Correction des courbes de températures (ici dans le cas du PLA à 170 °C et 50  $\text{tr.min}^{-1}$ ).**

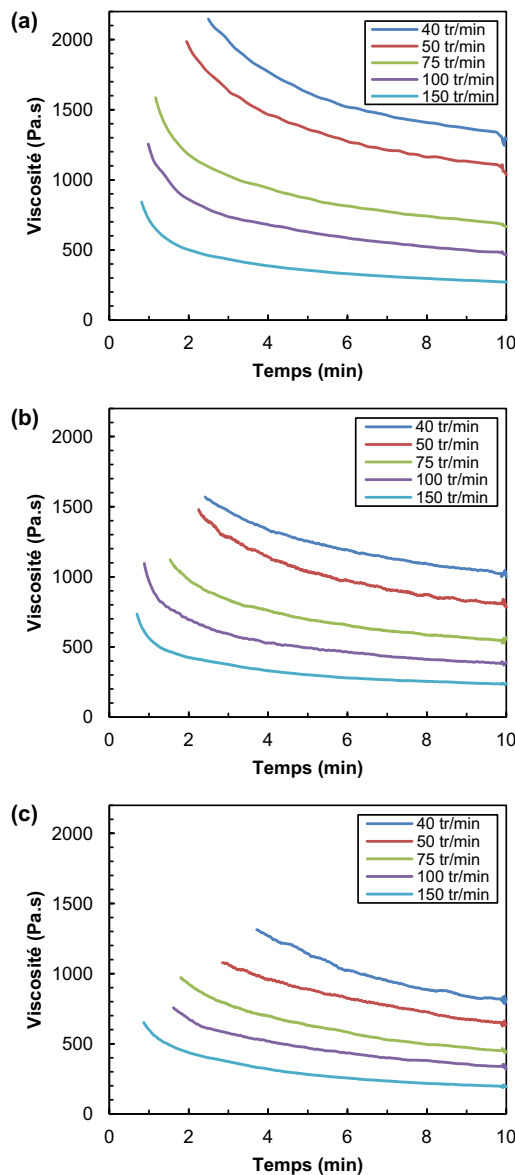
Fig. 5. Temperature correction (PLA at 170 °C and 50 rpm).

La viscosité n'est pas calculée lors de la phase de fusion car le polymère n'est pas encore totalement fondu. La figure 6 montre l'influence du couple de paramètres procédé [T ; N] sur la viscosité. Il apparaît que la viscosité diminue quand la température de consigne augmente et il en est de même avec la vitesse de rotation. La figure 7 montre les variations de l'apport d'énergie mécanique au cours du temps en fonction de différents couples [T ; N]. Il apparaît que l'énergie mécanique augmente avec la vitesse de rotation mais diminue quand la température augmente. Le tableau 1 présente les valeurs de SME à la fin de la phase de fusion. La SME apportée et la SME dissipée par frottement visqueux lors de la phase de mélange sont présentées dans le tableau 2.

**Tableau 2. SME apportée au PLA (et dissipée par frottement visqueux) pendant la phase de mélange en  $\text{kJ.kg}^{-1}$ .**

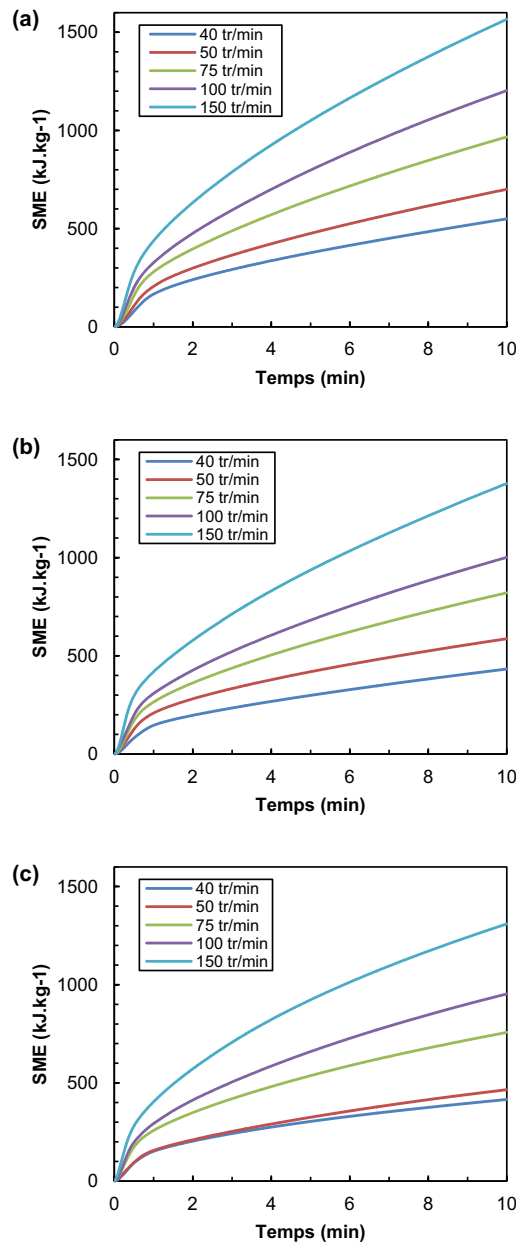
*Table 2. SME input for PLA in  $\text{kJ.kg}^{-1}$  (viscous dissipation) during the mixing phase.*

[T ; N]	40 tr/min	50 tr/min	75 tr/min	100 tr/min	150 tr/min
170 °C	283,3 (77,3)	405,2 (110,5)	663,7 (181,1)	879,7 (240,0)	1175,6 (320,9)
180 °C	219,6 (59,9)	292,1 (79,7)	499,9 (136,3)	711,4 (194,1)	1026,5 (280,2)
190 °C	149,5 (40,8)	218,7 (59,7)	424,5 (115,8)	581,6 (158,7)	934,0 (255,0)



**Fig. 6. Viscosité du PLA calculée selon le modèle de Bousmina et al. pendant la phase de mélange pour chaque vitesse de rotation à (a) 170 °C, (b) 180 °C et (c) 190 °C.**

*Fig. 6. PLA viscosity evolution during mixing phase deduced from Bousmina's model for each rotor speed at different temperatures (a) 170 °C, (b) 180 °C and (c) 190 °C.*



**Fig. 7. SME apportée au PLA en fonction du temps pour chaque vitesse de rotation à (a) 170 °C, (b) 180 °C et (c) 190 °C.**

*Fig. 7. SME input vs time for PLA for each rotor speed and different temperatures (a) 170 °C, (b) 180 °C and (c) 190 °C.*



**Tableau 3. STE apportée au PLA pendant la phase de fusion (et dissipée pendant la phase de mélange) en  $\text{kJ.kg}^{-1}$ .**

Table 3. STE input for PLA in  $\text{kJ.kg}^{-1}$  during the melting phase (dissipated during the mixing phase).

[T ; N]	40 tr/min	50 tr/min	75 tr/min	100 tr/min	150 tr/min
170 °C	46,2 (-53,3)	43,2 (-75,5)	33,2 (-121,9)	27,6 (-161,5)	22,4 (-222,6)
180 °C	45,9 (-44,4)	46,4 (-55,0)	38,3 (-94,5)	31,0 (-123,7)	22,3 (-178,0)
190 °C	42,2 (-28,8)	45,1 (-42,7)	44,0 (-76,1)	43,0 (-110,8)	36,9 (-160,6)

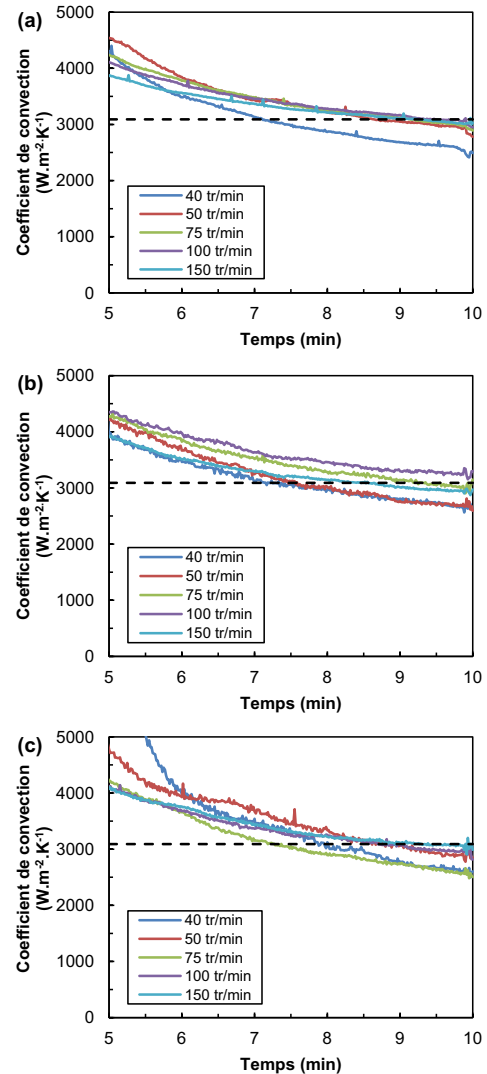
### 2.1.3 Détermination du coefficient de transfert thermique et calcul de la STE

Les équations (5b) et (7) sont utilisées pour calculer le coefficient d'échange convectif entre les parois de la chambre et le polymère. En pratique, il n'a pas été possible de mesurer de façon reproductible les valeurs de température de la surface des rotors à la fin de l'essai ; nous n'avons donc pas pu utiliser l'hypothèse (5c). L'hypothèse (5a) induit un échange nul entre les rotors et le polymère, ce qui n'est visiblement pas réaliste. La figure 8 montre les valeurs calculées pour le coefficient d'échange convectif au cours de la dernière minute d'essai. La valeur de 3090 ( $\pm 174$ )  $\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$  a été obtenue en moyennant ces valeurs et a été utilisée pour le calcul de la STE.

La figure 9 montre la variation de la STE au cours du temps en fonction des couples de paramètres ; il apparait clairement que la STE augmente jusqu'à la fin de la phase de fusion puis diminue lors de la phase de mélange, la température du polymère étant supérieure à la température de consigne. La STE à la fin de la phase de fusion ne varie pas significativement avec la température mais diminue avec l'augmentation de la vitesse de rotation. La quantité d'énergie thermique dissipée lors de la phase de mélange augmente avec la vitesse de rotation. Ceci peut s'expliquer par un auto-échauffement du polymère d'autant plus important que le cisaillement (proportionnel à la vitesse de rotation) est élevé. L'augmentation de la température de consigne aura tendance à diminuer cette dissipation. Le tableau 3 présente les valeurs de STE à la fin de la phase de fusion et la STE pendant la phase de mélange.

### 2.1.4 Calcul de l'efficacité

La figure 10 présentent la répartition de l'apport d'énergie en fonction de différents couples de paramètres [T ; N].



**Fig. 8. Coefficient de convection à la surface de la chambre de mélange pour chaque vitesse de rotation à (a) 170 °C, (b) 180 °C et (c) 190 °C.**

Fig. 8. Heat transfer coefficient at the mixing chamber wall for each rotor speed at different temperatures (a) 170 °C, (b) 180 °C and (c) 190 °C.

On observe que l'énergie totale consommée pour la phase de fusion reste constante quels que soient les paramètres de mise en œuvre. Au contraire, on observe que l'énergie consommée pour la phase de mélange augmente fortement avec la vitesse de

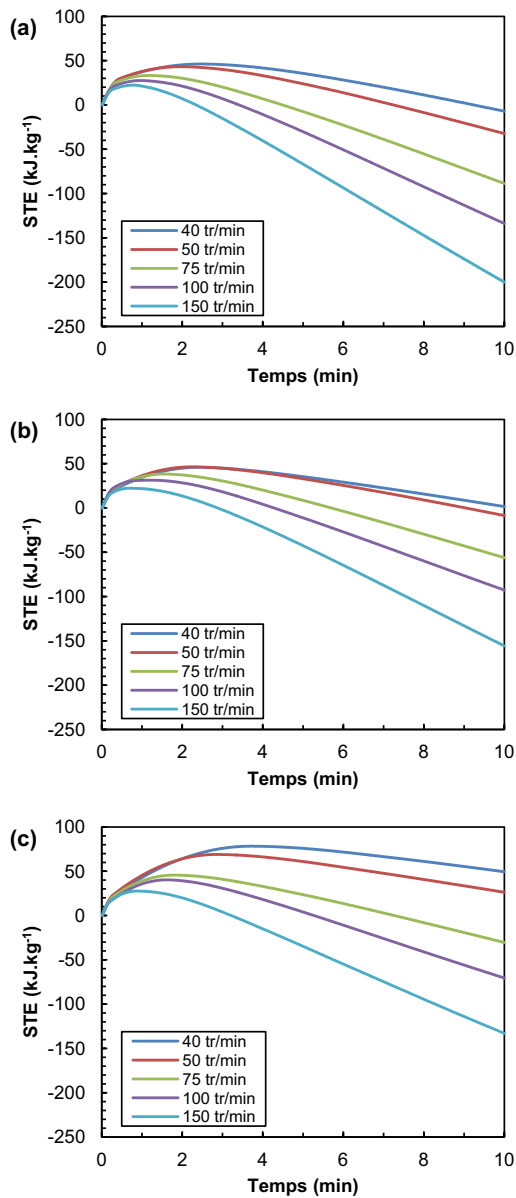


Fig. 9. STE apportée au PLA en fonction du temps pour chaque vitesse de rotation à (a) 170 °C, (b) 180 °C et (c) 190 °C.

Fig. 9. STE input vs time for PLA for each rotor speed and different temperatures (a) 170 °C, (b) 180 °C and (c) 190 °C.

rotation alors qu'elle diminue quand la température augmente. Il est à noter que dans tous les cas la dissipation visqueuse représente 33 % de l'énergie consommée lors de la phase de mélange.

L'énergie théoriquement absorbée par le PLA (SDE) est calculée sur la base des données de capacité calorifique et d'enthalpie de fusion du PLA 7000D issues de la réfé-

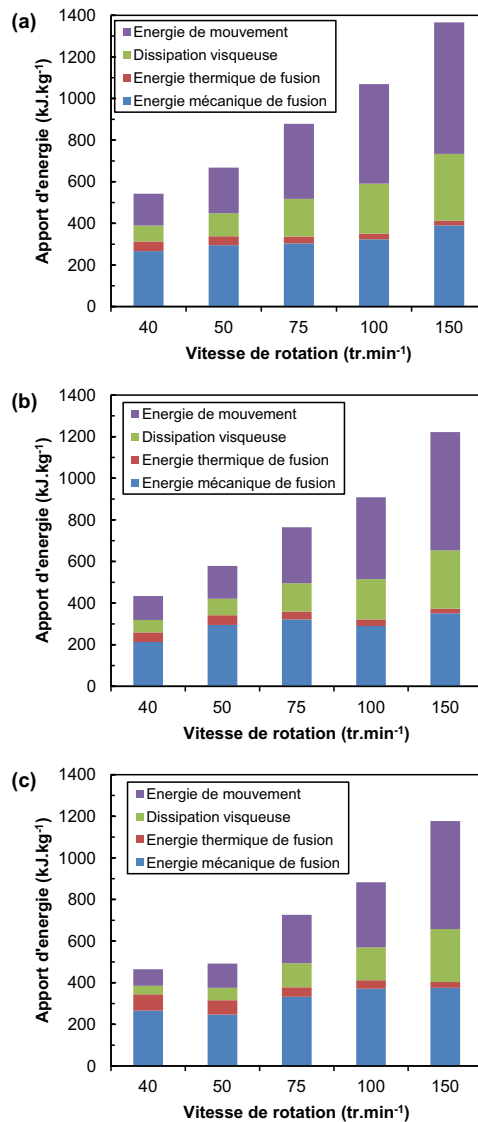


Fig. 10. Répartition de l'énergie totale apportée au PLA en fonction de la vitesse de rotation à (a) 170 °C, (b) 180 °C et (c) 190 °C après 10 min de mélange.

Fig. 10. Repartition of total energy input as a function of rotor speed at (a) 170 °C, (b) 180 °C and (c) 190 °C after 10 min mixing.

rence [6]. La SDE à la fin de la phase de fusion s'élève respectivement à 297, 320 et 343  $\text{kJ.kg}^{-1}$  pour les essais à 170, 180 et 190 °C. Les valeurs d'efficacité à la fin de la phase de fusion pour chacun des couples de paramètres [T ; N] sont calculées en utilisant l'équation (4) et sont présentées dans le tableau 4.

On constate que l'efficacité de la phase de fusion augmente avec la température de

**Tableau 4. Efficacité énergétique du procédé à la fin de la phase de fusion dans le cas du PLA.**

*Table 4. Energy efficiency for PLA at the end of the melting phase.*

[T ; N]	40 tr/min	50 tr/min	75 tr/min	100 tr/min	150 tr/min
170 °C	0,947	0,878	0,883	0,841	0,714
180 °C	1,230	0,939	0,889	0,995	0,858
190 °C	0,997	1,087	0,905	0,827	0,844

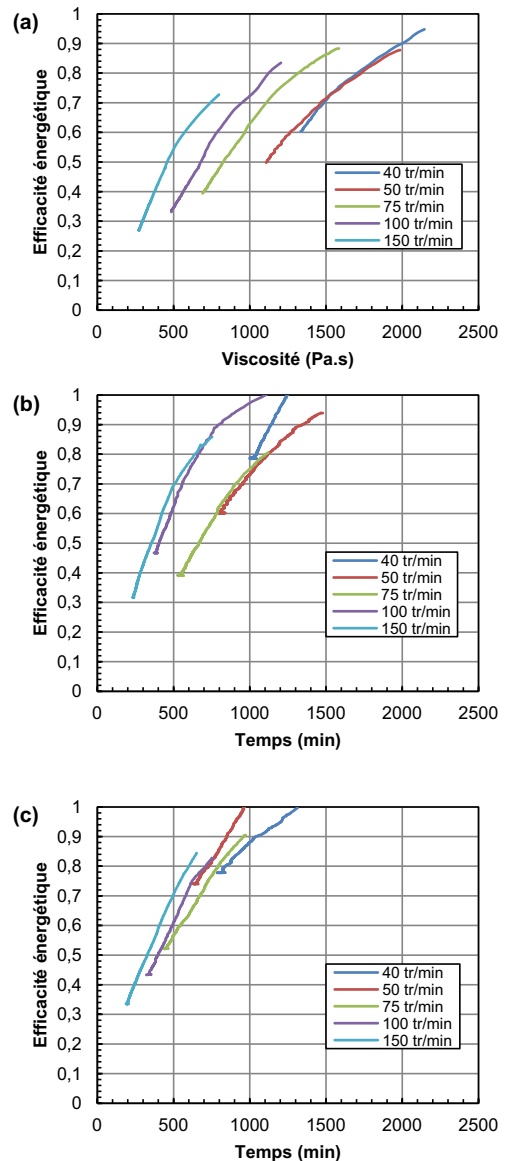
consigne et qu'elle diminue quand la vitesse de rotation augmente. Dans certains cas, ces valeurs sont supérieures à 1, ce qui est dû au choix arbitraire de considérer que la phase de fusion se termine au moment où la température du polymère dépasse la température de consigne. Il faudra travailler sur ce critère afin de corriger ce problème.

La figure 11 montre la variation de l'efficacité en fonction de la viscosité du matériau au cours de la phase de mélange. On observe que pour une température de consigne donnée et en augmentant la vitesse de rotation, la courbe de l'efficacité en fonction de la viscosité glisse vers les faibles viscosités et des niveaux d'efficacité inférieurs et que sa pente augmente. A contrario, pour une vitesse de rotation donnée et en augmentant la température de consigne, on observe que l'efficacité augmente, la viscosité diminue et que la pente de la courbe est plus forte. À partir de ces observations, on peut imaginer l'utilisation de facteurs de glissement permettant d'obtenir une courbe « maîtresse » d'efficacité en fonction de la viscosité pour tous les couples de paramètres en réalisant un nombre limité d'essais. Des travaux sont en cours sur ce sujet et seront soumis à publication ultérieurement.

## 2.2 Biocomposites PLA/fibres de cellulose

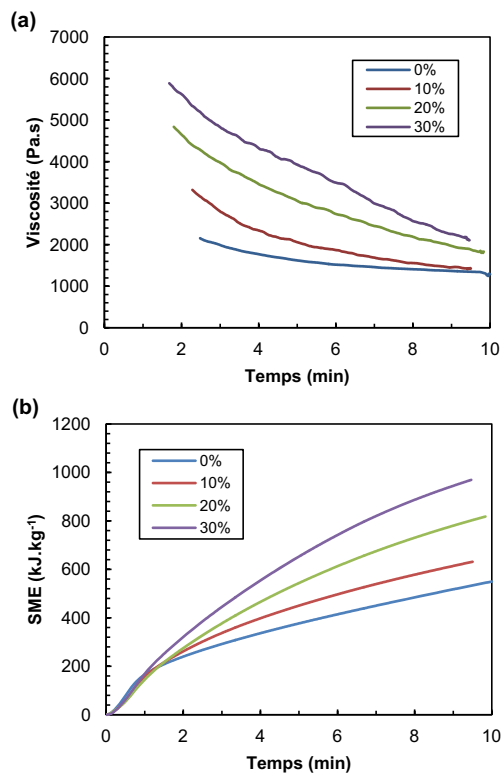
La même méthode a été appliquée pour quelques essais réalisés avec du PLA chargé de fibres de cellulose. La figure 12 montre l'effet du taux de fibre sur la viscosité et sur la SME à 40 tr.min<sup>-1</sup> et 170 °C pour des fibres de type BC1000 ( $L/D = 35$ ). On observe que la viscosité, au cours de la phase de mélange, augmente fortement avec le taux de fibres, ce qui se traduit également par une forte augmentation de la SME.

La figure 13 montre l'effet du facteur de forme des fibres sur la viscosité et la SME



**Fig. 11. Efficacité énergétique du procédé de mélange à (a) 170 °C, (b) 180 °C et (c) 190 °C en fonction de la viscosité. Le début de la phase de mélange se situe à l'extrémité droite de chacune des courbes.**

*Fig. 11. Energy efficiency for the mixing process at different temperatures (a) 170 °C, (b) 180 °C and (c) 190 °C as a function of polymer viscosity. The start of mixing is on the right end of each curve.*

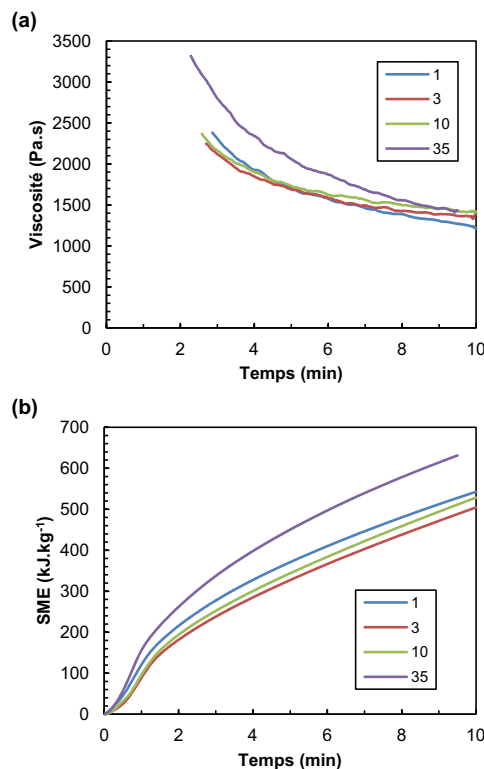


**Fig. 12. (a) Viscosité et (b) SME lors du mélange des biocomposites PLA/cellulose à différents taux de fibres d'un facteur de forme de 35.**  
*Fig. 12. (a) Viscosity et (b) SME during PLA/cellulose biocomposites mixing for different fibre contents (aspect ratio 35).*

à  $40 \text{ tr.min}^{-1}$  et  $170 \text{ }^\circ\text{C}$ . On observe que le régime de concentration (voir Fig. 3) influence sur la viscosité de la suspension. Dans le cas des suspensions diluées et semi-diluées (facteur de forme de 1 à 10), la viscosité diminue rapidement après la phase de fusion alors que cette diminution est beaucoup plus lente dans le cas des suspensions concentrées (facteur de forme de 35). On observe donc une forte augmentation de la SME dans le cas des suspensions concentrées par rapport aux suspensions diluées et semi-diluées.

La figure 14 montre la répartition de l'énergie apportée au matériau en fonction du taux de fibres de type BC1000 à  $40 \text{ tr.min}^{-1}$  et  $170 \text{ }^\circ\text{C}$ . On observe que seule la phase de mélange a une influence sur le bilan énergétique avec une forte augmentation de l'énergie consommée par le mélange avec le taux de fibres.

La figure 15 montre la répartition de l'énergie apportée au matériau en fonction



**Fig. 13. Viscosité et SME lors du mélange des biocomposites PLA/cellulose à un taux massique de 10 % de fibres en fonction du facteur de forme.**

*Fig. 13. (a) Viscosity and (b) SME during PLA/cellulose biocomposites mixing vs aspect ratio (10% fibre content).*

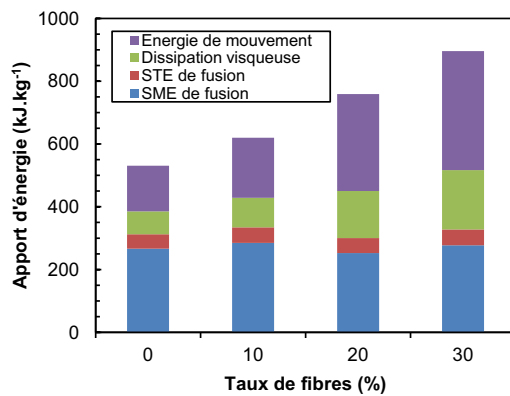
du facteur de forme des fibres à un taux de charge  $\Phi$  de 10 % en masse. On observe une augmentation de l'ordre de 15 % de l'énergie apportée au matériau (due à une augmentation de 40 % de l'énergie consommée dans la phase de mélange) dans le cas de la suspension concentrée alors qu'on n'observe pas de différence significative dans le cas des trois autres suspensions.

L'efficacité à la fin de la phase de fusion a été calculée en considérant que la capacité calorifique d'un composite suivait la loi des mélanges (Éq. (9)). Les SDE en fin de phase de fusion pour les biocomposites PLA/BC1000 à une température de consigne de  $170 \text{ }^\circ\text{C}$  sont respectivement 292, 287 et  $281 \text{ kJ.kg}^{-1}$  à 10, 20 et 30 % de fibres. L'efficacité pour les différents biocomposites à une température de  $170 \text{ }^\circ\text{C}$  est présentée dans le tableau 5. On observe que la présence de fibre de type BC1000 va avoir tendance à

**Tableau 5. Efficacité à la fin de la phase de fusion pour les biocomposites PLA/fibres de cellulose à 170 °C.**

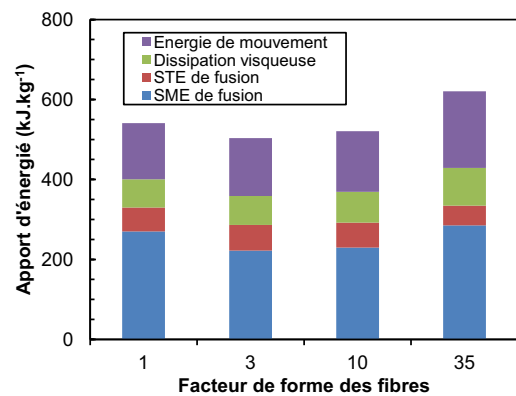
Table 5. Energy efficiency for PLA/cellulose fibres biocomposites at the end of the melting phase at 1700 °C.

$[\Phi;N]$	L/D	40 tr/min	50 tr/min	75 tr/min	100 tr/min	150 tr/min
0 %	–	0,947	0,878	0,883	0,841	0,714
10 %	1	0,883	–	–	–	–
10 %	3	1,0198	–	–	–	–
10 %	10	0,999	–	–	–	–
10 %	35	0,872	0,784	0,849	0,745	0,630
20 %	35	0,953	–	–	–	–
30 %	35	0,856	–	–	–	–



**Fig. 14. Répartition de l'énergie totale ( $\text{kJ.kg}^{-1}$ ) en fonction du taux de fibres d'un facteur de forme de 35 à 170 °C et 40  $\text{tr.min}^{-1}$  après 10 min de mélange.**

Fig. 14. Energy balance as a function of the fibre content (fibre aspect ratio 35, 170 °C, 40 rpm) after 10 min mixing.



**Fig. 15. Répartition de l'énergie totale ( $\text{kJ.kg}^{-1}$ ) en fonction du facteur de forme des fibres à un taux massique de 10 % à 170 °C et 40  $\text{tr.min}^{-1}$  après 10 min de mélange.**

Fig. 15. Energy balance as a function of the fibre aspect ratio (10% fibre content, 170 °C, 40 rpm) after 10 min mixing.

diminuer l'efficacité significativement alors que pour les autres types de fibres, on n'observe pas de différence significative. La diminution de l'efficacité s'explique dans le cas des suspensions concentrées par une forte augmentation de l'énergie nécessaire au mélange, elle-même due à une viscosité plus élevée. Des essais supplémentaires seront nécessaires pour confirmer et expliquer la tendance observée dans le cas des suspensions diluées et semi-diluées.

L'efficacité de la phase de mélange n'a pas encore été déterminée puisqu'il faudrait quantifier l'énergie nécessaire au mélange. Si un mélange est purement distributif, seule la déformation induite par le déplacement des rotors sera la cause du mélange, il n'y aura donc pas d'énergie mise en jeu. Dans le cas où le mélange est également dispersif, il sera possible d'estimer la quantité d'énergie nécessaire à la rupture des fibres, la di-

minution de longueur de fibres étant quantifiable par analyse d'image. Cependant, la figure 16 montre l'évolution de l'efficacité avec la viscosité lors de la phase de mélange en considérant simplement la SDE comme référence. On observe que plus il y a de fibres et que plus elles sont longues, plus il faut fournir d'énergie pour diminuer la viscosité. Deux phénomènes peuvent expliquer ces tendances : d'une part, une forte élévation de la viscosité due à la présence des fibres, et d'autre part, des ruptures de fibres plus importantes quand la concentration en fibres augmente.

### 3 Conclusion

Au cours de cette étude, nous avons étudié l'influence des paramètres de mise en œuvre et de la formulation du matériau

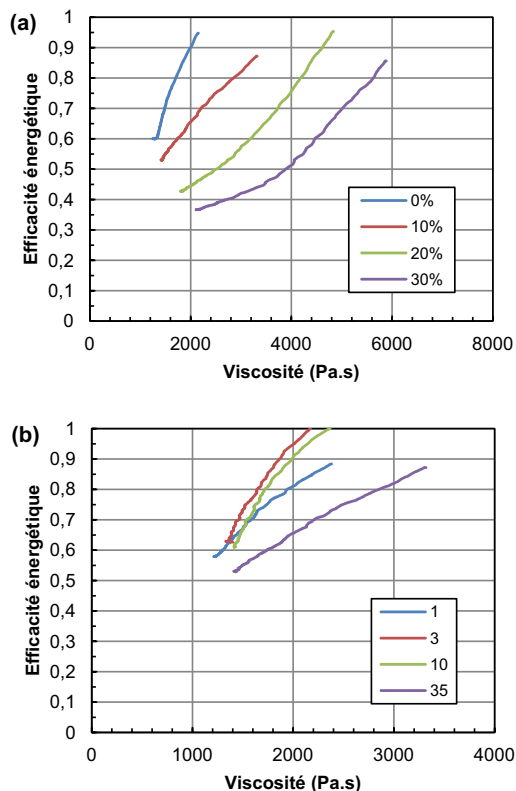


Fig. 16. Efficacité énergétique du procédé de mélangeage des biocomposites PLA/cellulose à différents (a) taux de fibres et (b) facteurs de forme en fonction de la viscosité du mélange.

Fig. 16. Influence of material viscosity on energy efficiency during PLA/cellulose biocomposites mixing for different (a) fibre contents (b) aspect ratio.

sur l'efficacité énergétique du procédé de mélangeage par mélangeur interne d'un biocomposite. Il a été montré que l'efficacité diminue avec la vitesse de rotation des rotors et augmente avec la température de consigne dans le cas du polymère pur. Ces résultats préliminaires permettent d'envisager une méthode de détermination de courbe « maîtresse » d'efficacité basée sur des facteurs de glissement. Il a également été montré que la consommation énergétique augmente fortement avec le taux de fibres dans le cas de

suspensions concentrées et qu'elle varie peu avec le facteur de forme pour des suspensions diluées et semi-diluées. Des essais supplémentaires seraient nécessaires pour étudier l'effet du facteur de forme dans les suspensions concentrées et l'effet du taux de fibres dans les suspensions diluées et semi-diluées. Il est également envisagé d'étudier l'influence des traitements de surface sur l'efficacité énergétique.

Afin de pouvoir déterminer une efficacité de la phase de mélange, il est important de caractériser le mélange (dispersif et distributif) pour en déduire une quantité d'énergie théorique nécessaire pour effectuer ce mélange. Des travaux sur la caractérisation du mélange sont actuellement en cours.

## Références

- [1] A. Redl, Matériaux thermoplastiques à base de protéines de blé : Mise en forme et étude des propriétés, Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure d'Agronomie de Montpellier, France, 1998
- [2] B. Vergnes, M. Chapet, *Techniques de l'ingénieur AM 3653* (2001)
- [3] C.G. Gogos, B. Qian, *Adv. Polym. Technol.* **21** (2002) 287-298
- [4] M. Bousmina, A. Ait-Kadi, J.B. Faisant, *J. Rheology* **43** (1999) 415-433
- [5] M. Pyda, R.C. Bopp, B. Wunderlich, *J. Chem. Thermodynamics* **36** (2004) 731-742
- [6] Moldflow Material Testing Report MAT2238 NatureWorks PLA 7000D, NatureWorks LLC Website
- [7] T. Hatakeyama, K. Nakamura, H. Hatakeyama, *Polymer* **23** (1982) 1801-1804
- [8] A. Redjeb, Simulation numérique de l'orientation de fibres en injection de thermoplastiques renforcés, Thèse de doctorat, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, France, 2007
- [9] T. Sanches Valera, N.R. Demarquette, S.M. Toffoli, *J. Polym. Eng.* **24** (2004) 409-433