3ème Conférence Internationale sur le Soudage, le CND et l'Industrie des Matériaux et Alliages
IC-WNDT-MI'12
Oran
26-28 novembre2012

L'EFFET DE L'INTRODUCTION D'UNE CHARGE LAMELLAIRE "KAOLIN" ET UN AGENT COMPATIBILISANT "PP-g-MA" SUR LES PROPRIETES DU POLYPROPYLENE.

***O. Meziane*[1]**, *A. Bensedira*[2], *M. Guessoum*[3], *N. Haddaoui*[4].**
Laboratoire de Phisico-Chimie des Hauts Polymères, (LPCHP), Département de Génie des Procédés-Université FERHAT ABBAS – Sétif.

E-mail : 1:mezianeouahiba@yahoo.fr, 2:Samirpg2@yahoo.fr, 3:guessoum_melia@yahoo.fr, 4:n_haddaoui@univ-setif.dz.

RESUME :

L'objectif abordé dans notre travail est la réalisation par mélange à l'état fondu et caractérisation des systèmes hybrides à base d'une matrice thermoplastique, le polypropylène et d'une argile lamellaire, la kaolinite avec et sans agent compatibilisant "PP-g-MA", et ce dans le but d'améliorer la compatibilité entre les deux composants incompatible.

La caractérisation des composites PP/kaolin est faite au travers de moyens d'investigations classiques tels que la détermination des propriétés mécaniques (traction, choc) et thermiques (DSC).

Par ailleurs, les propriétés mécaniques des composites obtenus, ont été très influencées par l'état de dispersion de la charge au sein de la matrice et par les faibles interactions PP / kaolinite.

MOTS CLES : nanocomposite, kaolinite, polypropylène, argile lamellaire, système hybride, compatibilisation.

1 INTRODUCTION

L'amélioration des performances du matériau nanocomposite passe nécessairement par l'obtention d'une structure exfoliée. La seconde condition consiste en la création d'interactions entre les nanocharges et la matrice. Ces deux conditions sont, en fait, intimement liées car les feuillets ne peuvent être dispersés que dans un milieu compatible favorisant les interactions**.** Ainsi, un nanocomposite renforcé par une argile peut être obtenu directement par l'incorporation de celle-ci dans un polymère à l'état fondu. Une difficulté réside, cependant, dans la compatibilité entre cette nanocharge et le polymère. Pour remédier à ce problème, les argiles utilisées sont, en général, modifiées par des surfactants cationiques, tels que l'alkyl ammonium **[1,2]**.

Dans le cas d'une matrice apolaire telle que le polypropylène (PP), les recherches ont surtout porté sur la génération d'interactions entre les feuillets de l'argile et le PP afin de faciliter l'intercalation et pour obtenir une structure exfoliée. Pour cela, Il existe de nombreux travaux qui se sont intéressés à la modification des nanocharges, à l'incorporation de compatibilisants et aussi au greffage de fonctions

chimiques pour permettre la formation de liaisons covalentes entre les phases organique et inorganique. Dans ce contexte, de nombreux travaux ont aussi confirmé la nécessité d'introduction de l'agent compatibilisant PP-g-MA pour la réalisation des nanocomposites à matrice PP et ce pour améliorer la compatibilité entre le polymère et l'argile **[3]**.

L'objectif de ce travail s'inscrit dans ce contexte et consiste en l'utilisation de la kaolinite comme charge, le PP-g-MA comme agent compatibilisant pour l'élaboration de systèmes hybrides PP/ kaolin, et ce en vue de mettre en valeur les interactions charge/matrice pour améliorer les performances du polymère utilisé.

2 METHODOLOGIE EXPERIMENTALE

L'ensemble du travail a été réalisé au niveau du Laboratoire de Physico-Chimique des Hauts Polymères "LPCHP", université Ferhat Abbas-Sétif. Il a été consacré à l'élaboration de composites, à l'état fondue, à base d'une matrice thermoplastique, le polypropylène : est un copolymère isotactique, grade extrusion, fourni par la firme Basell et commercialisé sous la référence Moplen RP320H, et comme charge lamellaire une kaolinite appartenant à la famille des phyllosilicates de type T:O à 7Å, d'une composition chimique (50% de silice, 28% d'alumine) et de taille inférieure à 45µm. on a utilisé un kaolin non traité (KNT) et traité (KE) avec un alkylammonium de type C_{16}, nommé le chlorure de l'hexadecyl-triméthylammonium, produit par Aldrich et de formule chimique « $CH_3 (CH_2)_{15}N (CH_3)_3Cl$ », et en présence de 4% de l'agent compatibilisant le polypropylène greffé par l'anhydride maléique "PP-g-MA".

Les composites ont été mis en œuvre dans un mélangeur interne de type Haake Rheocord. Les formulations sont préparées avec un taux de charge varie entre 1 et 5%, ont été pré-mélangées avant l'introduction dans le mélangeur chauffé à une température de 230°C. Au bout d'une période de malaxage de 15 min à une vitesse de 30 tours/min, Les échantillons ont été extraits, refroidis à l'air libre, puis découpés et broyés dans un broyeur de type Controlab.

3 TECHNIQUES DE CARACTERISATION

3.1 Caractérisation des propriétés mécaniques :

3.1.1 Essai de traction

Les essais mécaniques de traction uniaxiale ont été réalisés sur un appareil ZWIK Materalprüfung 1445 ayant une force maximale de 10 KN, menés à 10 mm/min jusqu'à rupture des éprouvettes. Les résultats ont été exprimés en termes de variations de la contrainte en fonction de l'allongement, qui nous ont permis d'évaluer le module de Young des différents échantillons étudiés.

3.1.2 Essai de choc

La résistance au choc caractérise l'énergie absorbée au cours de la rupture d'un barreau lisse ou entaillé sous l'action d'un percuteur donné et d'une énergie cinétique suffisante. L'essai de résistance au choc résulte donc de l'application d'une sollicitation mécanique à grande vitesse de percussion avec

une énergie élevée, engendrant la rupture d'une éprouvette en une fraction de seconde. Il permet de déduire dans des conditions expérimentales données, la fragilité ou la ductilité du matériau.

Les essais ont été effectués à l'aide d'un appareil de type Resil Impactor, consistant en un pendule lourd portant à son extrémité libre un marteau et un emplacement pour éprouvette, ainsi qu'un cadran indicateur de l'énergie absorbée au cours du choc.Les éprouvettes entaillées ont été préparées par compression selon les dimensions (12x3x 62) mm^3, la longueur de l'entaille étant de 1 mm. Le choc est donné au centre de l'éprouvette par l'utilisation d'un marteau de 7,5 joules. La résilience, notée a_k, est donnée par l'équation suivante :

$$a_k = \frac{A_k}{e(L-p)} \qquad (1)$$

A_k est l'énergie cinétique en Joule absorbée par l'éprouvette au moment de l'impact alors que L, e, et p sont, respectivement, la largeur et l'épaisseur de l'éprouvette et la profondeur de l'entaille.

3.2 Caractérisation des propriétés thermiques

L'analyse calorimétrique différentielle **(**DSC) est une méthode qui permet de déterminer les propriétés thermiques des matériaux en caractérisant les changements d'état physique affectant l'échantillon, en particulier la transition vitreuse de la phase amorphe et la fusion de la phase cristalline dans le cas des polymères semi-cristallins. Elle permet également d'identifier et de quantifier les différentes phases cristallinesen présence et leurs proportionsdans le matériau**.**

Les essais, que nous avons effectués, ont été réalisés sur un instrument de DSC de type NETZSCH DSC 200 PC. Des échantillons d'environ 16 mg sont encapsulés dans un creuset en aluminium, puis dans une cellule de mesure en platine se trouvant dans le four. Les thermogrammes DSC exprimant les variations du flux de chaleur en fonction de la température, nous ont permis l'évaluation de la température et de l'enthalpie de fusion ainsi que le taux de cristallinité des matériaux étudiés. Le taux de cristallinité**X**c est calculé à l'aide de la relation suivante**:**

$$X_c = \frac{\Delta H_f}{\Delta H_f^o} \qquad (2)$$

Avec : ΔH_f : enthalpie de fusion spécifique du polymère considéré, ΔH^0_f : enthalpie de fusion du polypropylène étudié 100% cristallin à la température d'équilibre thermodynamique. Une valeur de ΔH^0_f est de l'ordre de 207.33J/g a été utilisée.

4 RESULTATS ET DISCUSSION

4.1 Propriétés mécaniques

4.1.1 Résultats de l'essai de traction

Les variations du module de Young des différents systèmes élaborés à partir du kaolin non traité et traité sans et avec agent compatibilisant, sont montrés dans les histogrammes 1 et 2. On observe, d'une façon générale, que le module augmente avec le taux de kaolin pour tous les systèmes et ce par rapport à la matrice non chargée. Ceci peut s'expliquer par une certaine augmentation de la rigidité des matériaux avec l'incorporation de petites quantités de la charge. Par ailleurs, en comparant les systèmes non traité et traité et les systèmes avec et sans agent compatibilisant, on observe que là aussi les effets du traitement et de l'ajout d'un intermédiaire n'avaient aucun effet notable sur les valeurs du module.

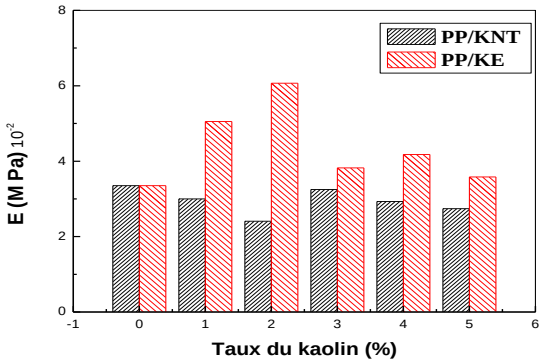


Figure 1: Variations du module de Young des systèmes PP/KNT et PP/KE en fonction du taux de kaolin.

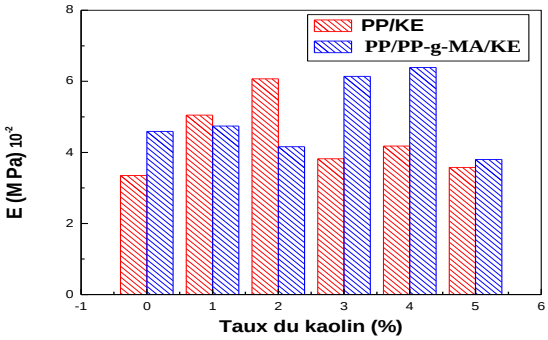


Figure 2: Variations du module de Young des systèmes PP/KE et PP/PP-g-MA/KE en fonction du taux de kaolin.

4.1.2 Résultats de l'essai de choc

Les variations de la résistance au choc des systèmes polypropylène chargés avec du kaolin non traité, traité, et de ceux modifiés par l'agent compatibilisant, sont représentées dans la figure 3.

Les courbes montrent clairement une nette diminution de la résilience des systèmes (PP/KNT, PP/KE et PP/PP-g-MA/KE) après l'incorporation de l'argile. Nous avons noté une diminution graduelle de la résilience d'une valeur initiale de 36 KJ/m² pour le PP non chargé à des valeurs plus faibles de 20 et

de 9 KJ/m² pour le PP chargé de 5% de KNT et 5% de KE, respectivement. Les valeurs de la résilience varient de 28 KJ/m² pour le système PP/PP-g-MA à 8 KJ/m² pour le composite PP/PP-g-MA chargé de 5% de KE.

Donc, l'introduction d'une deuxième phase minérale dans une matrice polymère organique augmente la rigidité du matériau. Ce mode de renfort provoque également des concentrations locales de contrainte importantes aux interfaces ainsi que dans certaines zones de la matrice, ce qui engendre une diminution de la tenue aux chocs des matériaux. Aussi, cette décroissance de la résistance à l'impact est peut être due aux faibles interactions entre la matrice et la charge. D'autre part, la faible intensité des forces de cisaillement mises en jeu dans le mélangeur n'a pas contribué à la génération d'une bonne dispersion et n'a pas été suffisante pour l'élimination des agrégats du kaolin formés au sein de la matrice PP

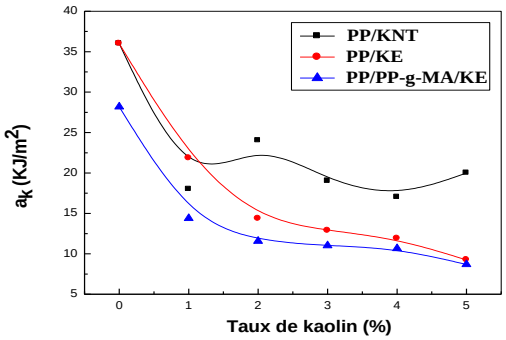


Figure 3:Variations de la résistance au choc a_k des systèmes PP/KNT, PP/KT et PP/PP-g-MA/KE en fonction du taux de kaolin.

4.2 Propriétés thermiques

L'analyse calorimétrique différentielle peut fournir beaucoup d'informations sur les transitions thermiques des échantillons. Les figures 4,5 et 6 représentent les thermogrammes DSC des systèmes PP/KNT, PP/KE et PP/PP-g-MA/KE, respectivement. D'après ces thermogrammes, on n'observe qu'un seul pic endothermique situé entre 100 et 175°C. A partir de ce pic, qui caractérise la fusion du PP, nous avons pu évaluer la température de fusion (T_f) des échantillons, qui est la température au maximum du pic, ainsi que l'enthalpie de fusion (ΔH_f) calculée à partir de l'aire de ce dernier, et qui nous a permis de calculer le taux de cristallinité des composites.

Les valeurs du taux de cristallinité (χ_c) des systèmes PP/KNT, PP/KE et PP/PP-g-MA/KE sont illustrées par la figure 7, Elles montrent clairement que le taux de cristallinité varie d'une manière irrégulière en fonction du taux de kaolin et que ses valeurs sont relativement faibles à cause du type de polymère utilisé (copolymère).

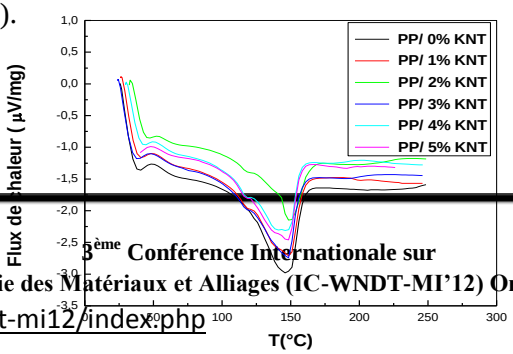


Figure 4: Thermogrammes DSC des systèmes PP/KNT.

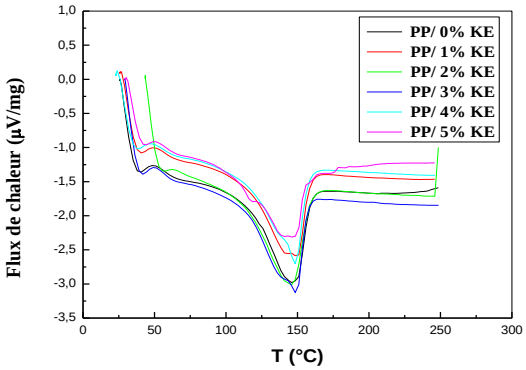


Figure 5 : Thermogrammes DSC des systèmes PP/ KE.

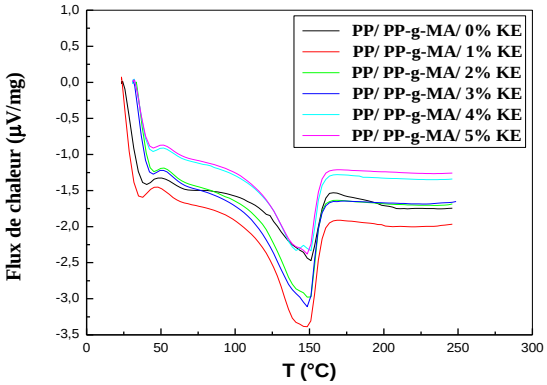


Figure 6: Thermogrammes DSC des systèmes PP/PP-g-MA/KE.

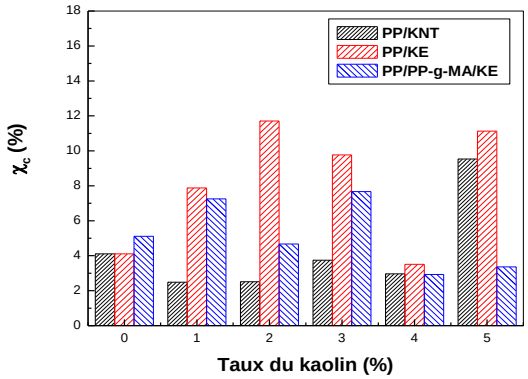


Figure 7 : Variations du taux de cristallinité des systèmes PP/KNT, PP/KE etPP/PP-g-MA/KE en fonction du taux de kaolin.

5 CONCLUSIONS

L'objectif abordé dans notre travail est la réalisation par mélange à l'état fondue et caractérisation de systèmes hybrides à base d'une matrice thermoplastique, le polypropylène et d'une argile lamellaire, la kaolinite. Le caractère organophobe de la charge utilisée nous a incité à recourir à une série de traitements chimiques et ce dans le but d'améliorer sa compatibilité avec la matrice polymérique. Au terme de cette étude, nous avons dégagé les constatations suivantes:

La caractérisation des propriétés mécaniques en fonction du taux de charge des systèmes PP/kaolinite traitée et non traitée préparés avec et sans agent compatibilisant, nous a permis de constater:

- Une variation irrégulière des propriétés en traction (contraintes et déformations à la rupture et au seuil d'écoulement, module de Young) avec le taux de charge, à cause de la dispersion non homogène de l'argile au sein du polymère.

- Une diminution de la résistance au choc des échantillons par suite de la formation d'agrégats de particules argileuses au sein de la matrice, ce qui a engendré la fragilisation des matériaux.

La caractérisation des propriétés thermiques des matériaux hybrides a montré que la température de fusion et le taux de cristallinité n'ont pas été aussi affectés à cause du faible taux de charge contenu dans les composites et des forces de cisaillement relativement faibles au cours du malaxage.

BIBLIOGRAPHIE

[1] S. S. Ray et M. Bousmina, « Biodegradable Polymers and Their Layered Silicate Nanocomposites: In Greening the 21st Century Materials World », Progress in Materials Science, Vol. 50, pp 962-1079, 2005.

[2] J. E. Mark**,** *«Polymer Data Handbook»,* Ed*:* University Press, New York, 1999.

[3] F. M. Mirabella, « *Polypropylene and Thermoplastic Olefin Nanocomposites*», Encyclopedia of Nanoscience and Nanotechnology, Ed: American Scientific Publishers, California, pp 3015-3029,2004.