



HAL
open science

Panneaux composites bio-sourcés destinés à l'isolation des bâtiments : caractérisation des ressources et procédé de production

Valentin Colson

► To cite this version:

Valentin Colson. Panneaux composites bio-sourcés destinés à l'isolation des bâtiments : caractérisation des ressources et procédé de production. Matériaux composites et construction. Université de Rennes, 2019. Français. NNT : 2019REN1S031 . tel-03738039

HAL Id: tel-03738039

<https://theses.hal.science/tel-03738039v1>

Submitted on 25 Jul 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.

THESE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE DE RENNES 1
COMUE UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE

ECOLE DOCTORALE N° 602
Sciences pour l'Ingénieur
Spécialité : *Génie des matériaux*

Par

Valentin COLSON

**Panneaux composites bio-sourcés destinés à l'isolation des bâtiments :
Caractérisation des ressources et procédé de production**

Thèse présentée et soutenue à l'Université de Rennes 1, le 2 mai 2019
Unité de recherche : Laboratoire de Génie Civil et de Génie Mécanique
Thèse N° :

Rapporteurs avant soutenance :

Alain CELZARD Professeur, Université de Lorraine
Nathalie LEBLANC Enseignant chercheur HDR, Institut Polytechnique UniLaSalle Rouen

Composition du Jury :

Président : Sofiane AMZIANE Professeur, Université Clermont Auvergne
Examineurs : Alain CELZARD Professeur, Université de Lorraine
 Michael LAWRENCE Maître de conférences HDR, Université de Bath (GB)
 Nathalie LEBLANC Enseignant chercheur HDR, Institut Polytechnique UniLaSalle Rouen
 Olivier JADEAU Directeur, Entreprise Cavac Biomatériaux

Dir. de thèse : Christophe LANOS Professeur, Université de Rennes

Invité

Tanguy LE CUNFF Responsable industriel et développement, Entreprise Cavac Biomatériaux

Remerciements

Ces travaux de thèse ont été menés entre 2016 et 2019 pour l'entreprise CAVAC Biomatériaux en partenariat avec le laboratoire Génie Civil Génie Mécanique (LGCGM) de l'Université de Rennes 1.

Je tiens à remercier dans un premier temps les encadrants de ma thèse, Olivier JADEAU, Directeur de CAVAC Biomatériaux, Tanguy LE CUNFF, Responsable Industriel et Développement, ainsi que mon directeur de thèse Christophe LANOS, Professeur des Universités au laboratoire GCGM - Université de Rennes 1. Cet encadrement à la fois industriel, technique et scientifique m'a permis d'avoir une vision complète de mon sujet et de réaliser cette thèse dans les conditions optimales. Je tiens à grandement les remercier pour leur patience, leurs conseils et leur disponibilité.

Je remercie également les membres de mon Jury d'avoir accepté d'évaluer mes travaux, Alain CELZARD, Professeur des Universités à l'ENSTIB et Nathalie LE BLANC, Enseignant-Chercheur à l'Institut Polytechnique UNILASALLE pour avoir accepté de rapporter ma thèse ainsi que Michael LAWRENCE, Maître de conférences émérite à l'Université de Bath (GB) et Sofiane AMZIANE, Professeur des Universités à l'Institut Pascal - Université Clermont Auvergne pour avoir participé à ma soutenance de thèse.

Je remercie Mark IRLE, Enseignant-Chercheur à l'Ecole Supérieure du Bois de Nantes, et Christophe BALEY, Professeur des Universités à l'IRDL-Université de Bretagne Sud pour avoir réalisé le suivi de ma thèse et de s'être assurés de son bon déroulement.

Je tiens à remercier Jacques BOURGEOIS, Directeur Général du groupe CAVAC, et Olivier JOREAU, Directeur Général Adjoint pour leurs encouragements et également l'importance qu'ils accordent à la R&D et l'innovation.

Merci à toute l'équipe de Biomat' qui a fortement contribué au bon déroulement de cette thèse dans une ambiance sympathique et la bonne humeur : Sébastien, Jeremy, Florent, Tex, Annabelle, Nicole, Florent R., Benoit, Laurent, Dany, Batiste, Anne-Charlotte, Anne, Gilberte, Amélie, Désirée, Julie et toutes l'équipe commerciale Yannis, Gaetan, Alain, Eric, Olivier, Antoine, et Florian. Merci à Martin, Jules et, Jean-Philippe qui sont venus renforcer l'équipe R&D.

Merci également à toute l'équipe de recherche du laboratoire GCGM avec qui j'ai pu collaborer dans le cadre du projet ISOBIO, Florence COLLET, Annabelle PHELIPOT, Sylvie PRETOT et qui ont contribué à me former également sur les équipements de laboratoire et ont consacré du temps à me conseiller sur l'organisation des essais. Merci aux doctorants, post doctorants et techniciens, Marie, Moussa, Nicolas, Damien, Corentin, Tony, Matthieu, Guy, Alain, Alain M. et Stéphane. Merci aux stagiaires, Mario et Agathe pour leur contribution aux travaux expérimentaux de cette thèse.

Enfin, je tiens à adresser un grand merci à mes amis, ma famille et surtout à ma compagne Amandine pour ses encouragements et son soutien pendant ces trois années bien chargées.

Table des matières

Table des matières.....	v
Liste des figures.....	ix
Liste des tableaux.....	xv
Introduction.....	1
Chapitre I Synthèse bibliographique.....	5
I.1 Généralités sur les matériaux d'isolation thermique.....	5
I.1.1 Conductivité et résistance thermique.....	5
I.1.2 Qu'est-ce qui différencie les solutions d'isolation ?.....	6
I.1.3 Les matériaux issus de végétaux : enjeux et problématiques.....	8
I.2 Les matériaux composites à base de granulats végétaux.....	10
I.2.1 Structure et composition chimique de la biomasse.....	10
I.2.2 Les granulats végétaux : une microstructure avantageuse pour l'isolation des bâtiments	13
I.2.3 Propriétés des matériaux composites à base de granulats végétaux : focus sur la conductivité thermique et les propriétés hydriques.....	16
I.3 Les liants dans les composites biosourcés.....	21
I.3.1 Nature des liants.....	21
I.3.2 Les liants biosourcés.....	23
I.3.3 Les liants minéraux.....	27
I.4 Procédés de fabrication des panneaux.....	30
I.4.1 Procédé humide – panneaux de fibres de bois.....	30
I.4.2 Procédé sec – panneaux de fibres de bois.....	32
I.4.3 Procédé de production des panneaux de paille compressée (Compressed Straw Board)..	38
I.4.4 Comparaison des trois procédés de fabrication de matériaux isolants.....	38
I.5 Fonctionnalisation des matériaux : focus sur le comportement au feu.....	40
I.5.1 Mécanismes de combustions.....	40
I.5.2 Analyse thermogravimétrique des composants chimiques de la matière végétale.....	40
I.5.3 Pyrolyse des matières lignocellulosiques.....	41
I.5.4 Modes de fonctionnement des retardateurs de flammes.....	42
I.5.5 Les grandes familles de retardateurs de flamme.....	43
I.5.6 Problématiques et solutions innovantes identifiées.....	44
I.6 Conclusion du chapitre I.....	46

Chapitre II	Méthodes et matières premières étudiées	47
II.1	Méthodes de caractérisation	47
II.1.1	Caractérisation des granulats végétaux.....	47
II.1.2	Protocole de fabrication des éprouvettes	51
II.1.3	Caractérisation des propriétés physiques des composites	54
II.1.4	Caractérisation des propriétés mécaniques.....	59
II.1.5	Caractérisation de l'absorption d'eau des composites.....	63
II.1.6	Caractérisation de la réaction au feu des composites	64
II.2	Matières premières étudiées	68
II.2.1	Agro-ressources.....	68
II.2.2	Matières premières pour la formulation des liants	75
II.2.3	Matières premières pour les traitements de fonctionnalisation des composites	76
II.3	Conclusion du chapitre II	77
Chapitre III	Formulation des liants et des composites	79
III.1	Formulation du liant biosourcé thermodurcissable	79
III.1.1	Identification du réticulant	79
III.1.2	Sélection de la matrice biosourcée	82
III.2	Formulation du liant minéral	84
III.2.1	Préparation du liant et des composites	84
III.2.2	Propriétés mécaniques	87
III.3	Conclusion du chapitre III.....	92
Chapitre IV	Recherche d'un procédé de fabrication et caractérisation des composites.....	93
IV.1	Recherche d'un procédé de fabrication	94
IV.1.1	Essai de fabrication sur le four industriel de Cavac Biomatériaux.....	94
IV.1.2	Essai fabrication des panneaux à l'aide d'un procédé de thermopressage (ESB Nantes) 100	
IV.2	Caractérisation des composites.....	106
IV.2.1	Nature des composites analysés	106
IV.2.2	Propriétés mécaniques et thermiques	107
IV.2.3	Effet de l'incorporation d'additifs hydrofugeants.	114
IV.3	Conclusion du chapitre IV.....	121
Chapitre V	Transposition industrielle de la fabrication du panneau rigide isolant.....	123
V.1	Essais de production sur presse à double bandes continue.....	123
V.1.1	Matériaux, matériels et méthodes.....	123

V.1.2	Résultats et discussion.....	126
V.1.3	Optimisation du procédé de mise en forme	130
V.2	Essais de production sur presse industrielle à plateaux chauffants	131
V.2.1	Matériel et méthodes	132
V.2.2	Résultats et discussion.....	136
V.3	Essais de production sur ligne industrielle utilisant un procédé de thermopressage semi continu.....	138
V.3.1	Présentation du procédé de fabrication.....	138
V.3.2	Validation des formulations et des paramètres sur la ligne pilote du fabricant	139
V.3.3	Production sur la ligne industrielle du fabricant.....	141
V.4	Conclusion du chapitre V	147
Chapitre VI	Fonctionnalisation des panneaux rigides : focus sur la réaction au feu.....	149
VI.1	Amélioration de réaction au feu du panneau composite chènevotte/liant biosourcé thermodurcissable.....	149
VI.1.1	Prétraitement de la chènevotte en vrac	149
VI.1.2	Réaction au feu des panneaux ignifugés.....	156
VI.1.3	Optimisation des traitements ignifuges	168
VI.2	Analyse de la réaction au feu des composites chènevotte/liant oxysulfate de magnésium .	171
VI.2.1	Préparation des éprouvettes	171
VI.2.2	Caractérisation au calorimètre à cône : comparaison des résultats avec les panneaux organiques.....	172
VI.2.3	Essais au brûleur.....	174
VI.3	Conclusion du chapitre VI.....	176
	Conclusion générale et perspectives.....	180
	Références bibliographiques	186
	Annexes.....	198

Liste des figures

Figure I-1 : Structure et microstructure de la biomasse.....	10
Figure I-2 : Représentation d'une molécule de cellulose (Bajpai, 2016).....	10
Figure I-3 : Arrangement cristallin des molécules de cellulose formant des microfibrilles (N. Zhang, Li, Xiong, Hong, & Chen, 2015).....	11
Figure I-4 : Trois différents types d'hémicelluloses (Bajpai, 2016)	11
Figure I-5 : Coupe d'une tige de chanvre (Y. Jiang, Lawrence, Ansell, & Hussain, 2018).....	13
Figure I-6 : Isothermes de sorption de la chènevotte et de l'anas de lin mesurés par DVS. (Yunhong Jiang, Lawrence, Hussain, Ansell, & Walker, 2018) (a : Chènevotte, b : anas de lin).....	14
Figure I-7 : Evolution de la conductivité thermique pour différentes formulations de béton de chanvre (Cérézo, 2005).....	16
Figure I-8: Influence de l'humidité relative sur la conductivité thermique du béton de chanvre (Cérézo, 2005).....	17
Figure I-9 : Conductivité thermique en fonction de la masse volumique apparente pour différents composites granulats végétaux/liant organique.....	18
Figure I-10 : Evolution de la conductivité thermique d'un composite chanvre/amidon à différentes humidités relatives et températures de mesure. (Umurigirwa, 2014).....	18
Figure I-11 : Cellules de test (Mortensen et al., 2005).....	20
Figure I-12 : Variation de l'humidité relative à l'intérieur des cellules de test pour différents matériaux soumis à une humidification identique (Mortensen et al., 2005)	20
Figure I-13 : Réaction de polymérisation des thermodurcissables (Prime, 2014).....	22
Figure I-14 : Schématisation des liaisons et des interactions associées aux groupements fonctionnels des protéines (Bourbonnais, 2009).....	24
Figure I-15 : Réticulation du polyvinyl alcool par le glyoxal (Y. Zhang, Zhu, & Edgren, 2010).....	25
Figure I-16 : Réaction de réticulation du polyvinyle alcool par l'acide citrique (Birck et al., 2014)	26
Figure I-17 : Structure du PAE selon (Siqueira, 2012).	26
Figure I-18 : Réactions de réticulations du PAE par auto-réticulation ou avec les groupements carboxyles et amines d'un isolant protéique de soja (Li, Peshkova, & Geng, 2004)	26
Figure I-19 : Fabrication des panneaux rigides isolants en fibre de bois par le procédé humide.....	30
Figure I-20 : Dispersion des fibres dans l'eau (Gutex, 2012)	31
Figure I-21 : Formation du mat humide	32
Figure I-22 : Mat avant pressage et séchage	32
Figure I-23 : Panneaux rigides isolants de fibres de bois obtenu par le procédé humide (Pavatex, 2019)	32
Figure I-24 : : Fabrication des panneaux rigides isolants en fibre de bois par le procédé sec.....	33
Figure I-25 : Différents dispositifs d'application de la résine sur les fibres a. Blowline source : (Imal Pal Group, 2016). b. Mélangeur rotatif à tambours, source : (Thoemen et al., 2010). c. le système EVOjet M (Dieffenbacher, 2018).....	34
Figure I-26 : Conformateur de mat de fibres de bois	36
Figure I-27 : Technologie de pré pressage et de calibration du mat Contitherm® (Siempelkamp, 2019)	36
Figure I-28: Principe de l'unité de préchauffage Contitherm® (Siempelkamp, 2019).....	37

Figure I-29 : Mat avant et après réticulation/calibration à l'aide de la technologie Conditherm® (Siempelkamp, 2019)	37
Figure I-30 : Illustration du panneau d'isolation Lignicell CSB	38
Figure I-31 : Le triangle du feu (Gatineau, 2015)	40
Figure I-32 : ATG des composants de la matière végétale (Yang et al., 2007).....	41
Figure I-33 : Modes d'action des retardateurs de flammes (RF). Inspiré de (Prinz, 2011).....	42
Figure II-1: Binarisation de l'image par seuillage des niveaux de gris	48
Figure II-2 : Modification des images par le procédé d'érosion/dilatation	48
Figure II-3 : Dispositif de mesure de la masse volumique apparente en vrac des granulats végétaux..	49
Figure II-4 : Exemple de thermogrammes obtenus en fonction du temps t et de ln(t) (Collet, 2004)...	50
Figure II-5 : Dispositif de mesure de la conductivité thermique en vrac par la méthode du fil chaud (Amziane et al., 2017).....	51
Figure II-6 : Etapes de fabrication des composites 100 mm x 100 mm x 100 mm par moulage	53
Figure II-7 : Echantillons composites 100 mm x 100 mm x 100 mm fabriqués par moulage.....	53
Figure II-8 : Etapes de fabrication des composites 300 mm x 400 mm x 50 mm par moulage	54
Figure II-9 : Dispositif expérimental pour la mesure de la conductivité thermique par la méthode du fil chaud (a. échantillons de 100 mm d'épaisseur, b. échantillons de 50 mm d'épaisseur)	55
Figure II-10 : Dispositif expérimental pour la mesure de la conductivité thermique par la méthode fluxmétrique	56
Figure II-11 : Dispositif expérimental pour la mesure de la valeur tampon hydrique.	57
Figure II-12 : Exemple du suivi de la masse d'un échantillon pendant l'essai (8h à 23°C, 75% HR et 16h à 23%, 33 %HR).....	58
Figure II-13 : Echantillons étanchés pour la mesure de la valeur tampon hydrique (MBV).....	58
Figure II-14 : Classification de la capacité de régulation de l'air ambiante d'un matériau en fonction de sa valeur tampon hydrique (MBV) selon le Nordtest Project (Rode et al., 2005).....	59
Figure II-15 : Analyse des courbes contrainte-déformation.....	60
Figure II-16 : Essai de compression	60
Figure II-17 : Essai de flexion	61
Figure II-18 : Exemple d'analyse des courbes force-flèche d'un composite à base de chènevotte	62
Figure II-19 : Dispositif expérimental pour la détermination de l'absorption d'eau à court terme par immersion partielle.....	63
Figure II-20 : Dispositif expérimental pour l'essai à la petite flamme	64
Figure II-21: Chambre de combustion du calorimètre à cône	65
Figure II-22 : Dispositif d'essais au calorimètre à cône. (Guillaume, Marguis, Saragoza, & Yardin, 2013).....	65
Figure II-23: Dispositif d'essai de test à l'épiradiateur (J. Troitzsch, 1990).....	66
Figure II-24: Illustration de la caractérisation d'un échantillon composite de chènevotte à l'aide du test à l'épiradiateur.....	66
Figure II-25 : Broyats de paille de colza calibrés avec les grilles G7 à gauche et G14 à droite	68
Figure II-26 : Chènevotte calibrée avec les grilles G7 à gauche et G14 à droite	68
Figure II-27 : Anas de lin calibré avec les grilles G7 à gauche et G14 à droite	69
Figure II-28 : Broyats de paille de blé calibrés avec les grilles G7 à gauche et G14 à droite	69
Figure II-29 : Fines de chanvre (à gauche) et fines de lin (à droite)	69
Figure II-30 : Broyats de rafles de maïs	69

Figure II-31 : Longueurs et largeurs moyennes des agro-ressources obtenues par analyse d'image (valeurs en mm).....	70
Figure II-32 : Elongations moyennes des agro-ressources (Longueur moy/largeur moy)	70
Figure II-33 : Paille de lin (à gauche) et paille de chanvre (à droite).....	71
Figure II-34 : Conductivité thermique en fonction de la masse volumique apparente des agro-ressources (ρ comprises entre 0-450 kg/m ³).....	73
Figure II-35 : Conductivité thermique en fonction de la masse volumique apparente des agro-ressources (ρ comprises entre 20-150 kg/m ³).....	73
Figure II-36 : Valeur tampon hydrique en fonction de la masse volumique apparente des agro-ressources (ρ comprises entre 0-450 kg/m ³)	74
Figure II-37 : Valeur tampon hydrique en fonction de la masse volumique apparente des agro-ressources (ρ comprises entre 20-200 kg/m ³)	75
Figure III-1 : Composites fabriqués pour la comparaison des réticulants par essai de compression	80
Figure III-2 : Composites après immersion pour différentes formulations de liant	81
Figure III-3 : Composites chènevotte - liant oxysulfate de magnésium.....	86
Figure III-4 : Comparaison des propriétés mécaniques des composites issus des solutions S15% et S15% avec STPP.....	88
Figure III-5 : Résistances en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ en fonction de la masse volumique apparente pour différents ratio liant humide:chènevotte	88
Figure III-6 : Résistance en compression à 10% de déformation en fonction de la masse volumique apparente pour différents ratios Solution:MgO	89
Figure III-7 : Résistances en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ des composites pour différentes teneurs volumiques en chènevotte.....	90
Figure III-8 : Influence de l'addition d'un liant organique en complément du liant minéral sur la résistance en compression à 10% de déformation des composites.....	91
Figure IV-1 : Four continu de Cavac Biomatériaux utilisé pour la fabrication de panneaux semi rigides isolants.....	95
Figure IV-2 : Profils de températures du matelas de fibre lors de l'étape de chauffage.	96
Figure IV-3 : Mélange liant granulats et conformation du mat sur la bande de convoyage.....	96
Figure IV-4 : Dispositif de prépressage à froid	97
Figure IV-5 : Panneaux de paille après traitement thermique	98
Figure IV-6: Composites Chènevotte/Acrodur [®] fabriqués à l'aide du four industriel de Cavac.	98
Figure IV-7 : Encolleur de laboratoire Imal Pal pour panneaux de particules contenant des buses de pulvérisation.....	100
Figure IV-8 : Etapes de fabrication des panneaux par thermopressage (formation du mat, pre pressage, pressage à chaud et découpe des panneaux).....	102
Figure IV-9 : Panneau rigide isolant de chènevotte fabriqué à partir du procédé de thermopressage. 103	
Figure IV-10 : Echantillons découpés pour caractérisation.....	107
Figure IV-11 : Résistance en compression ($\sigma_{c,max}$) en fonction de la masse volumique apparente	108
Figure IV-12 : Effet de la proportion en réticulant et de la teneur volumique en chènevotte sur la résistance en compression ($\sigma_{c,max}$).	109
Figure IV-13 : Module d'élasticité en compression en fonction de la teneur volumique en chènevotte.	109
Figure IV-14 : Résistance en flexion en fonction de la teneur en chènevotte	110

Figure IV-15 : Module d'élasticité en flexion en fonction de la teneur en chènevotte	111
Figure IV-16 : Conductivités thermiques des panneaux rigides à base de chènevotte pour différentes méthodes de mesure (23°C, 0%HR).....	112
Figure IV-17 : Comparaison des conductivités thermiques des composites de chènevotte avec les conductivités thermiques des agro-ressources en vrac (Méthode du fil chaud, 23°C et 0%HR)	112
Figure IV-18 : Comparaison des conductivités thermiques des composites à liant minéral et organique en fonction de la masse volumique apparente (23°C, 0%HR)	113
Figure IV-19 : Mesure de l'absorption à l'eau des échantillons par immersion partielle.....	114
Figure IV-20 : Effet de la proportion de paraffine sur l'absorption d'eau à court terme des composites	116
Figure IV-21 : Effet de la proportion de réticulant sur l'absorption d'eau à court terme des composites	116
Figure IV-22 : Comparaison des échantillons traités et non traités après l'essai d'immersion partielle	116
Figure IV-23 : Echantillons étanchés pour la mesure du MBV	118
Figure IV-24 : Effet de la paraffine et de la taille des granulats de chènevotte sur le MBV	119
Figure IV-25 : Effet de la proportion de réticulant sur le MBV	120
Figure IV-26 : Comparaison des MBV des composites avec les MBV des agro ressources en vrac..	120
Figure V-1: Mélangeur à socs utilisé pour appliquer et mélanger le liant avec la chènevotte a. mélangeur (vue extérieur), b. pales et buse de pulvérisation (vue intérieure).....	123
Figure V-2 : Unité de saupoudrage utilisée pour former en continu le mat sur le tapis de convoyage	124
Figure V-3 : Ligne pilote utilisée pour tester la fabrication en continu du panneau rigide de chènevotte.	125
Figure V-4: Unité de préchauffage/séchage par air chaud (Schott & Meissner, 2019).....	125
Figure V-5: Unité de thermopressage Thermofix® (Schott & Meissner, 2019).....	126
Figure V-6 : Refoulement de la matière à l'entrée de la thermopresse	127
Figure V-7 : Séchage de la chènevotte à l'aide de l'unité de préchauffage.....	129
Figure V-8 : Pré-pressage du mat à l'aide de l'unité de préchauffage.....	129
Figure V-9 : Panneau rigide de chènevotte obtenu après optimisation des paramètres	129
Figure V-10 : Thermopresse industrielle utilisée pour le prototypage des panneaux rigides isolants de chènevotte.....	131
Figure V-11 : Séchoir à tambour rotatif pour particules de bois (S. Zhang, 2016).....	132
Figure V-12 : Introduction de la chènevotte avec la matrice biosourcée dans le mélangeur	133
Figure V-13 : Illustration des étapes de fabrication des panneaux rigides isolants.....	134
Figure V-14 : Panneaux isolants rigides de chènevotte de dimension 1.3 m x 0.7 m x 0.05 m	134
Figure V-15 : Usinage des panneaux pour la réalisation des profils rainures et languettes	135
Figure V-16 : Profils rainures et languettes des panneaux qui facilitent leur installation sur chantier (réduction des ponts thermiques)	135
Figure V-17 : Etape de refroidissement du moule avant conformation du mat.....	136
Figure V-18 : Schéma des étapes de fabrication de la ligne de production testée.....	138
Figure V-19 : Illustration des étapes de fabrication sur la ligne pilote.....	140
Figure V-20 : Ligne industrielle utilisée pour la production des panneaux rigides de chènevotte.	
Source des images : (CMF Greentech, 2016).....	142

Figure V-21 : Ligne industrielle utilisée pour la production des panneaux rigides de chènevotte (suite). Source des images : (CMF Greentech, 2016).....	143
Figure V-22 : Panneau rigide isolant de chènevotte (dimensions 2 m x4 m).....	144
Figure V-23 : Découpe des panneaux aux dimensions finales.....	145
Figure V-24 : Profil de découpe.....	145
Figure V-25 : Panneaux rigides isolants aux dimensions finales (sans profil rainure et languette)....	145
Figure VI-1 : Mélangeur de laboratoire SAMA utilisé pour l'application des traitements sur la chènevotte.....	150
Figure VI-2 : ATG-TD de la chènevotte non traitée.....	151
Figure VI-3 : Courbes ATG-ATD du sulfate de magnésium heptahydraté.....	152
Figure VI-4: ATG des chènevottes traitées et non traitées en vrac.....	153
Figure VI-5 : Effet du traitement retardateur de flamme sur l'aspect du panneau (a. panneau non traité b. traité avec de l'acide sulfurique).....	157
Figure VI-6 : Propagation de la flamme observée sur l'échantillon traité avec 3% de particules de silice fonctionnalisées et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté (Ech F 3PSF-10SMH).....	158
Figure VI-7 : Taux de dégagement de chaleur et de perte de masse.....	159
Figure VI-8 : Chaleur totale dégagée à 600s (THR) et temps d'ignition.....	159
Figure VI-9 : Comparaison des taux de dégagement de chaleur pour les différents traitements.....	160
Figure VI-10 : Illustration du dispositif expérimental pour l'essai au brûleur.....	162
Figure VI-11 : Profils des températures au sein du panneau A témoin (non traité).....	163
Figure VI-12 : Profils des températures au sein du panneau B traité avec 10% de sulfate de magnésium heptahydraté.....	164
Figure VI-13 : Profils des températures au sein du panneau C traité avec 20% de sulfate de magnésium heptahydraté (a. échantillon 1 ; b. échantillon 2).....	165
Figure VI-14 : Profils des températures au sein du panneau E traité avec 3% d'acide phosphorique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté.....	165
Figure VI-15 : Profils des températures au sein du panneau F traité avec 3% de particules de silice fonctionnalisées et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté.....	166
Figure VI-16: Profils des températures au sein du panneau G traité avec 3% d'acide borique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté.....	166
Figure VI-17 : Profils des températures au sein du panneau H traité avec 13% de retardateur de flamme commercial ammonium sulfate/phosphate.....	167
Figure VI-18 : Comparaison des courbes ATG des granulats de chènevotte traités avec les différents additifs.....	169
Figure VI-19: Taux de dégagement de chaleur a) et de perte de masse b) des composites chènevotte/liant oxysulfate de magnésium.....	172
Figure VI-20 : Comparaison du taux de dégagement de chaleur composites chènevotte/liant minéral et chènevotte/liant organique (ignifugé et non traité).....	173
Figure VI-21 : Comparaison de la chaleur totale dégagée à 600s (THR à 600s) et du temps d'ignition entre les échantillons à liant organique et minéral.....	173
Figure VI-22 : Profils des températures au sein du composite chènevotte/liant oxysulfate de magnésium C100.....	174
Figure VI-23 : Profils des températures au sein du composite chènevotte/liant oxysulfate de magnésium C150.....	174

Figure VI-24 : Profils des températures au sein du composite chènevotte/liant oxysulfate de magnésium C200.....	174
Figure VI-25 : Echantillons C100 après l'essai au brûleur	175
Figure VI-26 : Représentation multicritère des performances des différents composites.....	178

Liste des tableaux

Tableau I-1 : Valeurs de résistances thermiques usuelles pour l'enveloppe des bâtiments	6
Tableau I-2 : Compositions chimiques de différentes agro-ressources	12
Tableau I-3 : Masses volumiques en vrac et conductivités thermiques de différents granulats végétaux.	14
Tableau I-4 : Valeurs de conductivités thermiques de composites granulats végétaux/liant organique	17
Tableau I-5 : Comparaison des facteurs de résistance à la vapeur d'eau de matériaux isolants de différentes natures	19
Tableau I-6 : Comparaison des caractéristiques de panneaux bois liés avec différents liants minéraux (Simatupang & Geimer, 1990)	27
Tableau I-7 : Comparaison des trois méthodes d'application des résines.....	34
Tableau I-8 : Comparaison des trois procédés de fabrication	39
Tableau II-1: Critères de classification de la réaction au feu (classe M) (AFNOR, 2004)	67
Tableau II-2 : Tableau des correspondances indicatives entre le classement M et l'Euroclasse. (Protectflame, 2019).....	67
Tableau II-3 : Masses volumiques apparentes et conductivités thermiques des différentes agro- ressources (23°C, 0%HR).....	72
Tableau II-4 : Valeurs tampon hydrique des différentes agro-ressources	74
Tableau II-5 : Matrices biosourcées étudiées pour la formulation du liant organique	76
Tableau III-1 : Formulation des liants pour comparaison des réticulants	80
Tableau III-2 : Résistances en compression $\sigma_{c,10}$ à 10% de déformation des composites pour différents types de réticulants	81
Tableau III-3 : Evaluation de la résistance à l'eau des composites par immersion complète	82
Tableau III-4 : Matrices biosourcées étudiées pour la formulation du liant organique	83
Tableau III-5 : Résistances en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ des composites pour différents types de matrices	83
Tableau III-6 : Compositions des solutions de sulfate de magnésium testées.....	85
Tableau III-7 : Définition des facteurs et des niveaux étudiés	85
Tableau III-8: Formulations des composites chènevotte/oxysulfate de magnésium	86
Tableau III-9 : Masses volumiques apparentes et résistances en compression à 10% de déformation des composites chènevotte-liant oxysulfate de magnésium.....	87
Tableau IV-1 : Composition des panneaux	94
Tableau IV-2 : Temps de chauffage requis en fonction du ratio liquide/solide.	98
Tableau IV-3 : Formulations des liants	100
Tableau IV-4 : Formulation des panneaux thermopressés	101
Tableau IV-5 : Classification des proportions de réticulant dans le composite	101
Tableau IV-6 : Epaisseurs des panneaux après thermopressage à 50 mm pour différentes formulations de liant.....	104
Tableau IV-7 : Nature des composites, méthodes de fabrication et propriétés analysées	106
Tableau IV-8 : Formulation des composites pour l'essai d'immersion partielle	114
Tableau IV-9 : Valeurs d'absorption d'eau à court terme des composites par immersion partielle....	115

Tableau IV-10 : Formulations étudiées (deuxième série de panneaux)	118
Tableau V-1 : Comparaison théorique de la teneur du panneau rigide de chènevotte et d'un panneau de particules de bois/ UF avant pressage	128
Tableau V-2 : Détail de la formulation du composite	133
Tableau V-3 : Formulations testées.....	139
Tableau V-4 : Composition du liant	141
Tableau V-5 : Paramètres de fabrication testés	141
Tableau V-6 : Propriétés mécaniques des panneaux rigides de chènevotte	146
Tableau V-7 : Conductivités thermiques des panneaux rigides de chènevotte déterminées par la méthode fluxmétrique (dimensions des panneaux 600 mm x 600mm x 50 mm).....	146
Tableau VI-1 : Composition des prétraitements appliqués sur la chènevotte	150
Tableau VI-2 : Masses moléculaires et fractions massiques résiduelles théoriques des hydrates de sulfate de magnésium	152
Tableau VI-3 : Température de début de pyrolyse (Tonset); Température du taux de dégradation maximale (T_{MDR}) et les masses résiduelles déterminés par analyse des courbes ATG.	154
Tableau VI-4 : Résultats de l'essai à la petite flamme conduit sur les panneaux de chènevotte traités	157
Tableau VI-5 : Masses volumiques apparentes et propriétés mécaniques en compression et en flexion des panneaux de chènevotte	161
Tableau VI-6: Prétraitements appliqués sur la chènevotte pour les essais à l'épiradiateur	168
Tableau VI-7 : Comparaison des températures de début de pyrolyse (Tonset); Températures du taux de dégradation maximale (T_{MDR}) et des masses résiduelles déterminés par analyse des courbes ATG.	169
Tableau VI-8 : Résultats des essais à l'épiradiateur sur les panneaux rigides de chènevotte	170
Tableau VI-9 : Résultats des essais à l'épiradiateur sur les panneaux rigides de chènevotte (suite)...	170
Tableau VI-10 : Détail des formulations des composites de chènevotte liée avec le ciment d'oxysulfate de magnésium pour la caractérisation de la réaction au feu	171
Tableau VI-11 : Définition des critères de comparaison.....	177
Tableau VI-12 : Classification des composites	177

Introduction

L'utilisation d'agro-ressources, disponibles et renouvelables annuellement, et plus particulièrement de granulats végétaux pour le développement de matériaux de construction représente une solution intéressante pour réduire l'énergie grise associée aux bâtiments. De nombreuses études ont déjà montré les performances hygrothermiques élevées de ces matériaux rendant leur utilisation pertinente notamment pour l'isolation des bâtiments (Amziane & Collet, 2017; Evon et al., 2015; Liu et al., 2017; Mati-Baouche, 2015; Umurigirwa, 2014). De telles ressources pourraient se substituer en partie à certains matériaux conventionnels et ainsi contribuer à ralentir l'épuisement des ressources naturelles telles que les granulats, les sols, les roches, les hydrocarbures... En revanche, même si les performances de certains matériaux issus d'agro-ressources, tels que le béton de chanvre ou les isolants fibreux ont fait l'objet de nombreuses études, leur utilisation reste encore marginale dans le domaine de la construction.

Malgré le potentiel important de développement de ce type de matériaux, les seuls produits isolants biosourcés aujourd'hui démocratisés et notablement présents sur le marché sont les isolants à base de fibres de bois, de ouate de cellulose, et quelques isolants à base de fibres longues végétales (chanvre, lin, coton recyclé...). De plus, très peu d'études se sont focalisées sur l'industrialisation de matériaux de construction issus de coproduits agricoles. En 2010, la Direction de l'Habitat, de l'Urbanisme et des Paysages (DHUP) avait initié une étude visant à recenser les freins au développement des matériaux de constructions biosourcés (Constructions & Bioressources, 2013). Parmi les quatre principaux freins recensés, le besoin d'industrialiser la chaîne de valorisation des matériaux biosourcés pour répondre aux exigences techniques et économiques du marché, avait été identifié. Il convient de noter que cette étude ne prenait pas en considération le cas de la filière de valorisation du bois dont le degré de maturité n'est pas comparable.

En effet, la « filière bois », plus ancienne et mieux structurée, a connu des avancées majeures ces dernières années, tant vis à vis des technologies de transformation que de l'amélioration des performances des produits. Parmi les grandes innovations, on peut citer l'évolution du procédé de fabrication des panneaux isolants en fibres de bois par voie humide (initialement dérivée de l'industrie de la pâte à papier) vers des procédés par voie sèche, largement moins énergivores.

Cette nette différence de l'histoire et du dynamisme affiché par des acteurs industriels ancrés fait qu'à ce jour, le bois reste la ressource la plus utilisée pour la fabrication de produits biosourcés, ce contexte laissant peu d'opportunités aux matériaux issus d'autres agro-ressources de se développer.

Ainsi, il est primordial que, de la même manière que pour les matériaux issus du bois, les travaux d'investigation scientifique et technique visant au développement de matériaux isolants issus d'agro-ressources se focalisent sur l'identification de méthodes de transformation industrielles appropriées, permettant de développer des produits présentant des propriétés d'usages spécifiques et optimisées au regard des caractéristiques des différentes agro-ressources disponibles.

Cette thèse, née d'une collaboration entre le laboratoire Génie Civil Génie Mécanique de l'Université de Rennes 1 et l'entreprise Cavac Biomatériaux, porte sur cette thématique. Elle vise à contribuer au développement de nouveaux matériaux composites biosourcés destinés à l'isolation des bâtiments et plus particulièrement, à la caractérisation des ressources et à l'étude du procédé de production industriel adapté. Ces travaux sont étroitement liés au déroulement du Projet européen ISOBIO, visant également à valoriser les agro-ressources au travers du développement de matériaux d'isolation et d'enduits à

hautes performances et à faible impact environnemental. Le projet vise notamment à démontrer les performances des matériaux en conditions réelles au travers de la réalisation de deux démonstrateurs.

Cavac Biomatériaux est une filiale de la coopérative agricole Cavac implantée en Vendée. L'entreprise est spécialisée dans la transformation de pailles de chanvre et de lin pour la production de fibres, et dans la fabrication de produits isolants pour le marché du bâtiment à partir de ces dernières. Créée en 2009 à l'initiative du groupe Cavac souhaitant diversifier ses activités non-alimentaires, Cavac Biomatériaux est devenue après dix années d'activité, un acteur majeur dans le secteur des matériaux biosourcés isolants avec sa marque commerciale « Biofib' Isolation » à l'échelle nationale et à l'échelle européenne en tant que transformateur de chanvre. Le modèle de fonctionnement de l'entreprise est unique en Europe : Les agriculteurs de la coopérative agricole cultivent le chanvre dans un rayon de 150 km autour de l'usine de Cavac Biomatériaux. L'usine regroupe sur le même site à Sainte-Gemme-La-Plaine (85) les deux lignes de transformation permettant de réaliser respectivement le défibrage des pailles et la fabrication des panneaux isolants semi-rigides.

Après avoir réussi à créer le lien complexe entre le milieu agricole et le secteur du bâtiment, en particulier en développant des produits fibreux isolant sous forme de panneaux semi-rigides, Cavac Biomatériaux envisage maintenant de valoriser également des coproduits agricoles disponibles au sein de la coopérative pour le développement de nouveaux matériaux isolants rigides sous forme de composites associant des granulats à un liant. C'est pourquoi, la valorisation de différentes agro-ressources sera envisagée dans cette thèse. L'attention est particulièrement focalisée sur le cas des granulats végétaux, les fibres végétales étant déjà valorisées dans des domaines d'application maîtrisés par le groupe.

Les objectifs de cette thèse sont doubles :

- D'une part, au travers d'une recherche académique, la thèse vise à **accroître la connaissance vis à vis des caractéristiques des différentes agro-ressources et des propriétés des matériaux et produits issus de ces dernières**. En outre, l'objectif est d'identifier les paramètres influençant les propriétés mécaniques, thermiques et hygriques des composites à granulats végétaux développés dans la thèse. Toujours dans une logique d'écoconception, la thèse devra contribuer à explorer des solutions innovantes de formulation.
- D'autre part, au travers d'une recherche appliquée, cette thèse vise à **apporter des solutions techniques exploitables par l'entreprise Cavac Biomatériaux pour la production des produits**. Ainsi le composite développé devra répondre aux exigences de qualité et de performances exigées (résistance, performances thermohygriques, réaction au feu...).

Ce manuscrit s'organise en six chapitres distincts qui retracent de manière chronologique le déroulement de la thèse.

Le chapitre I présente le contexte de la thèse et définit les axes de recherche. Pour chaque axe de recherche, une synthèse bibliographique du sujet est présentée, ce qui permettra d'identifier les solutions qui devront faire l'objet de développement.

Le chapitre II présente les méthodes utilisées durant les travaux de formulation et de caractérisation et les résultats de l'étude des différentes agro-ressources sélectionnées pour ces travaux. L'analyse des résultats permet de sélectionner la chènevotte (granulat végétal produit lors du défibrage de la paille de chanvre).

La chapitre III est dédié à la formulation de différents liants biosourcés et minéraux exploitables pour la réalisation de composites obtenus par encollage des chènevotte et thermo-pressage. Le cas de liants biosourcés ou minéraux est abordé.

Le chapitre IV se focalisera, dans un premier temps, sur la recherche d'un procédé de mise en forme compatible avec la formulation du composite identifiée dans le chapitre précédent. Les procédés de fabrication conduisant à un traitement thermique par flux d'air chaud ou par contact sur un plan chauffant sont opposés. Ce chapitre présente également les résultats d'une étude visant à évaluer les gammes de valeurs des propriétés d'usage (propriétés mécaniques, thermiques et hygriques) accessibles pour les différents composites obtenus en faisant varier les paramètres de formulation et de procédé de fabrication.

Dans le but de concevoir la chaîne de production idéale permettant de produire les composites, les résultats des essais réalisés sur différents outillages industriels de production sont présentés dans le chapitre V. La transposabilité de la fabrication du composite à une échelle industrielle est ainsi démontrée, en particulier dans le cas de composites à liant biosourcé.

Enfin, le chapitre VI se focalise sur la fonctionnalisation du composite et plus particulièrement sur l'amélioration de ses propriétés au feu (réaction au feu). Des formulations innovantes conduisent à des propriétés d'ignifugations intéressantes sans recourir à des composés présentant des risques sanitaires et sans remettre en cause les méthodes de fabrication.

Chapitre I Synthèse bibliographique

I.1 Généralités sur les matériaux d'isolation thermique

Cette thèse, à l'interface entre une recherche académique et une démarche de recherche appliquée requise par le partenaire industriel, doit prendre en compte les problématiques auxquelles les fabricants de matériaux sont confrontés. Ainsi, cette partie vise à présenter, au travers de quelques généralités, les exigences thermiques des bâtiments, les caractéristiques qui différencient les matériaux d'isolation, les enjeux et les problématiques associés au développement de nouveaux matériaux d'isolation. La présentation du contexte permettra entre autres de mieux définir et justifier les axes de recherche choisis pour le déroulement de la thèse.

I.1.1 Conductivité et résistance thermique

La propriété essentielle d'un matériau isolant thermique typiquement utilisé pour les applications bâtiment est le coefficient de conductivité thermique noté λ qui s'exprime en W/(m.K) et traduit la capacité d'un matériau à conduire la chaleur. A partir de cette propriété, il est possible de déterminer la résistance thermique d'un matériau homogène en fonction de son épaisseur au moyen de l'équation suivante :

$$R = \frac{e}{\lambda}$$

R : Résistance thermique (en m².K/W)

e : Epaisseur du matériau (en m)

λ : Conductivité thermique (en W/(m.K)).

Il convient de rappeler qu'au sein d'un milieu poreux, le transfert de chaleur peut se produire simultanément par conduction, convection et rayonnement. A l'échelle macroscopique, ce transfert simultané est caractérisé par la conductivité thermique apparente du matériau. Réduire l'échange thermique au sein d'une paroi au mode de conduction est réducteur. Pourtant, il est d'usage d'exploiter un paramètre apparent de conductivité thermique et ainsi de définir pour une paroi, qu'elle soit monocouche ou multicouche une résistance thermique macroscopiquement apparente.

La réglementation en vigueur pour réguler les performances énergétiques des bâtiments neufs est la RT 2012. Cette réglementation vise à limiter la consommation moyenne d'énergie primaire associée aux cinq usages (chauffage, climatisation, éclairage, eau chaude sanitaire et auxiliaires) à 50 kWhEP/(m².an).

Bien qu'il n'y ait pas de valeur de résistance thermique clairement imposée, les valeurs couramment admises pour respecter la limite de consommation sont présentées dans le tableau suivant :

Tableau I-1 : Valeurs de résistances thermiques usuelles pour l'enveloppe des bâtiments

	Niveau BBC (RT2012) : Résistances thermiques minimales recommandées (m ² .K/W)	Niveau Passif : <30kWhEP/(m ² .an) Résistance thermiques minimales recommandées (m ² .K/W)	Commentaires
Mur	> 4	7.5	Le label BBC n'existe plus à ce jour puisque la RT 2012 est plus exigeante. Sources des données : (Ademe, 2014)
Sol	> 4	7.5	
Plafond	> 7.5	10	
Rénovation	> 3.7 (Façade) > 7 (Combles perdus) > 6 (Toiture sous rampants) > 3 (Sol)	-	En complément de l'isolation déjà existante. Valeur minimale pour être éligible au crédit d'impôt transition énergétique.

De telles valeurs de résistances thermiques conditionnent directement la conception de l'enveloppe du bâtiment. Ainsi, il devient difficile d'exploiter des matériaux légers tels que les briques alvéolaires ou le béton cellulaire pour réaliser l'enveloppe du bâtiment. Les épaisseurs de paroi requises peuvent être inappropriées (impact sur les méthodes de mise en œuvre, la surface habitable) ou l'ajout d'une couche d'isolant complémentaire peut s'imposer.

La prochaine réglementation environnementale, la RE2020, n'est pas encore entrée en vigueur. Cependant, certaines sources laissent à penser que les exigences seront similaires à celles des bâtiments passifs dit BEPOS (Bâtiment à Energie Positive). (Delorme, 2013; Éco Infos, 2018).

I.1.2 Qu'est-ce qui différencie les solutions d'isolation ?

Dans la sous-partie précédente, nous avons vu que les objectifs visés par la réglementation thermique concernant l'isolation des bâtiments et le choix de solutions performantes seront au centre des préoccupations de la construction de demain. Cependant face aux vastes choix de matériaux d'isolation, il n'est pas évident d'identifier les solutions les plus adaptées. Cette sous partie vise à présenter quelques caractéristiques qui différencient les matériaux isolants utilisés dans le bâtiment et qui permettent généralement au maître d'œuvre d'orienter son choix. L'analyse est focalisée sur les performances techniques, environnementales, sanitaires et les performances économiques.

I.1.2.1 Les performances techniques

Bien que le coefficient de conductivité thermique du matériau isolant reste le paramètre essentiel, les performances techniques ne se limitent pas à cette propriété. En effet, une liste non exhaustive des différentes propriétés des matériaux d'isolation peut être dressée : La nature du matériau (souple, rigide ou vrac), la masse volumique, les propriétés mécaniques (compression, flexion, cisaillement, arrachement etc.), les propriétés hygriques (perméabilité à la vapeur d'eau, valeur de tampon hydrique etc.), les propriétés thermiques (conductivité et capacité thermique), les propriétés acoustiques, la durabilité (absorption d'eau, résistance à l'eau liquide, résistance au développement fongique, aux insectes), le comportement au feu (inflammabilité, production de chaleur, de fumée, résistance au feu etc.), la compatibilité avec d'autres matériaux (ex : enduit, chape etc.) et la méthode d'application/fixation (mécanique, collage, application humide, soufflage etc.).

Les propriétés attendues du matériau isolant sont donc spécifiques à un emploi (isolation par l'extérieur des façades, répartie, des combles perdus, des rampants etc.). L'évaluation de l'ensemble de ces propriétés va permettre de définir le domaine d'application et de définir la méthode de mise en œuvre du produit. En plus de répondre à la réglementation thermique, la solution identifiée doit permettre d'assurer la garantie décennale et l'aptitude à l'emploi.

Le développement technique d'une nouvelle solution d'isolation est bien un problème multi paramétrique dont seulement quelques aspects pourront être traités dans ces travaux de thèse.

I.1.2.2 Les performances environnementales et sanitaires

En France, les performances environnementales et sanitaires sont évaluées au moyen d'une « Fiche de Déclaration Environnementale et Sanitaire » (FDES). Au niveau Européen, il s'agit de « Environnement Product Declaration » (EPD). L'analyse environnementale d'un produit prend en compte l'ensemble du cycle de vie « du berceau à la tombe » ainsi que ses performances d'usage. Elle permet d'évaluer l'impact de l'utilisation du produit sur de nombreux paramètres environnementaux tels que la consommation d'énergies primaires, l'épuisement des ressources, la production de déchets, la pollution de l'air, l'eutrophisation etc. Cette analyse doit être réalisée par un laboratoire indépendant et se base sur une méthode normée. A ce jour, fournir une FDES pour son produit est une démarche volontaire de la part du fabricant. Elle n'est pas obligatoire tant que le fabricant ne communique pas sur les performances environnementales de son produit (CSTB, 2019). La base de données INIES met à disposition les FDES des fabricants dont la déclaration a été vérifiée par un bureau d'étude indépendant.

Certains paramètres vont avoir un impact élevé sur les performances environnementales du produit : l'utilisation de procédé de transformation énergivore (calcination à haute température, séchage important etc.), l'origine des matières premières, leur méthode d'extraction, leur disponibilité, le transport etc. Ainsi, les aspects de consommations énergétiques associées à la fabrication industrielle d'un matériau doivent être pris en considération dès la phase de conception du produit.

En plus des performances environnementales, la FDES intègre les performances sanitaires du produit. Ces performances se basent sur les émissions de composés organiques volatiles (COV) et de formaldéhyde dans l'air ambiant, le relargage de produits dangereux dans le sol et dans l'eau. Les émissions de COV des produits sont classées de A+ à C.

L'interaction entre les performances techniques et économiques d'une solution d'isolation et les performances environnementales et sanitaires peut être illustrée au travers de l'exemple de la ouate de cellulose : L'utilisation de certains additifs favorisant les émanations de COV dans les matériaux d'isolation a déjà mené à des controverses. En France, l'utilisation de sels d'ammonium (ammonium phosphate ou sulfate) pour ignifuger la ouate de cellulose est interdite depuis 2013 suite à de nombreuses détections d'ammoniac dans les bâtiments (Legifrance, 2013). L'utilisation d'ignifugeants à base de bore, majoritairement l'acide borique, s'est avérée être la seule alternative économiquement acceptable pour les fabricants de ouate de cellulose. L'acide borique est un composé reprotoxique de catégorie 1B (CMR Cancérogène, Mutagène, Reprotoxique) selon le règlement CLP (règlement CE n° 1272/2008) relatif à la classification, à l'étiquetage et à l'emballage des produits chimiques et de catégorie 2 selon le règlement REACH (règlement CE n° 1907/2006). Le règlement CLP impose que tout produit/mélange dont la concentration massique d'acide borique est supérieure à 5.5% soit étiqueté comme reprotoxique de catégorie 1B. L'acide borique est donc généralement utilisé en combinaison avec d'autres retardateurs de flamme moins toxiques tels que le sulfate de magnésium, les hydroxydes de magnésium ou d'aluminium. A ce jour, il n'existe pas de substitut économiquement acceptable.

I.1.2.3 Les performances économiques

Cette caractéristique est complexe à hiérarchiser face aux nombreux paramètres tous plus importants qu'il faut prendre en considération dans le développement d'une solution d'isolation. Pour les matériaux isolants dans le domaine de la construction, les prix d'un produit sont généralement exprimés en m² posés. C'est-à-dire que le prix inclut le coût du produit pour une performance donnée (par exemple pour une résistance thermique de 4.5 m².K/W) ainsi que les coûts associés à la mise en œuvre du produit. Le prix d'un produit hors pose va dépendre de trois principales :

- Coûts liés aux matières premières : prix des matières premières, la masse volumique du produit et les performances du produit.
- Coûts associés aux procédés de transformation : Ces coûts incluent l'ensemble des frais industriels (amortissement des machines, des bâtiments, l'énergie et la main d'œuvre). Les industriels fabricants de matériaux vont chercher à maximiser les rendements de production pour diminuer l'impact de ses coûts sur le prix final du produit. L'optimisation du procédé de mise en forme a un impact déterminant sur l'accessibilité économique du produit et est donc primordiale à prendre en compte dès la formulation du matériau.
- Coûts associés aux frais généraux : Frais de fonctionnement de l'entreprise qui fabrique le produit, de commercialisation, de certification du produit, de transport etc.

I.1.3 Les matériaux issus de végétaux : enjeux et problématiques.

Le recours à des matériaux biosourcés tels que les fibres/granulats de végétaux pour composer des matériaux de construction est largement exploité par certains secteurs industriels. Ainsi, l'exploitation de particules de bois par les industriels producteurs de panneaux de particules est bien maîtrisée. Le béton de chanvre, bien que marginalement représenté sur le marché, constitue une solution de valorisation également intéressante.

L'utilisation de coproduits agricoles pour le développement de matériaux de construction représente une alternative attrayante pour plusieurs raisons (Karibati, 2015) :

- Il s'agit de ressources disponibles et renouvelables. Ainsi leur utilisation ne contribue pas à l'épuisement des ressources.
- Les plantes séquestrent le CO₂ lors de leur croissance ce qui permet d'obtenir une ressource ayant un bilan carbone positif.
- Les coproduits ou sous-produits de l'agriculture sont généralement accessibles à de faibles coûts.
- Les agro-ressources présentent des performances techniques intrinsèques élevées : isolation thermique et acoustique, régulation hydrique, bonnes propriétés mécaniques et de durabilité
- Leur valorisation contribue au développement des territoires et favorise le développement des activités en circuits courts.

Malgré ces nombreux avantages, trois principaux freins au développement des matériaux biosourcés dans le domaine de la construction peuvent être identifiés.

Premièrement, comme le souligne le rapport de l'Agence Qualité Construction (AQC), l'utilisation de matériaux biosourcés est une solution permettant de répondre aux réglementations en vigueur. Cependant, il y a un manque de connaissance de ces matériaux qui peut mener dans certains cas à des erreurs de conception et de mise en œuvre. Un travail de caractérisation important est nécessaire pour comprendre leur propriétés physiques, mécaniques, biologiques etc (AQC, 2016). De plus, l'absence de

normes rend les processus de certification des matériaux non traditionnels longs et coûteux (essais certifiés, obtention d'un avis techniques, FDES etc.) (Constructions & Bioressources, 2013).

La deuxième problématique résulte de la première. Comme il s'agit de matériaux à mise en œuvre spécifique, certains acteurs du domaine de la construction sont réfractaires aux changements de leurs habitudes. Les matériaux biosourcés seront donc plus facilement adoptés si leur méthode de mise en œuvre se base sur les méthodes conventionnelles. En outre, il y a un besoin d'améliorer la transmission et la diffusion des connaissances et des savoir-faire auprès des acteurs de la construction (Constructions & Bioressources, 2013).

La dernière problématique relève d'un défi technique. Pour que les matériaux issus de ces ressources soient performants, un travail de recherche important doit être mené pour développer des technologies et des formulations adaptées pour qu'ils puissent répondre aux exigences techniques et économiques du marché (Constructions & Bioressources, 2013). Les procédés de transformation et la nature des liants/additifs utilisés auront un impact déterminant sur les performances finales du produit (techniques, environnementales, sanitaires, économiques etc.).

En lien direct avec les besoins de recherche sur les matériaux biosourcés, les objectifs de Cavac Biomatériaux et du projet Européen ISOBIO, il est choisi de focaliser les travaux de cette thèse sur des solutions d'isolation obtenues par agglomération de granulats végétaux avec un liant. Afin d'évaluer les performances techniques accessibles par ce type de matériau composite, les différentes parties de l'étude bibliographique se focaliseront sur :

- La matière végétale et les caractéristiques associées,
- Les propriétés des matériaux composites issus de ces matières,
- L'étude des procédés de fabrication déjà existants,
- L'identification de formulations de liants et d'additifs innovants, compatibles avec la matière végétale, avec le procédé de fabrication et qui pénalisent le moins possible les performances environnementales et sanitaires.

I.2 Les matériaux composites à base de granulats végétaux

I.2.1 Structure et composition chimique de la biomasse

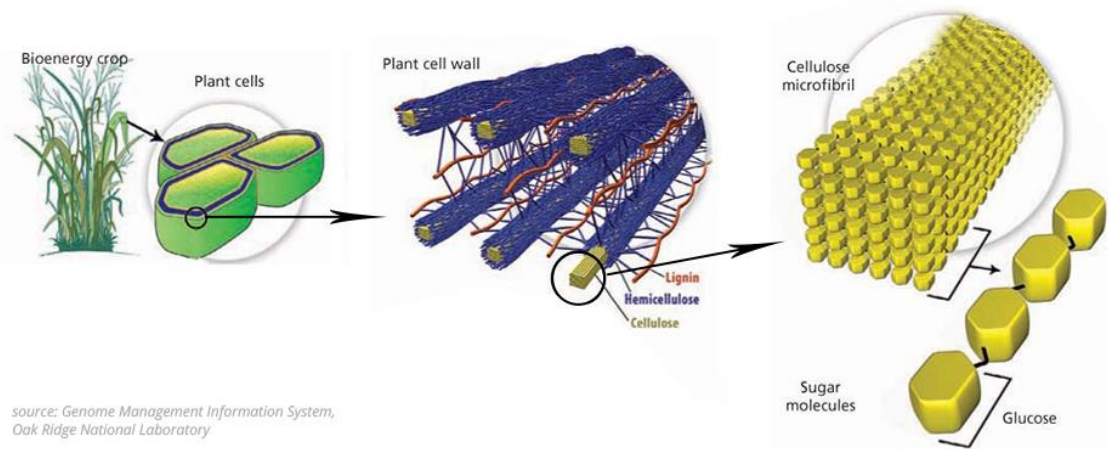


Figure I-1 : Structure et microstructure de la biomasse

Source de l'image : (AKR, 2016) source originale : (Peters, 2018)

Les différentes biomasses utilisées pour la réalisation de matériaux composites proviennent généralement de la tige de la plante. Les propriétés mécaniques d'une plante proviennent des parois cellulaires qui la composent. Ces parois cellulaires sont des composites complexes constitués de cellulose, de lignines, d'hémicelluloses et d'une part mineure d'autres composés tels que des cires, des matières minérales, des composés hydrosolubles, protéines etc. Pour une même plante, les proportions des différents constituants de la paroi peuvent varier selon la fonction de la cellule (Amziane & Arnaud, 2013).

La cellulose est un polysaccharide linéaire composé d'une répétition d'unités de D-glucose. Les molécules sont longues et faiblement ramifiées avec un degré de polymérisation compris entre 100 et 10 000 unités. Les groupements hydroxyles des molécules de cellulose entraînent la formation de liaisons hydrogènes intermoléculaires et intramoléculaires. Les faibles ramifications des molécules permettent la formation de régions cristallines très ordonnées (Xiao, Sun, & Sun, 2001) (Chen, 2014) (Isikgor & Becer, s. d.). L'assemblage des molécules de cellulose forme une microfibrille telle qu'illustrée en Figure I-1 et Figure I-3. L'orientation des molécules dans le sens des microfibrilles et leur structure semi-cristalline confèrent aux microfibrilles une rigidité et résistance mécanique élevées (Salmén, 2004). Ces dernières jouent le rôle de renfort dans les parois des cellules. Les hémicelluloses et les lignines ont le rôle de matrice liante des microfibrilles. Leur propriétés sont moindres comparées à celles des microfibrilles de cellulose (Salmén, 2004).

La haute polarité de la cellulose due aux fonctions hydroxyles entraîne une forte affinité avec l'eau. En effet, la cellulose peut absorber jusqu'à 20% de son poids sec en eau (Kohler et al. 2006).

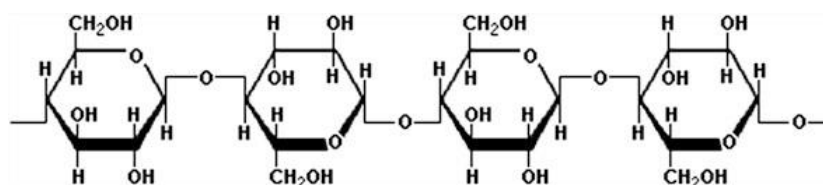


Figure I-2 : Représentation d'une molécule de cellulose (Bajpai, 2016)

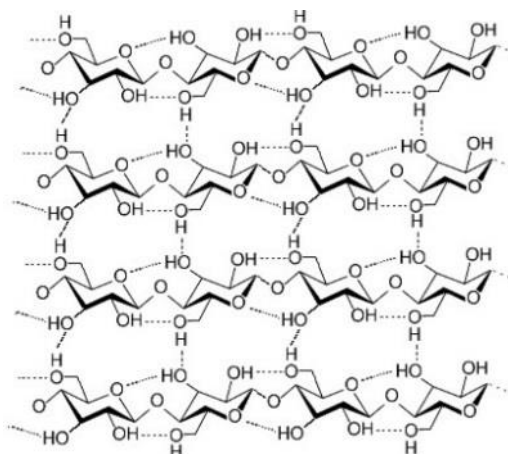


Figure I-3 : Arrangement cristallin des molécules de cellulose formant des microfibrilles (N. Zhang, Li, Xiong, Hong, & Chen, 2015)

Les hémicelluloses sont des copolymères de saccharides dont les chaînes moléculaires sont courtes et ramifiées et dont le degré de polymérisation est inférieur à 200 unités. Trois différents types d'hémicelluloses sont représentés en Figure I-4. Les hémicelluloses sont les précurseurs de la cellulose et sont généralement différenciées de cette dernière par leur solubilité en milieu faiblement alcalin (Bajpai, 2016). Du fait de leurs nombreuses ramifications, les molécules d'hémicelluloses forment un réseau tridimensionnel principalement amorphe. Les groupements hydroxyles des hémicelluloses et leur structure amorphe, en font un polymère fortement hydrophile dont les liaisons hydrogènes sont facilement hydrolysables. Ces propriétés font des hémicelluloses les composants les plus sensibles thermiquement et chimiquement de la matière ligno-cellulosique. (Chen, 2014). En effet, les hémicelluloses peuvent absorber entre 46% et 52% de leur poids sec en fonction de leur nature à 98%HR (Berthold, Rinaudo, & Salmeñ, 1996). Cousins a étudié l'influence de l'humidité sur les propriétés mécaniques des hémicelluloses. Les résultats ont montré une diminution drastique du module d'élasticité aux hautes teneurs en humidité relatives (Cousins, 1978). Les hémicelluloses contribuent aux propriétés mécaniques des cellules par recouvrement des microfibrilles.

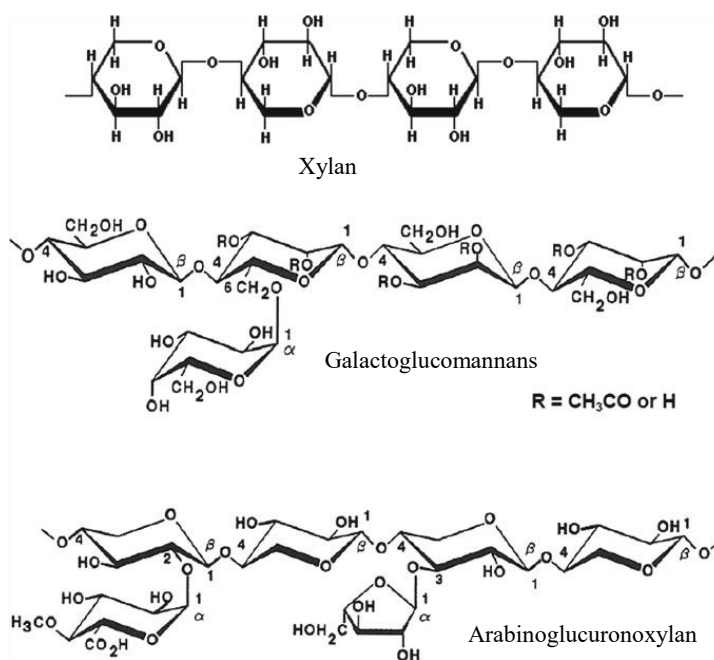


Figure I-4 : Trois différents types d'hémicelluloses (Bajpai, 2016)

Les lignines sont des copolymères complexes formés de trois monomères aromatiques dont l'arrangement est aléatoire et dont le degré de polymérisation est d'environ 2000 unités (Chen, 2014). Les monomères ont beaucoup moins de groupement hydroxyles que les polysaccharides, ce qui les rend moins hydrophiles. Cousins a étudié l'effet de l'humidité sur les propriétés de lignines obtenues par différents procédés d'extraction. Les résultats ont montré une absorption d'eau de 17% de la masse sèche à 98% HR pour des lignines extraites par oxydation au periodate. Les lignines isolées par ce procédé seraient, selon l'auteur, les plus représentatives des lignines in situ car moins modifiées physiquement et chimiquement. Les résultats ont par ailleurs montré une diminution du module d'élasticité lorsque la teneur en eau augmente, mais beaucoup moins marquée que pour les hémicelluloses (Cousins, 1976, 1978).

Dans le cadre du projet ISOBIO, Viel *et al.* ont étudié la composition chimique de différentes agro-ressources issues de coproduits de l'agriculture. La technique de caractérisation se basant sur la méthode Van Soest a été utilisée pour déterminer les proportions massiques des différents constituants des matières. Cette méthode permet de mesurer par extractions successives et minéralisation les proportions en cellulose, lignines, hémicelluloses, composés hydrosolubles et en matières minérales. (Viel, Collet, & Lanos, 2018).

Tableau I-2 : Compositions chimiques de différentes agro-ressources

Agro-ressources	Cellulose (%)	Hémicelluloses (%)	Lignines (%)	Solubles (%)	Matières inorganiques (%)
Chènevotte	49.97 ± 1.63	21.42 ± 3.32	9.52 ± 1.17	17.75 ± 2.85	0.67 ± 3.32
Anas de lin	44.63 ± 1.44	24.41 ± 2.64	20.98 ± 1.01	7.56 ± 3.36	1.48 ± 0.04
Paille de colza	53.06 ± 1.07	18.13 ± 3.28	9.63 ± 3.33	17.68 ± 4.56	0.79 ± 2.54
Paille de blé	43.04 ± 0.38	29.66 ± 2.90	5.24 ± 0.18	20.43 ± 3.81	0.82 ± 2.04
Rafle de maïs	36.78 ± 2.60	38.81 ± 1.86	3.30 ± 3.02	19.30 ± 5.84	0.46 ± 1.86

Cette étude illustre bien que la composition des granulats végétaux peut varier de manière importante d'une ressource à une autre. Chaque ressource aura un comportement différent qu'il sera pertinent de caractériser.

I.2.2 Les granulats végétaux : une microstructure avantageuse pour l'isolation des bâtiments

I.2.2.1 Une microstructure à forte porosité

Les granulats végétaux présentent une structure fortement poreuse qui est à l'origine de leurs propriétés physiques. Du fait de leur faible masse volumique apparente, il en résulte une très faible conductivité thermique qui en fait des ressources intéressantes pour l'isolation thermique de bâtiments.

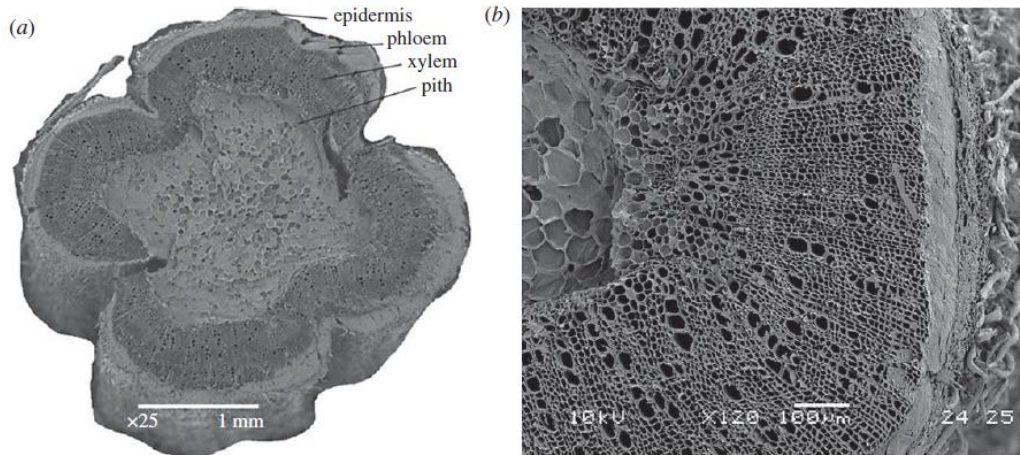


Figure I-5 : Coupe d'une tige de chanvre (Y. Jiang, Lawrence, Ansell, & Hussain, 2018)

La microstructure poreuse des granulats végétaux a fait l'objet de nombreuses études. Jiang *et al.* ont observé la microstructure d'une tige de chanvre au microscope électronique à balayage (Figure I-5). Les différents constituants sont illustrés sur l'image. L'épiderme est la couche protectrice de la plante. Le phloème contient les faisceaux de fibres libériennes. Ce sont ces faisceaux de fibres qui sont extraits lors de l'étape de défibrage de la tige de chanvre. Ils sont plus communément appelés les fibres de chanvre. Le xylème (xylème secondaire) correspondant au bois de la tige et la moelle (xylème primaire) forment, après défibrage, des granulats broyés appelés la chènevotte (Y. Jiang *et al.*, 2018). Au sein du xylème, on peut observer différents types de porosités (Figure I-5) : les plus grosses correspondent aux vaisseaux et les plus fines correspondent aux lumens des cellules longitudinales.

Plusieurs paramètres permettent de caractériser la porosité de la matière. La masse volumique absolue correspondant à la masse volumique du squelette végétal (partie solide) peut être mesurée par pycnométrie au toluène ou par porosimétrie au mercure. Ces techniques consistent à mesurer le volume occupé par les porosités ouvertes et le volume occupé par le squelette végétal. Connaissant la masse de la matière, il est alors possible de calculer la masse volumique absolue du squelette. Plusieurs sources sont en accords pour dire que la masse volumique absolue de la chènevotte varie entre 1300 et 1500 kg/m³, généralement autour de 1450 kg/m³ (Amziane & Arnaud, 2013; Y. Jiang *et al.*, 2018; Viel *et al.*, 2018). Pour déterminer la porosité ouverte intra-particulaire il est nécessaire de déterminer la masse volumique apparente du granulat. Nguyen a mesuré la masse volumique de la chènevotte directement à partir de la tige de la paille de chanvre. La mesure du diamètre a permis de déterminer une valeur de 256 kg/m³ (Nguyen, 2010). Cette valeur est faiblement sous-estimée car la chènevotte subit une compression lors de la transformation et la mise en sac (Amziane & Arnaud, 2013). Jiang *et al.* ont mesuré une valeur proche de 300-320 kg/m³ par porosimétrie mercure (Y. Jiang *et al.*, 2018). Ces valeurs permettent de calculer des porosités intra-particulaires de l'ordre de 80%. Ces porosités intra-particulaires élevées sont à l'origine des très faibles masses volumiques apparentes en vrac des granulats végétaux auxquelles viennent s'ajouter les porosités inter-particulaires.

Ces porosités inter et intra particulaires dans les granulats végétaux en vrac permettent d'emprisonner l'air. L'air immobile étant un très bon isolant ($\lambda = 0.026 \text{ W/(m.K)}$), il en résulte de très faibles conductivités thermiques. Le tableau suivant illustre quelques valeurs de conductivités thermiques en fonction des masses volumiques apparentes en vrac. Comme l'illustrent les résultats de Palumbo (Palumbo, 2015), la taille des granulats a une influence importante sur la masse volumique apparente, qui va influencer la compacité des particules et donc la porosité inter-particulaire.

Tableau I-3 : Masses volumiques en vrac et conductivités thermiques de différents granulats végétaux.

Granulats	Origine des mesures	Masse volumique en vrac (kg/m ³)	Conductivité thermique (W/(m.K))	Sources
Chènevotte	CSTB	110	0.048	(Cérézo, 2005)
	ENTPE	155	0.058	
	LMDC (Vrac)	135	0.0545	(Magniont, 2010)
	LMDC (compactée)	165	0.0542	
Moelle de tournesol	LMDC	20	0.0509	
Paille d'orge	UPC* (tamisée à 2 mm)	45	0.046	(Palumbo, 2015)
	UPC (tamisée à 1 mm)	54	0.052	
	UPC (tamisée à 0.5 mm)	64	0.053	
Moelle de rafle de maïs	UPC (tamisée à 2 mm)	37	0.048	
	UPC (tamisée à 1 mm)	36	0.047	
	UPC (tamisée à 0.5 mm)	38	0.048	
Balle de riz	UPC (tamisée à 2 mm)	99	0.055	
	UPC (tamisée à 1 mm)	138	0.059	
	UPC (tamisée à 0.5 mm)	230	0.070	

(*UPC : Université Polytechnique de Catalogne)

I.2.2.2 Des matières hygroscopiques

Du fait de leur nature hydrophile et leur structure poreuse, les granulats végétaux sont des matériaux hygroscopiques, c'est-à-dire qu'ils ont la capacité d'absorber l'eau présente dans l'air (sous forme de vapeur d'eau) et de la restituer. Leur structure peut être modélisée par un matériaux poreux humide composé de trois phases : La matière solide végétale, l'air présent dans les pores (contenant de l'eau sous forme de vapeur) et l'eau liquide. Collet a étudié les mécanismes de fixation de l'eau dans les matériaux comprenant de la chènevotte en se basant sur cette théorie. L'étude montre qu'en fonction de l'humidité relative, les mécanismes physiques mis en jeu au sein des pores sont l'adsorption monomoléculaire, polymoléculaire et la condensation capillaire (Collet, 2004).

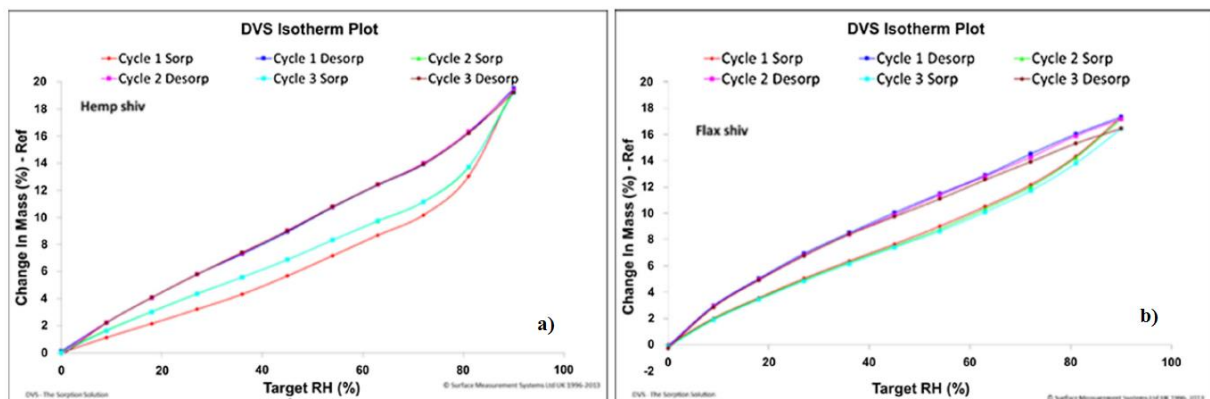


Figure I-6 : Isothermes de sorption de la chènevotte et de l'anas de lin mesurés par DVS. (Yunhong Jiang, Lawrence, Hussain, Ansell, & Walker, 2018) (a : Chènevotte, b : anas de lin)

Jiang *et al.* ont déterminé les isothermes de sorptions de la chènevotte de chanvre et l'anas de lin par DVS (Dynamic Vapor Sorption). Ces isothermes illustrent le comportement hygroscopique important de ces matières, avec des variations de masses de 19% et 17% pour la chènevotte et l'anas respectivement, pour des valeurs d'humidité relative comprise entre 0 et 90%HR. Sur ces deux isothermes, on retrouve une hystérésis entre la sorption et la désorption qui est commune aux granulats végétaux. Il existe différentes théories sur l'origine de cette hystérésis qui n'est pas bien comprise à ce jour (Yunhong Jiang et al., 2018).

La capacité des granulats végétaux à échanger des molécules d'eau avec l'air environnement en cas d'augmentation ou de diminution de l'humidité est à l'origine de la capacité des matériaux végétaux à réguler l'humidité de l'air ambiant dans les bâtiments. Cette thématique sera approfondie dans la partie I.2.3.2.

I.2.2.3 Absorption d'eau liquide des granulats végétaux

Une autre particularité des granulats végétaux, associée à leur structure poreuse et leur composition chimique, est leur haute capacité d'absorption d'eau liquide. En effet, des mesures d'absorption ont montré que la chènevotte pouvait absorber jusqu'à 300% de sa masse sèche en eau après 30 min d'immersion et jusqu'à 400% après 48h (Nguyen, 2010). Cette absorption est due à plusieurs mécanismes de diffusion de l'eau liquide au sein des porosités mais aussi au sein des composés chimiques amorphes tels que les hémicelluloses ou les zones amorphes de la cellulose (Stevulova et al., 2015). Cette forte sensibilité à l'eau liquide n'est pas avantageuse pour la réalisation de matériaux composites isolants car elle peut complexifier la fabrication du matériau ou/et nécessiter des précautions complémentaires de mise en œuvre à l'échelle du bâtiment. En effet, lors de l'utilisation de liant minéraux, la forte capacité d'absorption d'eau des granulats nécessite un apport supplémentaire en eau de gâchage pour assurer la bonne prise hydraulique et assurer une bonne rhéologie du mélange. Cette augmentation de l'eau de gâchage pénalise les propriétés mécaniques du liant et augmente les temps de séchage du matériau. Par ailleurs, la forte absorption d'eau des composites issus de granulats végétaux peut nécessiter l'ajout d'hydrofugeant dans certaines applications où les matériaux pourraient être exposés à de l'eau liquide. Cette thématique sera abordée dans cette thèse.

Etant donné la diversité des ressources et des caractéristiques des granulats végétaux pouvant servir à la réalisation de matériaux composites dans l'isolation dans les bâtiments, le groupe de travail de la RILEM 236-BBM a défini des protocoles afin de standardiser les méthodes de mesure (Amziane & Collet, 2017; Amziane et al., 2017). Ces protocoles portent sur :

- L'analyse de la distribution granulométrique des granulats par tamisage mécanique et par analyse d'image.
- La détermination de la masse volumique apparente en vrac des granulats et de la masse volumique absolue des granulats (masse volumique du squelette).
- La mesure de la teneur initiale en eau et de l'absorption d'eau des granulats.
- La mesure de la conductivité thermique en vrac.

I.2.3 Propriétés des matériaux composites à base de granulats végétaux : focus sur la conductivité thermique et les propriétés hydriques

Cette partie a pour objectif de présenter brièvement quelques propriétés des matériaux composites issus de granulats végétaux. Elle se focalisera principalement sur les propriétés thermiques et hydriques.

I.2.3.1 Conductivité thermique

(a) Composites à liant minéral

Cérézo a étudié la conductivité thermique à l'état sec de différentes formulations de béton de chanvre en faisant varier les ratio massiques liant/chènevotte. Les résultats montrent qu'à l'état sec, la masse volumique apparente est le paramètre déterminant (Figure I-7). Les conductivités thermiques évoluent de manière quasiment linéaire de 0.06 W/(m.K) à 0.19 W/(m.K) pour des masses volumiques apparentes de 200 à 800 kg/m³ respectivement. Par ailleurs, Cérézo a étudié l'évolution de la conductivité thermique de béton de chanvre conditionnés à différentes humidités relatives. Les résultats montrent la forte corrélation entre la conductivité thermique et l'humidité relative de conditionnement. Pour une masse volumique apparente proche de 200 kg/m³, des conductivités thermiques de 0.06, 0.085 et 0.105 W/(m.K) sont mesurées pour des humidités relatives de conditionnement de 0, 50 et 75%HR respectivement. Pour une masse volumique apparente de 450 kg/m³, des conductivités thermiques de 0.100, 0.120 et 0.140 W/(m.K) sont mesurées pour des humidités relatives respectives de 0, 50 et 75%HR. Cette étude a permis de montrer que la masse volumique apparente et l'humidité des échantillons sont les deux paramètres essentiels qui vont définir la conductivité thermique du béton de chanvre (Cérézo, 2005). Mazhoud a obtenu des résultats similaires sur des composites terre stabilisée – chanvre et liant Thermo®- chanvre (Mazhoud, 2017).

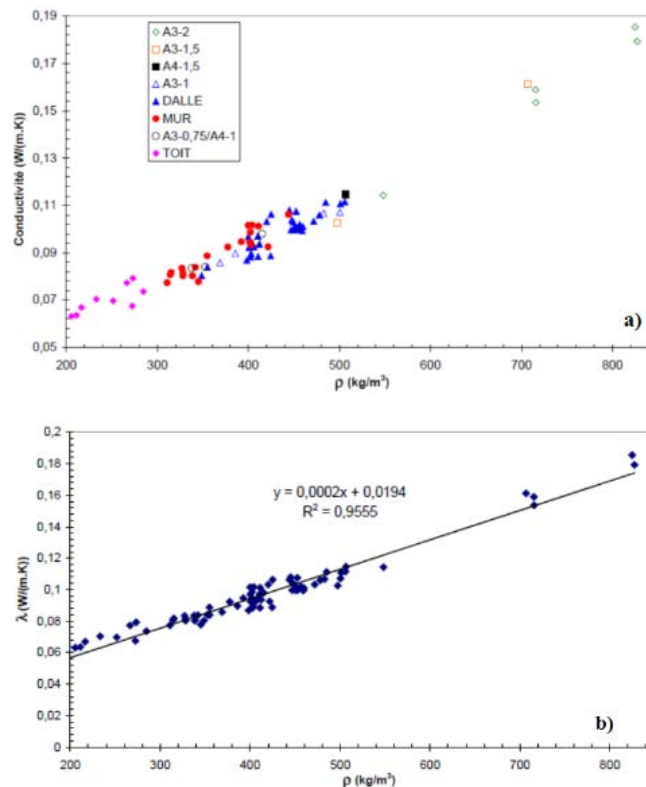


Figure I-7 : Evolution de la conductivité thermique pour différentes formulations de béton de chanvre (Cérézo, 2005)

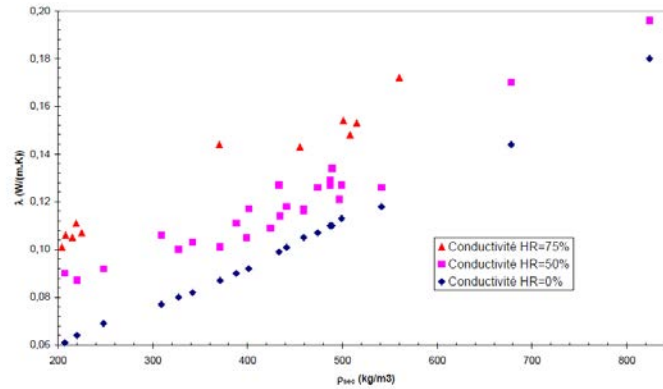


Figure I-8: Influence de l'humidité relative sur la conductivité thermique du béton de chanvre (Cérézo, 2005)

(b) Composites à liant organique

Le tableau suivant présente des valeurs de conductivité thermique de composites végétaux à liant organique (Tableau I-4). L'évolution de la conductivité thermique en fonction de la masse volumique apparente a été représentée sur la Figure I-9. On retrouve le même type de corrélation entre la masse volumique apparente et la conductivité thermique que pour les composites à liant minéral (béton de chanvre). Les masses volumiques sont significativement réduites par rapport aux liants minéraux. Il en résulte des conductivités thermiques beaucoup plus faibles comprises entre 0.044 et 0.068 W/(m.K) pour des masses volumiques apparentes comprises entre 55 et 219 kg/m³. Sur cette plage de masse volumique apparente, la nature du granulat végétal ne semble pas avoir d'influence sur la conductivité thermique. Umurigirwa a étudié l'évolution de la conductivité thermique d'un composite chanvre/amidon avec différentes humidités relatives de conditionnement et températures de mesure. Les résultats montrent que, pour une température de mesure de 23°C, la conductivité thermique augmente quasi linéairement de 0.050 à 0.054 W/(m.K) pour des humidités relatives de 0 et 50 %RH respectivement (Umurigirwa, 2014). La dépendance de la conductivité thermique en fonction de l'humidité relative de ces composites à liant organique semble moins marquée que pour les composites à liant minéral comme le béton de chanvre. Collet *et al.* ont observé des résultats similaires. L'augmentation de la conductivité thermique avec l'humidité est moins marquée pour les composites ayant une proportion massique de granulat végétal plus importante (Collet & Prétot, 2014).

Tableau I-4 : Valeurs de conductivités thermiques de composites granulats végétaux/liant organique

Composite Granulat/liant	Masse volumique apparente kg/m ³	Conductivité thermique W/(m.K)	Conditions	Sources
Paille d'orge/amidon	145	0.054	50%HR 20°C	(Palumbo, 2015)
Paille d'orge/alginate de sodium	125	0.052		
Moelle de rafle de maïs /amidon	58	0.044		
Moelle de rafle de maïs /alginate de sodium	55	0.044		
Balle de riz /amidon	219	0.068		
Balle de riz /alginate de sodium	203	0.060		
Chènevotte/amidon	170	0.054	50%HR, 23°C	(Umurigirwa, 2014)
Broyat de tige de tournesol/Chitosan	150	0.056	40%HR, 20°C	(Mati-Baouche, 2015)

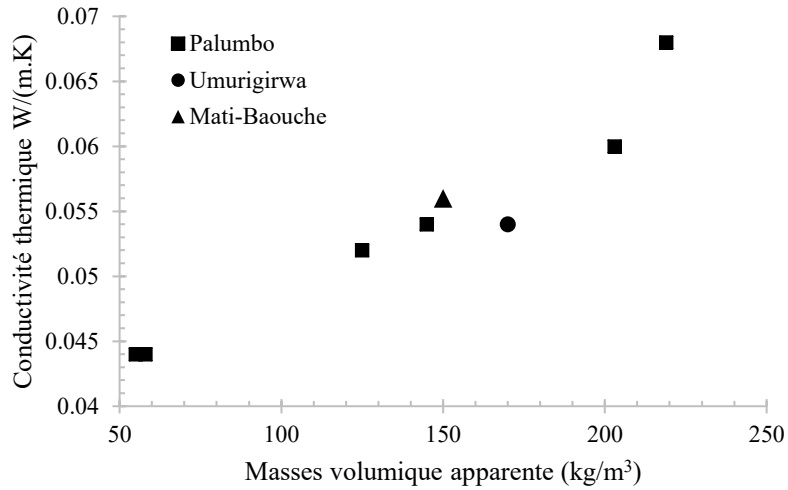


Figure I-9 : Conductivité thermique en fonction de la masse volumique apparente pour différents composites granulats végétaux/liant organique

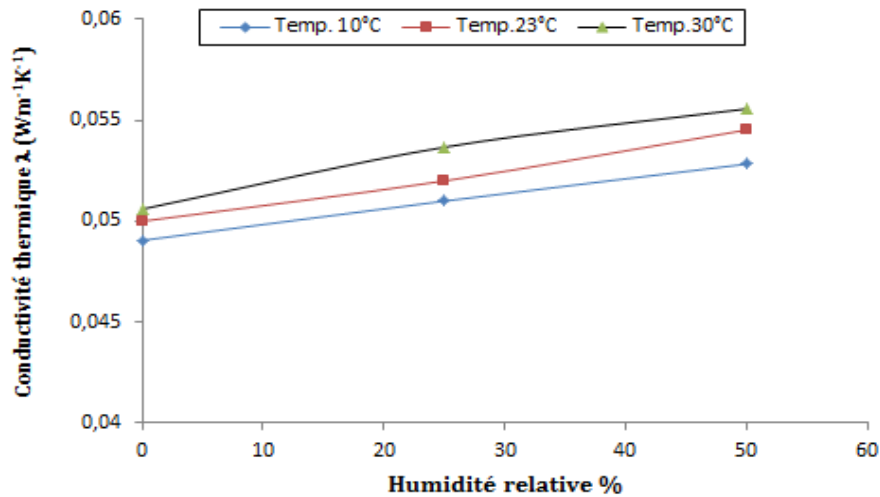


Figure I-10 : Evolution de la conductivité thermique d'un composite chanvre/amidon à différentes humidités relatives et températures de mesure. (Umurigirwa, 2014)

I.2.3.2 Propriétés hydriques des composites

(a) Perméabilité vapeur

Cette grandeur caractérise l'aptitude d'un matériau à laisser passer la vapeur d'eau contenue dans l'air lorsqu'il est soumis à un gradient de pression de vapeur d'eau. La perméabilité vapeur, notée δ en $\text{kg.m}^{-1}.\text{sec}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$, est déterminée par la méthode de la coupelle. Le facteur de résistance à la vapeur d'eau est déterminé par l'équation suivante :

$$\mu = \frac{\delta_a}{\delta}$$

Avec δ_a : la perméabilité à la vapeur de l'air $\delta_a = 2.10^{-10} \text{ kg.m}^{-1}.\text{sec}^{-1}.\text{Pa}^{-1}$

Le tableau suivant présente quelques valeurs de perméabilités à la vapeur et de facteurs de résistance à la vapeur d'eau mesurées sur des matériaux composites à granulats végétaux pour différents gradients de pressions de vapeur d'eau. Les valeurs sont comparées avec d'autres matériaux traditionnels utilisés pour l'isolation des bâtiments. Les facteurs de résistance à la vapeur d'eau des composites à base de granulats végétaux sont généralement faibles comparés à d'autres matériaux tels que les mousses synthétiques. Ces valeurs sont favorables pour la réalisation d'enveloppes qui ne sont pas complètement étanches à la vapeur d'eau.

Tableau I-5 : Comparaison des facteurs de résistance à la vapeur d'eau de matériaux isolants de différentes natures

Matériaux isolants	Masse volumique apparente kg/m ³	Perméabilité vapeur kg.m ⁻¹ .sec ⁻¹ .Pa ⁻¹	Facteur de résistance à la vapeur d'eau	Conditions de mesure	Sources
Béton de chanvre (Chênevotte/chaux)	405	1.7 *10 ⁻¹¹	11.7 (moy)	0 – 50 %HR	(Collet, 2004)
		2.3 *10 ⁻¹¹	8.7	0 – 85 %HR	
	440	1.7 *10 ⁻¹¹	11.5 (moy)	0 – 50 %HR	
		2.3 *10 ⁻¹¹	8.7	0 – 85 %HR	
Chênevotte/amidon	177	3.78 *10 ⁻¹¹	5.28	0 – 50 %HR	(Umurigirwa, 2014)
		4.74 *10 ⁻¹¹	4.22	50 – 94 %HR	
Isolant Polystyrène expansé	7 ≤ ρ < 60	-	60	0 – 50 %HR	(CSTB, 2012)
Isolant Polystyrène extrudé	20 ≤ ρ ≤ 60		60	50 – 94 %HR	
			150	0 – 50 %HR	
Laines minérales	7 ≤ ρ ≤ 200		150	50 – 94 %HR	
			1	0 – 50 %HR	
Mousse Polyuréthane	20 ≤ ρ ≤ 60		1	50 – 94 %HR	
			60	0 – 50 %HR	
			60	50 – 94 %HR	

(b) Valeur tampon hydrique

La valeur tampon hydrique, en anglais « Moisture Buffering Capacity » (MBV), traduit la capacité d'une paroi à s'opposer aux variations de l'humidité de l'air ambiant. Elle a été mise en évidence par de nombreuses études scientifiques mais reste encore peu connue et valorisée par les maîtres d'œuvres (Collet, 2004; Latif, Lawrence, Shea, & Walker, 2015; Rode, Peuhkuri, Time, Svennberg, & Ojanen, 2007). Ce type de régulation est observé pour des parois composées de matériaux hygroscopiques. En effet, comme présenté précédemment, ces matériaux ont la capacité d'adsorber l'eau présent dans l'air, en cas d'augmentation de la pression de vapeur d'eau, et de la relâcher par désorption en cas de diminution de la pression de vapeur d'eau. Il en résulte une inertie hydrique qui stabilise l'humidité relative de l'air intérieur.

L'humidité relative optimale d'une pièce pour des occupants se situe entre 40%HR et 60%HR. En dehors de cette plage, les conditions sont propices à de nombreuses dégradations de la qualité de l'air ambiant engendrées par des développements fongiques, de bactéries, virus, mites etc. (Sterling, Arundel, & Sterling, 1985). La capacité de régulation hydrique permet donc d'éviter naturellement les risques associés à des hygrométries trop importantes ou trop faibles au sein de l'enveloppe. Cela contribue à réduire les besoins en ventilation mécanique et donc diminue les besoins énergétiques du bâtiment. Tran Le et ses collaborateurs ont estimé que l'utilisation de béton de chanvre permettrait un gain de 45% de consommation d'énergie par rapport à un béton cellulaire (Tran Le, Maalouf, Mai, Wurtz, & Collet, 2010).

Pour illustrer cette propriété dans un cas plus concret, Mortensen et ses collaborateurs ont comparé l'évolution de l'humidité relative au sein d'une enceinte soumise à une humidification contrôlée de 25g d'eau par heure, où différents types de matériaux ont été installés. Les cellules de test sont représentées sur la Figure I-11. Les résultats présentés sur la Figure I-12 ont montré que pour une surface de 15.38 m² de laine de verre et de ouate de cellulose, les augmentations de l'humidité relative sont respectivement 30% et 12%. La ouate de cellulose présente l'augmentation de l'humidité relative la plus faible, ce qui illustre bien la capacité de régulation hydrique de ce matériau hygroscopique. La laine minérale n'a montré aucune diminution de l'humidité de l'air puisque les résultats sont similaires à ceux de la cellule vide dont les parois sont en aciers (Mortensen, Rode, & Peuhkuri, 2005).



Figure I-11 : Cellules de test (Mortensen et al., 2005)

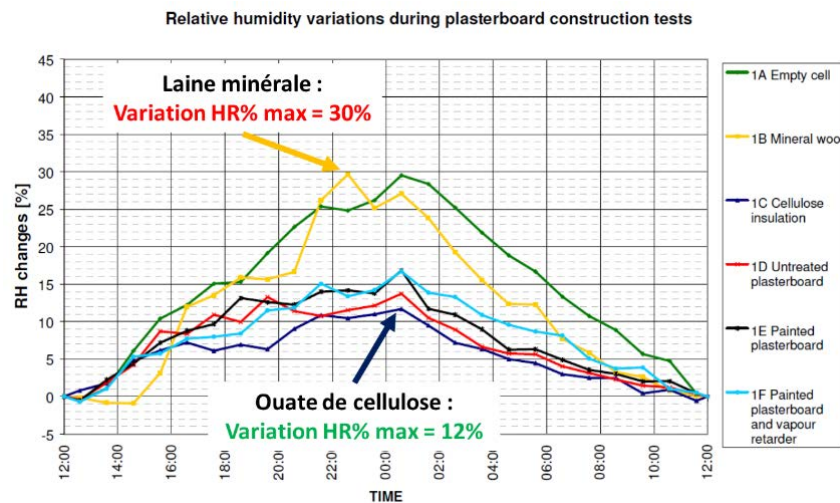


Figure I-12 : Variation de l'humidité relative à l'intérieur des cellules de test pour différents matériaux soumis à une humidification identique (Mortensen et al., 2005)

Pour évaluer cette capacité de régulation hydrique, le NORDTEST Project a défini un protocole de mesure qui consiste à soumettre un échantillon à des cycles d'humidification/séchage de l'air ambiant et à mesurer les variations de masse de ce dernier. Les valeurs tampon hydrique MBV ont ensuite été classées de « négligeable » à « excellente » (Rode et al., 2007). Le principe de la mesure sera présenté plus en détail par la suite de cette thèse. Collet et ses collaborateurs ont déterminé les valeurs MBV de différentes formulations de bétons de chanvre et ont montré que selon les formulations, ces matériaux sont des bons ou des excellents régulateurs hydriques (Collet, Chamoin, Pretot, & Lanos, 2013).

I.3 Les liants dans les composites biosourcés

Dans la partie précédente, nous avons pu évaluer quelques-unes des propriétés des matériaux composites issus de granulats végétaux en se focalisant principalement sur les propriétés thermiques et hydriques. L'objectif de cette sous partie est maintenant de présenter les différents types de liants permettant d'agglomérer la matière végétale et leur impact sur les propriétés des matériaux composites. Les problématiques et les différentes solutions innovantes identifiées dans la littérature seront présentées, ce qui permettra d'introduire les solutions envisagées dans cette thèse.

I.3.1 Nature des liants

Il existe plusieurs types de liants qui permettent d'agglomérer la matière végétale (fibres, particules, farines etc.). De nombreuses caractéristiques les différencient : leurs natures chimiques (organique ou minérale, biosourcée ou pétrosourcée, biodégradable ou non, thermoplastique ou thermodurcissable etc.), le procédé de mise en forme et les propriétés visées (type de collage, structurel, non structurel etc.), solide ou liquide, nécessité d'une activation thermique etc. Il est bien connu que leur classification n'est pas évidente (Cognard, 2001).

Parmi les liants les plus utilisés pour agglomérer les matières végétales, trois grandes familles peuvent être différenciées selon leur mode de prise ou leur nature chimique :

- Les liants organiques non réticulés
- Les liants organiques thermodurcissables
- Les liants minéraux

I.3.1.1 Les liants organiques non réticulés

Parmi cette famille, on retrouve les polymères thermoplastiques qui, lorsqu'ils sont chauffés au-dessus de leur température de fusion ou de transition vitreuse, vont s'écouler ou se ramollir, ce qui permet leur mise en forme. Après refroidissement les polymères vont durcir et former une masse solide. Cette famille est généralement utilisée dans le cas de composite dont le procédé de fabrication se base sur des procédés de la plasturgie tels que l'extrusion ou l'injection. C'est le cas notamment des WPC « Wood Polymer Composite », utilisés pour réaliser des lames de bardages, des lames de terrasse, pièces automobiles par injection etc.

Il existe d'autres liants non réticulés qui fonctionnent par séchage. Ils se présentent sous forme de solution (aqueuse ou dans un solvant organique) ou d'émulsion. Leur prise se fait par absorption du solvant dans le substrat poreux et/ou évaporation. Parmi les colles aqueuses, on retrouve les colles vinyliques (polyvinyle acétate, polyvinyle alcool) et les colles végétales (à base de dérivés d'amidon ou de protéines). Les colles utilisant des solvants organiques sont les élastomères ou les colles de contact (Ross & others, 2010).

Ces liants présentent généralement de bonnes résistances à sec mais ils ne peuvent cependant pas être utilisés pour des applications dites structurelles ou semi structurelles car leurs propriétés mécaniques et leur stabilité thermique sont moindres comparées aux liants thermodurcissables. De plus, leur résistance en milieu humide est très limitée dans la majorité des cas (Ross & others, 2010).

I.3.1.2 Les liants thermodurcissables

Les liants thermodurcissables sont des colles dont la prise se fait par polymérisation/réticulation sous l'effet de la chaleur ou d'un durcisseur. La réaction de réticulation consiste à former un réseau 3D de

longues macromolécules liées par les liaisons covalentes. Cette réaction n'est pas réversible thermiquement.

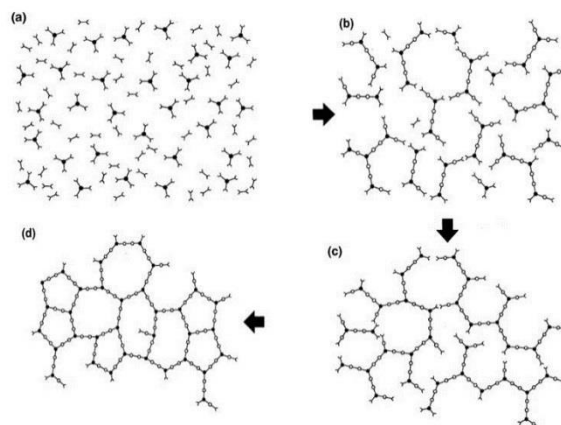


Figure I-13 : Réaction de polymérisation des thermodurcissables (Prime, 2014)

L'industrie des panneaux de bois utilise majoritairement des liants thermodurcissables pour la réalisation de panneaux OSB (Oriented Strand Board), de MDF (Medium Density Fiberboard), contreplaqués et de panneaux de particules. Les résines thermodurcissables sont différenciées selon leur température de réticulation, le temps de gel, leurs propriétés mécaniques, leur résistance à l'humidité qui définira le domaine d'application du panneau et leur prix (Ross & others, 2010; Thoemen, Irle, & Sernek, 2010).

Les résines thermodurcissables les plus utilisées dans l'industrie des panneaux de bois sont les aminoplastes et plus particulièrement les colles urée-formol (Mantanis, Athanassiadou, Barbu, & Wijnendaele, 2018). Les colles urée-formaldéhydes (UF) sont les plus répandues car leur prix est très faible, leur temps de réticulation très court, elles présentent une bonne résistance en milieu sec et leur utilisation est bien maîtrisée. Les colles UF ne sont cependant pas structurelles car leur résistance en milieu humide est faible, ce qui limite donc leur utilisation à des applications intérieures. Parmi les aminoplastes, les colles mélamine-formaldéhyde (MF) présentent une bien meilleure résistance à l'humidité que les colles UF, ce qui en font des colles appropriées pour des applications extérieures. Cependant, leur prix est trois fois supérieur au prix d'une colle UF. Par conséquent, les industriels du bois préfèrent généralement ajouter de la mélamine aux colles UF afin d'augmenter leur résistance à l'humidité. Les colles obtenues sont appelées Mélamine-Urée-Formaldéhyde (MUF) et sont notamment utilisées pour réalisation de panneaux contreplaqués. Les colles Phénol-Formaldéhyde (PF) ont de très hautes résistances sèches et humides, et résistent bien au vieillissement. Par conséquent, les colles PF sont appropriées pour des utilisations en milieu extérieur. Cependant, leur prix est deux fois plus élevé que les UF et leur réticulation requiert des temps de chauffe et des températures plus élevés. La principale problématique liée à l'utilisation des colles aminoplastes pour des applications intérieures dans le domaine de la construction ou du mobilier, est due aux émanations de formaldéhyde volatile, composé classé CMR catégorie 1B (ECHA, 2018).

Les résines isocyanates, en anglais « Methylene Diphenyl Isocyanate » (MDI) et « Polymeric MDI » (PMDI), sont des alternatives pour fabriquer des panneaux « sans formaldéhyde ajouté ». Ces résines sont des mélanges liquides d'oligoisocyanates et d'environ 50% de MDI non polymérisé (monomère). Ces solutions ne sont pas aqueuses puisque les isocyanates polymérisent en présence d'eau. L'utilisation de ces résines nécessite des précautions particulières puisqu'elles peuvent réagir avec l'humidité de l'air. Elles présentent de très hautes performances mécaniques et sont très réactives ce qui permet de réduire la quantité de liant nécessaire à la fabrication des panneaux. De plus, des procédés d'émulsion des colles

PMDI ont été développés afin de réduire les quantités de colles dans les panneaux en améliorant la dispersion. Bien que leur prix soit significativement plus élevé que les résines aminoplastes, les PMDI ont gagné en popularité grâce à la demande croissante de panneaux sans formaldéhyde ajouté. Des problématiques de toxicité associées à leur utilisation dans les procédés de fabrication ont été identifiées liées à des émanations de monomères volatiles hautement toxiques. Après réticulation les colles PMDI ne sont plus toxiques (Ross & others, 2010; Thoemen et al., 2010).

I.3.1.3 Les liants minéraux

De nombreux liants minéraux ont été utilisés pour la réalisation de composite biosourcés. On peut citer les liants à base de chaux, d'argiles, les liants à prise hydraulique, pouzzolanique, les géo-polymères etc. Cette famille sera présentée plus en détail dans la suite de cette synthèse bibliographique en se focalisant sur les liants minéraux utilisés pour la fabrication de panneaux composites.

I.3.2 Les liants biosourcés

I.3.2.1 Les familles de biopolymères

De nombreuses études ont montré que les macromolécules biosourcées, qu'elles soient d'origines végétales ou animales, peuvent être utilisées comme liant pour la réalisation de composite (Dotan, 2014). Elles sont différenciées selon leur nature chimique. On retrouve les carbohydrates, les lignines, les protéines et les huiles végétales après modification. Ces biopolymères sont issus de ressources abondantes, renouvelables, non toxiques et économiques. Ils représentent donc des alternatives attrayantes pour substituer les résines synthétiques. Les liants issus d'huiles végétales ne seront pas présentés car ils ont trouvé peu d'applications pour lier les panneaux de bois (Pizzi, 2016).

Les carbohydrates regroupent les polysaccharides, les oligosaccharides, les gommages et les sucres. Les plus couramment utilisés pour leurs propriétés adhésives sont les amidons et leurs dérivés. Les carbohydrates peuvent être définis comme des polyols avec de nombreux groupements hydroxyles. Leurs propriétés adhésives proviennent de la formation de liaisons hydrogènes inter et intra moléculaires entre groupements hydroxyles après évaporation du solvant (généralement l'eau) (Bawn, Hirst, & Young, 1940). Du fait de la forte polarité des groupements hydroxyles, ces liaisons hydrogènes peuvent être facilement hydrolysées par l'eau. Par conséquent, ces colles présentent de bonnes résistances à l'état sec mais une résistance très faible à l'humidité. Il existe de nombreuses techniques permettant de modifier les polysaccharides pour améliorer leurs propriétés (Dotan, 2014; Ferdosian, Pan, Gao, & Zhao, 2017).

Les lignines, ressources abondantes et coproduits de l'industrie papetière, ont été grandement étudiées. Leur nature chimique et leur structure moléculaire réticulée en font des polyphénols attractifs pour la formulation de liants (Dotan, 2014; El Mansouri, Pizzi, & Salvadó, 2007; Pizzi, 2016).

Les protéines peuvent être considérées comme des copolymères complexes. En effet, à la différence des polymères synthétiques constitués de la répétition d'un monomère, les protéines sont constituées d'une combinaison de vingt-et-un acides aminés différents, assimilables à des monomères, formant une chaîne polypeptidique par liaisons covalentes. Chaque acide aminé possède ses propres groupements fonctionnels qui diffèrent de par leur nature chimique (polaire, apolaire, acide ou basique à pH 7...). Les interactions inter et intra moléculaires entre les différents acides aminés donnent aux protéines une structure 3D stable via des liaisons hydrogènes, ioniques, covalentes (pont disulfure) et des interactions hydrophobes. Les propriétés adhésives des protéines proviennent des groupements réactifs carboxyles, amines, hydroxyles et de liaisons peptidiques (Cannon, 2011; Verbeek & Berg, 2010).

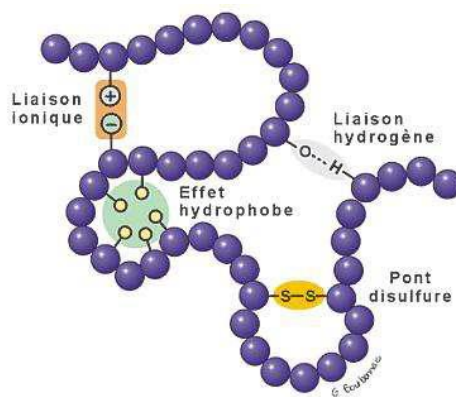


Figure I-14 : Schématisation des liaisons et des interactions associées aux groupements fonctionnels des protéines (Bourbonnais, 2009)

La longueur des macromolécules, la présence de ramification et la nature des groupements chimiques vont influencer les propriétés adhésives des biopolymères telles que la solubilité, la rhéologie, la résistance à l'état sec et humide du collage. Cependant, la résistance à l'eau des colles issues de biopolymères reste généralement mauvaise sans modification des liaisons intermoléculaires pouvant être facilement hydrolysées. Le recours à un réticulant reste la technique la plus utilisée pour améliorer la résistance à l'eau des biopolymères. En se basant sur les catégories de liant présentées dans la partie précédente (nature des liants), l'addition d'un réticulant permet de passer de la catégorie « non réticulé » à la catégorie « liant therm durcissable ». Elle consiste à associer les bio-polymères avec des molécules très réactives polyfonctionnelles capables de réagir avec les groupements réactifs des bio-polymères pour former des liaisons covalentes ou ioniques. Les réticulants sont généralement des molécules chimiques de synthèses mais peuvent être aussi biosourcés. L'**annexe A** présente une liste de formulations de liants identifiées dans la littérature, qui combinent des biopolymères et un ou plusieurs réticulants ainsi que leur domaine d'application. Dans la suite de cette étude, les molécules biosourcées seront appelées la matrice et les additifs ayant pour fonction de les lier, les réticulants.

I.3.2.2 Choix des solutions pour la formulation d'un liant biosourcé

Parmi les différentes formulations présentées dans l'**annexe A**, plusieurs matrices et réticulants ont pu être sélectionnés. Nous allons maintenant présenter plus en détail les solutions retenues qui vont être étudiées dans cette thèse pour formuler un liant biosourcé.

(a) Matrices végétales sélectionnées

Dérivés d'amidon

Il existe de nombreux dérivés d'amidons tels que les dextrans ou le sirop de glucose (monomère) qui sont utilisés dans de nombreux domaines industriels (Pharmaceutique, Emballage, Agroalimentaire etc.). Ces dérivés sont obtenus par modifications physiques (traitements thermiques etc.) et/ou chimiques (oxydation, esterification, étherification etc.). Ils se différencient par leurs masses moléculaires, leur nature chimique qui dépend, d'une part de l'origine de l'amidon (maïs, maïs cireux, blé, pomme de terre, riz manioc etc.), d'autre part de la nature des modifications chimiques. (Masina et al., 2017). Les dextrans sont obtenues par traitement thermique à sec de l'amidon en présence d'acides. Elles ont l'avantage d'être facilement solubles dans l'eau à température ambiante et présentent de bonnes propriétés adhésives. La solubilité, la viscosité, le tack et la résistance à sec vont principalement dépendre de leurs masses moléculaires (Huchette, 1969).

Farine de soja (protéines)

Les colles à base de protéines de soja se présentent sous la forme de farine de graine de soja dégraissée et broyée finement. La farine dégraissée contient environ 50% de protéines, 40% de carbohydrates et 10% d'humidité. Il est possible d'obtenir des produits plus concentrés en protéines à partir de la farine tels que le concentré protéique de soja (>65% de protéines) et l'isolat protéique de soja (>90% de protéines). Cependant, ces matières sont obtenues par des procédés d'extraction coûteux. Par conséquent, la grande majorité des formulations à base de protéine de soja utilisent le grade de farine dégraissée en raison de leur accessibilité économique (Frihart, Hunt, & Birkeland, 2014; A. Pizzi & Mittal, 2003; Wescott, Traska, Frihart, & Lorenz, 2005).

Mélasse

La mélasse est un coproduit important de l'industrie du raffinage du sucre qui se présente sous la forme d'un liquide noir visqueux ayant une teneur solide élevée (73%). Issue généralement de betterave ou de canne à sucre, elle est principalement utilisée dans la nutrition animale pour sa forte teneur en sucres entre 30 et 60%, principalement le saccharose, de protéines entre 5 et 10% et de minéraux (Olbrich, 1963) (US8900495B2, 2014) (Comité National des Coproduits, 2012). La teneur importante en carbohydrates de la mélasse en fait un candidat idéal pour formuler des liants liquides à hautes teneurs en solide.

(c) Les réticulants sélectionnés**Glyoxal (acétaldéhyde)**

Il s'agit d'un dialdéhyde non volatile qui possède deux groupements carbonyles. Les groupements carbonyles réagissent avec les groupements hydroxyles de la matrice pour former des liaisons acétales. Il en résulte un polymère réticulé formant un réseau 3D.

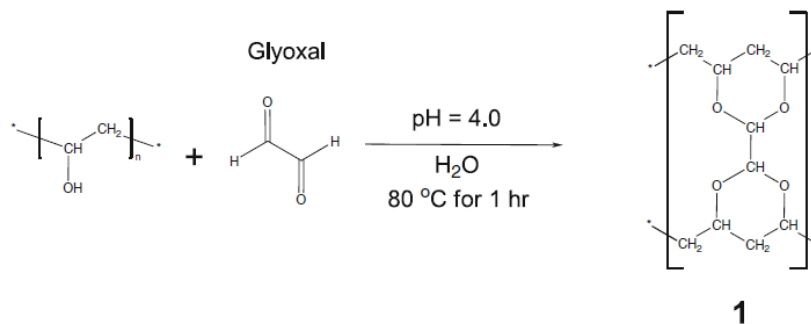


Figure I-15 : Réticulation du polyvinyl alcool par le glyoxal (Y. Zhang, Zhu, & Edgren, 2010)

Les acides polycarboxyliques

Ces composés possèdent au moins deux groupements carboxyles. Ces groupements peuvent réagir avec les groupements hydroxyles ou amines de la matrice par une réaction de polycondensation (esterification ou formation d'une liaison amide). L'acide citrique, les anhydres d'acide carboxyliques et les résines polyacides acryliques sont des molécules qui contiennent des groupements carboxyles ou, qui après hydratation, vont former des groupements carboxyles (cas des anhydres d'acides carboxyliques). L'hypophosphite de sodium catalyse la réaction d'estérification. La figure suivante illustre la réaction de réticulation d'un polyol (le polyvinyl alcool) par l'acide citrique. La réaction permet de former un film insoluble de polyvinyle alcool réticulé. (Birck, Degoutin, Tabary, Miri, & Bacquet, 2014)

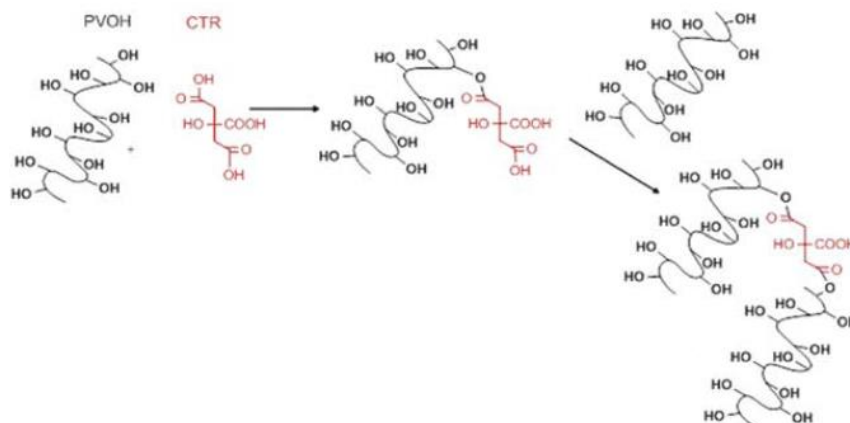


Figure I-16 : Réaction de réticulation du polyvinyle alcool par l'acide citrique (Birck et al., 2014)

Polyamidoamine epichlorohydrine (PAE)

Il s'agit d'un réticulant très couramment utilisé dans l'industrie papetière pour améliorer la résistance à l'eau du papier. Le PAE est un polymère cationique dont la réactivité et la charge proviennent des groupements très réactifs d'azetidinium (Figure I-17). La PAE est capable de réagir avec les groupements carboxyles, amines et hydroxyles des autres molécules de PAE et avec ceux des matrices (biopolymères). La réaction est favorisée en milieu faiblement alcalin. (Siqueira, 2012). La Figure I-18 représente les réactions de réticulation du PAE avec les différents groupements.

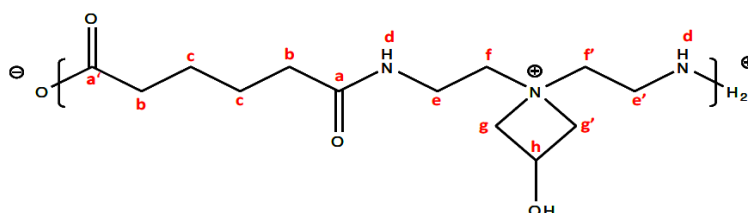


Figure I-17 : Structure du PAE selon (Siqueira, 2012).

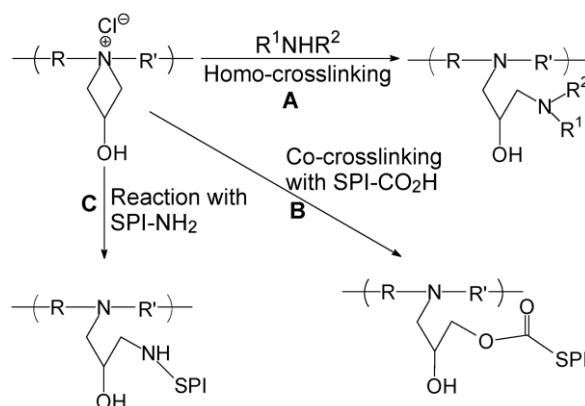


Figure I-18 : Réactions de réticulations du PAE par auto-réticulation ou avec les groupements carboxyles et amines d'un isolat protéique de soja (Li, Peshkova, & Geng, 2004)

I.3.3 Les liants minéraux

I.3.3.1 Comparaison de liants minéraux utilisés pour la fabrication de panneaux composites

Les composites à liant minéraux ont trouvé de nombreuses applications dans le domaine de la construction. Le remplacement du granulat minéral par un granulat végétal dans la formulation d'un béton est certainement l'idée de base conduisant à la mise en place de différentes solutions (bétons légers de liège ou de bois, béton de chanvre). Leur excellente résistance au feu ainsi que leurs très bonnes résistances aux développements fongiques et aux insectes favorisent leur utilisation. Selon la nature du liant, les composites peuvent présenter une excellente stabilité dimensionnelle dans des environnements à haute humidité et une très bonne résistance aux intempéries dans le temps, ce qui fait qu'ils peuvent être employés dans des applications extérieures (Simatupang & Geimer, 1990). Leur procédé de fabrication est généralement plus complexe que celui des panneaux utilisant des colles organiques thermosensibles car les temps de pressage et les temps de conditionnement conduisant à une cohésion ou à des performances mécaniques suffisantes sont plus longs. Ceci peut être expliqué par les temps de prise importants de certains liants inorganiques ainsi que les teneurs en humidité élevées qui imposent des temps de conditionnement et de séchage importants. Globalement, à masse volumique comparable, leurs propriétés mécaniques sont plus faibles que celles des panneaux organiques. Ceci peut être expliqué par une des particularités de ce type de composite : la mauvaise compatibilité des liants minéraux avec les granulats végétaux, une matrice minérale trop peu dense. Comme présenté précédemment, la matière végétale contient des sucres extractibles à l'eau. Lors du mélange du liant avec la matière végétale, l'eau de gâchage va favoriser l'extraction de sucres solubles qui vont interagir dans la réaction du liant. L'extraction est d'autant plus marquée que ces liants sont fortement alcalins, ce qui favorise l'hydrolyse des composés tels que les hémicelluloses. De nombreuses études ont montré l'effet néfaste de ces sucres sur le temps de prise et les propriétés mécaniques des liants base ciment (Espinoza-Herrera, 2009) ou les chaux hydrauliques (Diquelou, 2013).

Sur le plan industriel, trois grands types de liants minéraux sont utilisés pour la réalisation de panneaux composites à partir de matières végétales : le ciment Portland qui est un liant hydraulique, le gypse induit par l'hydratation d'hémihydrates et les liants magnésiens qui constituent des liants de Sorel. Le tableau suivant résume les différentes caractéristiques de panneaux bois liés avec ces différents liants inorganiques.

Tableau I-6 : Comparaison des caractéristiques de panneaux bois liés avec différents liants minéraux (Simatupang & Geimer, 1990)

	Ciment Portland	Gypse	Ciments magnésiens
Propriétés mécaniques	Elevées	Acceptables	Elevées
Résistance à l'eau	Elevée	Mauvaise	Acceptable
Vitesse d'hydratation/de prise	Lente	Très rapide	Rapide
Stabilité dimensionnelle en milieu humide	Excellente	-	Bonne
Compatibilité avec les sucres solubles	Mauvaise	Bonne	Bonne

Les composites liés au ciment Portland présentent de très bonnes propriétés d'usage pour des applications nécessitant de hautes résistances en milieux humides. En revanche, leur mauvaise compatibilité avec les sucres solubles des matières lignocellulosiques et les temps élevés de pressage requis complexifient les outillages et les procédés nécessaires à la fabrication de ce type de composite. De plus, l'étape de calcination nécessaire à la fabrication du clinker est hautement énergivore et fait du ciment une matière à haute énergie grise.

Le gypse reste fortement soluble et les produits réalisés avec ce liant restent très sensibles à des variations d'humidité. Les performances mécaniques de ce liant s'avèrent également assez limitées.

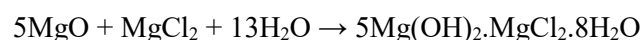
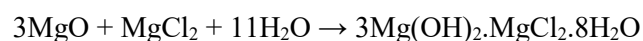
Les ciments magnésiens présentent un bon compromis entre les bonnes propriétés mécaniques du ciment ainsi que la rapidité de mise en œuvre du gypse. En outre, la bonne compatibilité des matières végétales avec ces liants, permet de se passer de prétraitement. Cette bonne compatibilité est déjà exploitée pour la réalisation de panneaux composites laine de bois-liant magnésien, sous la marque Heraklith® par le groupe industriel Knauf.

Il convient de noter que les masses volumiques des produits obtenus par association de granulats végétaux et de liants minéraux sont logiquement plus élevées que celles des composites à base de liant organiques.

I.3.3.2 Les ciments magnésiens

Il existe trois principales catégories de ciments magnésiens : le ciment oxychlorure de magnésium, le ciment oxysulfate de magnésium et le ciment phosphomagnésien. Le constituant commun à ces trois liants est la magnésie. La magnésie MgO est généralement obtenue par calcination de la magnésite MgCO₃. Selon la température de calcination de la magnésie, il est possible de différencier trois principaux grades. La magnésie Caustique (en anglais « caustic calcinated magnesia ») est obtenue à l'aide d'une calcination basse température (600-1300 °C). La magnésie « Dead Burned » calcinée à des températures comprises entre 1600 °C – 2200 °C qui trouve des applications dans les matériaux réfractaires et la « fused magnesium » calcinée à des températures supérieures à 2800°C. La réactivité de la magnésie diminue avec des températures de calcination croissante (Walling & Provis, 2016). Par la suite, nous allons nous concentrer sur les ciments oxychlorure et oxysulfate de magnésium. Le ciment phosphomagnésien ne sera pas présenté car une étude menée par Sinka et ses collaborateurs a montré que l'impact environnemental de composites chènevotte/liant phosphomagnésien était trop important. Cet impact élevé est lié à l'utilisation d'une grande quantité de phosphate qui pénalise fortement l'analyse du cycle de vie du composite (Sinka, Sahmenko, Korjakins, & Bajare, 2017).

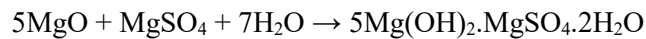
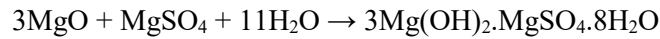
Le ciment oxychlorure de magnésium est obtenu en faisant réagir de la magnésie, généralement caustique, avec une solution de chlorure de magnésium MgCl₂. Il se forme des phases liantes d'oxychlorure de magnésium. De nombreuses phases ont été identifiées. Les deux réactions suivantes illustrent des possibilités de réaction de la magnésie avec le chlorure de magnésium pour former une phase liante d'oxychlorure de magnésium.



Les ciments oxychlorures de magnésium développent leur résistance très rapidement et présentent une très haute résistance en compression. Cependant, les phases liantes d'oxychlorures de magnésium ne résistent pas à l'humidité et ont tendance à se solubiliser lors d'une exposition prolongée, ce qui limite l'application de ses liants en milieu sec. Par ailleurs, les ions chlorures solubilisés engendrent des

problématiques de corrosion des armatures métalliques. Bien que des études ont permis d'améliorer la résistance à l'eau des ciments oxychlorures par ajout d'une infime quantité d'acide phosphorique, peu de produits utilisent ce type de liant pour la réalisation de composites (Walling & Provis, 2016).

L'alternative intéressante aux problématiques des ions chlorures rencontrées avec le ciment oxychlorure de magnésium est le ciment oxysulfate de magnésium. De manière similaire à l'oxychlorure de magnésium, l'oxysulfate de magnésium est obtenu en faisant réagir de la magnésie avec une solution de sulfate de magnésium.



Les propriétés mécaniques des phases liantes sont significativement moins élevées que les oxychlorures et le ciment oxysulfate de magnésium présente les mêmes problématiques de résistance à l'eau que l'oxychlorure. En revanche, sa rapidité de prise permet son utilisation pour la fabrication de composite ligno-cellulosique à l'aide de procédés continus. De plus, ces liants présentent d'excellentes propriétés de retardateurs de feu. Cette thématique sera approfondie dans la partie retardateur de feu (Espinoza-Herrera, 2009).

I.3.3.3 Problématiques et solution innovantes identifiées

La teneur en eau des composites bois liant inorganique lors de leur fabrication est un paramètre important car de hautes teneurs en eau vont nécessiter un séchage intensif des panneaux après fabrication. C'est pourquoi de nombreux procédés utilisant auparavant des quantités importantes d'eau ont été modifiés pour réduire au maximum la teneur en eau. Dans les composites à liant minéraux, l'humidité provient principalement de l'eau de gâchage nécessaire à la bonne répartition du liant sur les granulats/fibres, à l'hydratation du liant mais surtout à l'obtention d'une rhéologie du mélange satisfaisante. En revanche, il est bien connu que l'eau de gâchage a une incidence directe sur les propriétés mécaniques des liants inorganiques et sur les temps de prise et de raidissement.

Les teneurs en eau des liants magnésiens oxychlorures et oxysulfates sont limitées par la solubilité des sels de chlorure de magnésium et sulfate de magnésium respectivement qui précipitent lorsqu'ils sont ajoutés au-dessus de leur limite de solubilité. Prior a breveté une formulation permettant de dépasser la limite de solubilité des sels en utilisant du tripolyphosphate de sodium ou trimétaphosphate de sodium. Les résultats ont montré qu'après dissolution dans l'eau chaude des sels au-dessus de leur limite de solubilité à température ambiante et en présence de l'un de ces deux composés, la solution ne précipite pas après refroidissement. (US3320077A, 1967) Cette méthode permettrait de réduire grandement la teneur en eau nécessaire à la réalisation d'un ciment oxysulfate/oxychlorure et ainsi le temps de séchage du composite. Cette solution sera évaluée dans le cadre des travaux de formulations envisagés dans cette étude.

I.4 Procédés de fabrication des panneaux

L'objectif de cette partie est de présenter différents procédés de fabrication généralement utilisés pour produire les panneaux isolants rigides en fibres de bois ou issus d'autres ressources lignocellulosiques. L'étude porte sur trois procédés de production industrielle et se focalise sur l'identification des principales différences entre les process ainsi que des paramètres critiques de fabrication :

- La production par voie humide de panneaux rigides en fibres de bois
- La production par voie sèche de panneaux rigides en fibres de bois
- Le procédé de fabrication des panneaux isolants de pailles CSB (Compressed straw board process®)

I.4.1 Procédé humide – panneaux de fibres de bois

Ce procédé est une adaptation de la technologie de fabrication du papier. Il peut être utilisé pour fabriquer des panneaux dits « Hardboard » ayant une densité comprise en 900 et 1100 kg/m³ ou des panneaux isolants de faible densité comprise entre 150 kg/m³ et 250 kg/m³. Comme son nom l'indique, ce procédé implique l'utilisation d'une grande quantité d'eau et ne requiert pas nécessairement l'utilisation de liant. En effet, les fibres sont liées, après évaporation de l'eau, par les lignines et les hémicelluloses composants intrinsèques du bois. Ces composants sont mobilisés et agissent comme un liant sous certaines conditions de température, de pression et d'humidité. Le procédé humide de fabrication des panneaux isolants de fibres de bois est illustré sur la figure suivante. Les principales étapes seront présentées plus en détail par la suite (J. Ressel, 2008; J. B. Ressel, 2015; Ross & others, 2010; Suchsland & Woodson, 1987; Thoemen et al., 2010).

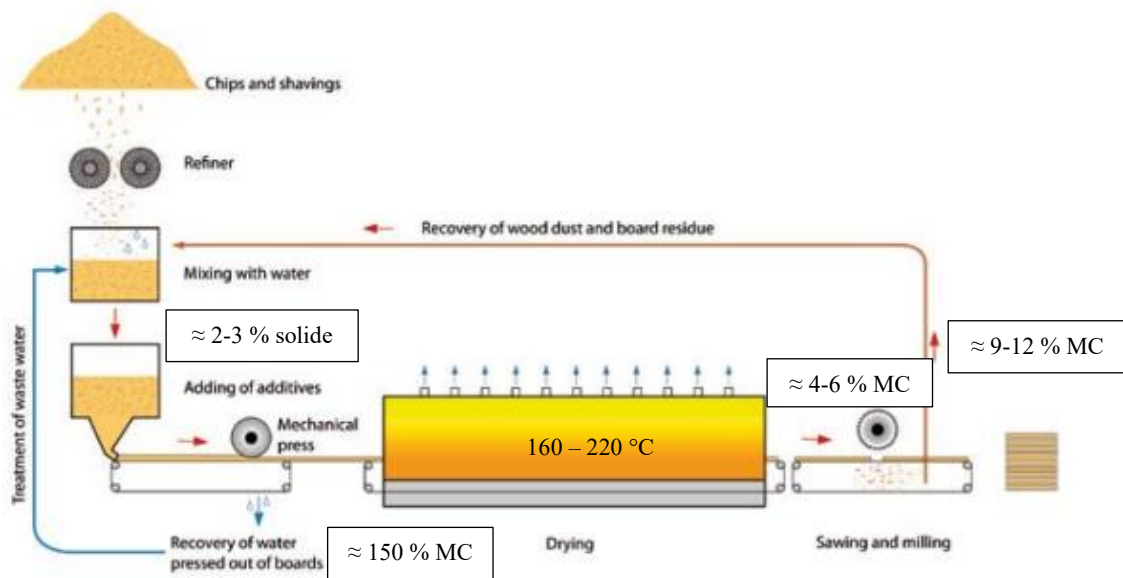


Figure I-19 : Fabrication des panneaux rigides isolants en fibre de bois par le procédé humide.

Source de l'image : (Gutex, 2012) Source des valeurs d'humidité : (Suchsland & Woodson, 1987)

Défibrage

Les morceaux de bois sont transformés en fibres par un procédé de défibrage mécanique et de pression vapeur. Durant cette étape, les fibres sont chauffées, saturées de vapeur d'eau (8 bars) et forcées de passer au travers de deux disques à rainures radiales tournant à grande vitesse. La combinaison de cisaillement, de coupe et d'abrasion rompt les liaisons entre les fibres. La vapeur d'eau facilite la

séparation des fibres en assouplissant les lignines, constituant majeur de la lamelle mitoyenne qui maintient les fibres dans la structure du bois. Un traitement alcalin peut aussi être utilisé pour affaiblir les lignines. Le procédé de défibrage est identique pour le procédé par voie sèche (J. B. Ressel, 2015; Ross & others, 2010; Suchsland & Woodson, 1987; Thoemen et al., 2010).

Mélange des fibres avec l'eau et incorporation des additifs

Les fibres de bois sont alors mélangées avec une grande quantité d'eau de manière à former une solution contenant 2 à 3% de solide. Les additifs sont incorporés dans le mélange. Le traitement des fibres avec les additifs, appelé en anglais « fiber sizing » vise à fonctionnaliser le panneau dans le but de réduire sa sensibilité à l'eau en réduisant la tension de surface des fibres pour les rendre hydrophobes. Cette étape permet notamment d'éviter d'éventuels gonflements ou gauchissements du panneau suite à une exposition à l'eau. Les agents de fonctionnalisation couramment utilisés sont la rosin, les cires et l'asphalte. Cependant, ces composés étant hydrophobes, ils ne sont pas solubles dans l'eau. Ainsi, le procédé de fonctionnalisation (identique pour tous les agents) consiste à émulsifier les agents pour les rendre dispensables dans l'eau. L'émulsion est ensuite ajoutée à la solution fibres/eau. Enfin, un précipitant ajustant le pH de la solution, va faire précipiter les agents de fonctionnalisation sur les fibres et créer un recouvrement homogène. La fixation des agents sur la fibre est réalisée par l'agent précipitant, généralement l'alum ou le sulfate d'aluminium. L'aluminium apporte une charge positive aux agents ce qui entraîne leur dépôt sur les fibres chargées négativement. La quantité d'agent ajouté aux fibres est généralement comprise entre 0.5 et 3% de la masse sèche. Certains fabricants ajoutent des émulsions de latex comme liant (5% de la masse des fibres) afin d'améliorer les propriétés mécaniques des panneaux (Ross & others, 2010; Suchsland & Woodson, 1987; Thoemen et al., 2010).



Figure I-20 : Dispersion des fibres dans l'eau (Gutex, 2012)

Formation du mat et pré-pressage

La formation du matelas de fibre, plus communément appelé « mat », sur le tapis de convoyage est réalisée en utilisant l'eau comme moyen de distribution. Le contrôle du ratio eau/fibre de la solution est primordial car il détermine l'uniformité et l'enchevêtrement des fibres du mat. Le mélange coule sur un tamis qui filtre les fibres et retire l'excès d'eau de la solution passant au travers des trous du filtre. Le mat est pressé à froid pour atteindre l'épaisseur désirée et réduire l'humidité résiduelle à 150-200%. Durant ces deux étapes, l'excès d'eau retiré est récupéré, recyclé et réutilisé pour réaliser de nouveau les étapes présentées précédemment (J. B. Ressel, 2015; Ross & others, 2010; Suchsland & Woodson, 1987; Thoemen et al., 2010).



Figure I-21 : Formation du mat humide



Figure I-22 : Mat avant pressage et séchage

Source des images : (Gutex, 2012)

Séchage ou pressage à chaud

Pour les panneaux isolants, la cohésion est obtenue par séchage du mat après pré pressage, à une température comprise entre 160 et 200 °C. Durant cette étape, la combinaison de chaleur et d'humidité va entraîner un écoulement des lignines et des hémicelluloses et une réticulation. De nouvelles liaisons hydrogènes vont se former et assurer la cohésion des fibres entre elles après évaporation de l'eau. Par conséquent, l'étape de séchage a une influence importante sur les propriétés finales du panneau (J. B. Ressel, 2015; Ross & others, 2010; Suchsland & Woodson, 1987; Thoemen et al., 2010).

Contrecollage des panneaux

Les panneaux de fibres isolants fabriqués en utilisant ce procédé ont une épaisseur maximale de 25mm. Par conséquent, pour augmenter l'épaisseur finale du produit, les panneaux sont assemblés à l'aide d'une colle de polyvinyle acétate. Cette étape requiert un bon contrôle de l'humidité des panneaux afin d'éviter toutes déformations liées aux retraits engendrés par les variations d'humidité.



Figure I-23 : Panneaux rigides isolants de fibres de bois obtenu par le procédé humide (Pavatex, 2019)

I.4.2 Procédé sec – panneaux de fibres de bois

Le procédé de fabrication des panneaux de fibres de bois isolant par voie sèche a été développé plus tardivement que le procédé humide, le but étant de se passer d'étape complexe d'évaporation. Il requiert l'utilisation de liants therm durcissables qui polymérisent par activation thermique. Le procédé était déjà utilisé pour la fabrication de panneaux MDF et des panneaux Hardboard (600 – 1100 kg/m³). Cependant, le procédé n'était pas adapté à la fabrication des panneaux isolants de faibles densités et de fortes épaisseurs car les temps de pressage étaient trop longs et les panneaux étaient difficilement réticulés à cœur. Les récents développements des colles hautement réactives pMDI et de nouveaux fours industriels associant air chaud et vapeur d'eau, ont permis l'utilisation de ce procédé pour la fabrication

de panneaux isolants basse densité en fibres de bois. Les principaux avantages de ce procédé sont la possibilité de fabriquer des panneaux rigides de fortes épaisseurs (jusqu'à 240 mm) et de très faibles densités (jusqu'à 80 kg/m³) en une seule étape. Le procédé est illustré sur la figure suivante (J. B. Ressel, 2015; Ross & others, 2010; Thoemen et al., 2010).

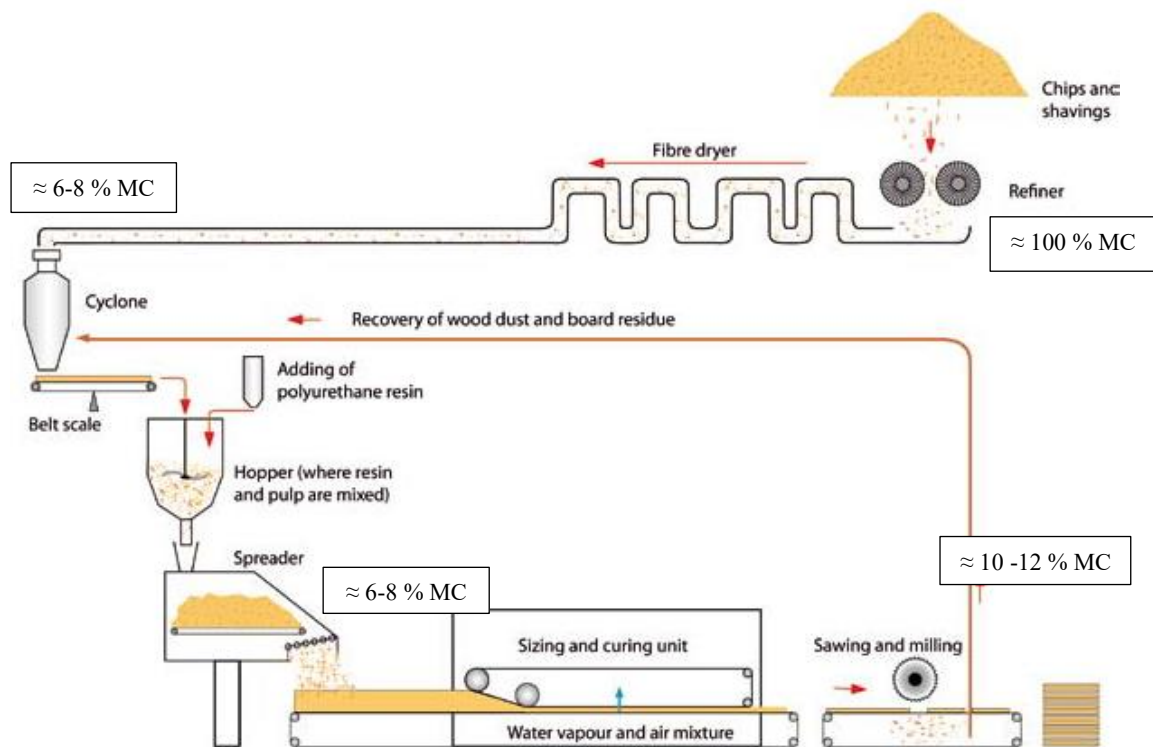


Figure I-24 : : Fabrication des panneaux rigides isolants en fibre de bois par le procédé sec

Source de l'image : (Gutex, 2012). Source valeurs de l'humidité (Siempelkamp, 2012)

Défibrage et séchage

Le procédé de défibrage est identique à celui du procédé par voie humide. Cependant, contrairement au procédé humide, l'humidité initiale des fibres ($\approx 100\%$ MC) est réduite à 6-8% MC par un procédé de séchage flash, « flash dryer ».

Application de la résine et des additifs

Cette étape a un impact important sur le coût final du produit. Du fait des prix élevés des résines, le défi industriel consiste à réduire au maximum la quantité de liant utilisé tout en maintenant les performances mécaniques des produits finaux. Bien que la cohésion des panneaux dépende fortement des propriétés du liant, l'homogénéité et la finesse de la dispersion de la résine à la surface des fibres sont des paramètres critiques qui permettent d'optimiser les quantités nécessaires. Ces deux paramètres sont directement liés à la méthode d'application. Trois techniques de dispersions/mélanges peuvent être différenciées. Elles sont comparées dans le tableau suivant.

Tableau I-7 : Comparaison des trois méthodes d'application des résines

Technique	Principe	Commentaires
Mélange humide « Wet Blending »	Résine appliquée sur les fibres humides dans un « blow line » (conduit localisé entre défibreur et séchoir).	Avantages : Très bonne répartition de la résine sur les fibres Inconvénients : Pré-réticulation de la résine dans le séchoir. Dégagement important de COV. Nécessite un ajout supplémentaire de liant pour compenser la perte de réactivité.
Mélange sec/humide « Dry/wet blending »	Application en deux temps : - Une part dans le blowline (2-3%) - Une part après le séchage des fibres dans mélangeur à tambour rotatif (5-6%)	Réduction de 35% de la colle nécessaire par rapport au mélange humide. Réduction des COV.
Mélange Sec « Dry blending »	Application sur les fibres sèches	Problématique : Apparition de spots de colle à la surface des panneaux. Le problème a été remédié avec le développement de mélangeur hautes performances permettant de pulvériser très finement la résine (gouttes < 15 µm à très haute pression sur les fibres). Réduction de 30 à 50% de la quantité de liant par rapport aux autres techniques.

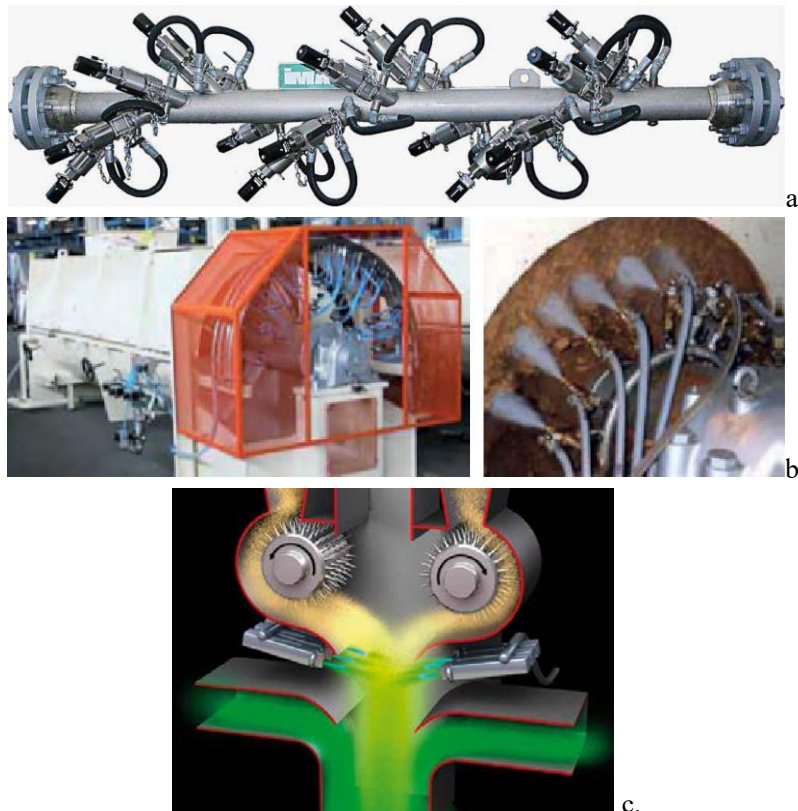


Figure I-25 : Différents dispositifs d'application de la résine sur les fibres a. Blowline source : (Imal Pal Group, 2016). b. Mélangeur rotatif à tambours, source : (Thoemen et al., 2010). c. le système EVOjet M (Dieffenbacher, 2018)

Comme mentionné précédemment, la qualité de la dispersion de la résine ainsi que ses propriétés ont un effet important sur le procédé de fabrication du panneau et les temps associés. Outre les propriétés mécaniques de la colle ainsi que sa compatibilité avec la matière lignocellulosique, une liste de propriétés critiques est présentée ci-dessous :

- **Température et temps de réticulation** : Plus les temps sont courts et les températures sont basses, plus vite le panneau pourra être fabriqué. Le temps de réticulation des résines conventionnelles est compris entre 1-5 min lorsqu'elles sont chauffées au-dessus de température de réticulation.
- **Teneur solide** : Des résines à haute teneur en solide sont préférables car elles requièrent moins de temps de pressage. La quantité d'eau à évaporer est réduite, les faibles humidités permettent plus facilement d'atteindre des températures élevées au centre de l'épaisseur du panneau. Les résines conventionnelles sont des dispersions ou des émulsions ayant une teneur solide d'environ 50%_m. Les résines PF et UF ont respectivement des teneurs solides de 50 et 65%.
- **Viscosité** : Ce paramètre affecte la pression requise pour pulvériser le liant en fines particules. Par ailleurs, la pénétration de la résine dans le substrat dépend en partie de la viscosité du liant. Si la viscosité est trop faible, les particules absorbent une partie du liant. Il en résulte un manque de liant en surface des fibres/particules qui doit être compensé en augmentant la quantité.
- **Le "Pot life"** : Cette grandeur définit la période de temps durant laquelle le liant peut être utilisé après avoir mélangé tous ses constituants (durcisseur). On mesure l'intervalle de temps nécessaire pour que la viscosité initiale du liant double. Cette grandeur doit être suffisamment grande (au moins 30 min) pour s'assurer que le liant ne réticulera pas avant l'étape de thermocompression.

Conformation du matelas de fibres

Cette étape est conduite à l'aide d'un conformateur de mat appelé « mat former » en anglais. Ces outils ont été conçus pour former un matelas uniforme de fibre sur la bande de convoyage. Il est composé d'une benne de dosage « dosing bin » et d'un système de dispersion « spreader system ». La benne de dosage permet d'assurer un flux constant de fibre et de réaliser le dosage des fibres. Le système de dispersion distribue de manière homogène les fibres sur la bande de convoyage et retire les amas de fibres à la surface du mat à l'aide de rouleaux. La position des rouleaux peut être ajustée pour pouvoir modifier l'épaisseur. Une unité appelée « scalping unit » vient contrôler la densité par rayon X et différents rouleaux viennent corriger les irrégularités d'épaisseur du mat. Après conformation, le mat est trimé pour retirer les bords.

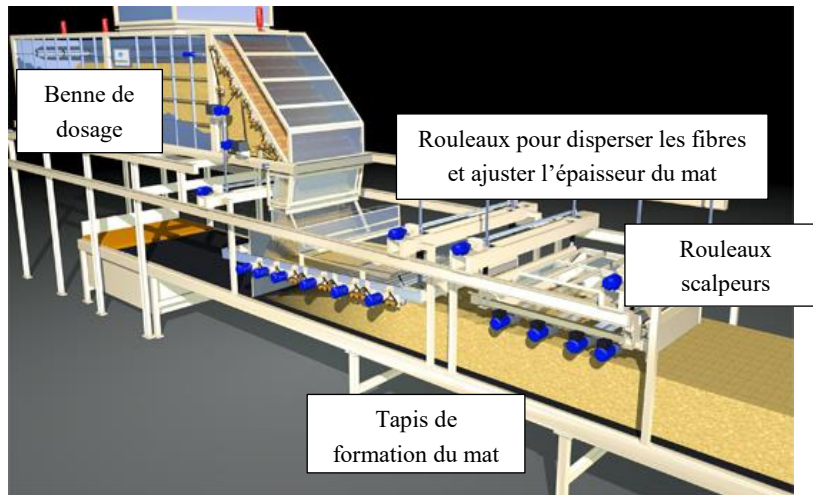


Figure I-26 : Conformateur de mat de fibres de bois

Source de l'image : (Siempelkamp, 2019)

Prépressage/préchauffage du mat et thermopressage.

Pour la production de MDF et de panneaux rigides de fibres de bois utilisant le procédé sec, le mat est généralement pressé à froid pour augmenter sa densité. Cette étape permet une réduction importante des temps de compression et les pressions requises pour atteindre l'épaisseur finale désirée dans la presse continue. La réduction du temps de pressage permet d'éviter la pré réticulation du liant dans la presse avant que l'épaisseur finale ne soit atteinte. Ensuite une étape de préchauffage vient augmenter la température du mat avant de rentrer dans la presse continue. Il existe différentes méthodes de préchauffage : électromagnétique, chaleur de condensation en utilisant une combinaison de vapeur saturée et d'air sec. Siempelkamp a développé un système de préchauffage et pré-pressage nommé « Conditherm® » qui utilise une combinaison de vapeur chaude saturée et d'air chaud. Cette méthode permet une augmentation rapide et homogène de la température du mat comprise entre 60°C et 95°C. Cette méthode a permis d'augmenter de 30% la production de panneaux MDF.

Pour la production de panneaux d'isolation, la pression requise est significativement réduite par rapport aux panneaux MDF car les densités sont beaucoup plus faibles. Ainsi, après l'étape de pré-pressage, la cohésion finale est apportée au mat dans le four « Contitherm® » par réticulation complète de la résine PMDI dans la zone de calibration.

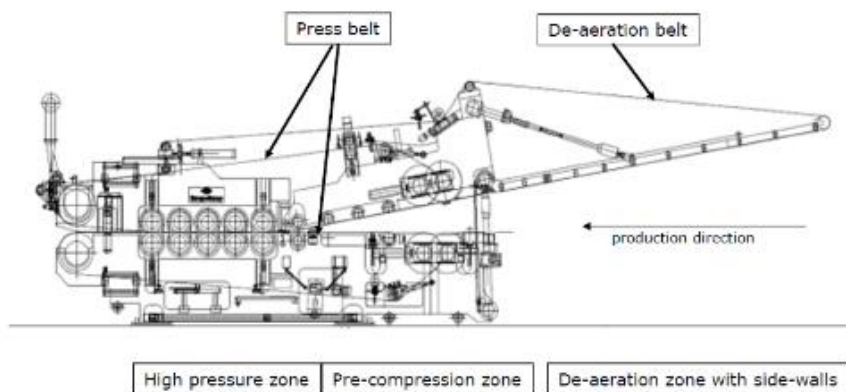


Figure I-27 : Technologie de pré pressage et de calibration du mat Contitherm® (Siempelkamp, 2019)

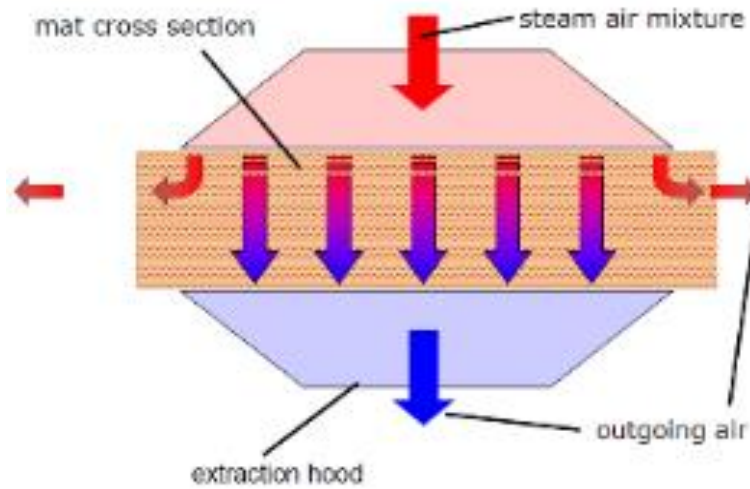


Figure I-28: Principe de l'unité de préchauffage Contitherm® (Siempelkamp, 2019)

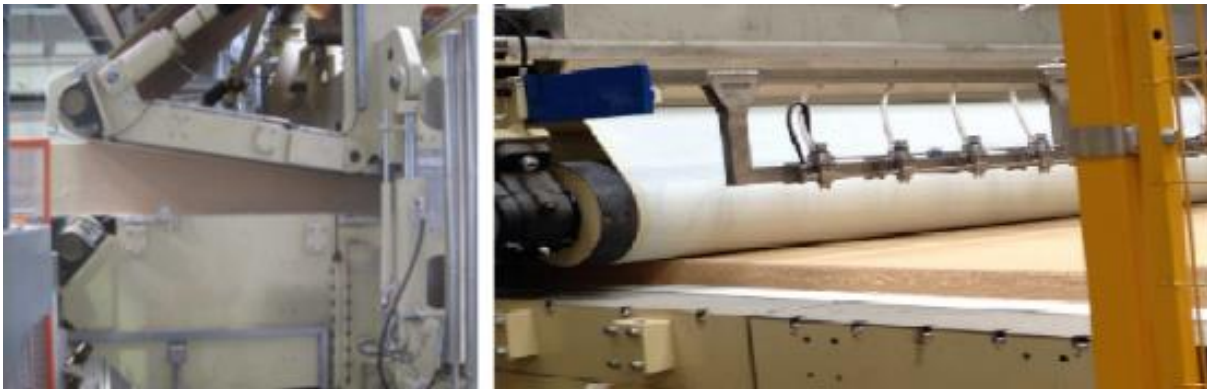


Figure I-29 : Mat avant et après réticulation/calibration à l'aide de la technologie Contitherm® (Siempelkamp, 2019)

Pour la production de panneaux MDF, une étape de compression à hautes pressions à chaud à l'aide d'une thermo-presse continue ou discontinue est nécessaire après l'étape de prépressage/préchauffage. Cette étape permet d'atteindre l'épaisseur et la densité désirées après réticulation complète de la résine. Certains procédés utilisent l'injection vapeur dans cette étape pour accélérer la vitesse de chauffe au cœur de l'épaisseur du panneau.

I.4.3 Procédé de production des panneaux de paille compressée (Compressed Straw Board)

Le panneau de paille compressée (Figure I-30), actuellement importé du Royaume-Uni, est fabriqué à l'aide d'un procédé breveté par la Stramit International Ltd. Ce panneau appelé « LigniCell Compressed Straw Board » (CSB), est composé presque intégralement de paille de blé et trouve de nombreuses applications dans l'isolation des bâtiments. Le procédé a été inventé en Suède dans les années 1930 et la production des panneaux CSB a débuté au Royaume-Uni durant la période de reconstruction d'après-guerre (WW2). Le CSB a été utilisé en grands volumes pour la réalisation de couverture, plafonds, planchers, cloisonnement, comme panneau structurel et/ou comme panneau d'isolation thermique. Approximativement 250 000 maisons ont été construites à l'aide du panneau CSB dans les années 1950-1960 rien qu'au Royaume-Uni.



Figure I-30 : Illustration du panneau d'isolation Lignicell CSB

(Source de l'image : Ekopanely)

Le panneau est fabriqué à l'aide d'un procédé d'extrusion qui ne requiert pas d'addition d'eau ni de liant. Le procédé continu fonctionne à l'aide d'un piston qui vient frapper la paille pour la forcer à passer entre deux plateaux chauffés. Entre chaque impact de piston, une petite quantité de paille est ajoutée qui sera comprimée entre le piston et la paille déjà pressée. A chaque impact, la compression de la nouvelle paille fait avancer la paille déjà pressée entre les deux plateaux. Cette combinaison de chaleur, de friction et de pression durant l'étape d'extrusion permet de lier des broyats de paille de blé entre eux en utilisant les constituants lignocellulosiques présents dans la matière selon le mécanisme suivant :

- La chaleur transforme l'humidité déjà présente dans la paille en vapeur.
- Cette vapeur va permettre de ramollir et de mobiliser les lignines et les hémicelluloses.
- La pression va permettre l'écoulement des lignines et des hémicelluloses entre broyats, qui après refroidissement, seront agglomérés.

Les faces et les bords du panneau « sans fin » sont scellés à l'aide d'une feuille de papier collée à l'aide d'une colle base formaldéhyde. Le panneau sans fin est ensuite découpé.

I.4.4 Comparaison des trois procédés de fabrication de matériaux isolants

Nous allons maintenant évaluer les avantages et les inconvénients des trois procédés selon plusieurs critères (Tableau I-8). Ces critères vont permettre d'orienter le futur choix du procédé de fabrication en fonction de la formulation du matériau composite et des attentes.

Tableau I-8 : Comparaison des trois procédés de fabrication

	Procédé humide (fibres de bois)	Procédé sec (fibres de bois)	Procédé Stramit
Matière première végétale	Fibres de bois	Fibres de bois	Paille de blé/Paille de colza
Épaisseur des panneaux	Max 25 mm Pour atteindre des épaisseurs plus élevées, les panneaux sont contrecollés.	Jusqu'à 300 mm	De 38 à 68 mm L'épaisseur peut être ajustée sur cette plage
Plage de masse volumique apparente	min 160 kg/m ³	min 80 kg/m ³	De 340 à 440 kg/m ³ La densité ne peut pas être contrôlée
Étape de production	Défibrage Pulpage Filtration et pressage à froid Découpe Contrecollage	Défibrage Séchage des fibres Encollage des fibres Formation du mat Pressage et réticulation de la résine Découpe	Ouvraison des balles de pailles Extrusion Collages des faces en papier Découpe
Liant	Autocollage grâce aux lignines et hémicelluloses Colle PVAc pour le contrecollage Latex pour la résistance à l'eau	pMDI	Autocollage grâce aux lignines et hémicelluloses Colle base formaldéhyde pour le collage des faces de papier
Additifs	Retardateur de flamme Hydrofugeant	Retardateur de flamme Hydrofugeant	-
Commentaires	Consommation d'énergie élevée pour l'étape de séchage. Temps de séchage élevés (6 min/mm)	Procédé versatile avec des vitesses de production élevées. Usine nécessitant un investissement très important (séchoir flash, système d'injection vapeur et conditionnement des résines pMDI etc.)	Usine requérant un faible investissement Très faible consommation d'énergie (moins de 2kW/m ²) Utilise des coproduits agricoles sans aucune transformation Faible flexibilité du procédé vis-à-vis de la masse volumique des panneaux

Ces trois procédés présentent leurs propres avantages qu'il sera pertinent d'exploiter mais présentent également des limites d'exploitation. Plusieurs solutions devront être envisagées dans cette thèse afin d'identifier le procédé le plus approprié pour la fabrication du composite. L'utilisation des propriétés autocollantes des granulats est également une solution intéressante qui devra être explorée. Les masses volumiques apparentes seront idéalement réduites au maximum. Viser une plage comprise entre 110 kg/m³ et 250 kg/m³ semble réaliste pour des panneaux rigides. Les panneaux rigides sont généralement utilisés en complément d'une isolation semi rigide et servent particulièrement les solutions d'isolation en toiture ou par l'extérieur. Par conséquent, à l'exception de certains types de systèmes d'isolation en ITE ou Sarking, les panneaux rigides utilisés ont souvent des épaisseurs comprises entre 40 et 60 mm. Ainsi dans cette thèse, nous nous focaliserons sur la fabrication de panneau de 50 mm d'épaisseur.

I.5 Fonctionnalisation des matériaux : focus sur le comportement au feu

Cette partie vise à présenter les techniques permettant d'améliorer les propriétés fonctionnelles des composites ligno-cellulosiques et elle se focalisera sur la thématique du comportement au feu. Cette thématique est l'une des principales faiblesses des matériaux végétaux qui limite leur utilisation dans de nombreuses applications dans le domaine du bâtiment.

I.5.1 Mécanismes de combustions

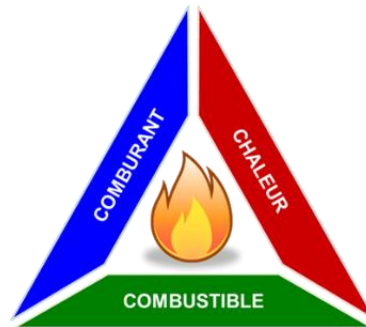


Figure I-31 : Le triangle du feu (Gatineau, 2015)

Trois composants sont indispensables pour que la réaction de combustion ait lieu :

- **Un combustible:** Le combustible peut être un solide, un liquide ou un gaz inflammable. Dans le cas des solides et des liquides, la matière n'est pas directement inflammable. Elle subit une étape de transformation sous l'effet de la chaleur où des gaz combustibles sont dégagés. Il s'agit de l'étape *de pyrolyse*.
- **Un comburant :** Il permet la combustion du combustible. Dans la plupart des cas, il s'agit du dioxygène présent dans l'air.
- **Une source de chaleur :** Elle permet d'apporter l'énergie d'activation nécessaire à la réaction de combustion.

Ce mécanisme « s'autoalimente » car la réaction de combustion entre le combustible et le comburant (très exothermique) va générer une nouvelle source de chaleur et alimenter à nouveau la pyrolyse du combustible. Pour l'arrêter, il est donc nécessaire de retirer l'un des trois composants (Ait-Kheddache, 2013).

I.5.2 Analyse thermogravimétrique des composants chimiques de la matière végétale

Les résultats de l'analyse thermogravimétrique réalisée par Yang et ses collaborateurs (Yang, Yan, Chen, Lee, & Zheng, 2007) sur la cellulose, les hémicelluloses et les lignines ont montré une différence de comportement thermique (Figure I-32). La cellulose se décompose entre 315 et 400°C avec une vitesse de dégradation maximale à 355°C. La décomposition des hémicelluloses s'effectue entre 220 et 315°C avec une vitesse maximale de dégradation à 270°C. Les lignines sont les composés qui commencent à se dégrader aux plus faibles températures (100°C). En revanche, elles se dégradent progressivement sur une grande plage de température allant de 100 à 900°C, ce qui en fait les composés les plus stables de la fibre.

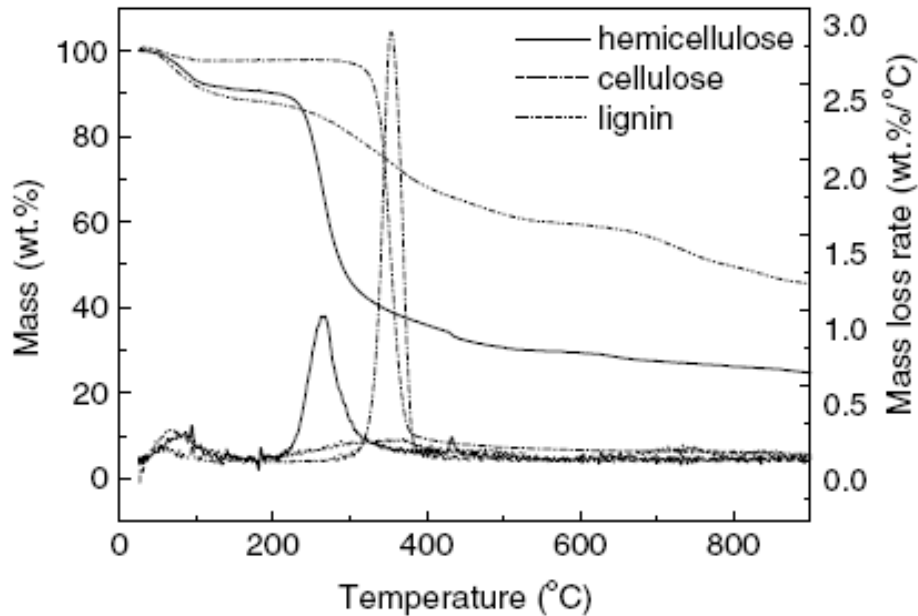


Figure I-32 : ATG des composants de la matière végétale (Yang et al., 2007)

I.5.3 Pyrolyse des matières lignocellulosiques

Nous avons vu que les matériaux solides ne brûlent pas directement mais libèrent des gaz inflammables lors de leur décomposition thermique (la pyrolyse). La pyrolyse des hémicelluloses est analogue à celle de la cellulose mais a lieu à des températures plus faibles (200-320°C). La pyrolyse de la lignine aboutit principalement à la formation de charbon (matière carbonisée) avec peu de gaz combustibles dégagés. Ainsi, nous allons nous intéresser plus particulièrement à la pyrolyse de la cellulose. Elle peut être simplifiée selon deux processus principaux en compétition (Fingueneisel & Weber, 2009; Innofirewood, 2015; Prinz, 2011):

- Le premier processus correspond à une déshydratation de la cellulose qui aboutit à la formation de charbon avec des dégagements gazeux principalement composés de CO_2 et de H_2O . Ce processus se réalise à des températures inférieures à 350°C et pour des vitesses de chauffe lentes. Une faible quantité de gaz combustibles est produite.
- Dans le deuxième cas, la cellulose se dépolymérise, ce qui aboutit à la formation de composés instables de faibles masses moléculaires principalement sous forme de lévoglucosan. Lors de sa décomposition, de nombreux gaz inflammables (H_2 , CO , CH_4 , C_2H_4 ...) sont générés qui vont alimenter la flamme. Ce processus commence à des températures supérieures à 350°C et est optimum à 600°C (ignition spontanée).

Plus la température de la pyrolyse est élevée, plus le dégagement de gaz combustibles est important et moins il se forme de charbon (Fingueneisel & Weber, 2009; Innofirewood, 2015; Prinz, 2011).

Maintenant que nous avons vu le mécanisme de la combustion des matières celluloses, nous allons voir comment il est possible de rompre ce procédé.

I.5.4 Modes de fonctionnement des retardateurs de flammes

Sur le schéma suivant (Figure I-33), figurent les modes d'action (en bleu) permettant de retarder la combustion des matières cellulosiques.

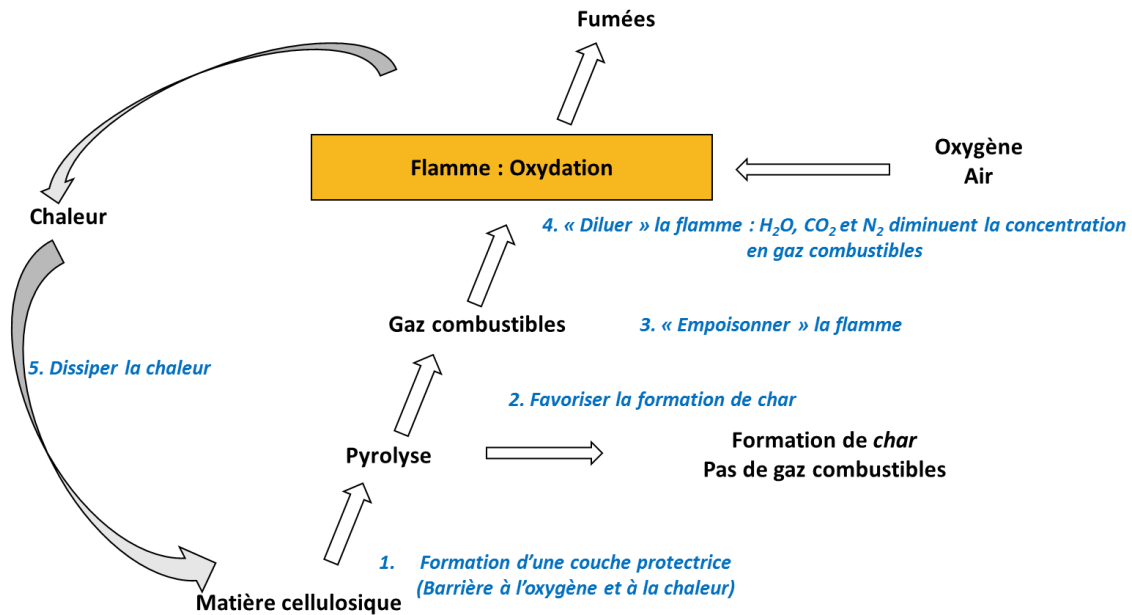


Figure I-33 : Modes d'action des retardateurs de flammes (RF). Inspiré de (Prinz, 2011)

1. Recouvrir la matière/le matériau d'une couche protectrice : Certains RF forment une couche protectrice à la surface sous l'effet de la chaleur. Cette couche fait office de barrière thermique, limite le transfert des gaz combustibles vers la zone de combustion et réduit la quantité d'oxygène (composant nécessaire à la combustion) à la surface de la matière.
2. Favoriser la formation de charbon : Cela permet de réduire les émissions de gaz combustibles en empêchant la formation de lévoglucosan. On peut rappeler qu'il s'agit de deux processus de pyrolyse en compétition.
3. « Empoisonner » la flamme : Dans la zone de combustion, les gaz combustibles vont former des radicaux libres H° et OH° très réactifs (Guilié, 2013). Ils sont responsables des réactions en chaînes très exothermiques. Certains retardateurs de flamme sous l'effet de la chaleur vont se décomposer sous forme de radicaux X° , capables de réagir avec les radicaux très réactifs pour former des espèces moins réactives ou inertes. L'absence des radicaux libres réactifs empêche les réactions très exothermiques d'avoir lieu, d'où l'expression d' « empoisonnement de la flamme ». En outre, ces réactions sont endothermiques et vont aussi agir selon le mode d'action 5.
4. « Diluer » la flamme : La dilution de la flamme peut se faire en évaporant des composés ininflammables (H_2O , NH_3 et CO_2) dans la phase gazeuse, ce qui diminue les concentrations en gaz combustibles et en comburant (O_2). De ce fait, la quantité de chaleur générée par la réaction est réduite. La plupart des RF diluent la phase gazeuse, lorsqu'ils se décomposent, en libérant des gaz ininflammables.
5. Dissiper la chaleur : Certains RF se décomposent à basse température au moyen d'une réaction très endothermique. Ainsi, la chaleur est captée par les RF, ce qui empêche l'élévation de la température des fibres et donc la pyrolyse. (Horrocks, Price, & Price, 2001; Mngomezulu, John, Jacobs, & Luyt, 2014; J. H. Troitzsch, 1998).

I.5.5 Les grandes familles de retardateurs de flamme

Il est important de noter que la plupart des RF combinent plusieurs de ces actions. De plus, beaucoup présentent des effets synergiques qui améliorent leur efficacité. C'est pourquoi il est fréquent d'utiliser des combinaisons de RF pour réduire les quantités. Les grandes familles de RF couramment utilisées seront présentées ci-après. Pour plus de détails sur les réactions chimiques le lecteur peut consulter : (Horrocks et al., 2001; Mngomezulu et al., 2014; J. H. Troitzsch, 1998).

Les RF phosphorés : Il s'agit d'une grande famille qui fait partie des plus investiguées. En effet, il a été montré qu'ils peuvent agir à la fois en phase gazeuse et en phase condensée (solide). Dans la phase condensée, ils sont couramment utilisés pour promouvoir la formation de charbon (mode d'action 2). Les retardateurs de flammes phosphorés se présentent généralement sous la forme des sels composés d'ions phosphates et d'ions azotés, souvent l'ion ammonium. Les plus couramment utilisés dans les matériaux cellulosiques sont le phosphate de monoammonium (MAP), le phosphate de diammonium (DAP) ou les polyphosphates d'ammonium (APP). Le MAP et les DAP sont de phosphates de faibles masses moléculaires tandis que les polyphosphates ont de masses moléculaires plus élevées. Les APP sont plus stables en température mais moins solubles que les sels de basses masses moléculaires (MAP et DAP) (IIT Roorkee, 2012). De plus, leurs prix sont significativement plus élevés (ECHA, 2015). Sous l'effet de la chaleur, les ions ammoniums (ou autres composés azotés de ces sels) vont s'évaporer (ou se dégrader puis d'évaporer) sous forme d'ammoniac libérant ainsi de l'acide phosphorique. Ce dernier va catalyser la déshydratation de la cellulose et favoriser la formation de charbon plutôt que la libération de gaz combustibles lors de la pyrolyse. Un effet synergique a été constaté entre les composés phosphorés et azotés. L'évaporation d'ammoniac va diluer la phase gazeuse selon le mode 4 (Mngomezulu et al., 2014; ScharTEL, 2010).

Les sels d'ammonium phosphates sont souvent utilisés en combinaison avec un autre sel au comportement similaire : le sulfate d'ammonium. Bien que ce sel ne fasse pas partie de la famille des RF phosphorés, son mode fonctionnement est très proche. En effet sous l'effet de la chaleur, le sulfate d'ammonium va se décomposer pour donner d'une part, de l'ammoniac qui va diluer la phase gazeuse et d'autre part, de l'acide sulfurique qui va promouvoir la formation de charbon.

D'autres RF phosphorés tels que le phosphore rouge, lors de leur décomposition des radicaux libres PO° qui inhibent les radicaux O° et OH° (mode d'action 3) (ScharTEL, 2010).

Les RF halogénés : Tetra bromobisphenol A (TBBPA), polybromodiphenyl ether (PBDE), hexabromocyclododecane (HBCD) et Tetrabromophtalic anhydride (TBPA). Les RF halogénés agissent selon le mode d'action 3 en phase gazeuse. Sous l'effet de la chaleur, ils se décomposent pour former des radicaux halogènes (Br° ou Cl°). Les radicaux réagissent et forment de l'acide halohydrique qui capte les radicaux réactifs H° et OH° pour les remplacer par des radicaux halogènes moins réactifs. Il s'agit d'une réaction en chaîne. Seul le brome et le chlore sont utilisés comme RF car les composés de fluor et d'iode n'interagissent pas dans la réaction de combustion (Mngomezulu et al., 2014). Cependant, bien que ce soient des RF très efficaces pour ignifuger les matériaux, ils sont quasiment interdits pour causes de toxicité et de pollution. En effet, ils favorisent la libération de cyanure d'hydrogène et de monoxyde de carbone, composés hautement toxiques, qui sont les premières causes de décès lors des incendies (Rahman, 2012).

Les hydroxydes métalliques : Leur décomposition est endothermique. Ainsi, ils captent beaucoup de la chaleur générée par la réaction de combustion, ce qui refroidit le système (mode d'action 5). Par ailleurs, la réaction de décomposition produit des oxydes métalliques et une grande quantité d'eau. L'eau dilue la phase gazeuse en s'évaporant (mode d'action 4) et les oxydes métalliques forment une couche

protectrice à la surface de la matière cellulosique (mode d'action 1). Les plus utilisés sont l'hydroxyde d'aluminium $\text{Al}(\text{OH})_3$ et l'hydroxyde de magnésium $\text{Mg}(\text{OH})_2$. Leurs températures de décomposition sont respectivement de 300-320°C et 180-200 °C. Certains hydroxycarbonates peuvent aussi être utilisés comme alternatives aux hydroxydes métalliques. Leur fonctionnement est identique. Les RF d'hydroxydes métalliques sont considérés comme respectueux de l'environnement et ne sont pas toxiques. Cependant, pour qu'ils soient efficaces, il est nécessaire d'ajouter une grande quantité (de 30% à plus de 50%), ce qui peut affecter les propriétés mécaniques du matériau. Ainsi, il peut être nécessaire de les combiner à d'autres RF (Mngomezulu et al., 2014).

Les retardateurs de flamme à base de bore : L'efficacité de ces retardateurs est bien connue. Les plus utilisés sont l'acide borique, le borate de zinc et sodium (borax). Comme pour les hydroxydes métalliques, les borates ont une décomposition endothermique qui libère de l'eau et forme une couche protectrice vitreuse sur la fibre (modes d'action 1, 4 et 5). Par ailleurs, leur décomposition mène à la formation d'acide borique qui déshydrate la cellulose (mode d'action 2). Ainsi, les sels de bore sont très couramment utilisés notamment dans la ouate de cellulose. Néanmoins, des questions se posent sur la nocivité du bore dans les matériaux (Baysal et al., 2007; Mngomezulu et al., 2014; Tomak & Cavdar, 2013).

Les systèmes intumescents : une combinaison d'effets retardateurs de flamme.

Sous l'effet de la chaleur, le système intumescent forme une couche de charbon expansée à la surface du substrat (du polymère ou matière cellulosique...). Cette couche protège ainsi le substrat selon le mode d'action 1. Le principe de fonctionnement est simple : le système est composé d'une source de carbone, d'une source d'acide et d'un agent gonflant. Sous l'effet de la chaleur, la source d'acide va libérer de l'acide qui déshydrate la source de carbone. Ainsi il se forme une couche de charbon sur le substrat. L'agent gonflant lors de sa décomposition, va libérer des gaz ininflammables qui vont gonfler la couche de charbon et permettre d'obtenir une structure expansée. Par ailleurs, les gaz ininflammables vont diluer la phase gazeuse (mode d'action 4). Cette structure protectrice RF s'est montrée très efficace (Mngomezulu et al., 2014). Le polyphosphate d'ammonium peut être utilisé dans des systèmes intumescents, à la fois comme source d'acide mais aussi comme agent gonflant. Il se décompose pour former de l'acide et du diazote.

I.5.6 Problématiques et solutions innovantes identifiées

Nous avons vu dans la partie I.1.2.2, qu'à ce jour, il existe peu d'alternatives permettant de se substituer des sels d'ammonium et des retardateurs de flamme à base de bore. Des alternatives intéressantes ont été identifiées dans la littérature. Labat *et al.* ont breveté une formulation ignifugeante composée de chitosan combiné avec de la montmorillonite ou du talc. Une réduction importante du pic du taux de chaleur dégagée (Peak of Heat Released Rate) et une augmentation du temps d'ignition ont été observées sur des panneaux de fibres de bois traités en surface avec la formulation brevetée (Labat et al., 2018). Alongi et ses collaborateurs ont traité des fibres de coton avec de la caséine et de l'hydrophobine et ont observé des effets retardateurs de flamme. Ils supposent que les groupements phosphates présents dans la caséine et les ponts disulfites de l'hydrophobine favorisent la formation de charbon plutôt que le dégagement de gaz combustibles (Alongi et al., 2014). Dans une autre étude, Alongi et ses collaborateurs ont observé des effets retardateurs de flamme de l'acide désoxyribonucléique (ADN) sur des fibres de coton qui pourraient être expliqués par les groupements phosphates de l'ADN (Alongi et al., 2013). Bosco et ses collaborateurs ont observé une amélioration du comportement au feu sur des fibres de coton traitées avec des protéines de petit lait (Whey protein). Ils supposent que les protéines forment une barrière à l'oxygène. (Bosco et al., 2013). Une autre alternative intéressante est le guanidine phosphate, composé stable qui ne contient pas d'ammonium, déjà commercialisé pour l'ignifugation de la ouate de

cellulose. Malgré sa haute efficacité, cet additif n'est pas grandement utilisé car il est significativement plus coûteux que les solutions existantes à base de bore.

On peut donc constater que la contrainte économique reste le principal frein à la substitution aux retardateurs de flamme toxiques. D'autres substituts identifiés dans la littérature qui sont plus faciles d'accès sont présentés ci-après.

Shutt a breveté une solution pour ignifuger la ouate de cellulose sans sel d'ammonium et sans composés à base de bore qui utilise une combinaison d'acide fort et de sulfate de magnésium ou de calcium. Les résultats ont montré que 3% d'acide sulfurique ou d'acide phosphorique combinés avec 6-12% de sulfate de magnésium heptahydraté ou une combinaison de sulfate de magnésium et de sulfate de calcium permettent de répondre aux critères de réaction au feu équivalent à l'Euroclasse B ou C (Shutt, 2017). Le sulfate de magnésium heptahydraté est une solution intéressante puisqu'il s'agit d'un composé non toxique et peu coûteux. Elvira Leon et ses collaborateurs ont observé des effets retardateurs de flamme sur différentes espèces de bois imprégnés avec du sulfate de magnésium. Ils ont observé une augmentation du temps d'ignition et une diminution du pic du taux de chaleur dégagée qui pourraient être expliquées par une double action du sulfate de magnésium heptahydraté : en phase condensée par décomposition endothermique (effet de refroidissement) et en phase vapeur, par évaporation de l'eau cristallisée du sel qui va diluer les gaz combustibles (Elvira-León et al., 2016).

Une autre alternative intéressante serait d'utiliser des matériaux inorganiques agissant comme barrière à la chaleur en phase condensée, par augmentation de la capacité thermique et en augmentant le temps avant le début de la pyrolyse du substrat. La protection apportée par des couches de silices agissant comme barrière thermique a déjà été prouvée sur les polymères (Hshieh, 1998; Kashiwagi et al., 2000; Mingzhu, Hailan, & Changtong, 2013). Branda et ses collaborateurs ont observé par analyse thermogravimétrique une réduction de la vitesse de perte de masse lorsque des tissus de fibres de chanvre étaient imprégnés de silicate de sodium (Branda et al., 2016). Ces travaux suggèrent que des matériaux biosourcés pourraient être traités avec des composés dérivés de silice, tels que les micro particules de silices pour améliorer leur comportement au feu. Une étude menée par Bourebrab et ses collaborateurs a déjà montré que ce type de traitement permet de réduire le comportement hydrophile des chènevottes. Il pourra être pertinent d'évaluer l'efficacité de ce type de traitement sur le comportement au feu des matériaux biosourcés (Bourebrab, Durand, & Taylor, 2017), ce qui pourrait permettre de combiner un double effet ignifugeant et hydrophobant.

Dang et ses collaborateurs ont étudié l'effet de l'incorporation de whisker d'oxysulfate de magnésium dans du polypropylène sur le comportement au feu. Les caractérisations au calorimètre à cône ont montré une importante réduction de la chaleur dégagée et de la production de fumée par rapport au PP sans additifs. L'efficacité de l'oxysulfate de magnésium est expliquée par une décomposition endothermique et une dilution de la phase gazeuse par évaporation d'eau. (Dang, Nai, Dong, & Li, 2017) L'excellent comportement au feu des composites bois – liant oxysulfate de magnésium est bien connu. En effet, les panneaux Heraklith® (Knauf Isolation, fibre de bois) ont un classement B, s1, d0 selon l'Euroclasse (Heraklith, 2019).

Ainsi il semble pertinent de comparer le comportement au feu de panneaux utilisant un liant organique couplé avec des additifs retardateurs de flamme et celui de panneaux liés avec un liant magnésien.

I.6 Conclusion du chapitre I

Ce chapitre a permis de présenter le contexte et les axes de recherches sur lesquels vont se focaliser les travaux de cette thèse. Les chapitres suivants permettent de distinguer les travaux portant sur :

- **La présentation des méthodes de caractérisation utilisées dans cette thèse ainsi que l'étude des différentes agro-ressources envisagées.** Ce chapitre permettra d'identifier la ressource qui semble présenter les meilleures propriétés pour le développement du matériau composite.
- **La formulation des liants.** Dans ce chapitre, deux types de liants seront étudiés : un liant biosourcé thermoscurcissable composé d'une matrice végétale et d'un réticulant ; un liant minéral d'oxysulfate de magnésium. Cette partie devra permettre de comparer et d'identifier les formulations des liants et des composites qui seront utilisés pour le développement du panneau composite.
- **La recherche d'un procédé de fabrication et la caractérisation des panneaux composites.** Nous avons vu quelques-uns des avantages et des inconvénients des procédés déjà utilisés pour la fabrication de panneaux rigides isolants biosourcés (bois et paille de blé). Différents procédés de mise en forme seront testés pour la fabrication du panneau rigide. Après identification du procédé le plus adapté, les propriétés des panneaux composites seront caractérisées afin d'identifier l'impact de la formulation du composite sur les propriétés mécaniques, thermiques et hydriques. Ce chapitre permettra par ailleurs de comparer les propriétés des matériaux composites réalisés avec un liant minéral ou un liant organique.
- **La transposition industrielle de production du panneau composite.** Ce chapitre présentera les différents essais industriels menés pour transposer le procédé de fabrication du panneau composite développé à l'échelle du laboratoire, sur une ligne industrielle de production.
- **La fonctionnalisation du composite en vue d'une amélioration de sa réaction au feu.** Les solutions innovantes identifiées dans la littérature seront expérimentées en substitution des retardateurs de flamme traditionnels pour tenter d'améliorer le comportement au feu du panneau composite développé dans cette thèse. La réaction au feu du composite organique ignifugé sera ensuite comparée avec celle des panneaux composites réalisés à partir d'un liant minéral d'oxysulfate de magnésium.

Chapitre II Méthodes et matières premières étudiées

L'objectif de ce chapitre est de présenter dans un premier temps les méthodes et les dispositifs expérimentaux utilisés pour caractériser les matières et les composites développés dans cette thèse. La suite du chapitre se focalisera sur la présentation et la caractérisation des matières premières exploitées dans cette étude. Dans le cadre du projet Européen ISOBIO, plusieurs agro-ressources ont été envisagées pour le développement de composites biosourcés. Ce travail collaboratif a conduit les laboratoires partenaires du projet à mettre en place différentes analyses permettant de caractériser les agro-ressources sélectionnées et ainsi constituer une base de données de leurs propriétés. Ces données sont utilisées pour identifier les agro-ressources idéales pour le développement des panneaux composites de cette thèse.

II.1 Méthodes de caractérisation

II.1.1 Caractérisation des granulats végétaux

II.1.1.1 Mesure de la distribution de la taille des granulats par analyse d'image

La mesure de la distribution de la taille des granulats par analyse d'image est réalisée en se basant sur une méthode décrite par Picandet *et al.* (Picandet, Tronet, & Baley, 2012). La méthode a cependant été simplifiée afin de réduire le temps de mesure à 2h par matière (1-2 jours par matière pour le protocole du comité technique de la RILEM 236-BBM).

- Echantillonnage : Le but de cette méthode est de réaliser un échantillonnage représentatif des lots à analyser permettant d'éviter les problèmes associés à la ségrégation des petites particules au fond et sur les parois du contenant. Cette méthode consiste à prélever une quantité importante de matière, environ 1 kg, et à la mélanger manuellement. Une petite quantité de 2 à 4g de cette matière homogénéisée est placée sur une surface plate. Le tas formé par les granulats est divisé en petit tas de manière à ce que toutes les particules d'un petit tas puissent être analysées en une seule étape.
- Numérisation : Les particules sont disposées sur la vitre du scanner de manière à ce qu'il n'y ait pas de contact entre les particules. Pour les particules plus fines, le nombre de numérisation a été augmenté pour ne pas surcharger la vitre du scanner. Lors de la numérisation un support noir est placé en arrière-plan pour que les particules soient plus facilement identifiables. Les numérisations ont été réalisées avec une résolution de 600 DPI au format JPEG ou TIFF.
- Analyse des numérisations : Cette étape a été conduite à l'aide du logiciel ImageJ. Les images sont converties en format 8bit. Les particules sont sélectionnées en appliquant un seuillage sur les niveaux de gris entre 60 et 80 (échelle comprise entre 1 et 255). Les fibres et les fines poussières sont retirées de l'image par un procédé d'érosion/dilatation comme illustré Figure II-1 et en appliquant un critère de convexité de 0.66. En utilisant l'outil « Fit Ellipse » du logiciel ImageJ, chaque particule est analysée et représentée sous la forme d'une ellipse dont les dimensions, le centre de gravité, l'orientation et l'aire se rapprochent le plus de la géométrie initiale de la particule. On récupère pour chaque particule détectée par le logiciel, l'aire de la particule, les valeurs des axes majeurs et mineurs de l'ellipse ajustée.

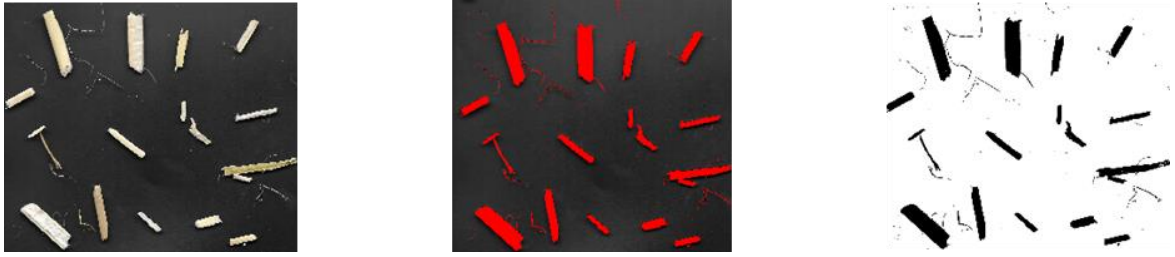


Figure II-1: Binarisation de l'image par seuillage des niveaux de gris

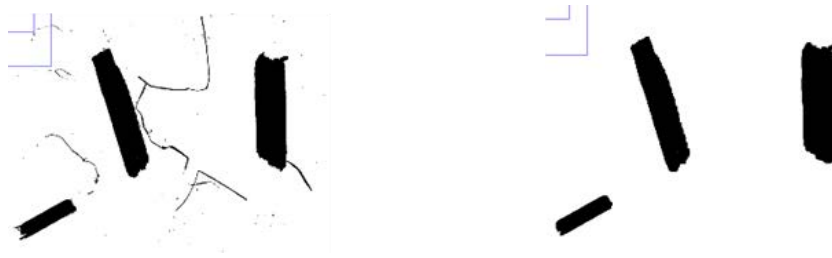


Figure II-2 : Modification des images par le procédé d'érosion/dilatation

- Calcul de la distribution : Plusieurs distributions peuvent être calculées à partir des dimensions des particules. Les calculs sont présentés dans la méthode décrite par Picandet *et al.* (Picandet *et al.*, 2012). Dans notre étude, nous avons choisi d'utiliser la distribution selon la masse des particules. Ne connaissant pas la masse de chaque particule analysée, cette méthode requière plusieurs hypothèses : la densité de la particule est supposée homogène et l'épaisseur de la particule e_i est supposée proportionnelle à la largeur de la particule l_i donc $\frac{e_i}{l_i} \cong cste$. On peut ainsi exprimer la distribution massique selon l'équation suivante :

$$P_M(X \leq x_n) = \frac{\sum_{i=1}^n l_i \cdot A_i}{\sum_{i=1}^N l_i \cdot A_i}$$

Avec

n : Le nombre de particules dont la longueur est inférieure ou égale à X .

x_n : La longueur de la $n^{i\text{ème}}$ particule (classée par taille croissante).

X : La longueur de particule considérée.

N : Le nombre total de particules.

l_i : La largeur de la particule correspondant à l'axe mineur de l'ellipse ajustée

A_i : L'aire de la particule déterminée par le logiciel

Les dimensions moyennes et les écarts types sont calculés en utilisant la moyenne géométrique pondérée d'une loi normale et l'écart type associé, exprimés par les formules suivantes :

$$X_{gm} = \exp\left(\frac{\sum M_i \ln(x_i)}{\sum M_i}\right)$$

$$\sigma_{gm} = \exp\left(\sqrt{\frac{\sum M_i (\ln(x_i) - \ln(X_{gm}))^2}{\sum M_i}}\right)$$

Des études comparatives entre les méthodes de mesure de la distribution massique de la taille des granulats par analyse d'image et par tamisage mécanique ont déjà démontré la concordance des résultats (Amziane & Collet, 2017; Viel et al., 2018). En effet, la distribution massique de la taille des granulats en fonction de $\sqrt{2}d$ (d correspondant à l'ouverture du tamis) déterminée par tamisage mécanique correspond à la distribution massique de la largeur des granulats déterminées par analyse d'image.

II.1.1.2 Mesure de la masse volumique apparente en vrac à l'état sec des granulats

Cette mesure est réalisée selon le protocole défini par le comité technique de la RILEM 236-BBM (Amziane et al., 2017). Les matières sont séchées à 60°C jusqu'à ce que la variation de masse soit inférieure à 0.1% sur trois jours consécutifs. Un cylindre transparent ayant un diamètre interne de 94 mm et une hauteur de 204 mm a été utilisé pour déterminer le volume occupé par les granulats. La transparence du cylindre permet d'identifier tout mauvais arrangement de la matière qui pourrait fausser la mesure (effet de voûte). Une masse de matière connue est placée dans le cylindre. La quantité de matière est ajustée de sorte que la hauteur de la matière dans le cylindre soit comprise entre 100 et 150 mm. Le cylindre est retourné 10 fois puis secoué de manière à former une surface plane à la surface de la matière. Un morceau de carton est placé au-dessus de la matière et le niveau est marqué. Le cylindre est ensuite vidé de la matière et rempli d'eau jusqu'au trait. La masse d'eau est déterminée par pesée ce qui permet ensuite de déterminer le volume occupé par la matière. Pour chaque matière, la mesure est réalisée trois fois.



Figure II-3 : Dispositif de mesure de la masse volumique apparente en vrac des granulats végétaux

II.1.1.3 Mesure de la conductivité thermique des granulats

La mesure par la méthode du fil chaud est réalisée à l'aide d'un CT mètre et d'une sonde fil. Le CT mètre est un boîtier de commande qui permet de définir les paramètres de la mesure et de récupérer les données sur un ordinateur. La sonde fil est composée d'un fil chaud et d'un thermocouple. Au regard de la taille des particules végétales, une sonde de 50 mm a été utilisée. Le principe de cette mesure transitoire est de créer un échauffement local au sein du matériau à l'aide du fil chaud dont on définit la puissance et le temps de chauffage. L'évolution de température au centre du matériau est enregistrée à l'aide du thermocouple de la sonde fil. L'élévation de température est corrélée à la conductivité thermique par la relation suivante (Carslaw & Jaeger, 1959):

$$\Delta T = \frac{q}{4\pi\lambda} (\ln(t) + cste)$$

Avec

ΔT : La différence de température entre la température à l'instant t et la température initiale [K].

q : le flux linéique imposé par la sonde fil [W/m].

λ : la conductivité thermique du matériau analysé [W/(m/K)].

t : le temps écoulé après le début de l'échauffement [s].

$cste$: Constante qui dépend de la diffusivité du matériau et de la résistance de contact.

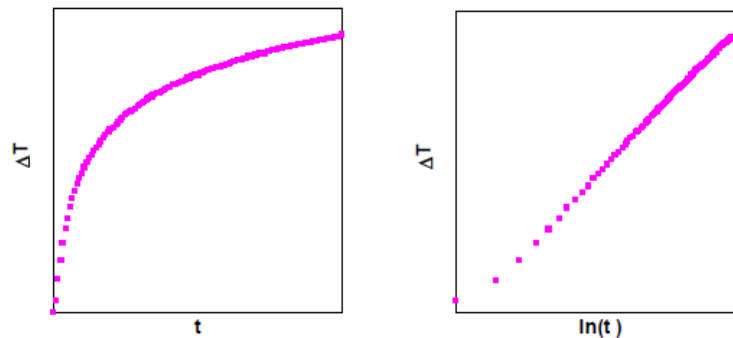


Figure II-4 : Exemple de thermogrammes obtenus en fonction du temps t et de $\ln(t)$ (Collet, 2004)

La valeur de la conductivité thermique, λ , peut être déterminée par une régression linéaire de la fonction sur la zone stabilisée. Le coefficient de corrélation permet d'estimer la validité du modèle aux résultats.

La puissance et le temps de chauffe doivent être définis de sorte à ce que l'échauffement soit compris en 10 et 15°C. Une fois la mesure lancée, l'acquisition ne débute qu'après stabilisation de la température. Lorsque l'acquisition est terminée, le CT mètre réalise automatiquement la régression et fournit la valeur de conductivité thermique et le coefficient de corrélation R^2 . La température initiale T_0 , l'élévation de température ΔT et les paramètres de l'essai (puissance et temps de chauffe) sont également relevés sur le CT mètre. Les données d'acquisition sont enregistrées pour conserver une trace de l'essai. Un béton cellulaire est utilisé comme étalon pour s'assurer de la validité de la mesure. La mesure est réalisée dans une armoire fermée, afin d'éviter toutes perturbations liées à un courant d'air et les essais sont conduits dans une salle stabilisée en température. Pour la mesure au point sec, les échantillons sont séchés en étuve à 60°C jusqu'à ce que la variation de masse soit inférieure à 0.1% sur trois jours consécutifs. Pour ces mesures au point sec, du gel de silice est placé dans l'armoire pour maintenir une ambiance sèche.

Pour la mesure de la conductivité sur des échantillons en vrac, deux cylindres transparents de diamètre interne 100mm sont utilisés. Les hauteurs des cylindres sont respectivement 76 et 79 mm. La masse de matière à disposer dans les cylindres est déterminée à partir des masses volumiques en vrac préalablement définies. La matière est introduite dans le cylindre inférieur, la sonde est placée à la surface de la matière du cylindre inférieur. Le deuxième cylindre est placé au-dessus du premier puis rempli. Pour chaque lot de matière à analyser, la mesure est répétée 5 fois et à chaque essai la matière est renouvelée. Dans notre cas, la puissance appliquée est de 0.142 W et le temps de chauffe varie entre 60 et 90 s selon les granulats utilisés.



Figure II-5 : Dispositif de mesure de la conductivité thermique en vrac par la méthode du fil chaud (Amziane et al., 2017)

II.1.2 Protocole de fabrication des éprouvettes

II.1.2.1 Nature des préparations

Les composites envisagés résultent du mélange de granulats végétaux avec un liant qui peut être une solution liquide de liants organiques thermodurcissables ou une suspension concentrée de liant minéral. Dans les deux cas, le liant est préparé en amont puis est mélangé avec le granulat végétal. Les détails de préparation des liants puis des mélanges composites sont présentés ci-dessous.

II.1.2.2 Préparation des liants organiques thermodurcissables

Les solutions de liants organiques thermodurcissables sont réalisées en ajustant les proportions massiques de matrice, de réticulant et d'eau de sorte à obtenir une solution concentrée à 29.4% en solide. La préparation se fait en diluant/solubilisant la matrice dans la solution contenant le réticulant. Le mélange est réalisé à température ambiante.

II.1.2.3 Préparation du liant minéral oxysulfate de magnésium

L'oxysulfate de magnésium est obtenu en faisant réagir une solution de sulfate de magnésium avec de l'oxyde de magnésium. La méthode de préparation de la solution de sulfate de magnésium dépend de la concentration de la solution utilisée. Pour la solution concentrée à 15% (15g de sulfate de magnésium heptahydraté et 85g d'eau), le sel est directement introduit dans l'eau à température ambiante. La solution est agitée jusqu'à dissolution complète des sels. Pour la solution concentrée à 50% de sulfate de magnésium et contenant du tripolyphosphate de sodium (STPP), la méthode se base sur la technique présentée par Prior (US3320077A, 1967). Le STPP est préalablement dissout dans l'eau avant

introduction du sulfate de magnésium. L'eau est chauffée pour faciliter la dissolution du STPP (T°C approximative de 50°C), puis les sels de sulfate de magnésium sont introduits. La solution est agitée et chauffée jusqu'à ce qu'elle devienne limpide et incolore. Après dissolution complète, la solution est laissée refroidir jusqu'à température ambiante avant utilisation.

Les liants magnésiens sont préparés en introduisant dans un premier temps la magnésie dans un récipient. Lorsqu'un liant organique est utilisé en combinaison, ce dernier est préalablement mélangé en solide avec la magnésie. La solution de sulfate de magnésium est ensuite ajoutée progressivement. La pâte formée est vigoureusement mélangée à l'aide d'un fouet malaxeur pendant plusieurs minutes.

II.1.2.4 Mélange liant/granulats et moulage des composites

Le liant est introduit et mélangé avec les granulats dans un mélangeur de laboratoire SAMA (capacité 20 l). Le mélange est maintenu pendant 3-4 min pour s'assurer que la dispersion du liant sur les particules végétales soit homogène (Figure II-6a.1 et a.2).

Les échantillons de dimensions 100 mm x 100 mm x 100 mm ou 100 mm x 100 mm x 50 mm sont fabriqués à l'aide d'un moule métallique composé de trois alvéoles de dimensions internes 100 mm x 100 mm x 175 mm (Figure II-6b1). La masse de particules encollées introduite dans chaque alvéole est contrôlée en pesant le moule pendant l'étape de remplissage. La matière dans le moule est ensuite comprimée à froid jusqu'à l'épaisseur finale désirée à l'aide d'une presse universelle INSTRON modèle 5588S de capacité 400 kN (Figure II-6c.1 et c.2). Après compression, le mat est maintenu comprimé à l'aide d'une grille métallique disposée sur la face supérieure du mat. Une fois les mats comprimés, le moule est placé dans une étuve pour appliquer un traitement thermique au composite. Les conditions de chauffe retenues après différents essais de calage sont de 1h30 à 180°C ou de 1h à 90°C selon que le liant utilisé est organique ou minéral respectivement. Les moules sont laissés refroidir à température ambiante pendant 45 min avant de démouler les échantillons. La Figure II-7 illustre les échantillons composites réalisés avec cette méthode de fabrication par moule.

Pour fabriquer des échantillons de plus grandes dimensions, un moule de dimensions internes 400 mm x 300 mm x 100 mm est utilisé. Après introduction de la matière encollée dans le moule, une plaque métallique est posée sur le mat. La matière est comprimée à l'épaisseur finale désirée en appliquant une pression sur la plaque supérieure à l'aide de la presse universelle INSTRON. Les mêmes conditions de chauffe sont utilisées que pour les échantillons 100 mm x 100 mm x 100 mm. Les étapes sont illustrées sur Figure II-8.



Figure II-6 : Etapes de fabrication des composites 100 mm x 100 mm x 100 mm par moulage



Figure II-7 : Echantillons composites 100 mm x 100 mm x 100 mm fabriqués par moulage



Figure II-8 : Etapes de fabrication des composites 300 mm x 400 mm x 50 mm par moulage

II.1.3 Caractérisation des propriétés physiques des composites

II.1.3.1 Masse volumique

La masse volumique des produits composites est identifiée sur les échantillons moulés ou sur des morceaux de plaques découpés à la scie à ruban. La masse volumique est calculée à partir de la mesure de la masse de l'échantillon (balance Sartorius, précision 0.01g) et de l'estimation du volume par mesure des dimensions de l'échantillon. Chaque dimension correspond à la moyenne de 4 mesures réalisées au pied à coulisse (Dexter, précision 0.01 mm).

La précision de la masse volumique est donc estimée à $\pm 10 \text{ kg/m}^3$.

II.1.3.2 Conductivité thermique

(a) Mesure de la conductivité thermique par la méthode du fil chaud

La mesure par la méthode du fil chaud est réalisée à l'aide du CT mètre et de la sonde fil de 50 mm présentés antérieurement. Les mesures sont réalisées sur des surfaces coffrées des échantillons.

La mesure sur les composites est réalisée, pour chaque formulation, sur trois échantillons de dimensions 100 mm x 100 mm x 100 mm ou six échantillons 100 mm x 100 mm x 50 mm dans le cas où l'épaisseur est inférieure à 100 mm. La sonde est placée entre deux échantillons ou quatre échantillons selon leur épaisseur tel qu'illustré sur la Figure II-9. Une masse est placée au-dessus des échantillons pour assurer un bon contact entre la sonde et les échantillons. Pour chaque formulation, neuf mesures sont réalisées afin de déterminer la conductivité thermique moyenne.

La mesure est réalisée dans une armoire fermée, afin d'éviter toutes perturbations liées à un courant d'air et les essais sont conduits dans une salle stabilisée en température. Pour la mesure au point sec, les échantillons sont séchés en étuve à 60°C jusqu'à ce que la variation de masse soit inférieure à 0.1% sur trois jours consécutifs. Pour ces mesures au point sec, du gel de silice est placé dans l'armoire pour maintenir une ambiance sèche.

Pour les mesures sur les composites la puissance appliquée varie entre 0.147 et 0.212 W et le temps de chauffe varie entre 90 et 120 s.

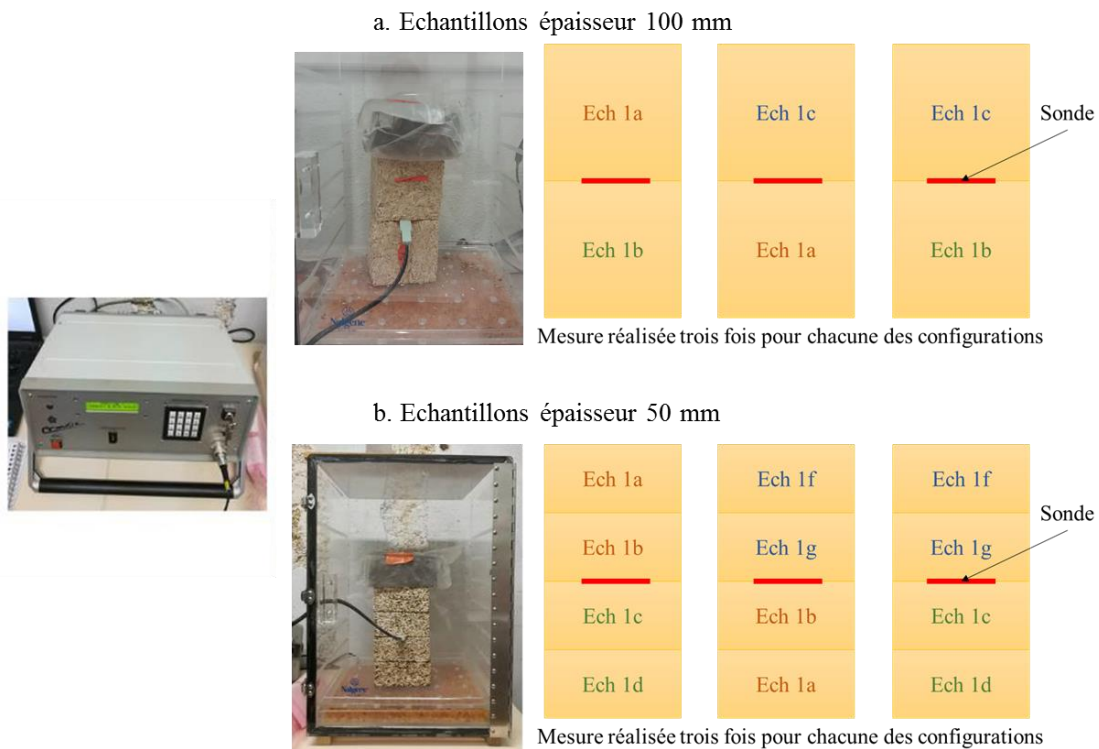


Figure II-9 : Dispositif expérimental pour la mesure de la conductivité thermique par la méthode du fil chaud (a. échantillons de 100 mm d'épaisseur, b. échantillons de 50 mm d'épaisseur)

(b) Mesure de la conductivité thermique par la méthode fluxmétrique

Les mesures par la méthode fluxmétrique sont réalisées sur des échantillons de dimensions 600 mm x 600 mm x e mm. Les échantillons sont séchés pendant 7 jours à 70°C selon le protocole du cahier technique 1 de l'ACERMI (CSTB & LNE, 2018) qui se base sur la norme NF EN 12667. (AFNOR, 2001). Les essais ont été réalisés au laboratoire de Cavac Biomatériaux à l'aide d'un fluxmètre thermique FOX 600, Lasercomp. La méthode se base sur une mesure statique en régime permanent. Elle consiste à exposer l'échantillon à un gradient de température. Une fois stabilisé, le flux de chaleur nécessaire pour maintenir cet écart de température constant est enregistré. L'échantillon est inséré entre deux plaques : la température de la plaque chaude située au-dessus de l'échantillon est fixée à 19°C et celle de la plaque froide située en dessous de l'échantillon est fixée à 1°C. Pour que la mesure soit valable, la norme impose que l'écart de température entre les deux plaques soit compris entre 10 et 50°C. La valeur de conductivité thermique est déterminée au moyen de l'équation suivante :

$$\lambda = \frac{Q}{A} \frac{e}{\Delta T}$$

Avec

Q/A : La densité de flux thermique (W/m^2)

e : L'épaisseur de l'échantillon (m)

ΔT : La différence de température entre les deux plaques (K)

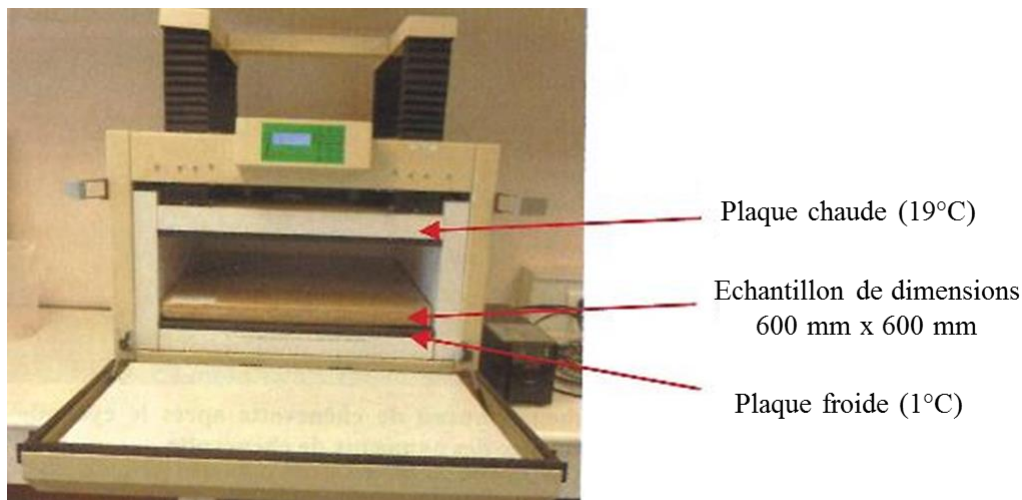


Figure II-10 : Dispositif expérimental pour la mesure de la conductivité thermique par la méthode fluxmétrique

II.1.3.3 Mesure de la valeur tampon hydrique

Cette mesure est réalisée selon le protocole défini par le NORDEST project (Rode et al., 2005). La mesure est réalisée à l'aide d'une enceinte climatique Vötsch VC4060. Les échantillons sont préalablement séchés jusqu'à stabilisation de leur masse à 60°C. Avant de débiter les cycles d'humidification séchage, les échantillons sont conditionnés à 23°C et 50 %HR jusqu'à stabilisation de leur masse. Les échantillons sont ensuite soumis à des cycles d'humidification pendant 8h à 23°C et 75 %HR et de séchage pendant 16h à 23°C et 33 %HR. Les masses des échantillons sont relevées toutes les 95 min. Les ambiances dans l'enceinte climatique sont contrôlées par des sondes Sensirion SHT 75 préalablement étalonnées. Les vitesses d'air telles que définies par le protocole ont été contrôlées à proximité des échantillons. La mesure est réalisée au minimum sur cinq jours consécutifs et la valeur retenue doit présenter une variation inférieure à 5% sur trois jours consécutifs.

$$MBV = \frac{\Delta m}{A \times (HR_{Haute} - HR_{Basse})}$$

Avec

MBV : la valeur tampon hydrique exprimée en $g/(m^2 \cdot \%HR)$.

Δm : la variation de masse associée à la reprise ou la perte d'eau entre les conditions humides et sèches exprimée en g.

A : la surface d'échange exprimée en m^2 .

HR_{Haute} et HR_{Basse} : les humidités relatives haute et basse respectivement au cours du cycle exprimées en %.

Le calcul du MBV se fait sur les trois derniers cycles où sont déterminées les valeurs moyennes de la capacité de tampon hydrique en absorption MBV_{abs} et de celle en désorption MBV_{des} , associées respectivement aux variations de masses en absorption Δm_{abs} entre 33 et 75 %HR et en désorption Δm_{des} entre 75 et 33 %HR. Pour les calculs, les valeurs mesurées de l'hygrométrie, moyennées sur chaque palier, sont exploitées.



Figure II-11 : Dispositif expérimental pour la mesure de la valeur tampon hydrique.

(a. enceinte climatique Vötsch VC4060; b. échantillons pour la mesure des MBV sur les matières en vrac; c. échantillons pour la mesure des MBV sur les composites)

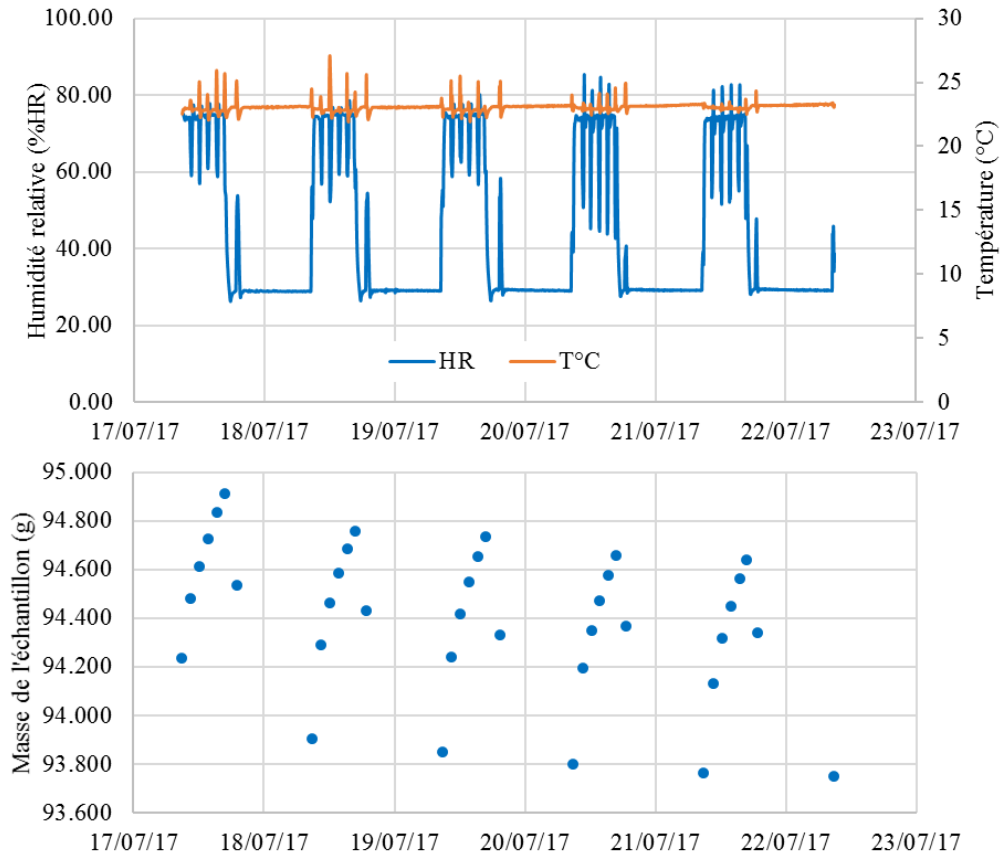


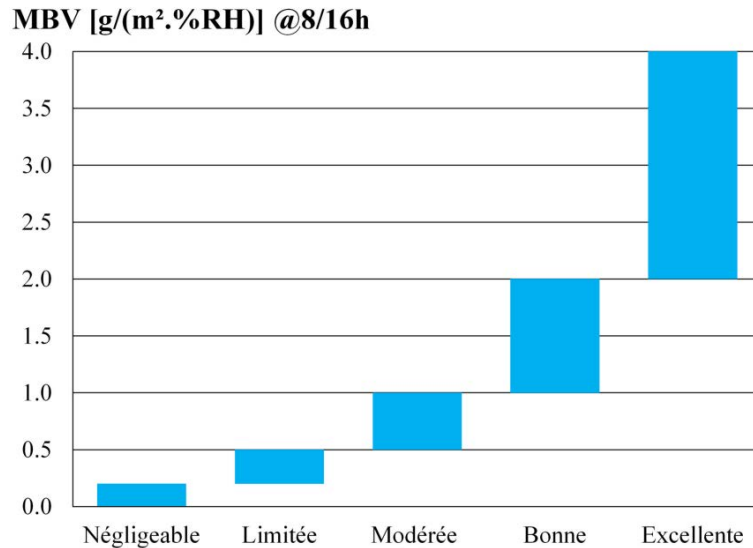
Figure II-12 : Exemple du suivi de la masse d'un échantillon pendant l'essai (8h à 23°C, 75% HR et 16h à 23%, 33 %HR)

Pour la mesure de la valeur tampon hydrique en vrac, les échantillons sont préparés dans des contenants en plastique. Le niveau de la matière en vrac dans le contenant est marqué pour qu'après l'essai, il soit possible de déterminer la masse volumique apparente de l'échantillon caractérisé. La surface d'échange des échantillons est mesurée. L'essai est conduit en triplicata pour chaque matière analysée.

Pour la mesure sur des échantillons composites, les faces des échantillons sont étanchées à l'aide d'un ruban adhésif en aluminium de sorte à ne laisser qu'une seule surface d'échange (Figure II-13). Les dimensions des composites ainsi que la surface d'échange sont mesurées avant le début de l'essai.



Figure II-13 : Echantillons étanchés pour la mesure de la valeur tampon hydrique (MBV)



**Figure II-14 : Classification de la capacité de régulation de l'air ambiant d'un matériau en fonction de sa valeur tampon hydrique (MBV) selon le Nordtest Project (Rode et al., 2005)
Source de l'image : (Mazhoud, 2017)**

En fonction de la valeur tampon hydrique mesurée, le Nordtest project classe la capacité de régulation de l'air ambiant d'un matériau ou d'un complexe de matériaux, de « négligeable » à « excellente » (Rode et al., 2005). Les critères sont présentés sur la Figure II-14.

II.1.4 Caractérisation des propriétés mécaniques

II.1.4.1 Essai de compression

Les essais de compression sont menés à l'aide d'une machine universelle INSTRON (modèle 5588S de capacité 400 kN, Précision des capteurs : $\pm 1\mu\text{m}$ et $\pm 1\text{N}$) à une vitesse de déplacement constante de 5 mm/min et l'essai est arrêté lorsque le déplacement atteint approximativement 30% de déformation. L'acquisition des données se fait à l'aide du logiciel Bluehill. La norme EN 826 spécifie de mesurer la résistance en compression des matériaux isolants à 10% de déformation ($\sigma_{c,10}$) (AFNOR, 2013b). Or, dans notre cas, nous avons également déterminé la contrainte $\sigma_{c,max}$ identifiée comme étant le point de changement de la pente au-delà duquel la déformation réversible essentiellement élastique devient une déformation élasto-plastique. Les contraintes $\sigma_{c,max}$ et $\sigma_{c,10}$ seront identifiées comme la résistance en compression du composite et la résistance en compression à 10 % de déformation. Le module d'élasticité en compression est évalué par régression de la courbe contrainte-déformation dans la zone élastique.

Les échantillons ont été stabilisés au moins deux semaines en chambre climatique à 23°C et 50 %HR avant d'être caractérisés. Les essais sont menés sur des échantillons de dimensions 100 mm x 100 mm x 100 mm ou 50 mm x 50 mm x 50 mm.

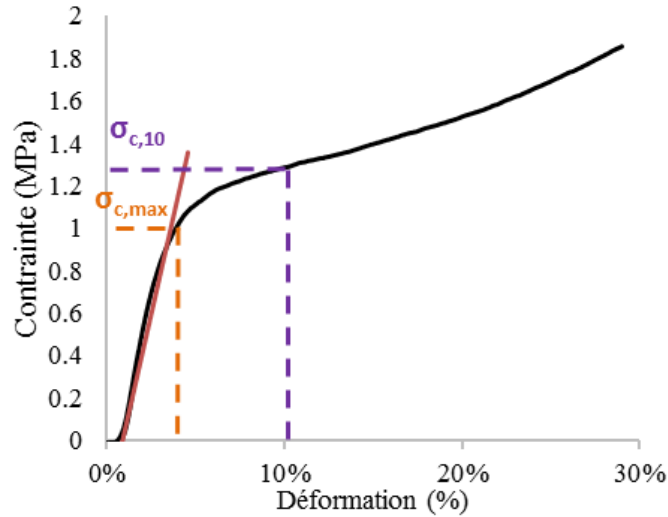


Figure II-15 : Analyse des courbes contrainte-déformation

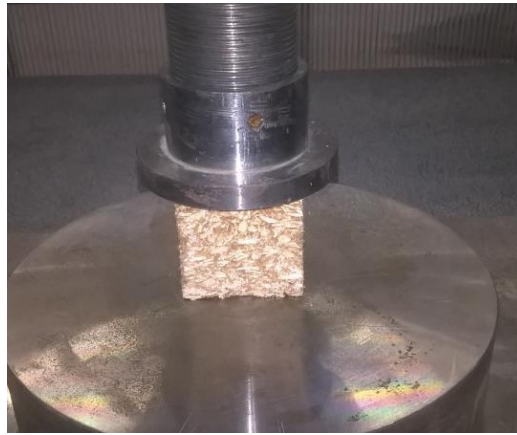


Figure II-16 : Essai de compression

II.1.4.2 Essai de flexion

La résistance en flexion et le module d'élasticité en flexion sont évalués selon le test standardisé de flexion trois points (NF EN 12089) à l'aide d'une machine universelle INSTRON (modèle 5588S de capacité 400 kN, Précision des capteurs : $\pm 1\mu\text{m}$ et $\pm 1\text{N}$). (AFNOR, 2013d). La distance entre les deux points de support inférieur est fixée à 225 mm, ce qui correspond à 4.5 fois l'épaisseur du composite. La vitesse de déplacement du point de chargement est fixée à 10 mm/min. Les mesures sont réalisées sur les échantillons de dimensions 260 mm x 120 mm x 50 mm. Les échantillons ont été stabilisés au moins deux semaines en chambre climatique à 23°C et 50 %HR avant d'être caractérisés.



Figure II-17 : Essai de flexion

L'analyse des courbes force en fonction de la flèche se base sur la théorie de la résistance des matériaux. Pour un matériau élastique dont le comportement est symétrique en traction et en compression, la contrainte normale en flexion σ s'exprime, pour une position de fibre quelconque :

$$\sigma = \frac{M \cdot v}{I}$$

M : le moment de flexion (N.m)

v : la distance à l'axe neutre.

I : le moment d'inertie par rapport à l'axe neutre

Pour une poutre symétrique d'épaisseur h , la fibre la plus sollicitée est caractérisée par v :

$$v = \frac{h}{2}$$

h : la hauteur de l'éprouvette (m)

En flexion 3 points, à la section centrale, le moment fléchissant s'exprime :

$$M = \frac{F \cdot L}{4}$$

F : effort ponctuel induit par l'indenteur central

L : portée de l'éprouvette (m)

Pour une section rectangulaire, le moment d'inertie I s'exprime :

$$I = \frac{b \cdot h^3}{12}$$

b : la largeur de l'éprouvette (m)

Pour un effort F_{max} obtenu à la rupture, la contrainte à la rupture en traction par flexion identifiée comme la résistance en flexion, s'exprime donc

$$\sigma_f = \frac{3}{2} \cdot \frac{F_{max} \cdot L}{b \cdot h^3}$$

Le module élastique en flexion E_f s'exprime :

$$E_f = \frac{1}{4b} \left(\frac{L}{h} \right)^3 \cdot K$$

$$K = \frac{\Delta F}{\Delta f}$$

K : Le coefficient de rigidité en flexion (N/mm)

F : la force appliquée (N)

f : la flèche (m)

F_{max} : la force appliquée à la rupture de l'éprouvette (N)

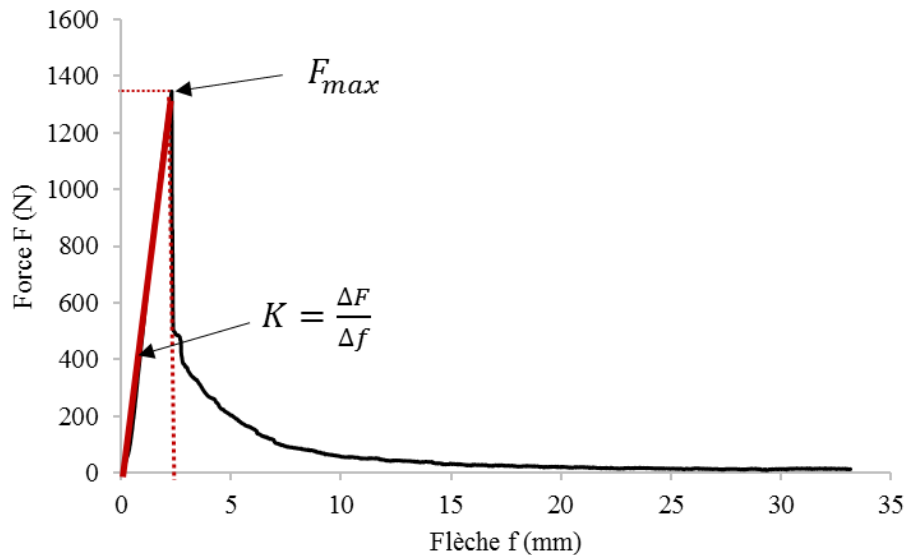


Figure II-18 : Exemple d'analyse des courbes force-flèche d'un composite à base de chènevotte

L'aire sous la courbe présentée sur la Figure II-18 est caractéristique de l'énergie requise pour rompre la surface d'aire $b \cdot h$. Cette grandeur caractéristique n'a pas été exploitée car la rupture totale de l'éprouvette n'a pas été systématiquement obtenue avant le contact de la zone centrale de l'éprouvette avec le plateau inférieur de la presse.

II.1.5 Caractérisation de l'absorption d'eau des composites

L'absorption d'eau des composites est évaluée selon la norme NF EN 1609 pour matériau isolant : Absorption d'eau à court terme par immersion partielle (AFNOR, 2013c). L'essai consiste à mesurer la quantité d'eau absorbée par un produit isolant lorsqu'il est immergé dans 10 mm d'eau pendant 24h.



Figure II-19 : Dispositif expérimental pour la détermination de l'absorption d'eau à court terme par immersion partielle

Les dimensions des échantillons analysés sont 200 mm x 90 mm x e mm. Pour chaque formulation, la mesure est répétée sur trois échantillons dont la masse volumique apparente et la masse avant immersion sont déterminées avant l'essai. Cette méthode utilise un bac en acier comprenant un dispositif d'alimentation continu d'eau. Le niveau d'eau est maintenu constant grâce à un apport d'eau tout au long de l'essai et à une évacuation placée à 10 mm du fond du bac. Une masse est placée au-dessus des échantillons afin d'éviter qu'ils ne flottent. La masse des échantillons après 24h d'immersion est relevée. La valeur d'absorption d'eau à court terme, notée WS et exprimée en kg/m², est déterminée par l'équation suivante :

$$WS = \frac{(Wf - Wi)}{A}$$

Avec WS la valeur d'absorption d'eau à court terme (kg/m²)

Wi et Wf, la masse initiale et finale de l'échantillon respectivement (kg)

A, l'aire de la face exposée de l'échantillon (m²)

Les produits d'isolation sont classés WS1, WS2 et WS3 lorsque la valeur WS est inférieure à 1, 2 et 3 kg/m² respectivement. Parmi les matériaux isolants biosourcés, on peut citer certains isolants rigides en fibres de bois (Steico Universal, Steico ou ISOLAIR, Pavatex etc.) qui ont la classification WS1.

II.1.6 Caractérisation de la réaction au feu des composites

II.1.6.1 Analyse de la décomposition thermique par ATG/ATD

Les analyses sont réalisées sur une ATD-TG, « Pyris-Diamond », Perkin-Elmer. Les échantillons sont chauffés de 25°C à 900°C à une vitesse de 10°C/min sous diazote. L'analyse thermodifférentielle (TDA) évalue la différence de température entre l'échantillon et une référence en platine exposée aux mêmes conditions de chauffe. La différence de température permet de mettre en évidence les réactions endothermiques et exothermiques liées à la composition chimique de l'échantillon.

Pour ces analyses, les matières végétales sont préalablement micronisées à l'aide d'un broyeur à couteaux de laboratoire (Retsch ZM 200) et calibrées à l'aide d'une grille dont les orifices ont un diamètre de 0.5 mm.

II.1.6.2 Essai à la petite flamme

L'essai à la petite flamme est mené suivant la norme NF EN 11925-2 (AFNOR, 2013a), permettant de certifier la conformité d'un produit à l'Euroclasse E. Les échantillons de dimensions 250 mm x 90 mm x e mm sont disposés dans une chambre d'essai ventilée de manière à ce que la flamme impacte à 50 mm du bas de l'échantillon comme illustré Figure II-20. La flamme calibrée à 20 mm est inclinée à 45°. Pour obtenir l'Euroclasse E, la norme spécifie que la propagation de la flamme ne doit pas dépasser 150 mm pendant les 20 s qui suivent le début de l'exposition. Pour cet essai, la flamme est appliquée sur l'échantillon pendant 15 s. Pour avoir accès à l'Euroclasse D, la flamme est appliquée pendant 30 s sur l'échantillon et elle ne doit pas dépasser 150 mm pendant les 60s qui suivent le début de l'exposition. Ces deux essais sont menés sur les deux faces de chaque échantillon bien que cela ne soit pas précisé dans la norme. Tous les essais sont filmés. Après chaque exposition, la longueur carbonisée (char length) est mesurée. La norme ne requière pas cette dernière mesure; cependant, cela donne une bonne appréciation de l'efficacité de différents traitements retardateurs de flamme et permet de les comparer. Trois échantillons sont testés par formulation.



Figure II-20 : Dispositif expérimental pour l'essai à la petite flamme

II.1.6.3 Calorimètre à cône

L'essai au calorimètre à cône permet de quantifier l'inflammabilité d'un matériau. Ces essais ont été menés à l'Université d'Edinbourg sur un appareil Mettler-Toledo, équipé d'un analyseur de gaz, suivant la procédure décrite dans les normes (ASTM International, 2017; International Organization for Standardization, 2015). La plupart des matériaux isolants organiques, tels que les mousses isocyanurates, ont généralement des valeurs de flux de chaleur critique (« critical heat flux », flux requis pour ignition spontanée) comprises entre 12 kW/m^2 et 15 kW/m^2 (Hidalgo-Medina, 2015), alors que le béton de chanvre exposé à un flux de 10 kW/m^2 peut présenter un début de dégagement de fumée (McLaggan, 2016). Le flux de chaleur est sélectionné de sorte à ce qu'il soit supérieur au flux d'ignition du béton de chanvre et similaire à celui utilisé pour caractériser les produits isolants organiques synthétiques. Ainsi, les échantillons de dimensions $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm} \times e$ ($e < 50 \text{ mm}$) sont exposés à un flux radiant de chaleur de 15 kW/m^2 généré par le cône radiant pendant 40 min. Pendant l'exposition au flux, les gaz inflammables dégagés par l'échantillon sont enflammés à l'aide d'une étincelle de 10000 V. La perte de masse de l'échantillon est enregistrée et les concentrations des gaz de combustion sont contrôlées à l'aide d'un analyseur de gaz situé dans le conduit d'échappement. La vitesse de perte de masse (« Mass Loss Rate », MLR) est déterminée à l'aide du suivi massique au cours de l'essai et le taux de chaleur dégagée (« Heat Released Rate », HRR) est calculé à partir de la concentration en O_2 , selon le modèle de Janssens (méthode de la consommation d'oxygène) (Janssens, 1991).



Figure II-21: Chambre de combustion du calorimètre à cône

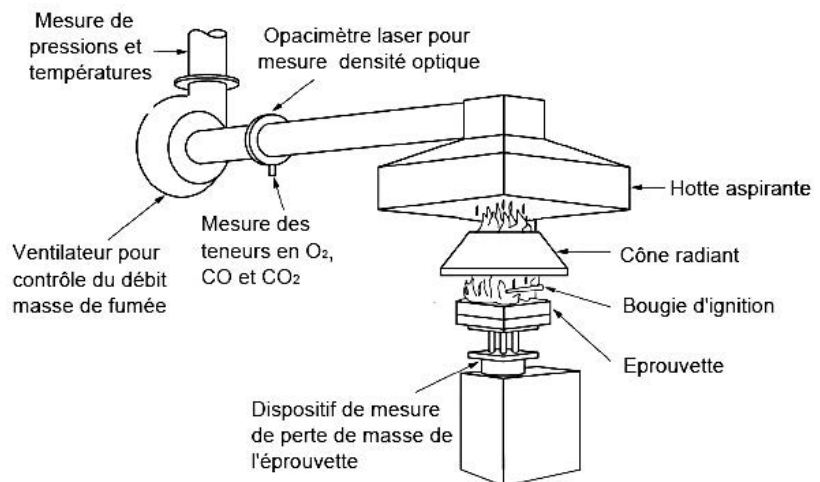


Figure II-22 : Dispositif d'essais au calorimètre à cône. (Guillaume, Marguis, Saragoza, & Yardin, 2013)

II.1.6.4 Caractérisation à l'épiradiateur

Les échantillons ont été caractérisés à l'aide du test à l'épiradiateur au CREPIM (France), selon la norme NF P 92 501. Cet essai normé fait partie de la norme NF P 92 507 qui classe la réaction au feu des matériaux de M0 « incombustible » à M4 « facilement inflammable ». Bien que la classification M tende à être remplacée par l'Euroclasse, le test à l'épiradiateur reste une méthode simple qui permet de caractériser et de comparer l'inflammabilité et la capacité d'auto-extinction de différents produits, car les échantillons sont de faibles dimensions 400 mm x 300 mm x e. A titre de comparaison, l'essai SBI « Single Burning Item » nécessaire à l'obtention des Euroclasses D à B, requiert deux échantillons de dimension 495 mm x 1500 mm x e et 1000 x 1500 x e mm respectivement pour tester une seule formulation (sans essai de répétabilité).

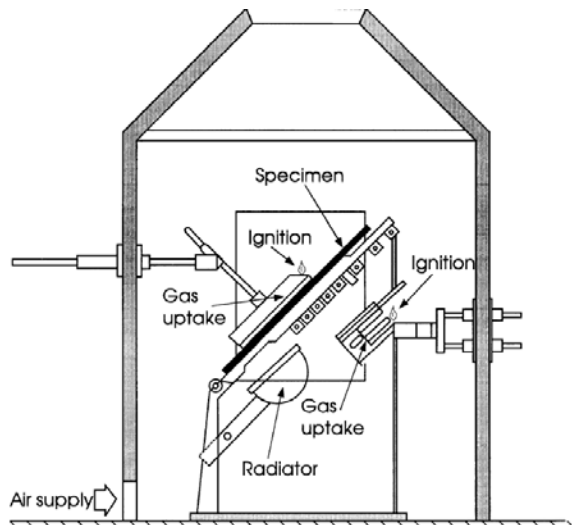


Figure II-23: Dispositif d'essai de test à l'épiradiateur (J. Troitzsch, 1990)



Figure II-24: Illustration de la caractérisation d'un échantillon composite de chènevotte à l'aide du test à l'épiradiateur

Bien que non officielles, il existe des correspondances indicatives entre les classes « M » et les Euroclasses. Ces correspondances sont présentées dans le Tableau II-2.

L'essai à l'épiradiateur consiste à exposer un matériau à un flux radiant de chaleur produit par un épiradiateur dans le but d'évaluer l'inflammabilité et la capacité d'auto-extinction du matériau. Durant la première exposition, le temps d'ignition, noté It , est enregistré. La hauteur totale des flammes générées, notée H , et le temps de persistance de la flamme T durant l'essai sont enregistrés. Pour chaque échantillon, un indice de classe q est calculé à l'aide de la formule suivante :

$$q = (100 \times H) / (It \times \sqrt{T})$$

Les classes de M1 à M4 sont définies à partir des valeurs de l'indice q . Les correspondances sont présentées dans le tableau ci-dessous.

Tableau II-1: Critères de classification de la réaction au feu (classe M) (AFNOR, 2004)

Normes	Exigences	Classement	Description
		M0	Non combustible
NF P 92 501	$\bar{q} < 2.5$	M1	Combustible, ininflammable
	$\bar{q} < 15$	M2	Combustible, faiblement inflammable
	$\bar{q} < 50$	M3	Combustible, modérément inflammable
NF P 92 504	Matériaux qui ne répondent pas aux exigences précédentes. V_p la vitesse de propagation de la flamme doit être inférieure à 2 mm/s	M4	Combustible, facilement inflammable

Tableau II-2 : Tableau des correspondances indicatives entre le classement M et l'Euroclasse. (Protectflame, 2019)

Essais	Euroclasse selon NF EN 13501-1			Exigences
Incombustibilité (NF EN ISO 1182) PCS (NF EN 716)	A1			Non combustible
Incombustibilité (NF EN ISO 1182) PCS (NF EN 716) SBI (NF EN 13823)	A2	s1	d0	M0
		s1	d1	M1
		s2	d0	
		s3	d1	
SBI (NF EN 13823) Petite flamme (NF EN 11925-2)	B	s1		M2
		s2	d0	
		s3	d1	
SBI (NF EN 13823) Petite flamme (NF EN 11925-2)	C	s1		M3
		s2	d0	
		s3	d1	
SBI (NF EN 13823) Petite flamme (NF EN 11925-2)	D	s1	d0	M4 (sans gouttelette)
		s2	d1	
		s3		
Petite flamme (NF EN 11925-2)	E sauf Ed2			M4
-	F			

II.2 Matières premières étudiées

II.2.1 Agro-ressources

II.2.1.1 Origines et procédé de production des agro ressources

Les agro-ressources envisagées pour le développement de différents types de matériaux dans le cadre du projet ISOBIO sont : l'anas de lin, la chènevotte de chanvre, les broyats de paille de colza, de blé, les broyats de rafle de maïs, les fines de chanvre et de lin. Ces matières ont fait l'objet de différentes caractérisations réalisées dans le cadre d'une collaboration entre les laboratoires partenaires (Cavac Biomatériaux, France, Université de Rennes, France et Université de Bath, UK).

Les matières ont été transformées sur la ligne de défibrage de Cavac Biomatériaux. Le procédé, conçu pour séparer les différents constituants de la tige de chanvre et de lin, consiste à broyer les pailles à l'aide de broyeurs à marteaux, séparer les fibres des granulats et calibrer ces derniers au moyen de grilles de différents diamètres compris entre 2-3 mm et 16 mm. Les pailles de colza et de blé ont été transformées sur le même outil. Quatre diamètres de grilles ont été utilisés pour calibrer les matières premières : 7, 8, 12 et 14 mm. Les produits ainsi obtenus sont notés G7, G8, G12 et G14. Les broyats de rafles de maïs ont été fournis par une autre usine de la coopérative agricole Cavac. Dans cette étude, les poussières générées par le procédé de transformation, appelées « fines », seront envisagées comme ressource potentielle pour le développement de nouveaux matériaux. Pour certains essais, deux grades commerciaux de chènevotte (Biofibat et Isofin G2 G3, Cavac Biomatériaux) sont utilisés.



Figure II-25 : Broyats de paille de colza calibrés avec les grilles G7 à gauche et G14 à droite



Figure II-26 : Chènevotte calibrée avec les grilles G7 à gauche et G14 à droite



Figure II-27 : Anas de lin calibré avec les grilles G7 à gauche et G14 à droite



Figure II-28 : Broyats de paille de blé calibrés avec les grilles G7 à gauche et G14 à droite



Figure II-29 : Fines de chanvre (à gauche) et fines de lin (à droite)



Figure II-30 : Broyats de rafles de maïs

II.2.1.2 Caractéristiques des agro-ressources

(a) Comparaison de la géométrie des différentes agro-ressources

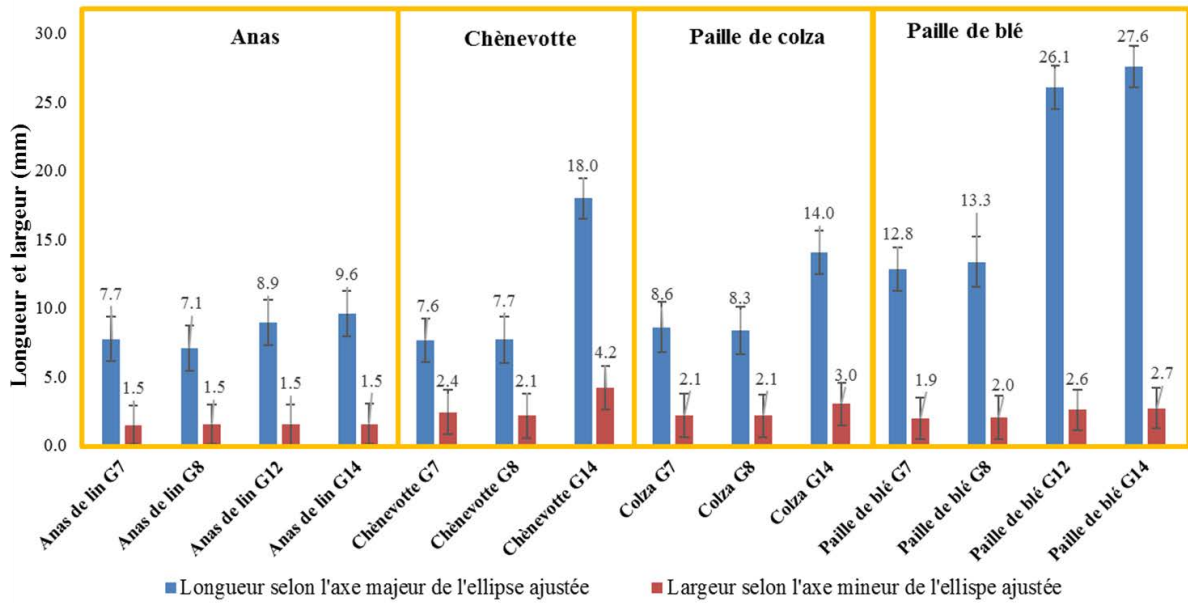


Figure II-31 : Longueurs et largeurs moyennes des agro-ressources obtenues par analyse d'image (valeurs en mm)

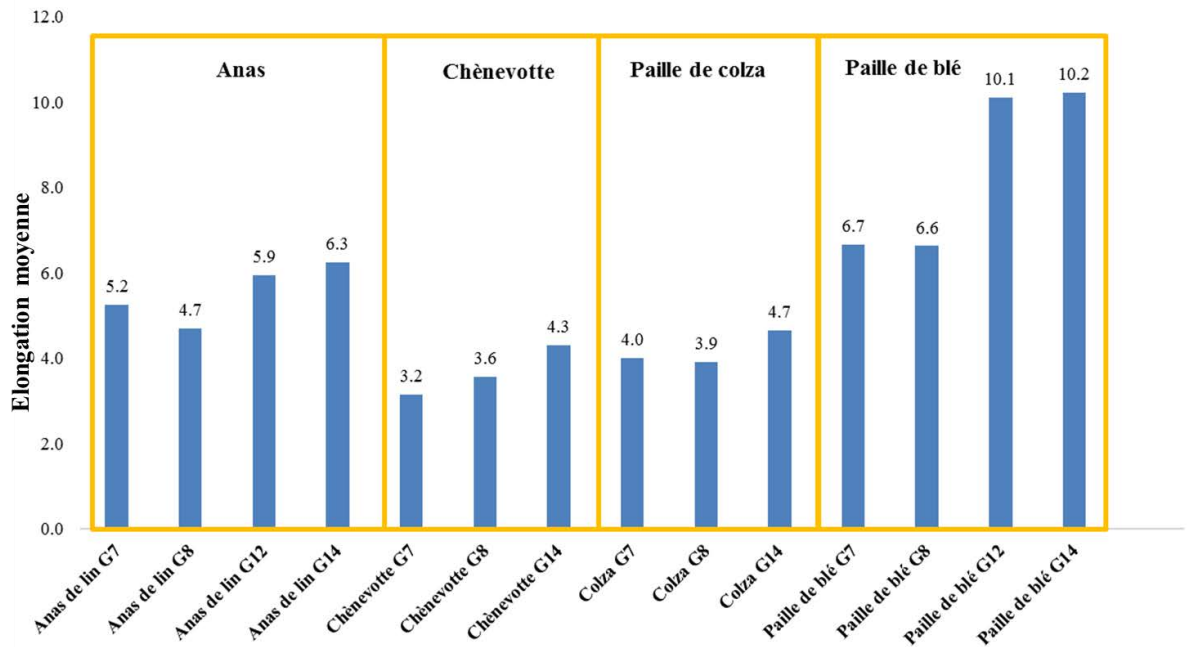


Figure II-32 : Elongations moyennes des agro-ressources (Longueur moy/largeur moy)

La Figure II-31 représente les longueurs et les largeurs moyennes des différentes agro-ressources déterminées par analyse d'image.

La longueur des anas de lin issus des différents diamètres de grilles ne varie pas de manière importante. En effet, les longueurs des granulats calibrés avec les grilles de 7 et 14 mm de diamètre sont 7.72 et 9.58 mm respectivement. Il en est de même pour la largeur des anas de lin qui varie de 1.47 à 1.53 pour des grilles de diamètre 7 et 14 mm respectivement. Les élongations des anas de lin sont plus importantes que celles des chènevottes et des broyats de paille de colza, mais plus faibles que celles des broyats de paille de blé.

La longueur des chènevottes dépend fortement de la calibration. Les particules calibrées à l'aide de la grille de 14 mm présentent une longueur de 18 mm et une largeur de 4.2 mm tandis que les particules calibrées avec la grille de 7 mm ont une longueur et une largeur de 7.6 et 2.4 mm respectivement. La différence de taille entre les chènevottes et les anas peut être facilement expliquée par la morphologie des pailles illustrées sur la Figure II-33. La paille de lin est plus fine que la paille de chanvre, ce qui explique pourquoi les particules sont plus fines et allongées.

La géométrie des particules de chènevotte et des broyats de paille de colza sont assez similaires. Les longueurs moyennes sont comprises entre 7.6 et 18 mm pour la chènevotte et 8.6 et 14.4 mm pour les broyats de paille de colza. Les broyats de paille de colza sont légèrement plus allongés que les granulats de chènevotte. L'élongation moyenne des broyats de paille de colza est comprise entre 3.9 et 4.7 mm tandis que la chènevotte présente une élongation comprise en 3.2 et 4.3 mm.

Les broyats de paille de blé sont plus allongés que les autres granulats végétaux. Cette différence peut être expliquée par le fait que la tige de paille de blé est moins cassante et plus flexible que les autres pailles. Ainsi, lors de l'étape de broyage, il est plus complexe de la fragmenter en petit granulats.

Bien que les granulats soient issus du même procédé de transformation et calibrés avec le même diamètre de grille, cette première étude montre une variation importante de la géométrie des granulats selon leur origine.



Figure II-33 : Paille de lin (à gauche) et paille de chanvre (à droite)

Les distributions massiques de la taille des granulats des rafles de maïs, des fines de lin et de chanvre ont été caractérisées par Viel et ses collaborateurs par tamisage mécanique. (Viel et al., 2018).

(b) Masse volumique apparente et conductivité thermique

Tableau II-3 : Masses volumiques apparentes et conductivités thermiques des différentes agro-ressources (23°C, 0%HR)

Agro-ressources		Masse volumique apparente à 23°C et 0%HR (kg/m ³)		Conductivité thermique à l'état sec (W/(m.K))	
		Moy	Ecart type	Moy	Ecart type
Chènevotte	G7	104.01	0.05	0.0543	0.0008
	G8	87.89	0.62	0.053	0.0011
	G14	97.36	0.44	0.0532	0.0008
Anas de lin	G7	111.23	0.04	0.054	0.0013
	G8	129.91	3.05	0.0577	0.0013
	G12	93.69	1.48	0.0534	0.0022
	G14	90.72	0.06	0.0531	0.0006
Broyat de paille de colza	G7	88.26	0.3	0.0499	0.0006
	G8	78.71	2.13	0.0497	0.0006
	G14	73.26	0.11	0.0499	0.0014
Broyat de paille de blé	G7	53.92	0.36	0.0457	0.0009
	G8	49.7	2.35	0.0457	0.0003
	G12	29.69	1.2	0.0446	0.0005
	G14	31.23	0.07	0.0451	0.0002
Broyat de rafle de maïs		392.44	2.38	0.0926	0.0017
Fines de chanvre		133.21	4.24	0.0543	0.001
Fines de lin		140.3	3.26	0.0575	0.0011

Toutes les agro-ressources analysées présentent une masse volumique apparente en vrac à l'état sec comprise en 29 kg/m³ et 140 kg/m³ à l'exception des broyats de rafles de maïs dont la masse volumique apparente est plus élevée (392 kg/m³). Les conductivités thermiques au point sec évoluent pratiquement de manière linéaire avec les masses volumiques apparentes en vrac semblant ainsi s'affranchir de la nature végétale. On retrouve ces résultats présentés dans le chapitre I.

L'analyse de la taille des granulats a montré que les dimensions des particules de chènevotte et des broyats de paille de colza issus des grilles G7 et G8 sont assez similaires. Cependant, les masses volumiques apparentes des broyats de colza G7 et G8, de 88 et 78 kg/m³ respectivement sont plus faibles que celles des chènevottes G7 et G8 ayant des masses volumiques apparentes de 104 et 88 kg/m³. On peut donc supposer que les broyats de colza présentent une porosité intra-particulaire plus élevée que celle des chènevottes.

La dépendance de la masse volumique apparente avec la taille des granulats est plus marquée pour les anas de lin. Ceci peut être expliqué par l'élongation plus importante des anas issus des grilles G12 et G14 qui empêche l'arrangement compact des particules.

Les broyats de paille de blé présentent les plus faibles valeurs de conductivités thermiques comprises entre 0.0446 et 0.0451 W/(m.K). Les valeurs de conductivité thermique des broyats de paille de blé restent très voisines. En effet pour des masses volumiques apparentes de 54, 50, 30 et 31 kg/m³ les conductivités thermiques respectives sont 0.0457, 0.0457, 0.0446 et 0.0451 W/(m.K). On peut supposer qu'en dessous de 50 kg/m³ une diminution de la masse volumique se traduit par une mobilité de l'air au sein de la porosité inter-particulaire, ce qui favorise les échanges par convection alors que les échanges par conduction (solide) sont réduits. Une tendance assez similaire peut être observée pour les broyats de paille de colza.

Les fines de lin et de chanvre présentent des masses volumiques apparentes et des conductivités thermiques similaires. Les broyats de rafles de maïs présentent la masse volumique apparente en vrac la plus élevée qui peut être due à une structure intra particulaire moins poreuse. Le point caractéristique s’aligne cependant bien avec la tendance identifiée sur l’ensemble des granulats végétaux.

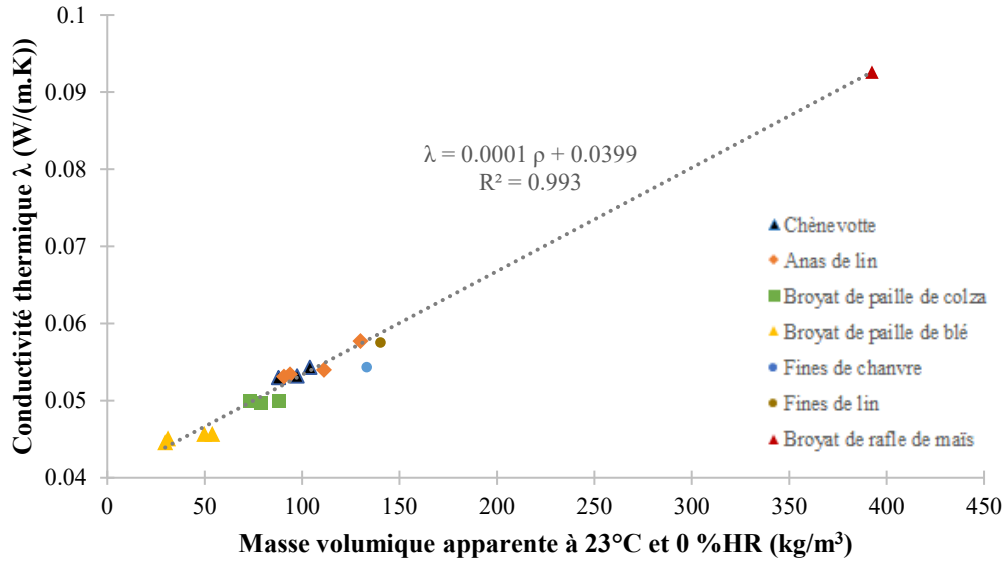


Figure II-34 : Conductivité thermique en fonction de la masse volumique apparente des agroressources (ρ comprises entre 0-450 kg/m³)

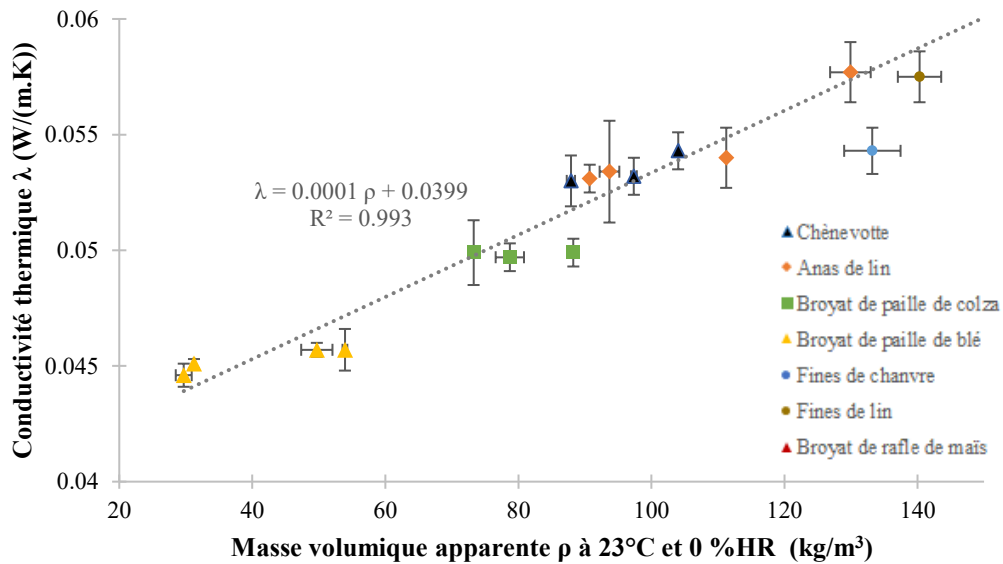


Figure II-35 : Conductivité thermique en fonction de la masse volumique apparente des agroressources (ρ comprises entre 20-150 kg/m³)

(c) Valeurs tampon hydrique

Tableau II-4 : Valeurs tampon hydrique des différentes agro-ressources

Agro-ressources		Masse volumique apparente à 23°C et 50%HR (kg/m ³)		MBV adsorption g/(m ² .%HR)		MBV désorption g/(m ² .%HR)		MBV moyen g/(m ² .%HR)	
		Moy	Ecart type	Moy	Ecart type	Moy	Ecart type	Moy	Ecart type
Chênevotte	G7	118.23	2.39	2.26	0.04	2.32	0.04	2.29	0.04
	G8	101.03	0	2.02	0.03	2.12	0.03	2.07	0.03
	G14	112.8	2.11	2.26	0.09	2.28	0.09	2.27	0.09
Anas de lin	G7	121.07	3.69	2.25	0.08	2.3	0.08	2.27	0.07
	G8	140.49	0	2.12	0.04	2.31	0.04	2.21	0.04
	G12	111.33	0	2.15	0.07	2.28	0.06	2.21	0.07
	G14	109.37	1.46	2.36	0.23	2.36	0.22	2.36	0.23
Broyat de paille de colza	G7	109.54	1.66	2.21	0.06	2.24	0.06	2.22	0.06
	G8	84.75	0	2.16	0.03	2.26	0.02	2.21	0.02
	G14	90.95	1.01	2.23	0.06	2.26	0.05	2.25	0.05
Broyat de paille de blé	G7	68.44	8.14	1.88	0.03	1.89	0.03	1.88	0.03
	G8	58.94	0	1.95	0.02	1.99	0.02	1.97	0.02
	G12	37.37	0	1.87	0.07	1.88	0.06	1.88	0.07
	G14	38.36	0.54	1.95	0.18	1.92	0.19	1.94	0.18
Broyat de rafle de maïs		405.68	6.39	2.98	0.16	3.23	0.15	3.1	0.15
Fines de chanvre		151.19	0	2.23	0.07	2.32	0.06	2.27	0.07
Fines de lin		157.8	0	2.46	0.05	2.55	0.05	2.5	0.05

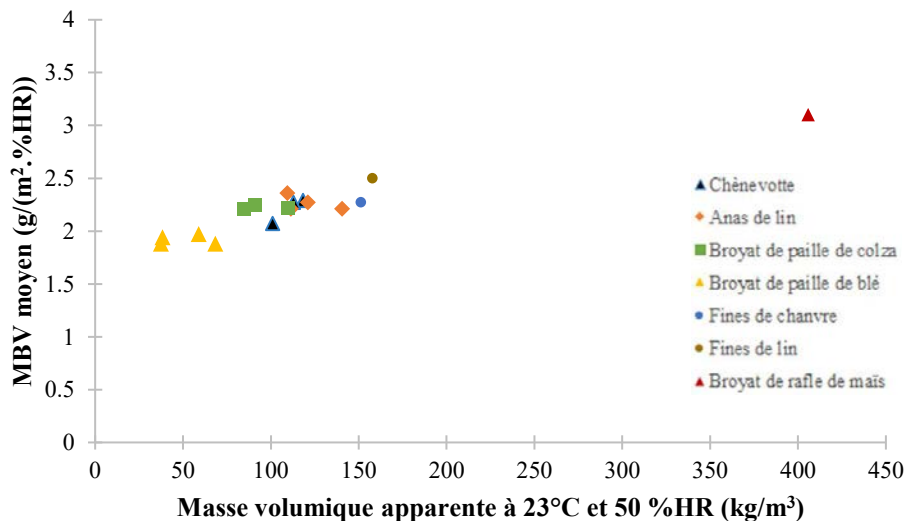


Figure II-36 : Valeur tampon hydrique en fonction de la masse volumique apparente des agro-ressources (ρ comprises entre 0-450 kg/m³)

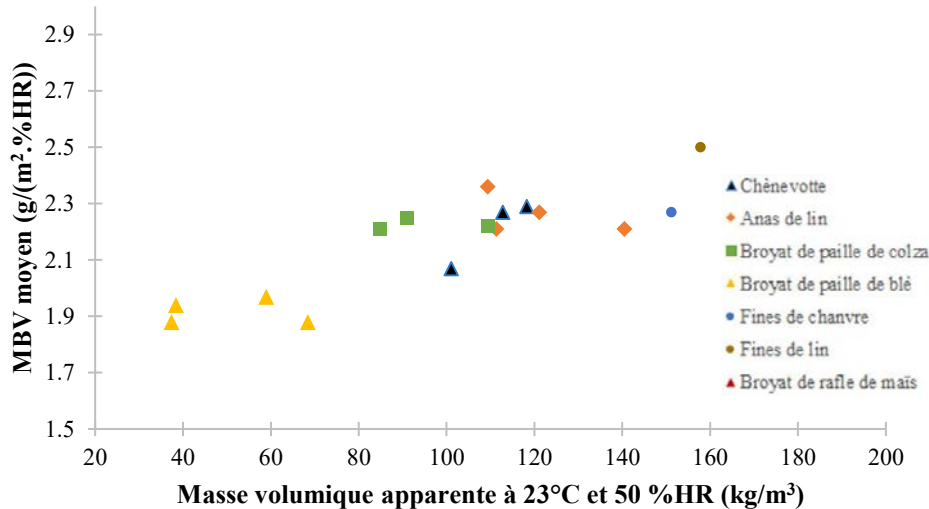


Figure II-37 : Valeur tampon hydrique en fonction de la masse volumique apparente des agro-ressources (ρ comprises entre 20-200 kg/m³)

La plupart des agro-ressources testées présentent une valeur tampon hydrique (MBV) supérieure à 2 g/(m².%HR). Ces matières peuvent donc être classées comme des excellents régulateurs hydriques selon la classification du Nordtest project. En effet, seuls les broyats de paille de blé présentent des valeurs de MBV comprises entre 1.8 et 2 g/(m².%HR), ce qui les classifie comme de bons régulateurs hydriques. Les broyats de rafle de maïs présentent la meilleure capacité de régulation avec une valeur de MBV de 3.1 g/(m².%HR). Le MBV évolue de manière croissante avec la masse volumique apparente ce qui montre qu'il y a un effet de masse qui favorise les échanges par adsorption/désorption d'eau.

Ces résultats montrent que les ressources étudiées sont des candidats intéressants pour développer des matériaux composites qui pourront contribuer à réduire les besoins en ventilation mécanique. Il sera intéressant d'étudier l'impact de la transformation de ces ressources en composite sur leur propriété de régulation hydrique de l'air ambiant.

II.2.2 Matières premières pour la formulation des liants

Les matières premières utilisées pour la formulation des liants organiques thermodurcissables sont sélectionnées en veillant à utiliser des produits biosourcés ou des produits ou sous-produits de l'industrie agroalimentaire. La sélection des matières premières est réalisée en gardant à l'esprit que le développement d'un produit de construction ne doit pas être envisagé au détriment de la production de ressources alimentaires. Dans cet esprit, la mélasse de canne à sucre et des dérivés d'amidon, de soja ont été sélectionnés.

La mélasse de canne à sucre a été fournie par la société France Mélasse (France). La teneur en matière sèche a été mesurée à 73%, ce qui correspond à la fiche technique du fabricant. Plusieurs dérivés d'amidon ont été fournis par la société Roquette Frères. La liste des différents produits est présentée dans le Tableau II-5. La farine de soja, SOYAD TS8200® a été fournie par la société Solenis.

Quelques résines potentiellement compatibles avec les granulats végétaux sont également testées ; La résine de PAE, Hercules CA1920®, concentrée à 20% massique a été fournie par la société Solenis. La solution à 48% massique de polyacrylate de sodium (ACUSOL 445, Dow Chemical) a été fournie par la société Brenntag, France. La résine acrylique synthétique concentrée à 50% massique, l'Acrodur

950L® de BASF, utilisée comme liant de référence et la résine Glyoxal de BASF, concentrée à 40% massique, ont été fournies par la société BTC Europe.

Pour le liant minéral, un grade commercial d'oxyde de magnésium caustique, VitalMag P80, concentré à 81% en magnésie a été fourni par la société TIMAB (France). Le grade commercial de sulfate de magnésium heptahydraté, EPSO TOP®, a été fourni par la société Kali (France). Le tripolyphosphate de sodium a été fourni par la société Sigma Aldrich Chemical (France).

Tableau II-5 : Matrices biosourcées étudiées pour la formulation du liant organique

Produit	Descriptif	Nature du produit
Polysorb 84/100 (Roquette Frères)	Solution de d sorbitol (40%) et glycerine (60 %) à 84 % de MS	Liquide
Lycasin 80/55 Sirop de maltitol (Roquette Frères)	Sirop de maltitol à 75 % de MS.	Liquide
Glucidex 12 (Roquette Frères)	Maltodextine D.E 12	Solide
Tackidex C070 (Roquette Frères)	Dextrine jaune base amidon de maïs, de moyenne viscosité	Solide
Cleargum CO 01 (Roquette Frères)	Amidon de maïs cireux modifié (octényl succinate)	Solide
Tackidex 30L75	Solution aqueuse de saccharides modifiés	Liquide
Stabilys A046 (Roquette Frères)	Dextrine. Amidon modifié thermiquement	Solide
Mélasse de canne (France Mélasse)	Coproduit de l'industrie de la canne à sucre. Solution concentrée à 73%	Liquide
Farine de soja Soyad TS8200 (Solenis)	Farine de soja dégraissée	Solide

II.2.3 Matières premières pour les traitements de fonctionnalisation des composites

II.2.3.1 Hydrofugeant

Pour étudier l'hydrofugation des composites, une émulsion non ionique de paraffine a été utilisée. Il s'agit du produit commercial PD 170077.2 fourni par la société Govi (Belgique).

II.2.3.2 Additifs pour la formulation de traitements ignifugeants

L'acide phosphorique concentré à 85% massique et l'acide sulfurique concentré à 98% ont été fournis par la société Sigma Aldrich Chemical, France. L'acide borique utilisé est un grade commercial nommé TG Granular Optibor® commercialisé par la société Rio Tinto. Le sulfate de magnésium heptahydraté EPSOTOP® a été fourni par la société KALI (France). La solution commerciale de retardateur de flamme, SYNTHRO-NYL SNP 1813s® composée de sulfate/phosphate d'ammonium a été fournie par la société SYNTHRON, France. La composition du produit n'est pas exactement connue. Les particules de silices fonctionnalisées dispersées dans une solution d'IMS (teneur solide de la solution 7%) ont été fournies par la société TWI Ltd, UK. Les particules de diamètre 110 nm ont été synthétisées à TWI Ltd via le procédé Stöber comme décrit par Bourebrab *et al.* (Bourebrab et al., 2018). Les particules ont été fonctionnalisées à l'aide d'un agent n-propyl triméthoxysilane dans le but d'éviter l'agrégation selon Bourebrab *et al.* (Bourebrab et al., 2017). L'hydroxide de magnésium d'une pureté de 95% a été fourni par la société Fisher Scientific, France.

II.3 Conclusion du chapitre II

Nous avons vu dans ce chapitre les différentes méthodes de caractérisation qui seront utilisées pour l'étude des composites développés dans cette thèse. Ensuite, la caractérisation de différentes agro-ressources accessibles pour CAVAC Biomatériaux a permis de mettre en évidence quelques spécificités vis-à-vis de leurs propriétés physiques en vrac :

- Les masses volumiques apparentes à l'état sec des agro ressources en vrac sont comprises entre 29 et 140 kg/m³ à l'exception des broyats de rafle de maïs présentant une masse volumique apparente en vrac de 392 kg/m³.
- Les valeurs de conductivités thermiques au point sec évoluent globalement de manière linéaire avec la masse volumique apparente, quelle que soit la nature du granulat végétal.
- Toutes les agro-ressources étudiées en vrac sont d'excellents régulateurs hydriques de l'air ambiant à l'exception des broyats de paille de blé qui sont classés comme bons régulateurs hydriques. Nous avons vu que la valeur tampon hydrique semble être une fonction croissante de la masse volumique apparente, du moins dans la gamme de valeurs étudiées.

Bien que les agro-ressources en vrac présentent de bonnes propriétés physiques, des questions se posent quant à l'impact de la transformation des agro-ressources en composites sur ces propriétés. Ainsi, l'impact du liant, des additifs et de la mise en forme sur les propriétés physiques finales du composite doivent être étudiées.

Les rafles de maïs et les fines de chanvre et de lin ne semblent pas être les ressources idéales pour le développement de panneaux composites rigides isolants car leur masse volumique apparente en vrac et leur conductivité thermique sont trop élevées. Les broyats de paille de blé présentent une faible masse volumique apparente en vrac. Cependant, ces faibles valeurs semblent provenir majoritairement de la porosité inter-granulaire importante. Leur transformation en composite rigide pourrait se traduire par une augmentation importante de la masse volumique du composite. Typiquement des masses volumiques de plus de 350 kg/m³ sont obtenues sur les panneaux CSB de Lignicell produit par thermocompactage. Du plus, parmi toutes les agro ressources envisagées, les broyats de paille de blé ont les plus faibles valeurs tampon hydrique.

Les anas de lin ont une masse volumique en vrac et des propriétés physiques intéressantes. Cependant, pour des faibles diamètres de grille de calibration, la masse volumique en vrac croît de manière importante, celle-ci pouvant atteindre 140 kg/m³, ce qui pénalise les propriétés physiques.

Par conséquent, les broyats de colza et la chènevotte semblent présenter les meilleurs compromis entre la masse volumique apparente en vrac, la conductivité thermique et la valeur tampon hydrique. Pour les prochains travaux de cette thèse, nous choisissons de nous focaliser sur la chènevotte comme granulat de référence pour la réalisation de panneaux rigides isolants. Actuellement CAVAC Biomatériaux produit de la chènevotte à partir de son procédé de défibrage du chanvre. Cependant, la possibilité de substituer la chènevotte par les broyats de colza reste à envisager, car cette ressource est grandement disponible. La collecte de la paille de colza n'est actuellement pas organisée pour une telle valorisation mais ceci reste parfaitement envisageable.

Chapitre III Formulation des liants et des composites

Dans cette partie les travaux de formulation et de caractérisation des liants qui seront utilisés pour la réalisation de panneaux rigides sont présentés. Deux types de liants sont étudiés :

- Un liant organique thermodurcissable formulé à partir d'une matrice d'origine végétale et d'un réticulant.
- Un liant minéral d'oxysulfate de magnésium.

III.1 Formulation du liant biosourcé thermodurcissable

III.1.1 Identification du réticulant

Afin d'orienter notre choix sur la nature du réticulant, une liste de critères a été définie en fonction des exigences liées à l'utilisation du composite. La sélection du réticulant sera réalisée sur la base des critères suivants :

- Propriétés mécaniques du composite.
- Résistance à l'eau du composite (test d'immersion prolongée).
- Compatibilité avec des procédés de fabrication :
 - o « Pot life » suffisamment long pour permettre l'encollage des granulats et la fabrication des composites.
 - o Temps et température de réticulation compatibles avec les conditions de fabrication des composites.
- Faible toxicité et peu ou pas d'émanations de COV.

La méthode retenue pour comparer les différents réticulants entre eux consiste à fabriquer plusieurs composites en utilisant la même matrice et en faisant varier la nature des réticulants. Les résistances en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ des composites ainsi obtenus ainsi que leur résistance à l'eau sont ensuite évaluées. Pour cette étape de « screening », le dérivé d'amidon Stabilys A046[®] a été sélectionné comme matrice de référence.

Les différentes solutions testées sont présentées dans le Tableau III-1. Deux liants témoins sont aussi testés: le dérivé d'amidon Stabilys A046[®] sans réticulant et l'Acrodur 950L[®] (BASF), résine synthétique acrylique développée spécifiquement pour substrat cellulosique.

Pour chaque formulation, six échantillons de dimensions 100 mm x 100 mm x 100 mm sont fabriqués par moulage selon la méthode décrite dans la partie II.1.2.3 et caractérisés par essai de compression selon la méthode décrite dans II.4.1. Les liants sont préparés suivant la méthode décrite dans la partie II.1.2.1. Chaque composite est composé de 87% de chènevotte et 13% de liant sec.

Tableau III-1 : Formulation des liants pour comparaison des réticulants

Matrice (Proportion en matière sèche dans le liant %m)	Réticulant (Proportion en matière sèche dans le liant %m)	Teneur solide du liant (%m)	Commentaires
80% Stabilys A046	20% PAE	29.4%	-
80% Stabilys A046	20% Glyoxal		-
80% Stabilys A046	20% Acide acrylique*		5% de sodium hypophosphite ont été ajoutés par rapport à la masse sèche d'acide acrylique.
100% Stabilys A046			Témoin sans réticulant
100% Acrodur 950L			Témoin liant 100% synthétique

**Il s'agit de la solution ACUSOL 445(Dow Chemical) présentée dans le Chapitre II, constituée d'homopolymères d'acide acrylique simplifié ici par acide acrylique.*



Figure III-1 : Composites fabriqués pour la comparaison des réticulants par essai de compression

Les valeurs de résistance en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ sont présentées dans le Tableau III-2. On observe que tous les composites formulés à partir du dérivé d'amidon Stabilys A046, même l'échantillon témoin qui ne contient pas de réticulant, ont une résistance $\sigma_{c,10}$ plus élevée que celle du composite lié avec la résine synthétique Acrodur 950L. Les meilleures propriétés mécaniques sont obtenues en utilisant le PAE comme réticulant avec une résistance $\sigma_{c,10}$ de 495 kPa. Les composites obtenus en utilisant le glyoxal comme réticulant ne semblent pas présenter d'amélioration des propriétés mécaniques par rapport à l'échantillon témoin sans réticulant car ces deux formulations présentent une résistance $\sigma_{c,10}$ moyenne de 346 kPa. Les composites réalisés en utilisant l'acide acrylique comme réticulant présentent des propriétés mécaniques plus faibles que l'échantillon témoin sans réticulant, avec une résistance $\sigma_{c,10}$ moyenne de 254 kPa. Cela pourrait signifier que, dans ce dernier cas, la réaction de réticulation de la matrice par l'acide polycarboxylique telle que présentée dans le chapitre I, n'a pas eu lieu. Il est possible que la température d'activation thermique utilisée lors de la fabrication ne soit pas suffisamment élevée pour initier la réaction de réticulation.

Tableau III-2 : Résistances en compression $\sigma_{c,10}$ à 10% de déformation des composites pour différents types de réticulants

Formulation du liant	Masse volumique apparente (kg/m ³)		Résistance en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ (kPa)	
	Moyenne	<i>e-t</i>	Moyenne	<i>e-t</i>
80% Stabilys A046 + 20% PAE	202.31	± 2.79	495	± 71
80% Stabilys A046 + 20% Glyoxal	194.38	± 3.87	346	± 54
80% Stabilys A046 + 20% Acide acrylique	201.77	± 2.86	254	± 8
100% Stabilys A046 (Echantillon témoin)	203.87	± 5.12	346	± 26
100% Acrodur 950L (Echantillon témoin)	193.29	± 3.93	249	± 16

La résistance à l'eau des composites a été évaluée visuellement après immersion complète des composites réalisés avec les différentes formulations de liant. Les observations sont synthétisées dans le Tableau III-3.

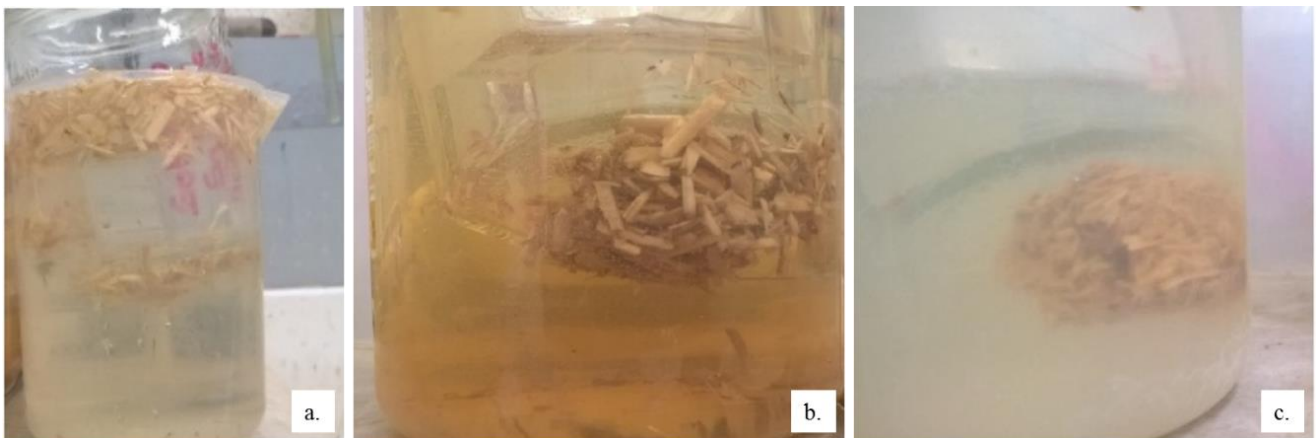


Figure III-2 : Composites après immersion pour différentes formulations de liant
(a. Composite lié avec la matrice Stabilys A046 sans réticulant après 1 min d'immersion. b. Composite dont la matrice est réticulée avec 20% de glyoxal après 3 jours d'immersion. c. Composite dont la matrice est réticulée avec 20% de PAE après 3 jours d'immersion)

Tableau III-3 : Evaluation de la résistance à l'eau des composites par immersion complète

Formulation du liant	Observations après immersion dans l'eau	Classification de la résistance à l'eau
80% Stabilys A046 + 20% PAE	Le composite ne se désagrège pas dans l'eau. Après trois jours d'immersion, seulement quelques chènevottes se sont dissociées.	Elevée
80% Stabilys A046 + 20% Glyoxal	Le composite ne se désagrège pas mais quelques chènevottes se dissocient dès le début de l'immersion. Après trois jours d'immersion, beaucoup de chènevottes se sont dissociées mais le composite ne s'est pas entièrement désagrégé.	Modérée
80% Stabilys A046 + 20% Acide acrylique	Le composite se désagrège complètement dans l'eau quelques minutes après de début de l'immersion. On peut supposer que la réaction de réticulation n'a pas eu lieu.	Aucune
100% Stabilys A046 (Echantillon témoin)	Le composite se désagrège complètement dans l'eau quelques minutes après de début de l'immersion.	Aucune
100% Acrodur 950L (Echantillon témoin)	Le composite reste en une seule partie après immersion, ce qui signifie que le liant Acrodur 950L contribue à améliorer la résistance à l'eau du composite.	Elevée

Ces résultats illustrent bien que l'utilisation d'un réticulant est essentielle pour améliorer la résistance à l'eau des liants biosourcés. Le réticulant glyoxal a permis d'améliorer la résistance à l'eau des composites par rapport aux échantillons sans réticulant, mais la résistance obtenue reste assez limitée dans le cas d'une exposition prolongée dans l'eau. De plus, les caractérisations mécaniques ont montré que le glyoxal n'a pas contribué à améliorer les propriétés mécaniques de la matrice. Le polyamidoamine epichlorohydrine (PAE) a permis d'obtenir les résistances mécaniques les plus élevées ainsi que la meilleure résistance à l'eau. C'est pourquoi il sera retenu pour formuler un liant biosourcé dans la suite de cette étude.

III.1.2 Sélection de la matrice biosourcée

Les critères retenus pour le choix de la matrice biosourcée sont :

- Les propriétés mécaniques du composite.
- La capacité de la matrice à former un liant liquide à haute teneur en solide.
- Le prix.

Le protocole de « screening » des différentes matrices est identique à celui utilisé pour l'identification du réticulant. Le Tableau II-5 présente une évaluation des critères de prix et la capacité à former des solutions à haute teneur en solide pour des différentes matrices envisagées. Les résistances en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ des composites sont évaluées pour chaque matrice en combinaison avec le PAE comme réticulant. Les résultats mécaniques sont présentés dans le

Tableau III-5.

Tableau III-4 : Matrices biosourcées étudiées pour la formulation du liant organique

Produit	Capacité à former une solution à haute teneur en solide	Prix
Polysorb 84/100 (Roquette Frères)	Elevée	€€
Lycasin 80/55 Sirop de maltitol (Roquette Frères)	Elevée	€€€
Glucidex 12 (Roquette Frères)	Faible	€€
Tackidex C070 (Roquette Frères)	Faible	€€€
Cleargum CO 01 (Roquette Frères)	Faible/modérée	€€€€€
Tackidex 30L75 (Roquette Frères)	Elevée	€€
Stabilys A046 (Roquette Frères)	Modérée	€€
Mélasse de canne (France Mélasse)	Elevée	€
Farine de soja - Soyad TS8200 (Solenis)	Modérée	€€€€

 Tableau III-5 : Résistances en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ des composites pour différents types de matrices

Formulation du liant	Masse volumique apparente (kg/m ³)		Résistance en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ (kPa)	
	Moyenne	<i>e-t</i>	Moyenne	<i>e-t</i>
80% Polysorb 84/100 + 20% PAE	205.71	± 5.86	312	± 23
80% Lycasin 80/55 Sirop de maltitol + 20% PAE	203.44	± 6.11	372	± 97
80% Mélasse de canne + 20% PAE	206.78	± 6.84	540	± 75
80% Glucidex 12 + 20% PAE	201.35	± 4.60	487	± 35
80% Tackidex C070 + 20% PAE	208.88	± 1.42	591	± 28
80% Cleargum C001 + 20% PAE	214.56	± 13.19	706	± 186
80% Tackidex 30L75 + 20% PAE	202.26	± 3.68	457	± 37
80% Stabilys + 20% PAE	202.31	± 2.79	495	± 71
80% Farine de soja + 20% PAE	216.22	± 3.40	585	± 44

Les composites liés avec les matrices Polysorb 84/100 et lycansin 80/55 ont les propriétés mécaniques les plus faibles avec des résistances $\sigma_{c,10}$ de 312 kPa et 372 kPa respectivement. Les meilleurs résultats sont obtenus en utilisant la mélasse de canne, la farine de soja, le tackidex C070, et le cleargum CO 01 car les résistances $\sigma_{c,10}$ des composites sont 540, 585, 591 et 706 kPa respectivement. Cependant, ces deux derniers ne permettent pas de formuler des liants à haute teneur en solide car les solutions de tackidex C070 ont une viscosité trop élevée et le cleargum CO01 est faiblement soluble. De même, la farine de soja est modérément soluble. Ainsi, la mélasse reste le meilleur candidat pour atteindre les critères de performances décrits précédemment. De plus, il s'agit de la matrice la plus économique et ayant le plus faible impact environnemental de toutes les solutions envisagées car la mélasse est un coproduit industriel.

Cette étude a permis d'identifier la formulation du liant biosourcé thermodurcissable qui sera retenu pour le développement des panneaux rigides. Le liant sera donc composé, d'une part de mélasse comme matrice biosourcée et d'autre part, de polyamidoamine epichlorohydrine comme réticulant. La prochaine étape de l'étude devra se focaliser sur la validation de la compatibilité du liant avec les procédés de fabrication envisagés. Cette étude sera développée dans le chapitre suivant.

III.2 Formulation du liant minéral

Sur la base de la synthèse bibliographique présentée dans le chapitre I, nous avons choisi d'étudier le liant oxysulfate de magnésium en raison de sa bonne compatibilité avec la matière végétale, ses bonnes propriétés mécaniques et sa rapidité de prise qui le rend compatible avec des procédés de fabrication impliquant des temps de cycles courts. Nous avons vu que ce liant est obtenu en faisant réagir de l'oxyde de magnésium avec une solution de sulfate de magnésium.

L'objectif est maintenant d'identifier l'impact de la formulation du liant et de sa proportion dans le composite sur les propriétés mécaniques et sur la masse volumique apparente. Par ailleurs, il a été identifié que le tripolyphosphate de sodium pourrait permettre d'augmenter la concentration de sulfate de magnésium et donc de réduire la quantité d'eau impliquée dans la formulation du liant. Cette diminution de la quantité d'eau pourrait contribuer à améliorer les propriétés mécaniques du liant et à réduire le temps de séchage/prise du liant. Cette solution sera donc explorée pour la réalisation d'un composite chènevotte/liant minéral.

III.2.1 Préparation du liant et des composites

III.2.1.1 Préparation des solutions de sulfate de magnésium

La limite de solubilité du sulfate de magnésium anhydre est de 35.1g/100g eau à 20°C, ce qui correspond à une solution contenant 49%solide de $MgSO_4 \cdot 7H_2O$ (51% d'eau). Face au risque important de précipitation du sulfate de magnésium, il n'est généralement pas recommandé d'utiliser des solutions proches de ces concentrations pour la réalisation de liant oxysulfate de magnésium. Cependant, comme présenté dans le chapitre I, Prior a montré qu'en utilisant du tripolyphosphate de sodium ou de l'hexametaphosphate de sodium, il est possible de réaliser une solution proche et même au-delà de la limite de solubilité du sulfate de magnésium (US3320077A, 1967). Ainsi pour la formulation du composite chènevotte/oxysulfate de magnésium, nous avons choisi d'étudier deux concentrations de solution différentes : la première est une solution faiblement concentrée à 15% solide de sulfate de magnésium heptahydraté dissous dans l'eau. La deuxième est une solution concentrée à 50% solide en sulfate de magnésium heptahydraté combiné avec du tripolyphosphate de sodium (STPP). Une troisième

solution témoin est préparée à 15% solide contenant du STPP. Le détail des formulations est présenté dans le Tableau III-6.

Tableau III-6 : Compositions des solutions de sulfate de magnésium testées

Référence de la solution	Composition des solutions en part massique			Commentaires
	Eau	STPP	MgSO ₄ .7H ₂ O	
S15%	85	-	15	
S50%	50	2	50	
S15%STPP	84.4	0.6	15	Solution témoin qui permettra de déterminer si le STPP influence les propriétés mécaniques. Les résultats seront comparés à ceux obtenus avec la solution S15%.

La préparation des solutions selon la méthode décrite dans la partie II.1.2.2, a permis de mettre en évidence l'impact du STPP sur la stabilité de la solution S50%. En effet, un essai comparatif de solution à 50% a été mené sans ajout de STPP. Les sels de sulfate de magnésium ont pu être entièrement dissouts dans l'eau tiède. Cependant, après refroidissement de la solution, des cristaux de sulfate de magnésium se sont formés par précipitation. Pour les solutions S50% contenant du STPP, aucune précipitation n'a été observée après refroidissement même après plusieurs semaines. Ces résultats confirment les observations de Prior (US3320077A, 1967).

III.2.1.2 Préparation des liants et des composites.

Plusieurs facteurs susceptibles d'influencer les propriétés du matériau composite sont étudiés. Ils sont présentés dans le Tableau III-7.

Tableau III-7 : Définition des facteurs et des niveaux étudiés

Facteurs	Détail	Niveaux
Ratio massique liant frais : chènevotte (*Ratio L/C)	Masse liant frais = $m(\text{MgO}) + m(\text{solution MgSO}_4)$	1.33 ; 2 ; 2.66
Ratio massique Solution MgSO ₄ : MgO (**Ratio Sol :MgO)	-	0.7 ; 1 ; 1.3
Teneur volumique en chènevotte (kg/m ³)	-	150 (kg/m ³) ; 120 (kg/m ³)
Concentration de la solution de MgSO ₄		S15% ; S50% ; S15%STPP
Addition d'un liant organique	Le liant organique étudié est le dérivé d'amidon Stabilys A046	Avec ou sans liant organique

Les liants magnésiens sont préparés et les composites moulés selon les méthodes décrites dans les parties II.1.2.2 et II.1.2.3 respectivement. Pour chaque formulation, six échantillons de dimensions 100 mm x 100 mm x 100 mm sont fabriqués : Trois échantillons seront utilisés pour les essais mécaniques en compression et trois seront utilisés pour les essais de conductivité thermique (chapitre suivant). Seize formulations différentes des composites et des liants ont été testées (Tableau III-8).



Figure III-3 : Composites chènevotte - liant oxysulfate de magnésium

Tableau III-8: Formulations des composites chènevotte/oxysulfate de magnésium

N°	Ratio					Détail de la composition (Parts massiques)			
	Teneur en chènevotte kg/m ³	Ratio L/C*	Ratio Sol:MgO**	Ref solution	Liant organique	Chèn	MgO	Solution de MgSO ₄ .7H ₂ O	Stabilys A046
1	150	2.66	1	S15%		150	200	200 de S15%	
2	150	2	1	S15%		150	150	150 de S15%	
3	150	1.33	1	S15%		150	100	100 de S15%	
4	150	2.66	1	S15%	Stab A046	150	200	200 de S15%	10
5	150	2.66	0.7	S15%		150	200	140 de S15%	
6	150	2.66	1.3	S15%		150	200	260 de S15%	
7	150	2.66	1	S50%		150	200	200 de S50%	
8	150	2	1	S50%		150	150	150 de S50%	
9	150	1.33	1	S50%		150	100	100 de S50%	
10	150	2.66	1	S50%	Stab A046	150	200	200 de S50%	10
11	150	2.66	0.7	S50%		150	200	140 de S50%	
12	150	2.66	1.3	S50%		150	200	260 de S50%	
13	120	2.66	1	S50%		120	200	200 de S50%	
14	150	2.66	1	S15%STPP		150	200	200 de S15% avec STPP	
15	150		1.3	S50%		150	100	130 de S50%	
16	120	2.66	1	S15%		120	160	160 de S15%	

III.2.2 Propriétés mécaniques

Les échantillons ont été caractérisés par essais de compression selon la méthode décrite dans la partie II.1.4.1. Les résultats des essais de compression sont présentés dans le Tableau III-9 pour chaque formulation. Ensuite, nous allons nous intéresser à l'influence des différents facteurs présentés précédemment sur la résistance en compression à 10% de déformation.

Tableau III-9 : Masses volumiques apparentes et résistances en compression à 10% de déformation des composites chènevotte-liant oxysulfate de magnésium

N°	Masse volumique apparente (kg/m ³)			Résistance en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ (MPa)		
	Moyenne	\pm	<i>e-t</i>	Moyenne	\pm	<i>e-t</i>
1	398	\pm	1	0.816	\pm	0.069
2	336	\pm	8	0.559	\pm	0.024
3	272	\pm	3	0.365	\pm	0.021
4	414	\pm	9	0.972	\pm	0.033
5	335	\pm	32	0.401	\pm	0.169
6	401	\pm	3	0.921	\pm	0.045
7	449	\pm	15	0.882	\pm	0.019
8	376	\pm	3	0.703	\pm	0.023
9	292	\pm	1	0.398	\pm	0.001
10	458	\pm	5	1.006	\pm	0.066
11	426	\pm	16	0.777	\pm	0.053
12	486	\pm	10	1.271	\pm	0.019
13	446	\pm	6	0.779	\pm	0.038
14	383	\pm	1	0.793	\pm	0.169
15	307	\pm	6	0.531	\pm	0.005
16	346	\pm	3	0.552	\pm	0.022

(a) Influence du STPP sur les propriétés mécaniques

Les premiers essais, dont les résultats sont présentés Figure III-4, ont pour objectif de vérifier si le tripolyphosphate de sodium influence les propriétés mécaniques du liant d'oxysulfate de magnésium. Pour cela, deux formulations sont réalisées dans les mêmes proportions à la différence que l'une des deux solutions contient du STPP. Les résultats montrent que le STPP ne semble pas avoir une influence significative sur les résistances puisque les valeurs $\sigma_{c,10}$ moyennes sont 0.815 MPa et 0.792 MPa pour les solutions sans et avec STPP respectivement.

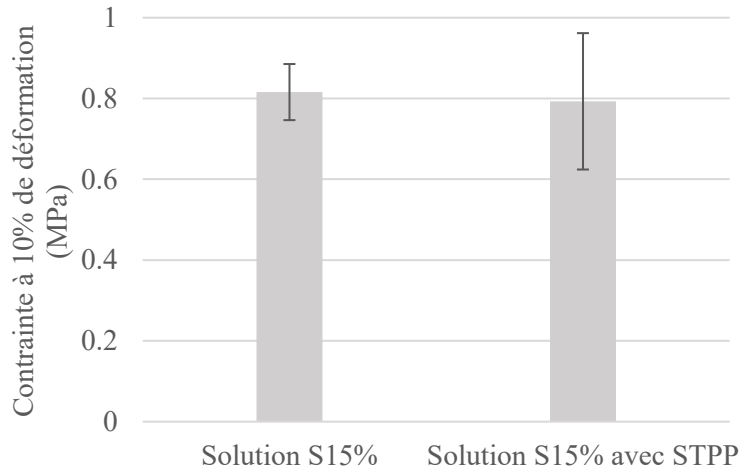


Figure III-4 : Comparaison des propriétés mécaniques des composites issus des solutions S15% et S15% avec STPP

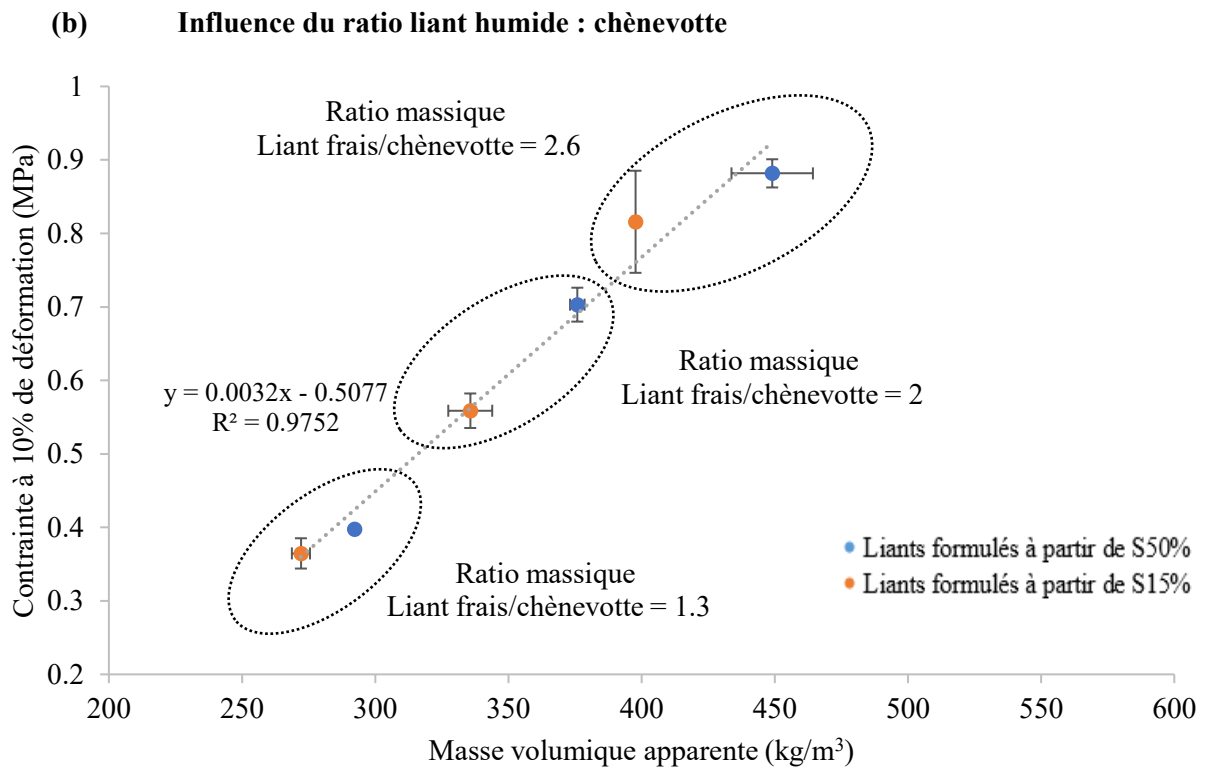


Figure III-5 : Résistances en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ en fonction de la masse volumique apparente pour différents ratios liant humide:chènevotte

Tous les composites représentés ont été réalisés avec une teneur de chènevotte de 150 kg/m³. Pour de telles formulations, la résistance $\sigma_{c,10}$ semble principalement dépendre de la masse volumique apparente du composite. En effet, les résistances $\sigma_{c,10}$ évoluent quasiment linéairement de 0.364 MPa à 0.881 MPa pour des masses volumiques apparentes comprises entre 270 kg/m³ et 450 kg/m³ respectivement.

Les composites réalisés à partir de la solution S15% ont des masses volumiques apparentes plus faibles que ceux réalisés avec la solution S50% pour le même ratio. Ceci peut être expliqué par la plus faible quantité de solide dans le liant utilisant la solution S15%. Les résistances $\sigma_{c,10}$ restent cependant dans la

même tendance, qu'ils soient issus de la solution S15% ou S50%. Ceci pourrait signifier que les propriétés mécaniques du composite dépendront principalement de la masse volumique et que le ratio $\text{MgSO}_4:\text{MgO}$ a une influence moindre.

(c) Influence du ratio Solution:MgO

La Figure III-6 représente les valeurs de $\sigma_{c,10}$ des composites en fonction de la masse volumique apparente pour différents ratios Solution:MgO. Les résistances $\sigma_{c,10}$ des composites dont le ratio Solution:MgO est différent de 1, sortent de la tendance observée (qui correspond à la tendance identifiée sur la courbe Figure III-5). Ces observations sont à la fois valables pour les composites dont le liant est formulé à partir de la solution S50% et à partir de la solution S15%. Pour les composites dont le ratio Solution:MgO est de 0.7, les résistances $\sigma_{c,10}$ sont plus faibles que la tendance et à l'inverse, lorsque le ratio est de 1.3, les propriétés mécaniques sont plus élevées.

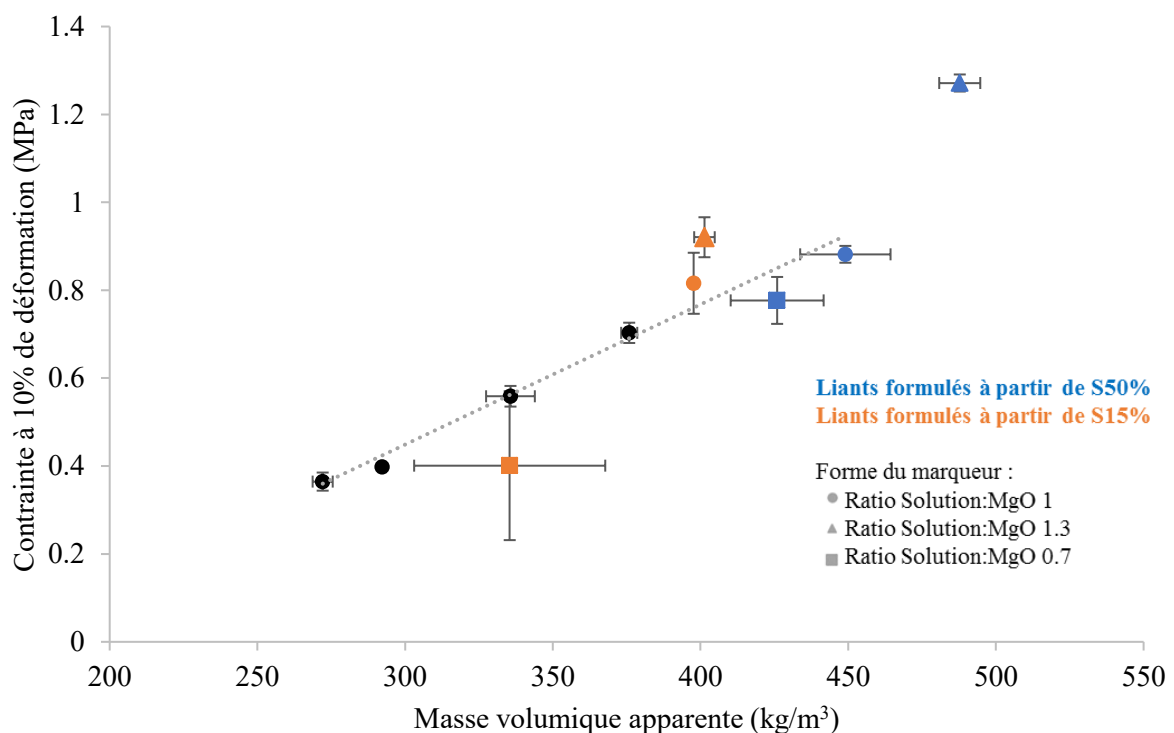


Figure III-6 : Résistance en compression à 10% de déformation en fonction de la masse volumique apparente pour différents ratios Solution:MgO

Les différences de rhéologie entre les pâtes de liant frais pourraient être à l'origine de ces observations. Deux mécanismes pourraient expliquer cette hypothèse.

Premièrement, plus le ratio Solution:MgO diminue, plus la viscosité de la pâte augmente. Cette augmentation de la viscosité pourrait pénaliser le mouillage des grains de MgO par la solution de sulfate de magnésium lors du mélange. Un cisaillement insuffisant ne disperserait pas suffisamment les amas de particules de magnésium. Cette observation était évidente lors la préparation du liant de la formulation n°5 (ratio 0.7 avec la solution S15%) où des grumeaux de magnésium non réagis se sont formés. Ce mauvais mélange pourrait expliquer à la fois les faibles propriétés mécaniques et la grande dispersion des résultats obtenus pour cette formulation (point carré orange sur la Figure III-6). Pour le liant réalisé avec la solution S50% et dont le ratio solution:MgO est de 0.7 (formulation n°11), il a été observé que la viscosité du mélange est moins impactée que pour la solution S15%. Ceci peut être expliqué par l'effet défloculant du STPP qui facilite la dispersion des particules d'oxyde de magnésium. Par conséquent la

deuxième théorie présentée ci-dessous conviendrait mieux pour expliquer la diminution des propriétés mécaniques de cette formulation.

Deuxièmement, la diminution de la viscosité avec l'augmentation du ratio Solution:MgO pourrait faciliter la pénétration du liant dans la porosité du granulat de chènevotte et donc renforcer la cohésion inter-granulaire par ancrage mécanique après solidification du liant. A l'inverse, dans le cas contraire où la viscosité est plus élevée, la pénétration du liant dans le granulat devient difficile ce qui réduit les points d'ancrage et se traduit par une diminution des propriétés mécaniques. Ce deuxième mécanisme pourrait expliquer l'augmentation des propriétés mécaniques observées pour des solutions au ratio 1.3.

(d) Influence de la teneur volumique en chènevotte

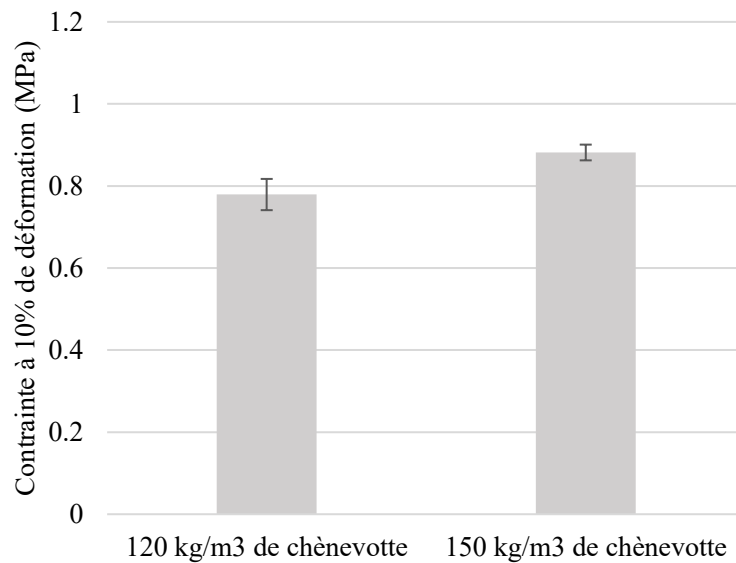


Figure III-7 : Résistances en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ des composites pour différents teneurs volumiques en chènevotte

Le composite dont la teneur volumique en chènevotte visée est de 120 kg/m³ (formulation 13) présente une résistance $\sigma_{c,10}$ (0.779 MPa) sensiblement plus faible que la résistance $\sigma_{c,10}$ (0.881 MPa) obtenue pour le composite dont la teneur volumique en chènevotte visée est de 150 kg/m³ (formulation 7) (Figure III-7). Les deux composites ont été réalisés avec la même quantité de liant. Ces observations montrent que pour ce type de composite à liant minéral, les propriétés mécaniques dépendront principalement de la teneur volumique de liant.

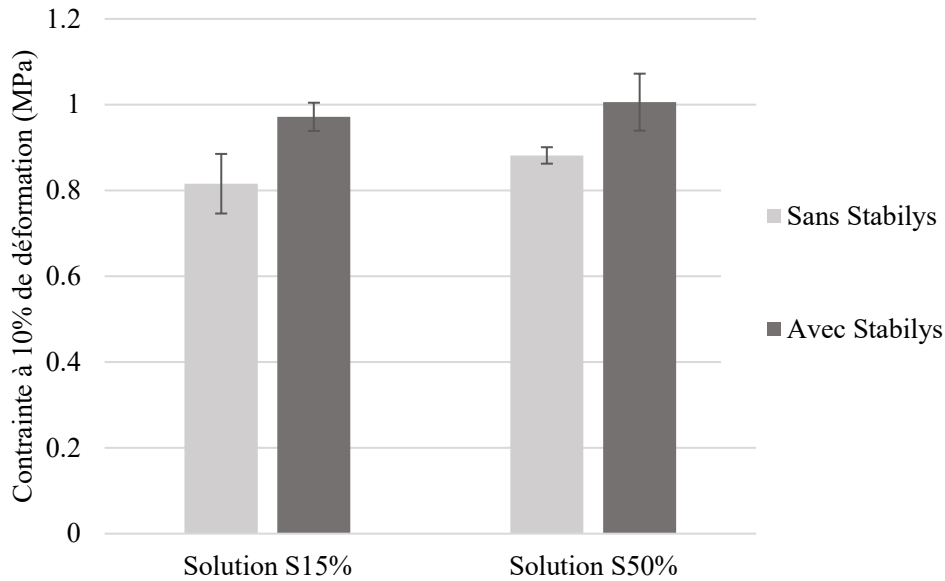
(e) **Influence de la combinaison liant minéral – liant organique**

Figure III-8 : Influence de l'addition d'un liant organique en complément du liant minéral sur la résistance en compression à 10% de déformation des composites

L'effet de l'addition d'un liant organique dans le liant minéral est bien marqué, que ce soit pour les liants réalisés avec la solution S15% ou avec la solution S50% (Figure III-8). Les résistances $\sigma_{c,10}$ augmentent de 0.156 MPa et 0.123 MPa pour les liants obtenus avec les solutions S15% et S50% respectivement avec l'ajout du dérivé d'amidon Stabilys A046, alors que les masses volumiques apparentes n'augmentent que de 16 kg/m³ et 9 kg/m³ respectivement.

Ces résultats montrent que l'utilisation d'un liant organique est une solution intéressante pour améliorer les propriétés mécaniques du composite sans pour autant pénaliser sa masse volumique apparente. Par ailleurs, ces observations montrent la bonne compatibilité des liants magnésiens avec la matière organique. En effet, la prise du liant d'oxysulfate de magnésium n'a pas été pénalisée par le liant organique.

III.3 Conclusion du chapitre III

La première partie de ce chapitre est dédiée à l'identification d'un liant organique biosourcé therm durcissable composé d'une matrice et d'un réticulant. Le réticulant PAE a été identifié comme le plus approprié pour la production de panneaux composites de chènevotte. En effet, les composites utilisant ce réticulant dans la formulation du liant présentent les propriétés mécaniques les plus élevées et la meilleure résistance à l'eau. De plus, le PAE permet de se passer des problématiques associées aux dégagements de formaldéhyde dans les bâtiments étant classé NAF (no added formaldehyde) et des problématiques associées à l'utilisation des résines pMDI. La matrice finalement sélectionnée est la mélasse de canne car elle permet de réaliser des solutions à haute teneur en solide sans trop pénaliser la viscosité du liant. Par ailleurs, la mélasse est grandement disponible et à faible coût. Enfin, les composites réalisés en combinant la mélasse et le PAE présentent de bonnes propriétés mécaniques, meilleures que celles obtenues avec la résine synthétique Acrodur 950L qui constitue une référence. Ces résultats sont obtenus pour une proportion sèche en liant de 13% et ne sont certainement pas directement transposables pour une autre teneur en liant. Toutefois, la teneur retenue reste acceptable au regard des produits industriels classiquement rencontrés sur le marché. Le liant sélectionné semble compatible avec les conditions de mise en forme utilisées pour la fabrication des échantillons. En revanche, la compatibilité du liant avec le procédé de fabrication qui sera utilisé pour la fabrication des panneaux rigides isolants reste à vérifier. Aucune problématique associée à la durée de la vie en pot du liant mélasse/PAE n'a été rencontrée.

La deuxième partie de ce chapitre s'est focalisée sur la formulation d'un composite chènevotte/liant oxysulfate de magnésium. Plusieurs variables ont été étudiées. La caractérisation des composites a permis de montrer que la masse volumique apparente des composites et plus particulièrement la teneur volumique du liant minéral sont les paramètres qui vont influencer la résistance en compression des composites. Les composites réalisés en utilisant la solution S50% de sulfate de magnésium ont présenté des masses volumiques apparentes et des résistances en compression plus élevées que les composites réalisés avec la solution S15% de sulfate de magnésium. La rhéologie de pâte humide du liant semble avoir une influence sur les propriétés mécaniques finale du composite. Cette hypothèse reste à consolider. Enfin, l'incorporation d'un liant organique en combinaison avec le liant minéral a permis d'améliorer les propriétés mécaniques des composites sans pénaliser la prise du liant minéral ainsi que la masse volumique du composite. Cette dernière observation ouvre des possibilités quant à la formulation de composites utilisant un liant hybride minéral/organique.

Le chapitre suivant se focalise sur l'identification d'un procédé de fabrication des panneaux rigides isolants utilisant le liant organique formulé dans ce chapitre. Les propriétés mécaniques et physiques des panneaux seront évaluées et comparées à celles des composites utilisant un liant minéral.

Chapitre IV Recherche d'un procédé de fabrication et caractérisation des composites

Dans la partie précédente, un procédé de fabrication phasé (pressage puis traitement thermique) a permis de produire des échantillons composites à liant organique dont la masse volumique apparente est comprise entre 150 kg/m^3 et 250 kg/m^3 . Le but de ce chapitre est maintenant d'identifier un procédé de mise en forme adapté à la fabrication de panneaux rigides isolants à partir des formulations préalablement identifiées.

À ce jour, il n'existe pas de procédés de fabrication et d'outillages spécifiquement adaptés à la fabrication de panneaux rigides à partir de granulats végétaux dans la plage de masses volumiques visées. Bien que de nombreuses études ont montré les performances intéressantes de ce type de composites, peu se sont focalisées sur leur méthode de production. Il convient donc d'évaluer la possibilité d'adapter les outillages et les procédés déjà existants à la fabrication du panneau rigide. Cette étude se base sur les procédés présentés dans la synthèse bibliographique (Chapitre I). Nous avons vu que différentes conditions de mise en forme thermiques, mécaniques et hydrothermiques peuvent être utilisées. Ainsi, plusieurs solutions sont expérimentées. L'étude se focalise sur les thématiques suivantes :

- Identifier les paramètres essentiels à la mise en forme du composite.
- Évaluer la compatibilité du procédé avec un scénario de production industrielle.
- Identifier la formulation optimale au regard des propriétés du matériau.

Ce chapitre présente les essais de fabrication menés sur deux types d'outils de production :

- Le four industriel de Cavac Biomatériaux qui correspond à un procédé continu utilisant un chauffage par air chaud.
- Une presse à plateaux chauffants qui reproduit à une échelle de laboratoire un procédé discontinu utilisant un chauffage par contact.

Ces essais permettent de comprendre quels sont les paramètres clés dans la production de composites à base de chènevotte.

La caractérisation des propriétés des composites produits avec différentes compositions de liants est réalisée en deux étapes. Dans un premier temps, l'impact de la formulation du composite (masse volumique apparente, teneur en liant, composition du liant etc.) sur les propriétés mécaniques et thermiques est évalué. Ensuite, une deuxième campagne d'essais se focalise sur l'effet de l'incorporation d'hydrofugeant dans la composition du panneau sur l'absorption à l'eau liquide et les propriétés hygriques du composite.

IV.1 Recherche d'un procédé de fabrication

IV.1.1 Essai de fabrication sur le four industriel de Cavac Biomatériaux

Nb : Ces essais ont été réalisés en parallèle de l'étape de formulation du liant (chapitre III). Par conséquent, les formulations des liants biosourcés thermosensibles n'étant pas entièrement déterminées et fixées, un liant synthétique a été utilisé pour mener une partie de cette étude préliminaire. Le four continu de Cavac Biomatériaux a été exploité en mode manuel de façon à bien gérer les différentes phases de production.

IV.1.1.1 Matériaux, matériel et méthodes

(a) Liant et formulations testées

Deux types de formulations sont testées pour évaluer la production de panneaux rigides isolants à l'aide du four de Cavac Biomatériaux :

- La première formulation testée est un panneau de paille autolié, à l'image des caractéristiques de la paille de blé exploitées par Lignicell pour produire ses panneaux de paille compactée, en se basant sur les formulations étudiées par Viel (Viel, 2018). L'étude a montré que les broyats de paille de colza et la paille de blé étaient particulièrement adaptés pour la réalisation de composites sans introduction de liant. A l'opposé des produits Lignicell, les échantillons fabriqués par un traitement hydrothermique phasé (pressage et activation thermique en milieu humide) présentaient de faibles masses volumiques apparentes et par conséquent, de faibles conductivités thermiques. Ainsi, ces composites entièrement biosourcés représentent une piste intéressante.

- La deuxième formulation testée est un panneau de chènevotte lié avec une résine thermosensible synthétique, l'Acrodur 950® (BASF). Le grade commercial de chènevotte calibrée pour le bâtiment Biofibat® (Cavac Biomatériaux) est utilisé. Différents ratio liquide/solide (L/S) sont testés afin d'évaluer l'impact de la teneur en eau sur l'activation thermique du panneau. Les formulations sont présentées dans le Tableau IV-1.

Tableau IV-1 : Composition des panneaux

Granulats		Liant		Eau
Type	%m	Type	%m	L/S
Broyat de paille	100	Aucun	0	1.5
Chènevotte	87	Acrodur	13	0.25;0.5;1

(b) Four industriel de Cavac Biomatériaux

Ce four est actuellement utilisé pour produire en continu des panneaux isolants semi rigides de faibles masses volumiques (30-40 kg/m³) à partir de fibres végétales (chanvre, lin, coton, ouates de celluloses etc.). Ce procédé de fabrication par voie sèche peut être divisé selon les étapes suivantes : Mélange des fibres liantes bi-composantes thermoplastiques avec les fibres végétales, formation du matelas de fibre sur la bande de convoyage et chauffage du matelas à l'aide du four illustré Figure IV-1. Le four est composé de trois chambres de chauffage et de deux chambres de refroidissement. Dans les chambres de chauffage, la chaleur est transférée dans l'épaisseur du mat par un flux d'air chaud perpendiculaire au mat de fibre dont la température peut être ajustée entre 60 et 200°C. La direction du flux d'air est

différente d'une chambre de chauffage à l'autre. La puissance de la ventilation peut être également contrôlée. Le mat de fibres est transporté dans le four à l'aide de deux tapis de convoyage sur chaque face du mat. Pour chaque chambre, l'espacement entre le tapis inférieur et supérieur peut être contrôlé, ce qui permet d'ajuster l'épaisseur et la masse volumique finale du panneau. La pression de compactage n'est pas contrôlée. Le traitement thermique du four entraîne la fusion des fibres thermoplastiques qui se solidifient dans les chambres de refroidissement, ce qui conduit au collage de toutes les fibres et, selon la densité visée au final, à la production d'un produit plus ou moins rigide. Le refroidissement du mat est assuré par un flux d'air à température ambiante. Une unité de découpe en continu du panneau achève le procédé.

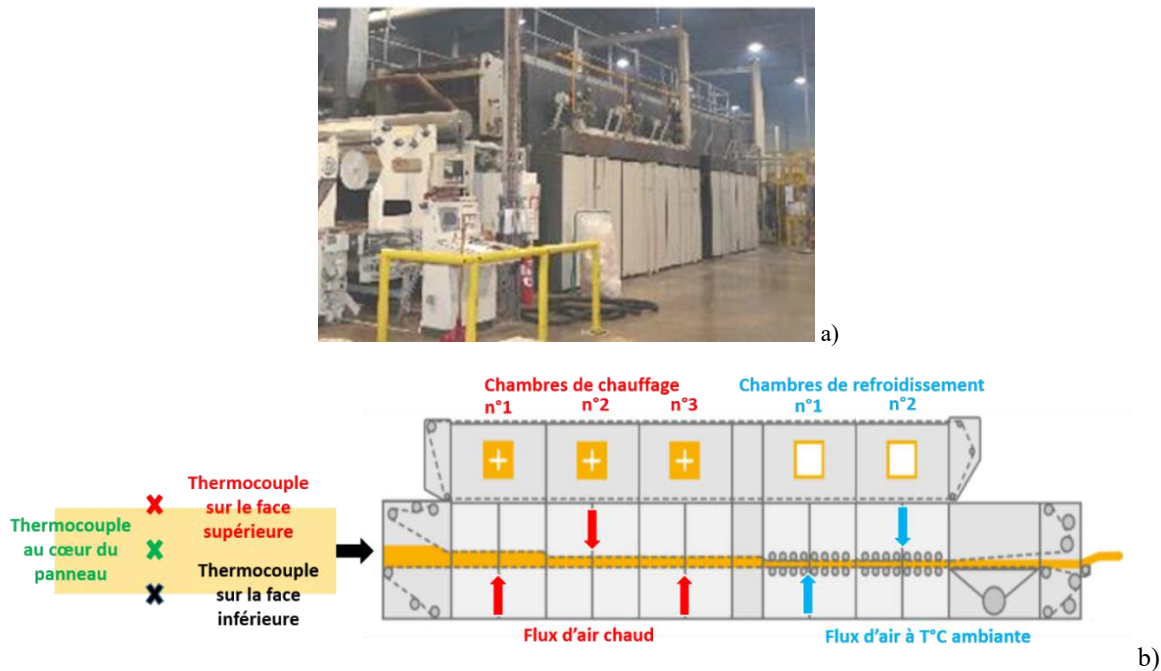


Figure IV-1 : Four continu de Cavac Biomatériaux utilisé pour la fabrication de panneaux semi rigides isolants.

(c) Caractérisation thermique du four

En préliminaire aux essais envisagés, différentes mesures de caractérisation des performances du four ont été réalisées.

Le profil des températures dans l'épaisseur du mat a été étudié durant l'étape de chauffage. Pour cela, trois thermocouples de type K ont été placés au centre et sur la face supérieure et inférieure du mat de fibres avant qu'il ne passe dans le four. Les mesures sont réalisées lors de la production d'un panneau semi rigide Biofib Trio (fibres de chanvre, lin, coton et fibres liantes thermoplastiques) dont l'épaisseur finale est de 200 mm. Les températures sont collectées à l'aide d'un boîtier d'enregistrement autonome Datapaq® (Fluke) spécialement protégé thermiquement de façon à résister au passage dans le four. La Figure IV-2 illustre les profils de températures mesurés durant la fabrication. Les températures des trois chambres de chauffage sont respectivement 165, 170 et 165°C et la vitesse de convoyage est de 1.5 m/min.

Les courbes d'évolution de température sur les faces sont caractérisées par une cinétique assez semblable d'une chambre à l'autre. On peut voir qu'au centre du mat, la température de fusion du liant n'est atteinte que dans la troisième chambre de chauffage, les deux précédentes ayant principalement contribué à l'échauffement à proximité des surfaces. Les courbes de température mesurées se stabilisent toutefois

autour des températures de consigne, ce qui montre que la vitesse d'avancée du mat reste suffisamment faible pour garantir la fusion des fibres thermoplastiques.

Dans la première zone de refroidissement, la température de surface supérieure subit un pic d'échauffement certainement lié au transfert de chaleur interne du produit sous l'effet du flux d'air froid.

Ces résultats illustrent la difficulté de fabriquer des panneaux épais et denses avec ce type de procédé. La cuisson n'est pas homogène, la vitesse d'avancement et le flux d'air chaud (débit et température) conditionnent directement les cinétiques de montée en température.

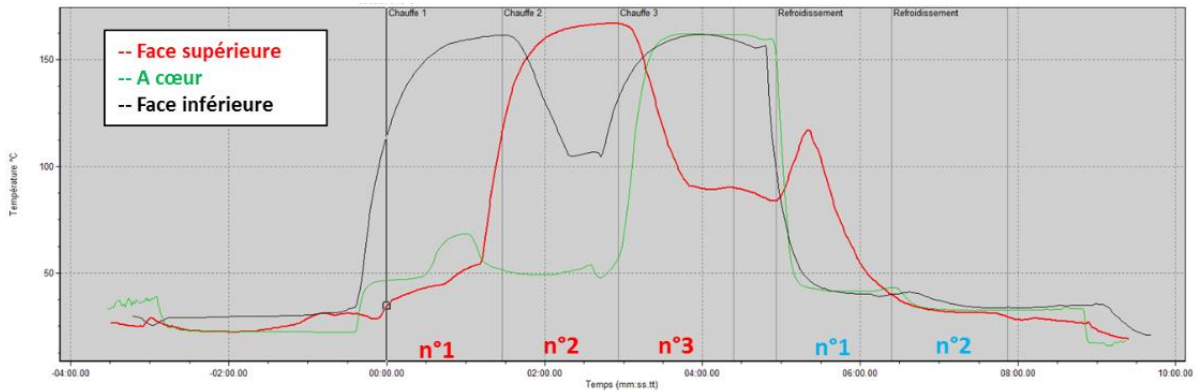


Figure IV-2 : Profils de températures du matelas de fibre lors de l'étape de chauffage.

IV.1.1.2 Méthodes de fabrication des panneaux

(a) Mélange liant granulat et conformation du mat

Les granulats sont mélangés avec le liant liquide ou avec l'eau dans un mélangeur de laboratoire (SAMA). Ils sont introduits en premier dans le mélangeur puis, le liant liquide est versé progressivement. Le mélange maintenu pendant 2 min. Le mat est formé manuellement sur le tapis de convoyage à l'entrée du four, à l'arrêt. Le mélange granulats/liant est disposé dans un cadre flexible de dimensions internes 400 mm x 300 mm (ou 600 mm x 600 mm) et dispersé manuellement pour obtenir un mat homogène. Deux tissus perméables à l'air sont placés en dessous et au-dessus du mat pour éviter l'adhésion du liant au tapis de convoyage. L'épaisseur finale visée est de 50 mm.



Figure IV-3 : Mélange liant granulat et conformation du mat sur la bande de convoyage

(b) Etape de pré-pressage (optionnelle)

Certains mats ont été pré-pressés dans un moule métallique de dimensions internes 400 mm x 300 mm à l'aide d'une presse hydraulique, avant d'être disposés sur le tapis de convoyage. Durant cette étape une pression de 400 kPa est appliquée. Après pré-pressage, le mat est délicatement démoulé et placé sur la bande de convoyage dans le moule flexible.



Figure IV-4 : Dispositif de prépressage à froid

(c) Traitement thermique à l'aide du four continu

Le tapis de convoyage est utilisé pour transporter le mat dans le four. Les conditions de chauffage ont été contrôlées en ajustant les paramètres du four (vitesse du flux d'air, température de l'air, épaisseurs et vitesses de convoyage). Le temps de chauffe est ajusté en contrôlant la vitesse de convoyage dans les chambres de chauffage. Lorsque des temps additionnels de chauffe sont requis, le convoyage est arrêté lorsque le mat se situe dans une chambre de chauffage.

IV.1.1.3 Résultats

(a) Panneau de paille auto-lié

Les panneaux de paille de blé obtenus par ce traitement thermique présentent une cohésion partielle (illustrée Figure IV-5) avec une masse volumique apparente proche de 200 kg/m^3 . Ceci démontre bien les propriétés adhésives des lignines et des hémicelluloses après activation thermique en condition humide. En revanche, pour que la cohésion soit suffisante entre les granulats, une combinaison optimale de chaleur, d'humidité et de pression est requise. On peut supposer que dans notre cas, la pression de compactage appliquée dans le four n'est pas suffisante pour permettre l'interaction des lignines et des hémicelluloses. En effet, comme présenté dans la partie I.4.3, les panneaux de paille compressée obtenus à l'aide du procédé Stramit ont des masses volumiques plus élevées, comprises entre 350 et 450 kg/m^3 . Ces masses volumiques peuvent être atteintes lors de l'étape d'extrusion grâce à la grande force de compression appliquée par le piston. En revanche, dans notre cas, le four n'est pas conçu pour appliquer de telles pressions. En outre, il a été observé que dans certaines configurations, le flux important d'air chaud entraîne une évaporation trop rapide de l'eau présente dans la matière, ce qui empêche le développement de l'activation hydro-thermique. On peut supposer qu'une étape de pulpage impliquant un ratio liquide/solide important, similaire au procédé de fabrication humide de la fibre de bois pourrait permettre de produire les panneaux de paille sans liant dans la plage de densité et de pression visée. En revanche, ce procédé nécessiterait une étape de séchage intensif et restreindrait la fabrication aux faibles épaisseurs des panneaux.

Malgré la répétition d'essais dans des conditions techniques différentes (temps d'arrêt dans le four, modification du flux d'air chaud...) il n'a pas été possible d'améliorer la cohésion entre les granulats végétaux.



Figure IV-5 : Panneaux de paille après traitement thermique

(b) **Panneaux chènevotte/Acrodur®**

Tous les panneaux de chènevotte produits sans l'étape de pré-pressage présentent une faible cohésion et sont friables. En utilisant l'étape de pré-pressage, les panneaux rigides produits présentent une masse volumique proche de 200 kg/m^3 ainsi qu'une bonne cohésion. Ces résultats montrent bien que la pression appliquée par la bande de convoyage dans le four n'est pas suffisante pour atteindre la masse volumique apparente visée. Le temps de chauffage nécessaire pour apporter la cohésion au composite dépend fortement de la teneur en eau. Le temps de chauffage augmente de 17 min à 40 min pour des ratios de liquide/solide 0.25 et 1 respectivement (Tableau IV-2). Ceci peut être expliqué par les difficultés de chauffage au centre du composite mise en évidence par l'analyse des températures sur les panneaux semi rigides. Cela montre que le procédé humide n'est pas adapté à la fabrication de panneaux de forte épaisseur avec le four industriel de Cavac.



Figure IV-6: Composites Chènevotte/Acrodur® fabriqués à l'aide du four industriel de Cavac.

(A gauche, sans pré-pressage. A droite, avec pré-pressage)

Tableau IV-2 : Temps de chauffage requis en fonction du ratio liquide/solide.

Formulation	Ratio Liquide/solide	Temps total de chauffage requis (min)
Chènevotte/Acrodur 950L®	0.25	17
	0.5	22
	1	40

IV.1.1.4 Conclusions sur l'utilisation du procédé de calibration et chauffage par air chaud (four CAVAC Biomatériaux)

Au global, ces essais permettent les constats suivants :

- Le procédé continu réalisé à l'aide du four industriel de Cavac Biomatériaux permet d'appliquer en combinaison, une calibration de l'épaisseur du mat et un traitement thermique par air chaud. Le four n'est pas adapté pour la fabrication industrielle de panneaux composites rigides issus de granulats végétaux car les tapis de calibration ne permettent pas d'appliquer une pression de compactage suffisamment élevée sur le mat pour atteindre la masse volumique désirée. En revanche, le traitement thermique par flux d'air chaud semble adapté pour réaliser l'activation thermique du liant thermodurcissable, car les panneaux composites sont réticulés à cœur.
- Le temps de chauffe nécessaire pour atteindre la cohésion du composite est fortement lié à la teneur en eau du mat.
- L'utilisation d'un liant thermodurcissable est favorable pour réduire le ratio liquide/solide, et donc réduire le temps de chauffe.
- La fabrication d'un panneau composite de faible masse volumique apparente sans introduction de liant est complexe à transposer sur un outillage industriel. En effet, la cohésion du panneau ne peut être atteinte qu'en augmentant soit la pression de compactage, ce qui pénalise la masse volumique apparente du composite, soit le ratio liquide/solide, ce qui pénalise les temps de chauffage/séchage requis pour la fabrication du panneau. Ces résultats montrent que le procédé humide typiquement utilisé pour fabrication de panneau isolant en fibres de bois n'est adapté qu'à la fabrication de panneaux de faible épaisseur et sur une étroite plage de masse volumique apparente.

IV.1.2 Essai fabrication des panneaux à l'aide d'un procédé de thermopressage (ESB Nantes)

IV.1.2.1 Matériaux, matériel et méthodes

(a) Granulats et liants

Pour ces essais, un grade commercial de chènevotte bâtiment (Biofibat®, Cavac Biomatériaux) et le liant biosourcé thermodurcissable formulé dans le chapitre III sont utilisés. Pour rappel, le liant est composé de mélasse, la matrice biosourcée, et d'un réticulant, le PAE. Cinq formulations de liant dont la proportion massique solide est de 40% sont testées. Les compositions sont présentées dans le Tableau IV-3.

Tableau IV-3 : Formulations des liants

Référence du liant	Proportion sèche de matrice (m/m%)	Proportion sèche de réticulant (m/m%)
C5%	95	5
C10%	90	10
C20%	80	20
C30%	70	30
C35%	65	35

(b) Mélange chènevotte-liant

Le mélange de la chènevotte avec le liant est réalisé à l'aide d'un encolleur de laboratoire Imal Pal pour panneaux de particules contenant des buses de pulvérisation (Figure IV-7). La masse exacte de chaque constituant est facilement contrôlée car la chènevotte est directement insérée dans le tambour du mélangeur et la totalité du liant inséré est pulvérisé au travers des buses fonctionnant par effet Venturi. Le temps de mélange est fixé à 4 min. Les formulations des panneaux testés sont présentées dans Tableau IV-4.



Figure IV-7 : Encolleur de laboratoire Imal Pal pour panneaux de particules contenant des buses de pulvérisation

Tableau IV-4 : Formulation des panneaux thermopressés

Panneau n°	Masse volumique visée (kg/m ³)	Liant		Composition du panneau (%m)		
		Ref	Proportion (%)	Chènevotte	Matrice	Réticulant
1	170	C10%	8%	92%	7.2%	0.8%
2	170	C10%	20%	80%	18.0%	2.0%
3	170	C30%	8%	92%	5.6%	2.4%
4	170	C30%	20%	80%	14.0%	6.0%
5	230	C10%	8%	92%	7.2%	0.8%
6	230	C10%	20%	80%	18.0%	2.0%
7	230	C30%	8%	92%	5.6%	2.4%
8	230	C30%	20%	80%	14.0%	6.0%
9	200	C20%	14%	86%	11.2%	2.8%
10	200	C20%	14%	86%	11.2%	2.8%
11	200	C20%	23%	77%	18.4%	4.6%
12	200	C20%	5%	95%	4.5%	0.5%
13	200	C35%	14%	86%	9.1%	4.9%
14	200	C05%	14%	86%	13.3%	0.7%
15	245	C20%	14%	86%	11.2%	2.8%
16	155	C20%	14%	86%	11.2%	2.8%
18	200	C20%	14%	86%	11.2%	2.8%
19	200	C20%	14%	86%	11.2%	2.8%

Tableau IV-5 : Classification des proportions de réticulant dans le composite

Proportion de réticulant dans le composite	Critère de classification
Faible	$W\%_{\text{Réticulant}} \leq 2\%$
Moyenne	$2\% < W\%_{\text{Réticulant}} \leq 4\%$
Elevée	$4\% < W\%_{\text{Réticulant}}$

(c) Formation du mat et thermopressage des panneaux

Le mat est formé dans deux cadres en bois de dimensions internes 600 mm x 600 mm. Une plaque d'1 mm d'épaisseur en aluminium est placée sous les cadres. Le cadre inférieur dont l'épaisseur est de 50 mm assure la fonction de moule. Le cadre supérieur, disposé sur le cadre inférieur permet de former le mat chènevotte/liant. La matière insérée dans les deux cadres est dispersée manuellement de manière à former un mat homogène en épaisseur et en densité. Le mat est ensuite pré pressé manuellement à l'aide d'un plateau supérieur en bois. Enfin, le cadre supérieur est retiré et une deuxième plaque d'aluminium est placée à la surface du mat.

L'étape de thermopressage est conduite à l'aide d'une presse hydraulique à plateaux chauffants d'une capacité de 200 tonnes (ESB Nantes). La température des plateaux peut être ajustée jusqu'à une température maximale de 250 °C. Le mat, placé dans le cadre en bois et maintenu par les deux plaques d'aluminium, est placé entre les deux plateaux de la presse. L'écartement entre les deux plateaux de la presse est réduit jusqu'à ce que les deux plaques d'aluminium soient en butée avec le moule en bois (écartement de 50mm). Le temps de pressage est fixé à 15 min à 180°C. La masse volumique des panneaux est contrôlée en ajustant la quantité de matière insérée dans le moule de dimension théorique 600 mm x 600 mm x 50 mm. Après pressage, les panneaux sont sortis de la presse, refroidis à l'air ambiante et démoulés.

Dans quelques cas d'essais de callage, l'épaisseur finale du panneau est supérieure à 50 mm en raison d'un léger gonflement des panneaux à la libération de la pression. Ce phénomène peut être nuisible à la bonne cohésion du produit. Le temps de thermopressage conditionne directement ce phénomène.



Figure IV-8 : Etapes de fabrication des panneaux par thermopressage (formation du mat, pre pressage, pressage à chaud et découpe des panneaux)

IV.1.2.2 Résultats : Observations et discussion

(a) Observations générales

Le procédé de thermopressage a permis de fabriquer l'ensemble des panneaux en 15 min pour toutes les formulations comme l'illustre la Figure IV-9. Ces résultats permettent de valider plusieurs hypothèses :

- Le procédé de thermopressage est adapté à la fabrication des panneaux composites de chènevotte dans la plage de masses volumiques et d'épaisseurs visées.
- La formulation du liant biosourcé thermodurcissable étudiée dans le chapitre III est compatible avec le procédé de fabrication.
- Dans l'industrie des panneaux de bois, il est courant de déterminer un temps de chauffe spécifique exprimé en s/mm d'épaisseur. Les temps de pressage spécifiques couramment utilisés pour la fabrication des panneaux de bois (panneaux de particules, MDF, OSB etc.) utilisant un liant UF sont de 8-10 s/mm et 6-8 s/mm en utilisant un procédé séquentiel (presse multi étages) et continu respectivement (Neya, 2002); Pour les résines PF, les temps de pressage spécifiques sont généralement compris entre 12-20 s/mm (Neya, 2002). Il est important de spécifier que ces valeurs sont utilisées pour des panneaux dont l'épaisseur est généralement comprise entre 8 et 25 mm. Dans notre cas, sans optimisation du temps de pressage et de la température, un temps de pressage spécifique de 18 s/mm (900 s/50 mm) a permis de fabriquer des panneaux dont l'épaisseur est de 50 mm. Les temps de pressage étant du même ordre de grandeur que ceux utilisés pour la fabrication des panneaux de bois, la transposition de la production à l'échelle industrielle semble envisageable.
- Malgré les temps de pressage importants et les températures élevées des plateaux, aucune dégradation thermique des faces des panneaux n'a été observée.



Figure IV-9 : Panneau rigide isolant de chènevotte fabriqué à partir du procédé de thermopressage.

Avant de rentrer plus en détail dans l'étape de caractérisation des propriétés, plusieurs effets liés à la formulation ont pu être observés lors de la fabrication des panneaux. Deux paramètres sont présentés par la suite : l'effet de la formulation du liant sur la précision des dimensions des panneaux après fabrication et l'effet de l'humidité.

(b) Influence de la formulation sur la précision des dimensions.

Le Tableau IV-6 illustre les épaisseurs finales de panneaux thermopressés à 50 mm d'épaisseur. La masse volumique visée de ces panneaux est de 230 kg/m³, ce qui correspond aux valeurs élevées de la plage des masses volumiques visées. Les panneaux 7 et 8 fabriqués à l'aide du liant contenant 30% de réticulant ont une épaisseur finale très proche de la valeur finale visée (50 mm). Les panneaux 5 et 6 qui ont, quant à eux, été fabriqués à l'aide du liant contenant 10% de réticulant, présentent une surcote de 6.53 mm et 7.51 mm respectivement par rapport à l'épaisseur visée. Cela signifie que le liant contenant 10% de réticulant (C10%) n'apporte pas suffisamment de cohésion interne pour que l'épaisseur soit maintenue à l'ouverture de la presse, ce qui engendre un effet « spring-back » (retour élastique dans l'épaisseur du panneau). Cette observation est d'autant plus confirmée que l'augmentation de la proportion de liant n'améliore pas la cohésion du panneau. En effet, les panneaux 5 et 6 ont respectivement une proportion massique de liant de 8% et 20% et les écarts à la cote initial sont presque identiques. Ces résultats montrent que le réticulant est essentiel au maintien de la cohésion lors de l'étape de fabrication.

Tableau IV-6 : Epaisseurs des panneaux après thermopressage à 50 mm pour différentes formulations de liant

Panneau N°	Liant		Epaisseur du panneau (mm)		
	Ref	m/m%			
5	C10%	8	57.51	±	0.234
6	C10%	20	56.53	±	1.022
7	C30%	8	50.45	±	0.137
8	C30%	20	48.42	±	0.469

(c) Effet de la teneur en eau.

Les panneaux 2,4,6,8 et 11 contenant des proportions élevées de liant, comprises entre 20 et 23%, étaient plus fragiles juste après pressage et n'étaient pas entièrement secs. Ces observations sont valables à la fois pour les panneaux dont le liant contient 10% de réticulant (C10%) et 30% de réticulant (C30%). Les hautes proportions de liant engendrent des teneurs élevées d'eau dans le mélange avant pressage. Cette humidité va augmenter le temps de chauffe nécessaire pour accomplir la réaction de réticulation. Ainsi, plus la teneur en eau est faible avant pressage, plus le panneau peut être fabriqué rapidement. Cette observation illustre bien l'importance d'utiliser un liant à teneur en solide élevée.

IV.1.2.1 Conclusions sur le procédé de thermopressage

Ces essais permettent les constats suivants :

- Le procédé de fabrication du panneau rigide de chènevotte utilisant le liant biosourcé thermodurcissable impose que la pression de compactage et le traitement thermique soient maintenus jusqu'à ce que le liant soit suffisamment réticulé au cœur du panneau pour supporter l'effet « spring-back » (retour élastique à l'ouverture de la presse). Par ailleurs, cela démontre que le réticulant est essentiel pour que la formulation du composite soit compatible avec le procédé de thermopressage dans la plage de masse volumique visée.
- Le procédé de thermopressage est adapté à la fabrication du panneau rigide car il permet d'appliquer simultanément une pression de compactage et un traitement thermique par contact

(transfert de chaleur par contact entre les plateaux chauffants et le mat). En outre, ce procédé permet de contrôler efficacement les paramètres de pressage tels que les conditions de chauffe (temps et température), l'épaisseur finale du panneau et donc la masse volumique apparente du composite.

- Malgré l'épaisseur importante du panneau composite de 50 mm, le traitement thermique par contact permet d'atteindre les conditions de chauffe (temps et température) requises pour accomplir la réticulation du liant au cœur du panneau.
- La teneur en eau du mat influence le temps de chauffe nécessaire pour accomplir la réaction de réticulation au cœur du panneau.

IV.2 Caractérisation des composites

IV.2.1 Nature des composites analysés

Cette partie présente l'analyse des caractéristiques des composites à base de granulats végétaux. Le Tableau IV-7 présente pour chaque type de composite, les procédés de fabrication utilisés et les propriétés analysées. Les analyses sont regroupées en deux sous parties de la manière suivante :

- Analyse des propriétés mécaniques et thermiques des panneaux composites utilisant un liant organique thermodurcissable. Les valeurs de conductivité thermique de ces composites sont comparées aux valeurs de conductivité thermique des agro-ressources en vrac et à celles des composites utilisant le liant minéral d'oxysulfate de magnésium.
- Analyse de l'effet de l'incorporation d'additif hydrofugeant sur l'absorption d'eau à court terme et sur la valeur tampon hydrique des composites réalisés à partir du liant biosourcé thermodurcissable.

Tableau IV-7 : Nature des composites, méthodes de fabrication et propriétés analysées

Granulats	Liant et additifs	Procédé de fabrication	Propriétés analysées	Méthodes
Chènevotte biofibat®	Liant Mélasse/PAE	Thermopressage	Conductivité thermique	Fluxmétrie et fil chaud
			Propriétés mécaniques	Compression et flexion
Chènevotte biofibat®	Liant oxysulfate de magnésium	Moulage et traitement thermique	Conductivité thermique	Fil chaud
Chènevotte biofibat®	Liant Stabilys A046®/PAE Paraffine	Moulage et traitement thermique	Absorption d'eau à court terme	Mesure de l'absorption par immersion partielle
Chènevotte biofibat® et Isofin®	Liant Mélasse/PAE Paraffine	Thermopressage	Valeur tampon hydrique	Protocole du Nordtest project

IV.2.2 Propriétés mécaniques et thermiques

IV.2.2.1 Préparation des échantillons

Les échantillons exploités pour cette caractérisation correspondent uniquement aux panneaux obtenus par thermopressage (voir tableau de formulation Tableau IV-4).

Chaque panneau est découpé à l'aide d'une scie à ruban de menuisier pour produire 5 échantillons de dimensions 50 mm x 50 mm x 50 mm pour les essais de résistance en compression, 3 échantillons de dimensions 260 mm x 120 mm x 50 mm pour les essais de résistance en flexion et 6 échantillons de 100 mm x 100 mm x 50 mm pour les mesures de conductivités thermiques au CT mètre. Les échantillons ont été stabilisés pendant au moins deux semaines dans une chambre climatique à 23°C et 50%HR avant d'être testés. La masse volumique de chaque échantillon est mesurée avant l'essai. La teneur volumique de chènevotte est calculée en utilisant les formulations des panneaux selon la formule suivante :

$$T_{chènevotte} = \rho_{Comp} \times W\%_{chènevotte}$$

Avec:

$T_{chènevotte}$: La teneur volumique en chènevotte dans le composite (kg/m^3)

ρ_{Comp} : La masse volumique du composite (kg/m^3)

$W\%_{chènevotte}$: La proportion massique de chènevotte dans le composite (w/w%)



Figure IV-10 : Échantillons découpés pour caractérisation

IV.2.2.2 Résultats

Les annexes B et C rassemblent l'ensemble des valeurs des propriétés mécaniques et thermiques mesurées sur chaque type de composite.

(a) Analyse des propriétés mécaniques en compression

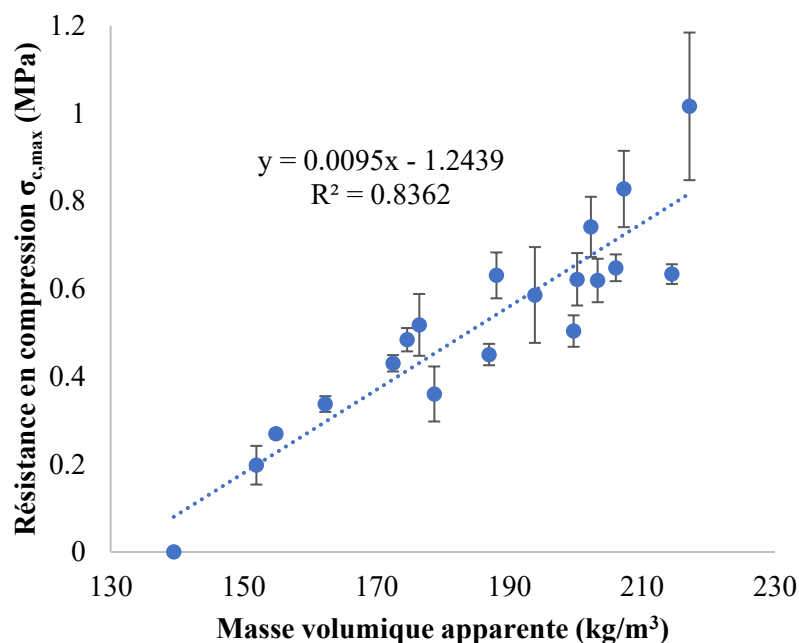


Figure IV-11 : Résistance en compression ($\sigma_{c,max}$) en fonction de la masse volumique apparente

La Figure IV-11 montre que la résistance en compression $\sigma_{c,max}$ dépend fortement de la masse volumique du composite. En effet, elle évolue de manière quasi linéaire de 0 MPa à 1.01 MPa pour les échantillons ayant des masses volumiques de 139 kg/m³ et 217 kg/m³ respectivement. Pour l'échantillon dont la masse volumique est de 139 kg/m³, la résistance en compression n'a pas pu être déterminée car une déformation plastique est observée dès le début de l'essai. Il est important de remarquer que la proportion de liant et de réticulant ne semble pas influencer significativement la résistance en compression.

Cette observation est confirmée par la Figure IV-12 où l'évolution de la résistance en compression $\sigma_{c,max}$ est représentée en fonction de la teneur volumique en chènevotte pour les trois différents niveaux de proportions de réticulant. En effet, la résistance en compression augmente avec la teneur volumique en chènevotte. Cependant, pour une teneur volumique en chènevotte proche de 160 kg/m³, les composites dont la proportion de réticulant est faible peuvent avoir des valeurs de résistance en compression plus élevées que celles des composites ayant une proportion moyenne de réticulant. Cela démontre bien que la résistance en compression $\sigma_{c,max}$ dépend principalement de la masse volumique du composite et non pas de la teneur en réticulant. Le point surligné en rouge correspond au panneau n°13 dont la proportion de réticulant est élevée. Une discussion à propos des résultats obtenus avec ce panneau sera développée par la suite.

Les panneaux composites de chènevotte présentent des valeurs de résistance en compression à 10% de déformation $\sigma_{c,10}$ pouvant dépasser 1 MPa. A titre de comparaison, les panneaux rigides isolants en bois présentent pour une masse volumique équivalente une valeur $\sigma_{c,10}$ de 0.2 MPa. Cette différence importante illustre bien l'excellent comportement en compression du composite de chènevotte.

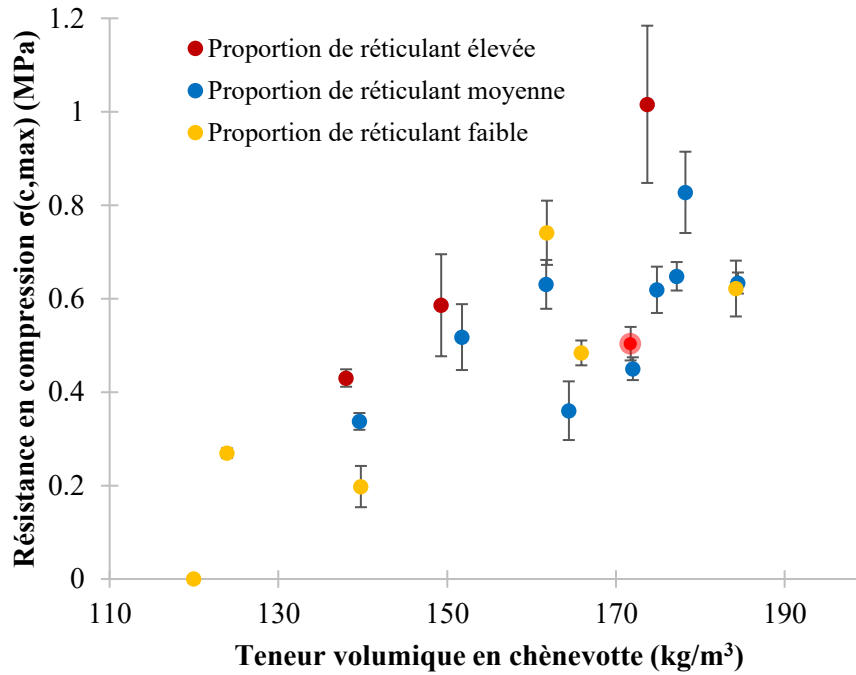


Figure IV-12 : Effet de la proportion en réticulant et de la teneur volumique en chènevotte sur la résistance en compression ($\sigma_{c,max}$).

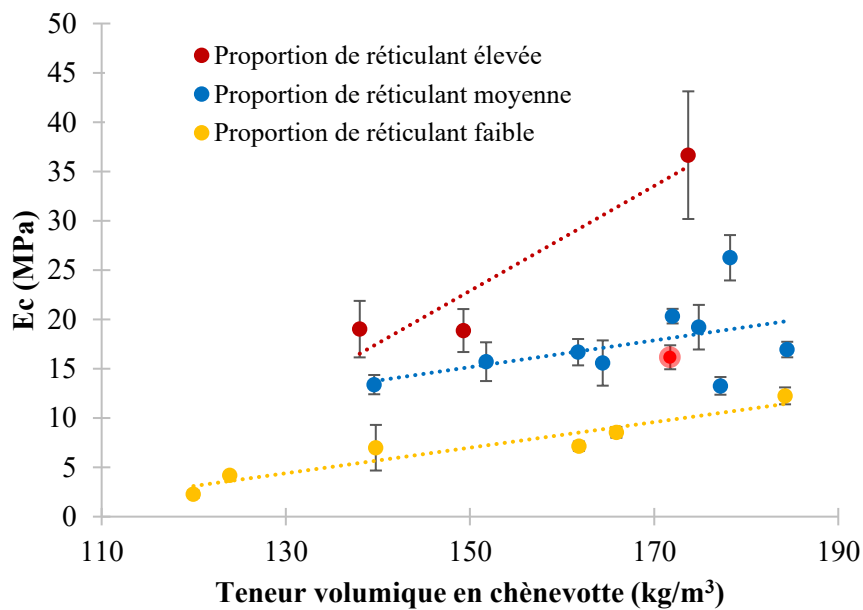


Figure IV-13 : Module d'élasticité en compression en fonction de la teneur volumique en chènevotte.

(Le point surligné en rouge correspond au panneau n°13 ayant une proportion élevée de réticulant)

La Figure IV-13 présente l'évolution du module d'élasticité en compression en fonction de la teneur volumique en chènevotte pour les trois niveaux de proportions de réticulant. La proportion de réticulant a un effet important sur le module d'élasticité. Un effet synergique peut être observé entre la proportion de réticulant ainsi que la teneur volumique en chènevotte. Pour une teneur volumique en chènevotte approximative de 140 kg/m³, le module d'élasticité en compression pour des proportions faibles, moyennes et élevées en réticulant sont respectivement 7, 13 et 19 MPa. Cependant, pour une teneur volumique approximative de 170 kg/m³, les valeurs augmentent à 9, 20 et 37 MPa respectivement.

(b) Analyse des propriétés mécaniques en flexion

Les figures ci-dessous (Figure IV-14 et Figure IV-15) représentent respectivement les évolutions de la résistance en flexion et du module d'élasticité en fonction de la teneur volumique de chènevotte pour les trois proportions en réticulant. La résistance en flexion ainsi que le module d'élasticité sont directement corrélés à la proportion en réticulant et à la teneur volumique en chènevotte. Un faible effet synergique est observé entre ces deux paramètres sur la résistance en flexion. En revanche, l'effet est plus marqué sur le module d'élasticité. Pour une teneur volumique en chènevotte proche de 140 kg/m^3 , les résistances en flexion pour des proportions faibles, moyennes et élevées en réticulant sont respectivement 0.29, 0.58 et 0.82 MPa et les modules d'élasticité sont respectivement 25, 52 et 82 MPa. Pour une teneur volumique en chènevotte proche de 170 kg/m^3 , la résistance en flexion augmente respectivement de 0.83, 1.24 et 1.77 MPa (proportions faibles, moyennes et élevées) et le module d'élasticité de 45, 85 et 150 MPa.

Le point surligné en rouge (Figure IV-12, Figure IV-13, Figure IV-14 et Figure IV-15) correspond au panneau n°13. Ce panneau est le seul dont le liant est formulé à 35% de réticulant. Avec une proportion de réticulant de 4.9%, ce panneau est normalement classé comme ayant une proportion élevée en réticulant selon la classification présentée dans le Tableau IV-5. Cependant, les résultats obtenus avec ce liant ne correspondent pas à la tendance observée pour les composites. En effet, les propriétés mécaniques sont similaires à celles d'un panneau dont la proportion de réticulant est moyenne. Ceci pourrait être expliqué par le fait qu'au-dessus d'une concentration de 30% de réticulant dans le liant, l'excès de réticulant non lié à la matrice mène à une diminution globale des propriétés liantes.

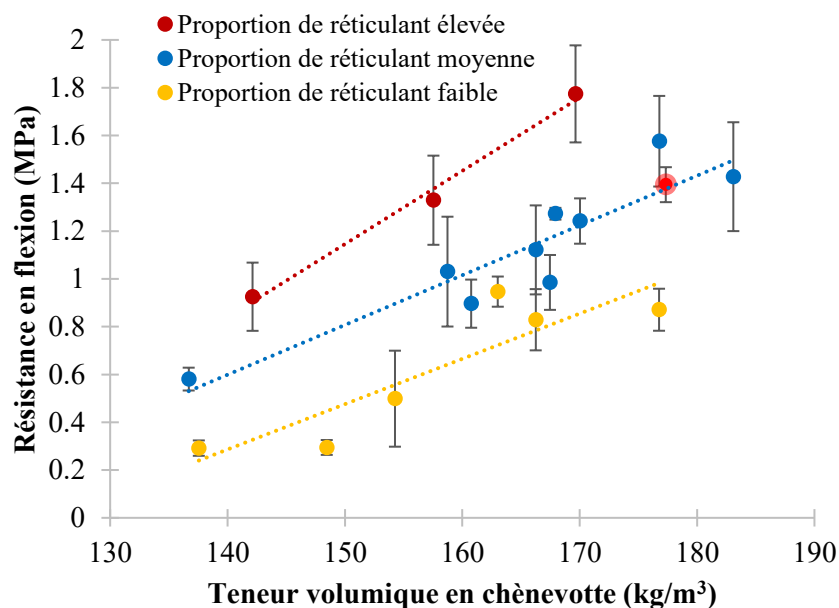


Figure IV-14 : Résistance en flexion en fonction de la teneur en chènevotte

(Le point surligné en rouge correspond au panneau n°13 ayant une proportion élevée de réticulant)

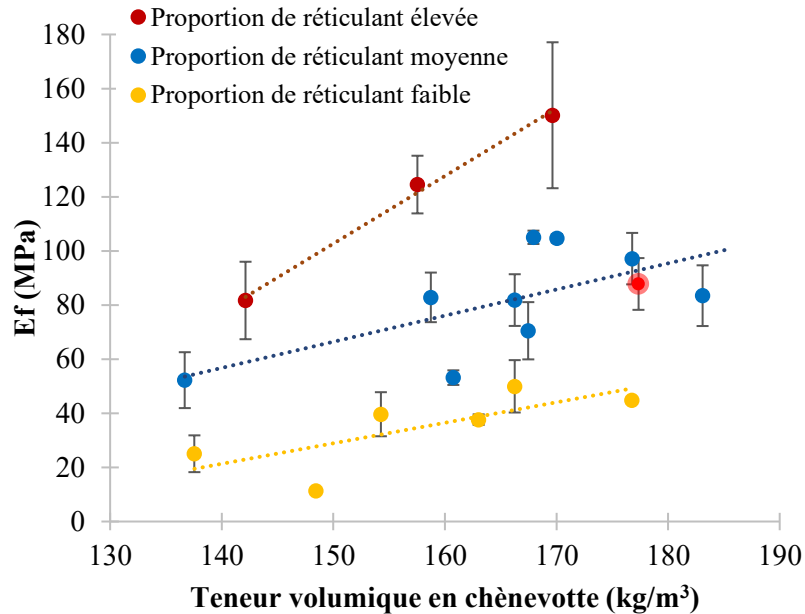


Figure IV-15 : Module d'élasticité en flexion en fonction de la teneur en chènevotte

(Le point surligné en rouge correspond au panneau n°13 ayant une proportion élevée de réticulant)

(c) Analyse de la conductivité thermique

Les conductivités thermiques au point sec des panneaux rigides de chènevotte fabriqués dans la partie IV.1.2 ont été déterminées selon deux méthodes : la méthode fluxmétrique sur les panneaux entiers de dimensions 600 mm x 600 mm x 50 mm et la méthode du fil chaud sur les échantillons de dimensions 100 mm x 100 mm x 50 mm découpés dans les panneaux.

La Figure IV-16 présente la conductivité thermique en fonction de la masse volumique apparente des composites pour les deux méthodes. Les résultats sont significativement différents selon la méthode de mesure utilisée. En effet, pour la méthode fluxmétrique, les conductivités thermiques des panneaux de chènevotte sont comprises entre 0.050 et 0.058 W/(m.K) pour des masses volumiques apparentes sèches comprises entre 150 kg/m³ et 210 kg/m³. Les valeurs obtenues avec la méthode du fil chaud sont comprises entre 0.065 et 0.085 W/(m.K).

Un tel écart est assez courant et doit être principalement associé aux résistances de contact entre échantillon et plateaux du fluxmètre ou fil chaud dont l'effet sur la mesure est passablement différent d'une méthode à l'autre, dans le cas de composites de granulats végétaux.

Les valeurs obtenues avec la méthode du fil chaud peuvent être comparées aux conductivités thermiques en vrac des agro ressources (Figure IV-17). On peut constater que les conductivités thermiques des panneaux sortent de la tendance observée pour les valeurs en des agro-ressources en vrac. Deux hypothèses pourraient permettre d'expliquer cette différence :

- L'étape de fabrication des composites par thermocompression pourrait engendrer une déformation des granulats de chènevotte et donc une diminution de la porosité intra-granulaire. Il est probable que cette porosité contribue de manière plus importante à l'emprisonnement de l'air dans le composite que les porosités inter-granulaires, car plus petites et plus fermées.
- La présence du liant et le nombre de points de contact plus importants entre granulats pourraient favoriser le transfert de chaleur par conduction.

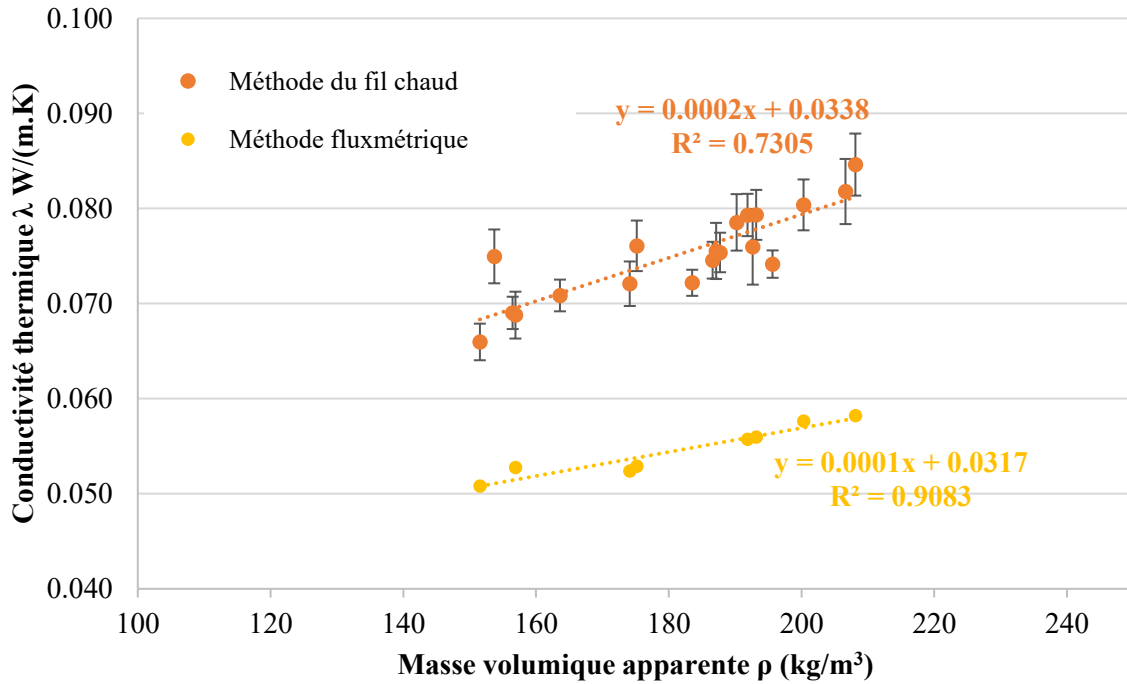


Figure IV-16 : Conductivités thermiques des panneaux rigides à base de chènevotte pour différentes méthodes de mesure (23°C, 0%HR)

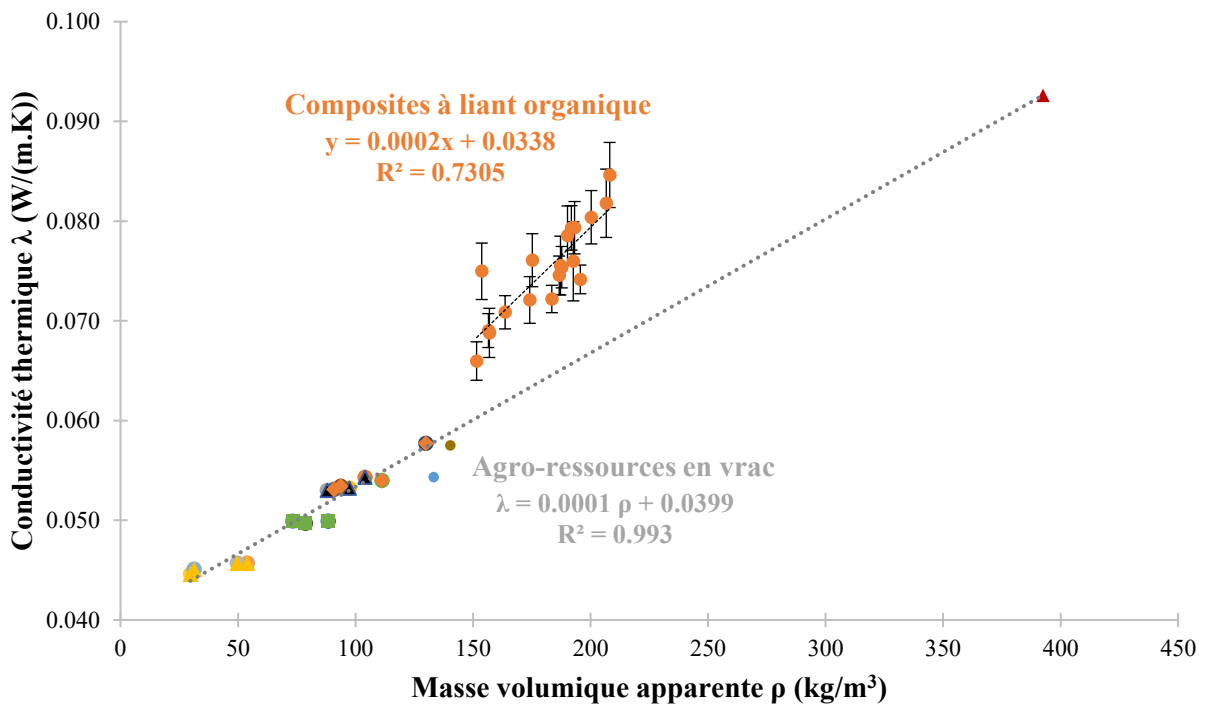


Figure IV-17 : Comparaison des conductivités thermiques des composites de chènevotte avec les conductivités thermiques des agro-ressources en vrac (Méthode du fil chaud, 23°C et 0%HR)

Les conductivités thermiques au point sec (23°C ; 0%HR) des composites à liant minéral formulés dans le chapitre III ont été déterminées par la méthode du fil chaud. La Figure IV-18 compare les valeurs de conductivités thermiques des composites utilisant un liant minéral à celles des composites à liant organique.

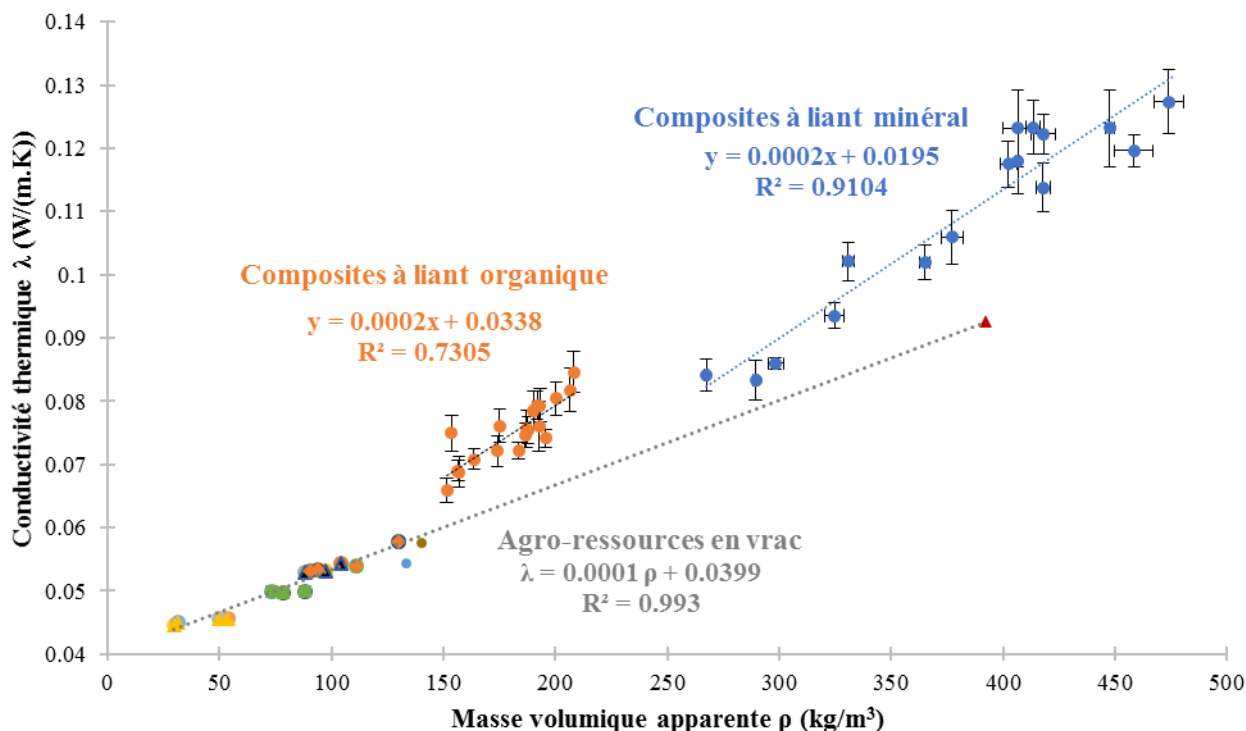


Figure IV-18 : Comparaison des conductivités thermiques des composites à liant minéral et organique en fonction de la masse volumique apparente (23°C, 0%HR)

Les masses volumiques des composites à un liant minéral, comprises entre 265 et 475 kg/m³, et leurs conductivités thermiques associées, comprises entre 0.084 et 0.127 W/(m.K) sont plus élevées que celles des composites à liant organique. Cette différence est liée à la masse volumique plus importante des liants minéraux et leur proportion plus élevée dans le composite. Bien que ces résultats soient prévisibles, on peut cependant constater que les deux types de composites ne suivent pas la même tendance. Le composite minéral le moins dense ayant une masse volumique apparente de 267 kg/m³ présente une conductivité thermique presque similaire à celle du composite organique le plus dense ayant une masse volumique de 210 kg/m³. En effet, les conductivités thermiques sont respectivement 0.084 et 0.085 W/(m.K).

Cette différence pourrait être expliquée par l'hypothèse de la déformation des granulats présentée précédemment. Bien que le composite à liant minéral présente une masse volumique apparente plus élevée, il est possible que les granulats de chènevotte soient moins déformés pour les faibles masses volumiques apparentes et donc préservent leur porosité intra-granulaire. En revanche, comme pour les composites à liant organique, la conductivité thermique des composites à liant minéral croît avec la masse volumique apparente du composite. La pente est similaire à celle des composites organiques, ce qui permet de supposer que les granulats sont comprimés de manière similaire.

IV.2.3 Effet de l'incorporation d'additifs hydrofugeants.

L'objectif de cette partie est d'évaluer l'influence de l'incorporation d'additifs hydrofugeants sur l'absorption d'eau à court terme et sur la valeur tampon hydrique des composites. En outre, l'effet de la taille des granulats de chènevotte et de la proportion massique de réticulant sur la valeur de MBV seront évalués.

IV.2.3.1 Absorption d'eau à court terme des composites par immersion partielle

(a) Formulations testées et préparation des éprouvettes

Les échantillons ont été fabriqués par moulage (dimensions 400 mm x 300 mm x 50 mm) puis activation thermique à l'aide de la méthode décrite dans la partie II.1.2.3. Pour ces essais un grade de chènevotte bâtiment Biofibat a été utilisé. Deux facteurs sont étudiés : La proportion massique d'hydrofugeant et la proportion massique de réticulant dans le composite. Pour ces essais, la matrice utilisée est le dérivé d'amidon Stabilys A046. Les formulations sont présentées dans le tableau ci-dessous.

Tableau IV-8 : Formulation des composites pour l'essai d'immersion partielle

Composite	Reference du traitement	Teneur volumique de chènevotte (kg/m ³)	Composition du panneau (parts massiques)						
			Chènevotte		Liant				Paraffine
			REF	Parts	Matrice	Parts	Ret	Parts	Parts
T1	Non traité 0% paraffine 2% réticulant	175	Biofibat	90	Stabilys	8	PAE	2	0
T2	2% paraffine 2% réticulant	175	Biofibat	90	Stabilys	8	PAE	2	2
T3	1% paraffine 4% réticulant	175	Biofibat	90	Stabilys	8	PAE	4	1
T4	1% paraffine 2% réticulant	175	Biofibat	90	Stabilys	8	PAE	2	1
T5	3% paraffine 2% réticulant	175	Biofibat	90	Stabilys	8	PAE	2	3



Figure IV-19 : Mesure de l'absorption à l'eau des échantillons par immersion partielle

(b) Résultats et discussion

Tableau IV-9 : Valeurs d'absorption d'eau à court terme des composites par immersion partielle

Traitement	Ref échantillon	Masse volumique apparente			Absorption d'eau				
		Valeurs (kg/m ³)	Moy (kg/m ³)	<i>e-t</i> (kg/m ³)	Valeurs (kg/m ²)	Moy (kg/m ²)	<i>e-t</i> (kg/m ²)		
Non traité 0% paraffine 2% réticulant	T1a	189.5131	192	±	4	18.26	18.3	±	0.14
	T1b	196.2481				18.48			
	T1c	191.0056				18.23			
2% paraffine 2% réticulant	T2a	174.7569	178	±	4	9.22	8.7	±	0.43
	T2b	178.5022				8.40			
	T2c	182.1022				8.56			
1% paraffine 4% réticulant	T3a	198.7607	197	±	2	9.04	8.2	±	0.84
	T3b	197.9524				8.07			
	T3c	194.4067				7.38			
1% paraffine 2% réticulant	T4a	196.1594	193	±	3	8.51	8.5	±	0.31
	T4b	189.2025				8.79			
	T4c	193.0166				8.17			
3% paraffine 2% réticulant	T5a	189.7969	190	±	0	8.13	8.2	±	0.15
	T5b	189.9938				8.15			
	T5c	190.3269				8.40			

Le Tableau IV-9 présente les masses volumiques des échantillons et les valeurs d'absorption à l'eau des échantillons traités et non traités avec l'additif hydrofugeant. La Figure IV-20 et la Figure IV-21 illustrent respectivement l'effet de la proportion de paraffine et de la proportion de réticulant. Le traitement de paraffine a une influence importante sur l'absorption d'eau des composites, même pour une proportion de 1%. Cependant, l'augmentation de la quantité de paraffine au-delà de 1% ne permet plus de réduire l'absorption d'eau des composites. En effet, les composites traités avec 1%, 2% et 3% respectivement de paraffine ont des valeurs d'absorption à l'eau presque similaire (8.5, 8.7 and 8.2 kg/m² respectivement). La forte réduction de l'absorption d'eau lors de l'introduction de la paraffine peut être expliquée en observant les échantillons après l'essai illustrés Figure IV-22. En effet, pour l'échantillon non traité, l'eau est absorbée sur toute l'épaisseur de l'échantillon par capillarité tandis que l'échantillon traité n'a absorbé l'eau que pour la partie immergée. Cela signifie que le traitement à la paraffine ne permet pas d'empêcher l'absorption d'eau des granulats de chènevotte dans la partie immergée mais permet d'empêcher l'absorption d'eau par capillarité. Cette observation permet d'expliquer pourquoi l'augmentation de la quantité de paraffine ne permet pas de réduire l'absorption d'eau car, dans tous les cas, les granulats immergés absorbent l'eau liquide jusqu'à saturation.

Une absorption d'eau de 8.5 kg/m² sur 10 mm immergé correspond à 85% de la porosité. Or, sur la base de la masse volumique réelle des constituant, la porosité calculée à partir de la formulation est voisine de 88%. L'hypothèse de la saturation de la zone immergée est très acceptable.

La Figure IV-21 illustre les valeurs d'absorption d'eau des échantillons traités avec 2% et 4% de réticulant. L'augmentation de la proportion de réticulant conduit à une faible diminution de l'absorption d'eau. Cependant cette dernière n'est pas significative par rapport à la quantité totale d'eau absorbée et est certainement plus liée à une petite réduction de la porosité (masse volumique apparente plus importante).

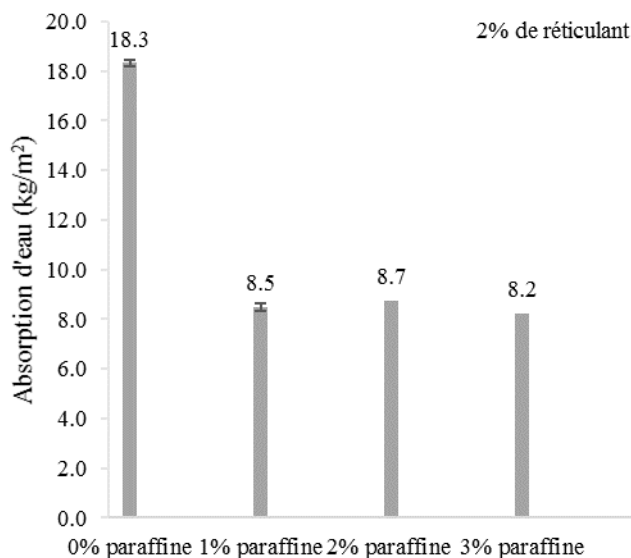


Figure IV-20 : Effet de la proportion de paraffine sur l'absorption d'eau à court terme des composites

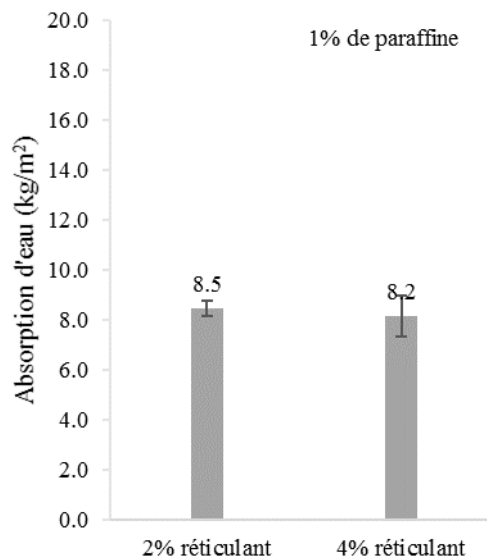


Figure IV-21 : Effet de la proportion de réticulant sur l'absorption d'eau à court terme des composites

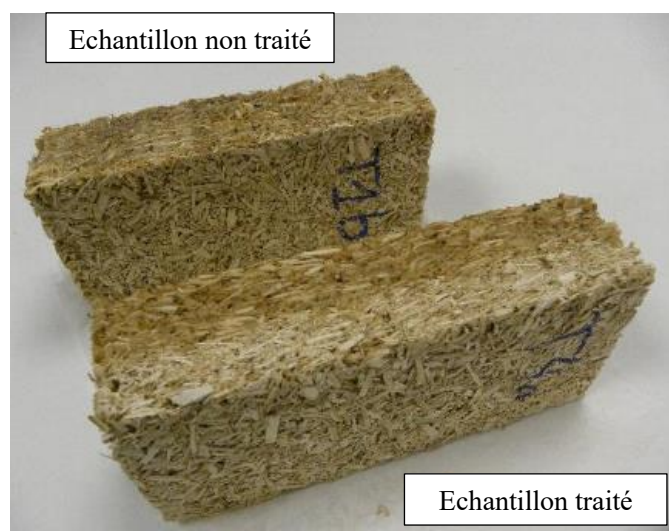


Figure IV-22 : Comparaison des échantillons traités et non traités après l'essai d'immersion partielle

Ces résultats démontrent l'efficacité de l'émulsion de paraffine comme agent hydrofugeant. Cependant, bien que l'absorption d'eau à court terme du composite réalisé à partir de chènevotte soit significativement réduite, les valeurs obtenues ne sont pas suffisamment faibles pour envisager une utilisation du panneau comme écran pare-pluie à l'échelle du bâtiment. En effet, la valeur d'absorption d'eau préconisée pour ce type d'application doit être inférieure à 1 kg/m². A titre de comparaison, les panneaux isolants rigides en fibre de bois contenant une faible part de paraffine ont une valeur d'absorption d'eau inférieure à cette valeur. Trois hypothèses pourraient permettre d'expliquer cette différence avec le composite réalisé à partir de chènevotte :

- La première hypothèse pourrait être liée à la différence de capacité d'absorption d'eau entre le bois et les granulats de chènevotte. En effet, Balducci *et al.* (Balducci, Harper, Meinschmidt, Dix, & Sanasi, 2008) ont comparé les propriétés de panneaux de particules réalisés à partir de différentes

espèces de bois et de différentes agro-ressources (pailles de maïs, tournesol, miscanthus, chènevotte etc.). Les résultats montrent que les panneaux de particules de bois d'épicéa et de chènevotte liés avec 6% de résine pMDI absorbent respectivement 31.4% et 145.1% d'eau respectivement après 24h d'immersion. Parmi toutes les agro ressources étudiées, le panneau de chènevotte est celui qui absorbe le plus d'eau. Cette différence importante pourrait provenir de la forte porosité intra-particulaire des granulats de chènevotte ainsi que des différences de compositions chimiques entre les matières végétales.

- La deuxième hypothèse est liée à la qualité de la dispersion de la paraffine au sein du composite. Dans le cas des panneaux isolants à base de bois, la finesse des fibres permet une application homogène dans la masse du panneau. En revanche, dans le cas des granulats de chènevotte, la paraffine ne peut être appliquée qu'à la surface du granulat, ce qui laisse la porosité intra-particulaire facilement accessible à l'eau.
- La dernière hypothèse est liée à l'utilisation de résines pMDI qui pourraient favoriser la diminution de l'absorption d'eau. Pan *et al.* (Pan, Zheng, Zhang, & Jenkins, 2007) ont étudié l'absorption à l'eau de panneaux de particules de bois liés avec 7% de résine UF et 4% de résine pMDI. Pour ces deux panneaux utilisant les mêmes particules de bois, les valeurs d'absorption à l'eau après 24h d'immersion sont respectivement 81.86% et 48.22 %. Les résines pMDI réagissent avec les groupements hydroxyles de la cellulose amorphe, des hémicelluloses et des lignines pour former une structure réticulée comme cela a été mis en évidence dans l'étude de Bao *et al.* (Bao et al., 2003). La réduction du nombre de groupements hydroxyles disponibles ainsi que la réticulation des zones amorphes pourraient expliquer la forte différence d'absorption d'eau observée entre les panneaux de particules liés avec la résine UF et la résine pMDI. Il est possible que dans notre cas, la résine PAE utilisée ne contribue pas (ou peu) à la réaction de réticulation des constituants de la matière végétale.

Ces hypothèses pourraient expliquer pourquoi les panneaux isolants en fibre de bois liées avec des résines pMDI et comprenant une faible part de paraffine ont une valeur d'absorption d'eau à court terme beaucoup plus faible que celle des composites développés dans cette thèse.

Cette partie a permis de montrer l'influence de la paraffine sur l'absorption à l'eau des composites. En revanche, des questions se posent quant à l'influence de la paraffine sur les propriétés hydriques des composites. La partie suivante traite cette thématique.

IV.2.3.2 Etude de l'influence de l'hydrofugation sur la valeur tampon hydrique

(a) Formulations testées et préparation des éprouvettes

Pour cette étude, une nouvelle série de panneaux a été fabriquée par thermopressage selon la méthode décrite dans la partie IV.1.2. Deux grades commerciaux de chènevottes sont utilisés : le grade de chènevottes bâtiment Biofibat® et un grade de chènevottes fines Isofin® tamisées avec des grilles de 2 mm de diamètre (G2) (Cavac Biomatériaux, France). Le liant utilisé est la référence C30%, composée de 70% de mélasse et 30% de PAE (proportions sèches). L'émulsion de paraffine est mélangée avec le liant avant l'application sur les granulats de chènevotte. Les formulations testées pour cette étude sont présentées dans le tableau ci-dessous.

Tableau IV-10 : Formulations étudiées (deuxième série de panneaux)

Panneau	Facteurs étudiés	Teneur volumique en chènevotte (kg/m ³)	Paraffine (%)	Réticulant (%)	Composition du panneau (m/m%)				
					Chènevotte		Liant		Paraffine
N°					REF	%	REF	%	%
P1	- Taille des granulats - Proportion massique de paraffine	170	0%	2.4%	Biofibat	92.0%	C30%	8.0%	0%
P2		170	2%	2.4%	Biofibat	90.0%	C30%	8.0%	2%
P3		170	4%	2.4%	Biofibat	88.0%	C30%	8.0%	4%
P4		240	0%	2.4%	Isofin	92.0%	C30%	8.0%	0%
P5		240	2%	2.4%	Isofin	90.0%	C30%	8.0%	2%
P6		240	4%	2.4%	Isofin	88.0%	C30%	8.0%	4%
P7	Proportion massique de réticulant	240	2%	4.8%	Isofin	82.0%	C30%	16%	2%

Trois échantillons de dimensions 100 mm x 100 mm x 50 mm sont découpés dans les panneaux pour réaliser les mesures de valeurs tampon hydrique suivant la méthode décrite dans la partie II.1.3.2.

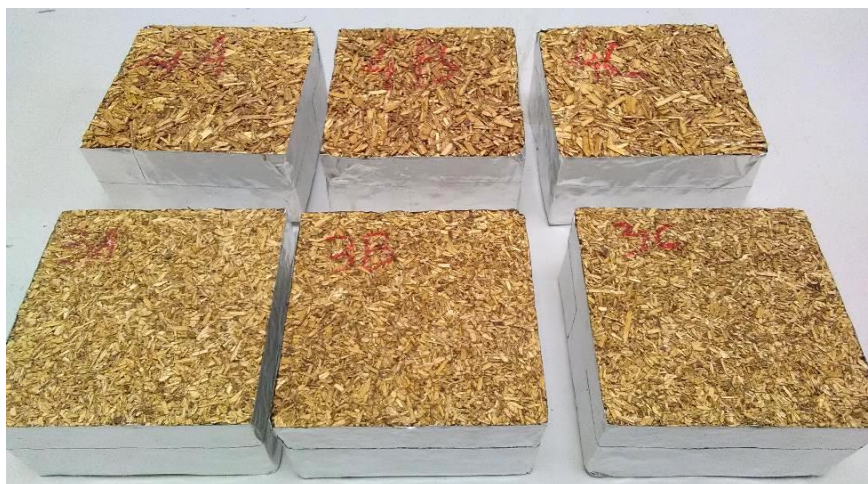


Figure IV-23 : Echantillons étanchés pour la mesure du MBV

(b) Résultats et discussion

L'annexe D rassemble l'ensemble des valeurs MBV mesurées pour chaque composite.

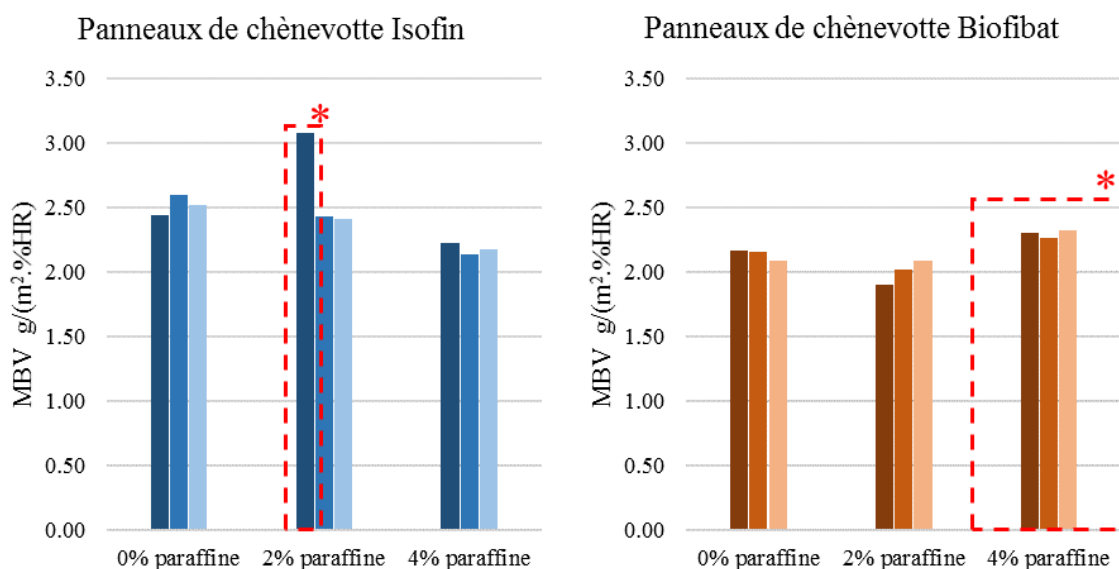


Figure IV-24: Effet de la paraffine et de la taille des granulats de chènevotte sur le MBV

(Pour chaque formulation, la mesure est réalisée sur trois échantillons. Les valeurs de MBV moyennes mesurées pour les trois échantillons ont volontairement été représentées séparément pour pouvoir observer les tendances).

La Figure IV-24 présente les valeurs tampon hydrique des panneaux rigides de chènevotte comprenant différentes proportions de paraffines et tailles de granules. L'augmentation de la quantité de paraffine implique une faible augmentation de la masse volumique du panneau et une faible diminution de la valeur MBV. La taille des granules de chènevotte influence la masse volumique du composite (approx 150 kg/m³ et 220 kg/m³ pour les composites issus des chènevottes Biofibat et Isofin) et la valeur MBV. Les valeurs MBV sont plus élevées pour les fines particules. Ce constat intéressant est lié à l'augmentation de la surface d'absorption (teneur en particules végétales plus élevée et taille des particules plus petites).

L'impact de la proportion de réticulant sur le MBV est illustré sur la Figure IV-25. Il ne semble pas significatif.

**Les valeurs mesurées sur les échantillons réalisés avec la chènevotte Biofibat contenant 4% de paraffine et sur l'échantillon réalisé avec la chènevotte Isofin (2% de paraffine et 2.4% de réticulant) ont pu être surestimées à cause d'un problème d'adhésion entre l'adhésif d'aluminium utilisé pour étancher les faces et les échantillons. L'adhésif ayant tendance à se décoller, il se peut que la surface d'échange ait été augmentée. Ainsi, ces valeurs ne sont probablement pas représentatives des MBV de ces composites.*

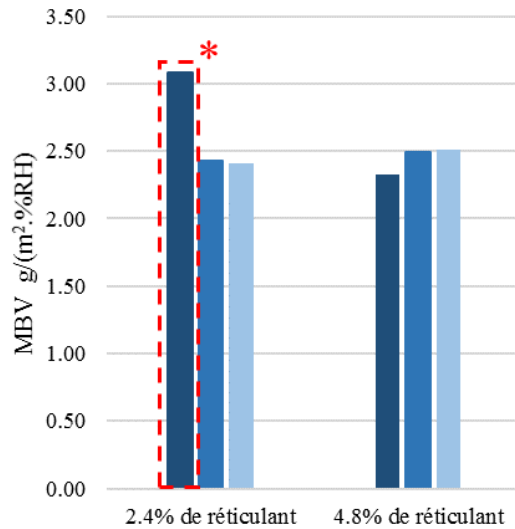


Figure IV-25 : Effet de la proportion de réticulant sur le MBV

La Figure IV-26 compare les MBV des composites de chènevotte avec les valeurs obtenues sur les agro-ressources en vrac. Les résultats montrent que les composites sortent légèrement de la tendance observée pour les agro-ressources. Il semblerait que l'étape de thermocompression nécessaire à la fabrication des composites pénalise légèrement le MBV. Cela pourrait être lié à une diminution de la porosité intraparticulaire engendrée par la compression des granulats lors de l'étape de fabrication ainsi qu'une perte de perméabilité induite par le liant. Malgré cette diminution, les MBV des composites réalisés avec la chènevotte biofibat étant proche de 2 g/(m²·%HR), les panneaux peuvent être considérés comme des bons ou des excellents régulateurs hydriques selon la classification du Nordtest Project. Les composites réalisés avec la chènevotte Isofin, y compris ceux comprenant de la paraffine, ont des MBV supérieures à 2 g/(m²·%HR). Ils sont donc des excellents régulateurs hydriques.

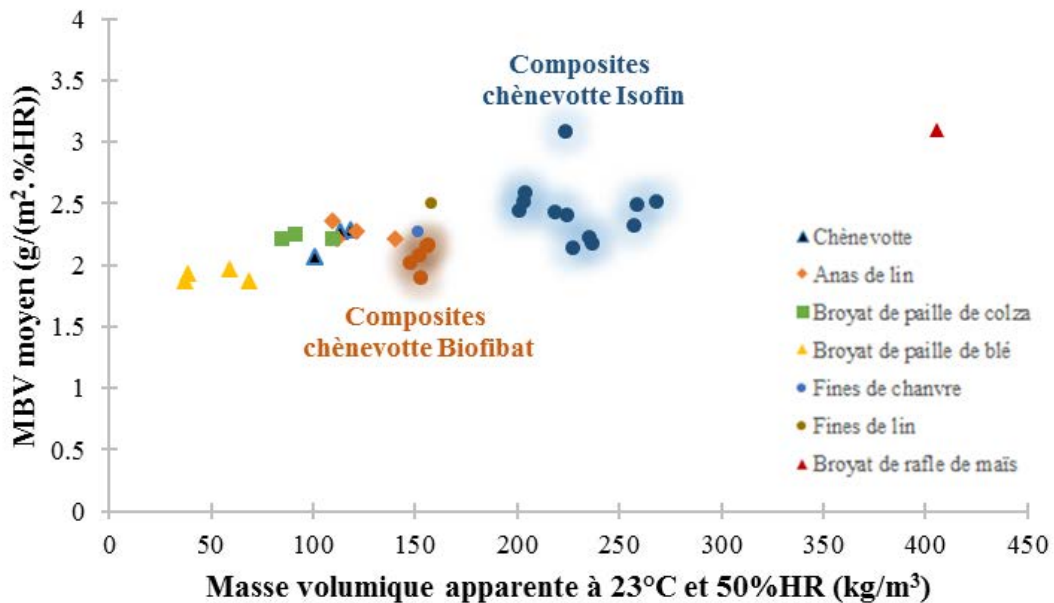


Figure IV-26 : Comparaison des MBV des composites avec les MBV des agro ressources en vrac

IV.3 Conclusion du chapitre IV

La première partie de ce chapitre est centrée sur la recherche d'un procédé de mise en forme pour fabriquer les panneaux rigides isolants. Deux procédés impliquant des conditions de traitement thermique et mécanique différentes ont été envisagés. Les essais menés sur le four industriel de Cavac Biomatériaux ont fort logiquement permis de montrer que le temps de chauffe nécessaire est directement lié à la teneur en eau initiale du mat. La fabrication du panneau autolié à partir des broyats de paille de blé nécessite un ajustement du ratio liquide/solide et de la pression de compactage lors de l'étape du traitement thermique. Ces conditions n'ont pas pu être atteintes à l'aide du four industriel dans la plage de masse volumique visée. Cette étude montre d'une part, qu'à l'aide du procédé humide, il est difficile de contrôler la masse volumique apparente du composite et d'autre part, que le procédé requiert un traitement thermique important pour sécher le panneau à cœur. Cette dernière problématique montre que le procédé humide ne convient que pour la fabrication de panneaux isolants de faible épaisseur et sur une étroite plage de masses volumiques. L'utilisation d'un liant thermodurcissable a permis de réduire la teneur en eau initiale du mat et donc le temps de chauffe requis pour atteindre la cohésion du panneau. En revanche, la pression appliquée par les tapis de convoyage dans le four industriel n'était pas suffisante pour atteindre la masse volumique visée. Cette problématique a pu être résolue en ajoutant une étape de pré-pressage du mat, ce qui a permis d'obtenir un composite répondant aux objectifs en terme de masse volumique avec une bonne cohésion. Ces résultats ont finalement montré que le four industriel de Cavac Biomatériaux n'est pas adapté pour la production de panneaux rigides isolants mais que le traitement thermique par air chaud reste une piste envisageable.

Le procédé de thermopressage s'est avéré être plus adapté pour la fabrication de panneaux de chènevotte de faibles masses volumiques apparentes. En effet, la masse volumique du panneau a pu être facilement contrôlée et réduite jusqu'à 150 kg/m^3 . Le liant biosourcé thermodurcissable formulé dans le chapitre précédent a permis d'apporter une cohésion suffisante au panneau même pour des faibles masses volumiques, et cela, avec des temps de fabrication usuels. Cette observation valide la compatibilité du liant avec le procédé de mise en forme. Le temps de chauffe a été considérablement réduit grâce à la réduction de la teneur en eau du mat avant traitement thermique. L'étude a montré que la proportion de réticulant dans le liant influence la capacité du panneau à supporter l'effet « spring-back » (retour élastique) à l'ouverture de la presse. Le réticulant est donc essentiel pour atteindre l'épaisseur finale et la masse volumique ciblées avec ce procédé.

La deuxième partie de ce chapitre s'est focalisée sur la caractérisation des propriétés de différents types de composites à liants organiques avec quelques éléments de comparaison avec les propriétés évaluées en présence de liants minéraux.

Dans le cas des composites à liant organique thermopressés, l'étude de l'influence de la formulation a montré que les propriétés mécaniques du composite dépendent principalement de la masse volumique apparente et de la proportion de réticulant. Les propriétés mécaniques du panneau rigide isolant de chènevotte ont largement dépassé les exigences mécaniques de ce type de produit. A titre de comparaison, les panneaux rigides isolants en bois présentent généralement une résistance en compression à 10% de déformation de 0.2 MPa alors que celles mesurées sur les panneaux de chènevotte peuvent dépasser 1 MPa pour une masse volumique équivalente.

La caractérisation de la conductivité thermique des panneaux a permis de montrer que ce type de composite présente des performances intéressantes pour l'isolation des bâtiments avec des valeurs comprises entre 0.050 et 0.060 W/(m.K) (méthode fluxmétrique au point sec). Les conductivités thermiques des panneaux ont été comparées avec les valeurs mesurées sur les agro ressources en vrac et

celles obtenus avec les panneaux composites utilisant un liant minéral. Les résultats montrent une augmentation de la conductivité thermique qui pourrait être liée à la fois à une diminution de la porosité inter-granulaire mais aussi à une diminution de la porosité intra-granulaire par déformation du granulat lors de l'étape de thermocompression.

Dans une seconde étude des composites utilisant le liant biosourcé thermodurcissable, l'incorporation d'un additif hydrofugeant a permis de réduire la capacité d'absorption d'eau liquide des composites en empêchant l'absorption par capillarité. Cependant, le traitement n'a pas permis d'empêcher la pénétration de l'eau liquide dans la zone immergée du composite. Plusieurs hypothèses ont été émises afin d'expliquer cette différence de comportement par rapport aux panneaux isolants de bois. La forte absorption d'eau du panneau pourrait être due à la microstructure très poreuse des granulats de chènevotte et à la mauvaise dispersion de la paraffine dans la masse du panneau. De plus, les données identifiées dans la littérature ont montré que l'utilisation des résines pMDI pourrait contribuer à réduire l'absorption d'eau. Dans notre cas, l'augmentation de la proportion de réticulant a faiblement contribué à réduire l'absorption d'eau et la saturation de la porosité par l'eau est notée dans la zone immergée.

Dans le cas de composites à liant organique thermopressés formulés avec différents grades de chènevotte et en présence d'hydrofuge, les mesures des valeurs tampon hydrique ont montré que l'addition de la paraffine ne pénalise pratiquement pas les propriétés hygroscopiques du matériau. Les composites conservent leurs excellentes propriétés de régulation de l'air ambiant. Cependant, il a été identifié que, de la même manière que pour la conductivité thermique, l'étape de thermocompression pourrait pénaliser la valeur tampon hydrique par modification de la porosité intra-granulaire des agro-ressources et de leur résistance à la diffusion de la vapeur d'eau.

Dans ce chapitre, nous avons donc identifié un procédé de mise en forme compatible avec la fabrication du panneau rigide sur un outillage de laboratoire. Par ailleurs, les paramètres clés influençant les performances mécaniques et hygrothermiques des composites à base de liant organique ont pu être déterminés. La suite des travaux devra donc se focaliser sur la recherche d'un outil industriel qui soit adapté à la production du panneau rigide isolant de chènevotte.

Chapitre V Transposition industrielle de la fabrication du panneau rigide isolant

Cette partie présente les essais industriels qui ont été menés afin d'identifier le procédé et l'outillage industriel adapté à la production du panneau composite rigide à base de liant organique développé dans les chapitres précédents. Les objectifs de ce travail sont maintenant d'évaluer la compatibilité de la formulation du composite avec le procédé industriel de fabrication et d'identifier les paramètres critiques de mise en forme. Trois essais sont présentés :

- Essais de production sur thermopresse à double bande continue,
- Essais de production sur thermopresse industrielle à plateaux chauffants,
- Essais de production sur ligne industrielle utilisant un procédé de thermopressage semi-continu.

V.1 Essais de production sur presse à double bande continue

V.1.1 Matériaux, matériels et méthodes

V.1.1.1 Formulations testées et méthode de mélange

Pour ces essais, un grade commercial de chènevotte Biofibat® est utilisé. Le liant biosourcé thermodurcissable utilisé correspond à la formulation C30% (70% de mélasse sec et 30% de PAE sec) dont la concentration solide est ajustée à 40%_m.

Un mélangeur à socs (WAM, France) est utilisé pour réaliser le mélange de la chènevotte avec le liant (Figure V-1). Le liant préalablement fabriqué par mélange des composants liquides est dispersé dans le mélangeur sous une pression de 5 bars à l'aide d'une buse de pulvérisation. Le mélangeage est assuré pendant quatre minutes.



Figure V-1: Mélangeur à socs utilisé pour appliquer et mélanger le liant avec la chènevotte a. mélangeur (vue extérieure), b. pales et buse de pulvérisation (vue intérieure)

V.1.1.2 Conformation continue du mat par saupoudrage

Le mat de chènevotte encollée est formé sur le tapis de convoyage à l'aide d'une unité de saupoudrage Schott & Meissner illustrée Figure V-2. Cette technologie est normalement utilisée pour disperser en continu des poudres sur un tapis de convoyage. Elle peut être adaptée à différentes tailles de particules. La quantité de matière saupoudrée sur le tapis est contrôlée en ajustant la vitesse de rotation du saupoudreur ainsi que la vitesse de convoyage. Pour ces essais, la masse surfacique visée est de 9.5 kg/m^2 , de sorte que le panneau ait une masse volumique apparente comprise entre 170 et 190 kg/m^3 après pressage à 50 mm d'épaisseur. Ainsi, avant de débiter les essais de thermopressage, la vitesse de saupoudrage et la vitesse de convoyage ont été préalablement étalonnées afin de saupoudrer la bonne quantité de matière.



Figure V-2 : Unité de saupoudrage utilisée pour former en continu le mat sur le tapis de convoyage

Source du schéma : (Schott & Meissner, 2019)

V.1.1.3 Unités préchauffage et de thermopressage

La ligne pilote de fabrication (Figure V-3) est composée de deux unités de chauffage. La première, illustrée Figure V-4, est une unité de préchauffage/séchage où la chaleur est apportée par un flux d'air chaud passant au travers du mat. La distance entre le tapis supérieur et inférieur peut être contrôlée pour calibrer l'épaisseur du mat. En revanche, cette unité n'est pas conçue pour appliquer de fortes pressions. De manière similaire au four de Cavac Biomatériaux présenté dans le chapitre précédent, le débit d'air chaud et la température de l'air peuvent être ajustés.



Figure V-3 : Ligne pilote utilisée pour tester la fabrication en continu du panneau rigide de chènevotte.

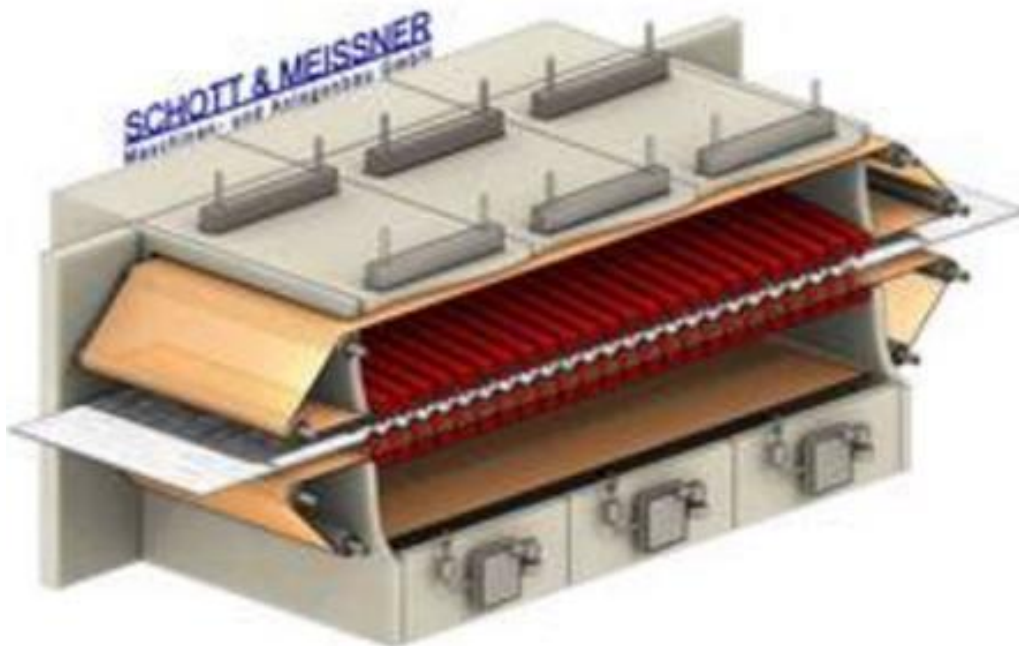


Figure V-4: Unité de préchauffage/séchage par air chaud (Schott & Meissner, 2019)

L'étape de thermo-pressage est réalisée à l'aide d'une presse à double bandes (Thermofix®, Schott & Meissner) illustrée Figure V-5. L'unité thermofix® est composée d'une zone de chauffage d'une longueur de 2 m où pression et chaleur de contact sont appliquées simultanément au matériau, et d'une zone de refroidissement où la pression est maintenue. Dans la zone de chauffe, l'ouverture de la presse peut être contrôlée de telle sorte que la pression soit appliquée progressivement.

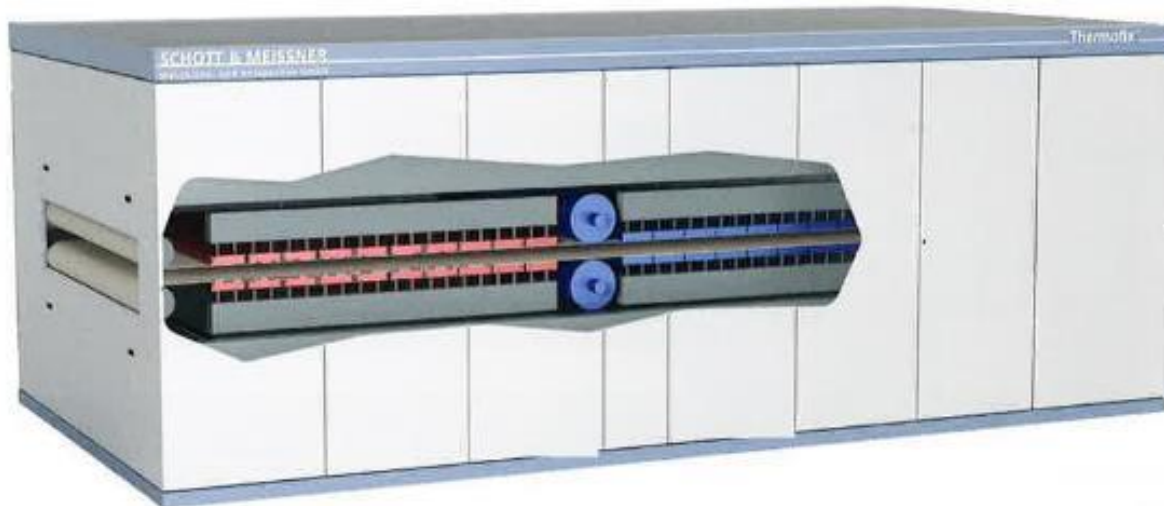


Figure V-5: Unité de thermopressage Thermofix® (Schott & Meissner, 2019)

V.1.2 Résultats et discussion

La liste des configurations testées est présentée dans l'annexe E. L'annexe présente les observations et les interprétations sur le déroulement des opérations associées à chaque configuration testée. Comme cet outil industriel n'a jamais été utilisé pour fabriquer ce type de panneau rigide, les configurations sont testées de manière empirique en se basant sur les résultats des tests antérieurs, les observations et les interprétations.

Ces essais industriels menés sur la thermopresse continue ont permis d'identifier plusieurs paramètres critiques de fabrication pour produire le panneau rigide de chènevotte. Ils ont également permis de valider plusieurs étapes du procédé de fabrication.

La dispersion du liant sur la chènevotte à l'aide du mélangeur à socs est parfaitement homogène, ce qui valide d'une part la capacité de pulvérisation du liant développé dans le chapitre III et d'autre part, le choix de l'outil de mélange. Bien que les essais aient été menés à l'aide d'un mélangeur par batch, le fabricant propose le même type de mélangeur en continu, ce qui confirme la possibilité de transposer cette étape à l'échelle industrielle.

L'unité de saupoudrage a pu être adaptée aux granulats de chènevotte (particules de plus de 20 mm de long) ce qui a permis de produire un mat continu et homogène sur le tapis de convoyage. Le tack du liant (caractère collant des granulats encollés) ne semble pas influencer l'étape de conformation du mat. Les essais ont montré que, même pour des hautes vitesses de convoyage, l'unité de saupoudrage permet de disperser la quantité surfacique désirée de chènevotte encollée sur le tapis de convoyage.

Pour l'étape de traitement thermomécanique, les premières configurations testées en continu (vitesses de transport de plus en plus faibles) n'ont pas permis d'obtenir une cohésion suffisante du panneau, expliquée par une hausse de température trop limitée au sein du panneau. Le procédé a donc été étudié

en discontinu, avec des phases d'arrêt, afin d'identifier les conditions critiques de mise en forme. Après optimisation des paramètres (température du four, débit d'air, temps d'arrêt, profils de calibrage...), ces essais ont finalement permis d'aboutir à fabrication du premier panneau rigide de chènevotte sur outillage industriel. L'étude des paramètres critiques a permis de mettre en évidence plusieurs problématiques associées à l'outillage utilisé mais aussi à la formulation du matériau. Les paramètres sont synthétisés ci-dessous :

Temps de chauffe : En utilisant la vitesse minimale de convoyage de la ligne (0.2 m/min), la zone de chauffe de l'unité de thermopressage (2m de longueur) n'est pas suffisamment longue pour apporter le temps de chauffe nécessaire à la réticulation du liant. En effet, les essais menés sur la thermopresse de laboratoire (chapitre IV) ont montré qu'un temps de chauffe de 900 s (18 s/mm d'épaisseur) était nécessaire pour réticuler entièrement un panneau dont l'épaisseur est de 50 mm. Le problème de manque de cohésion a été résolu en arrêtant le convoyage lorsque la matière se trouvait dans la zone de chauffe de la thermo-presse. Un temps d'arrêt de 900s a été utilisé, ce qui se traduit par un temps spécifique de chauffe de 30 s/mm en prenant en compte le temps de convoyage et le temps d'arrêt. L'optimisation des paramètres pourrait permettre éventuellement d'atteindre un temps spécifique de 18 s/mm. Cependant, ces observations montrent que la longueur idéale de la zone de chauffe doit être significativement augmentée afin d'être compatible avec des vitesses de production réalistes (au moins 2 m/min).

Profil de compression : Des difficultés ont été rencontrées pour faire entrer le mat dans la thermo presse. Pour une épaisseur finale visée de 50 mm, l'ouverture maximale à l'entrée de la presse est de 60 mm. Cependant dans notre configuration, le mat après conformation présente une hauteur proche de 100 mm, ce qui implique un refoulement de matière à l'entrée de la thermopresse comme illustré Figure V-6. Cela explique pourquoi les panneaux en sortie de thermopresse n'avaient pas la masse volumique désirée et donc la cohésion attendue. Cette problématique a été résolue en utilisant l'unité de préchauffage pour pré-presser le mat à 60 mm avant l'entrée dans la thermopresse. Les résultats montrent que l'utilisation d'une étape de prépressage ou d'une technologie permettant de réduire/calibrer progressivement l'épaisseur du mat avant l'application du traitement thermique est nécessaire pour produire le panneau rigide de chènevotte à l'aide d'un procédé continu.



Figure V-6 : Refoulement de la matière à l'entrée de la thermopresse

Une autre problématique importante est liée à la capacité de compression de la presse utilisée. En effet, le protocole de fabrication des échantillons a montré que pour atteindre une masse volumique proche de 200 kg/m³, la pression de compactage du mat doit être approximativement de 0.25 MPa, ce qui est proche de la capacité maximale de la presse d'après le fabricant.

Teneur en humidité : Un effet important de la teneur en humidité du mat avant pressage à chaud a clairement été identifié. En effet, aucune cohésion n'a pu être obtenue au cœur des panneaux sans séchage préalable de la chènevotte et ce, même pour des panneaux de faibles épaisseurs (25mm). Dans le cas d'une fabrication sur outillage de laboratoire, cette problématique est difficilement identifiable puisque la vapeur d'eau peut être évacuée par les bords du panneau lors de l'étape de thermopressage. En revanche, les panneaux de tailles industrielles ne permettent pas cette évacuation par les côtés, ce qui implique une augmentation importante de la pression de vapeur d'eau au cœur du panneau. L'effet de la taille des panneaux sur la pression interne de vapeur d'eau a déjà été identifié par Cai *et al.* (Cai, Birkeland, Wescott, O'Dell, & Winandy, 2009). L'étude montre les difficultés à reproduire les conditions d'une production industrielle sur des équipements de laboratoire. Dans le cas de la fabrication industrielle des panneaux de bois (MDF, OSB et PB etc.), le mat avant pressage a généralement une teneur en humidité inférieure à 15%MC, ce qui comprend la teneur en humidité du liant et l'humidité initiale de la particule avant encollage. Le tableau suivant compare les données les teneurs en humidité théoriques entre un panneau de particule (encollé avec une résine UF) et le panneau rigide de chènevotte sans pré-séchage. Le tableau montre bien qu'il y a une différence importante des teneurs en humidité entre le mat de chènevotte encollée avec le liant biosourcé et le mat de particules de bois encollées avec la résine UF. Pour les mêmes proportions sèches liant/granulats, les teneurs en humidité théoriques sont respectivement 24 et 10.7 % $m_{\text{eau}}/m_{\text{sèche}}$. Cela explique pourquoi pour les premières configurations testées, le panneau de chènevotte reste toujours humide à cœur, même lorsque l'épaisseur du panneau est réduite à 25mm. Ces problématiques ont été résolues en pré-séchant la chènevotte à l'aide de l'unité de préchauffage avant d'appliquer le liant (Figure V-7) et en augmentant la teneur solide du liant.

Tableau V-1 : Comparaison théorique de la teneur du panneau rigide de chènevotte et d'un panneau de particules de bois/ UF avant pressage

Composition du mat		Masse sèche	Masse d'eau
99g	Chènevotte non séchée : teneur en eau initiale de 10% $m/m_{\text{sèche}}$	90g	9g
25g	Liant biosourcé concentré à 40% de solide	10g	15g
Teneur en humidité avant pressage		24.0%	
Composition du mat		Masse sèche	Masse d'eau
94g	Particules de bois séchées à 4% d'humidité (% $m/m_{\text{sèche}}$)	90g	4g
16.7g	Liant UF concentré à 60% de solide	10g	6.7g
Teneur en humidité avant pressage		10.7%	

L'optimisation des paramètres de production a permis de fabriquer un panneau rigide avec une bonne cohésion à cœur en respectant les étapes suivantes :

- Pré-séchage de la chènevotte à l'aide de l'unité de préchauffage
- Récupération des particules de chènevotte séchées et encollage dans le mélangeur. La teneur en solide du liant a été augmentée de sorte à réduire la teneur en eau dans le mat avant pressage sans noter de problèmes de dispersion du liant.
- Pré-pressage d'un mat à 60 mm à l'aide de l'unité de préchauffage. Cette étape permet d'introduire le mat dans l'unité de thermopressage.
- Thermopressage du panneau à 50 mm et 190°C dans l'unité de thermopressage. Le convoyage du panneau est arrêté pendant 900s dans la zone de chauffe de la thermopresse.
- Convoyage, refroidissement et récupération du panneau à la sortie de l'unité thermopressage.



Figure V-7 : Séchage de la chènevotte à l'aide de l'unité de préchauffage



Figure V-8 : Pré-pressage du mat à l'aide de l'unité de préchauffage



Figure V-9 : Panneau rigide de chènevotte obtenu après optimisation des paramètres

V.1.3 Optimisation du procédé de mise en forme

En prenant en considération les résultats obtenus lors de cet essai industriel, le procédé de fabrication adapté à la production de panneau rigide isolant de chènevotte devra inclure les étapes suivantes :

- **Séchage des particules de chènevotte** à l'aide d'un séchoir continu de type flash ou à tambour afin de réduire la teneur en humidité de la chènevotte à une valeur proche de 3%MC.
- **Application/Mélange** du liant à l'aide d'un mélangeur à socs continu comprenant des buses de pulvérisation. La teneur en humidité des particules de chènevotte encollées ne devra pas dépasser 15%MC.
- **Conformation du mat** par saupoudrage. Le conformateur de mat devra permettre de disposer au moins 10 kg/m² pour une vitesse de convoyage de 2-3 m/min. Dans le cas contraire, des unités de saupoudrages supplémentaires seront requises.
- **Etape de prépressage** à l'aide d'une prépresse continue telle que celles utilisées pour l'industrie des panneaux MDF, OSB ou de particules. Un préchauffage optionnel (vapeur, micro-ondes ou air chaud) pourrait permettre de préchauffer le cœur du panneau à 70°C et donc de réduire le temps de chauffe nécessaire. Il faudra cependant que cette étape ne fasse pas pré réticuler le liant.
- **Thermopressage** : Plusieurs types d'outils industriels pourraient permettre de réaliser cette étape. Ils doivent cependant permettre un temps de chauffe suffisamment long pour réticuler le panneau à cœur et d'appliquer simultanément une pression minimale de 0.25 MPa à la surface du panneau. Dans le cas d'un procédé continu, le temps de chauffe peut nécessiter une zone de chauffe dont la longueur est supérieure à 30 m (pour être compatible avec une vitesse de production proche de 2 m/min) ou un système permettant d'accélérer la réticulation au cœur du panneau (injection de vapeur). Ce type de thermopresse continue existe déjà comme par exemple la presse continue Contiroll® de Siempelkamp utilisée pour la production en continu de panneau MDF, OSB et de particules. Il s'agit de la presse la plus rapide pour ce type de panneaux qui permet une production à 2 m/min et peut atteindre 77 m de long. Cependant, ce type de presse nécessite un investissement très important et peut être surdimensionnée pour la production du panneau rigide de chènevotte. Une autre solution plus facile d'accès serait d'utiliser un outillage utilisant un procédé semi continu tel que les presses à plateaux chauffants multi-étages qui permettent la production simultanée de plusieurs panneaux sans pour autant nécessiter l'utilisation d'un four dont la zone de chauffe est supérieure à 15 m. Ce procédé convient parfaitement aux petits et moyens volumes de production. Une dernière solution pouvant convenir à la fabrication du panneau rigide de chènevotte serait l'utilisation d'un four de calibration utilisant un système de chauffage par air chaud et vapeur d'eau tel que le four Contitherm® de Siempelkamp présenté dans le chapitre I. Ce four pourrait permettre de réticuler rapidement le liant au cœur du panneau. Cependant, la compatibilité de ce type de four avec le liant biosourcé développé dans le chapitre III reste à vérifier, car il est généralement utilisé pour les composites utilisant des liants pMDI à faible température de réticulation et dont la réactivité avec l'eau est très élevée.

V.2 Essais de production sur presse industrielle à plateaux chauffants

Cette partie présente l'outillage industriel et le procédé utilisé pour les produire les panneaux rigides de chènevotte pour le projet Européen ISOBIO. Les essais précédents ont montré que la teneur en humidité dans le mat, l'étape de pré-pressage, le maintien de la pression et le temps de chauffe sont les paramètres déterminants pour produire le panneau sur un outillage industriel. En revanche, il n'est pas aisé d'accéder à ce type d'outil industriel continu permettant de contrôler l'ensemble des paramètres. C'est pourquoi nous avons choisi de tester la production de panneaux rigides isolants sur une thermopresse industrielle. Les objectifs de ces essais sont :

- La validation de la possibilité de produire le panneau rigide de chènevotte isolant sur ce type d'outillage
- La validation des interprétations proposées dans la partie précédente
- La production de 85 panneaux rigides isolants de chènevotte prototypes (cadre du projet ISOBIO)



Figure V-10 : Thermopresse industrielle utilisée pour le prototypage des panneaux rigides isolants de chènevotte

V.2.1 Matériel et méthodes

V.2.1.1 Séchage de la chènevotte

Une tonne de chènevotte biofibat® (Cavac Biomatériaux, France) a été séchée à l'aide d'un séchoir industriel à tambour rotatif pour particules de bois, tel qu'illustré sur la Figure V-11. La teneur en eau après séchage a été contrôlée inférieure à 2%.



Figure V-11 : Séchoir à tambour rotatif pour particules de bois (S. Zhang, 2016)

V.2.1.2 Formulations et mélanges liant/granulats

Afin de réduire au maximum la teneur en eau du mat avant pressage, la formulation du liant a été révisée. Nous avons choisi de garder le même principe de liant biosourcé thermodurcissable composé d'une matrice biosourcée et d'un réticulant (le PAE), sauf que nous avons choisi ici d'utiliser une matrice solide plutôt que la mélasse qui se présente sous forme de solution. Des essais préliminaires de fabrication menés en laboratoire suivant la méthode décrite dans la partie II.1.2.3, ont montré qu'il était possible d'appliquer le liant sur les particules de chènevottes en deux temps :

- La matrice solide est préalablement mélangée avec les particules de chènevotte.
- Puis le réticulant (la résine de PAE) est appliqué dans un deuxième temps par pulvérisation.

Pour ces essais, la matrice choisie est le dérivé d'amidon Stabilys A046 (Cf. Chapitre III). Afin de réduire la sensibilité à l'eau liquide du composite, une émulsion de paraffine a été ajoutée dans la formulation du panneau. L'émulsion de paraffine, non ionique PD 170077.2 (GOVI, Belgique) est mélangée préalablement avec la résine de PAE avant application dans le mélangeur. Un mélangeur à socs WAM, identique à celui utilisé dans la partie précédente, est choisi pour réaliser le mélangeur particule/liant car nous avons vu qu'il permet d'obtenir une dispersion homogène. La composition du panneau est présentée dans le Tableau V-2.



Figure V-12 : Introduction de la chènevotte avec la matrice biosourcée dans le mélangeur

Tableau V-2 : Détail de la formulation du composite

Matières/produits	Parts massiques	<i>Parts sèches</i>	<i>Parts d'eau</i>
Chènevotte (teneur en eau 1.53%MC)	159.0	156.6	2.4
Stabilys A046 (teneur en eau 5%MC)	12.9	12.3	0.6
Résine PAE (solution à 20% solide)	25.0	5.0	20.0
Emulsion de paraffine (solution à 20% solide)	4.6	2.8	1.9
Total	198.7	173.8	24.9

V.2.1.3 Conformation du mat et thermopressage

Un moule de dimension interne 1300 mm x 600 mm x 100 mm a été fabriqué. Il est constitué de deux parties : une partie femelle où la matière est introduite et dispersée pour former un mat homogène et une partie mâle directement installée sur la thermopresse. Après insertion dans la presse de la partie femelle contenant le mat, la partie mâle du moule fixée sur le plateau supérieur vient en butée réduire l'épaisseur du mat à l'épaisseur visée de 50 mm lors de la fermeture de la presse.



Figure V-13 : Illustration des étapes de fabrication des panneaux rigides isolants

Après quelques essais de calibrage, les panneaux ont été pressés à 190°C pendant 15min. Après démoulage, refroidissement et stabilisation, les panneaux ont été usinés de sorte à produire des profils rainurés et languettes facilitant leur assemblage sur le site. Dans le cadre du projet européen ISOBIO, les panneaux ont été installés dans deux démonstrateurs afin d'évaluer leurs performances thermohydriques en conditions réelles d'exploitation notamment dans le cas d'une isolation thermique par l'extérieur. Des images complémentaires sont présentées dans l'annexe F.

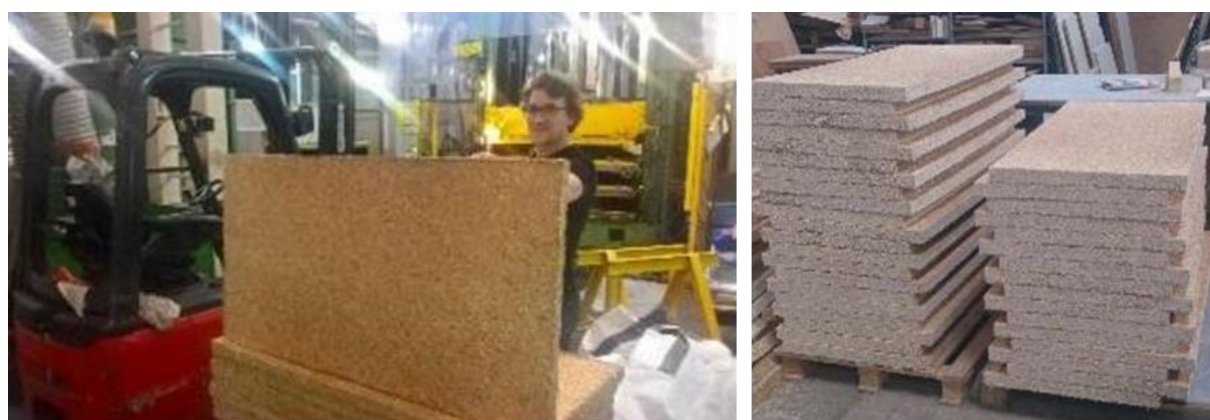


Figure V-14 : Panneaux isolants rigides de chènevotte de dimension 1.3 m x 0.7 m x 0.05 m



Figure V-15 : Usinage des panneaux pour la réalisation des profils rainures et languettes



Figure V-16 : Profils rainures et languettes des panneaux qui facilitent leur installation sur chantier (réduction des ponts thermiques)

V.2.2 Résultats et discussion

Les essais de fabrication menés sur la thermopresse industrielle sont concluants car ils ont permis de produire 85 panneaux rigides isolants. Leur masse volumique apparente de $200 \pm 20 \text{ kg/m}^3$ correspond à la plage de valeurs ciblées. Nous avons vu dans le chapitre IV que pour cette plage de valeur la conductivité thermique du composite est comprise en 0.055 et 0.06 W/(m.K).

Les hypothèses émises lors des premiers essais sur la thermopresse continue ont pu être validées, notamment l'effet de la teneur en eau sur la réticulation au cœur du panneau. Le séchage de la chènevotte avant application du liant a permis de réduire la teneur initiale du mat contrôlée à 11.4% MC, soit une valeur similaire à celles utilisées pour la fabrication des panneaux de particules de bois (entre 10 et 14% MC). Dans la configuration testée, la gestion de la teneur en eau du mat avant pressage est d'autant plus importante que le moule est entièrement fermé, ce qui ne permet pas l'évacuation de la vapeur d'eau lors de l'étape de thermo-pressage.

Trois problématiques ont cependant été identifiées au cours de ces essais :

Pré-réticulation du liant : Lors de l'étape de conformation du mat dans le moule femelle chauffé à 190°C, une pré-réticulation du liant avant pressage a été observée. En effet, le liant biosourcé thermosensibilisable polymérise sous l'effet de la chaleur apportée par le moule et les particules ne peuvent plus être liées pendant l'étape de thermopressage. Il en résulte un panneau dont la face pré-réticulée est très friable et les propriétés mécaniques du panneau sont fortement diminuées. Pour résoudre cette problématique, deux solutions ont été testées. La première a consisté à placer un voile en fibre de kevlar au fond du moule pour empêcher le contact direct entre le mat et le fond du moule. Cependant, cette solution ne s'est pas avérée suffisante pour empêcher la chaleur du moule de faire réagir la face inférieure du mat. La deuxième solution a consisté à refroidir le moule à une température inférieure à 50 °C avant chaque conformation du mat (refroidissement à l'eau). Cette solution a permis de résoudre la problématique de pré-réticulation. L'étape de refroidissement a donc été nécessaire entre chaque fabrication de panneau (Figure V-17).



Figure V-17 : Etape de refroidissement du moule avant conformation du mat

Gauchissement du panneau : Il a été observé que le panneau plan après démoulage se déformait au cours du refroidissement, et ce, même lorsque les deux faces du panneau avaient été ventilées de manière similaire. Cette déformation évoque un retrait non homogène. Le retrait différentiel au sein du panneau pourrait être expliqué par la différence de température entre le plateau supérieur et inférieur lors de l'étape de thermocompression. Bien que la consigne pour les deux plateaux soit identique, le moule inférieur est à une température inférieure à 50°C au moment de l'insertion dans la presse et le moule supérieur fixé sur le plateau supérieur est à 190°C. Cette différence de température engendre des gradients de température et de pression de vapeur d'eau non symétriques qui pourraient aboutir à une répartition non équilibrée de l'humidité dans le panneau. Après refroidissement, cette répartition non symétrique pourrait engendrer un retrait non symétrique entre des deux faces, et donc un gauchissement du panneau. Cette problématique n'a pas pu être résolue pour cette série de panneaux.

Non homogénéité de la température des plateaux chauffants : Un contrôle de la température des plateaux a été effectué en différentes positions après ouverture de la thermopresse. Les relevés ont montré une différence de température importante entre le centre du plateau, contrôlé à 190°C et les bords du plateaux, contrôlés à 175 et 185°C respectivement. L'effet de la différence de température peut être observé sur certains panneaux dont la partie centrale présente une bonne cohésion et une bonne déformation plastique des particules tandis que les extrémités sont plus friables et les surfaces plus rugueuses. Il est alors possible que la non-homogénéité de la température puisse entraîner une migration de la vapeur d'eau vers les extrémités du panneau et pénalise la réaction de réticulation et la déformation plastique des particules sous l'effet de la chaleur.

L'automatisation du procédé de fabrication avec cette thermo-presse multiétage a été étudiée et chiffrée pour envisager une production industrielle du panneau composite mais s'est avérée trop coûteuse par rapport aux rendements de production envisagés.

V.3 Essais de production sur ligne industrielle utilisant un procédé de thermopressage semi continu

Cette partie présente les essais de fabrication menés sur une ligne de thermopressage entièrement automatisée pour produire le panneau rigide isolant de chènevotte à l'échelle industrielle. Après avoir sollicité de nombreux industriels du bois pour tester la production sur outillage continu, une ligne industrielle complète potentiellement exploitable pour produire le composite souhaité a été identifiée. Certaines étapes du procédé de fabrication diffèrent cependant des procédés testés jusqu'ici. La compatibilité du procédé et de la ligne de fabrication avec la production industrielle du panneau rigide a cependant pu être évaluée.

V.3.1 Présentation du procédé de fabrication

Le schéma suivant illustre les différentes étapes de la ligne de fabrication. Cette ligne permet la fabrication de panneaux rigides depuis la réception des matières premières en vrac jusqu'aux produits finis. Les étapes encadrées en noir sont entièrement automatisées. La principale différence entre ce procédé de fabrication et celui testé dans la sous-partie précédente est que la ligne ne permet pas de sécher la chènevotte avant l'étape de thermopressage mais permet de sécher le panneau après fabrication. Les résultats ont montré jusque-là que pour notre formulation de panneau, il est plutôt favorable de sécher la matière avant application du liant pour ne pas pénaliser la réticulation au cœur du panneau. Cependant, la combinaison du thermopressage « humide » (chènevotte non séchée et encollée) suivi d'une étape de séchage n'a pas été encore testée.

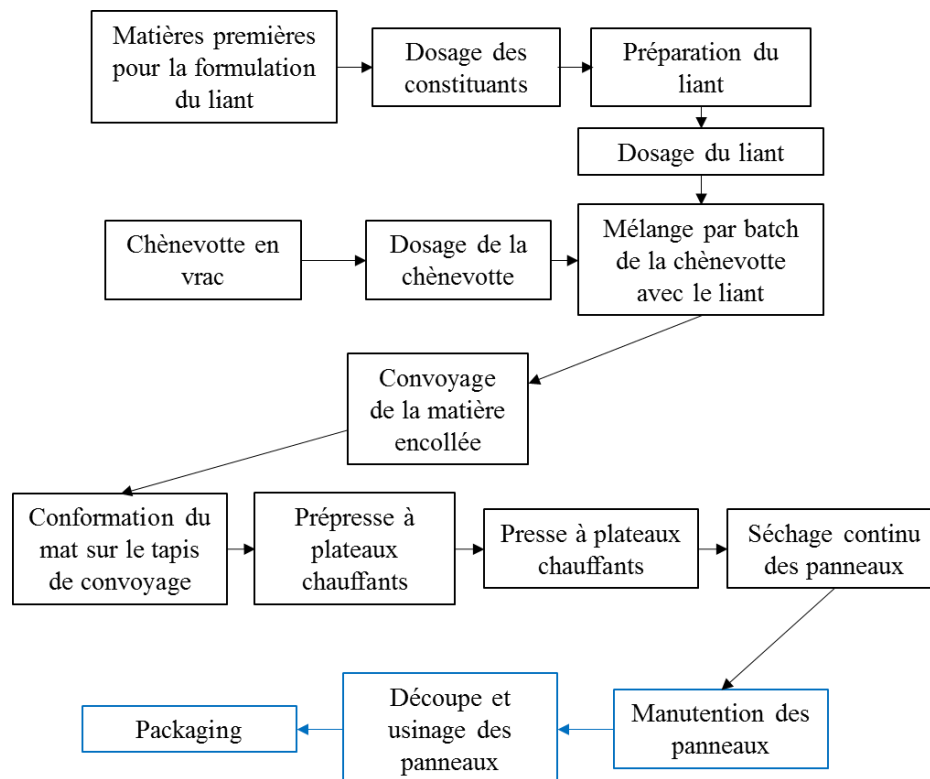


Figure V-18 : Schéma des étapes de fabrication de la ligne de production testée

Avant de tester la production du panneau de chènevotte sur la ligne industrielle, il est nécessaire d'évaluer la compatibilité du procédé avec notre formulation. Ces essais ont été menés sur la ligne pilote du fabricant et sont présentés dans la sous-partie suivante.

V.3.2 Validation des formulations et des paramètres sur la ligne pilote du fabricant

L'objectif de ces essais sur la ligne pilote est de valider la compatibilité du procédé avec la formulation du panneau et plus particulièrement d'évaluer la possibilité de produire le panneau par une étape de thermopressage suivi d'un séchage du panneau sans séchage préalable de la chènevotte. Le deuxième objectif est de déterminer si les mêmes paramètres de thermocompression utilisés dans les sous parties précédentes (température et temps de chauffe) sont compatibles avec ce procédé ou s'il est nécessaire de les réajuster.

Pour cela deux formulations sont testées. La première utilise de la chènevotte séchée pendant 12h à 105°C à l'aide d'un séchoir à air chaud et la deuxième utilise une chènevotte non séchée. La chènevotte utilisée pour ces essais n'est pas du Biofibat® car nous avons utilisé la chènevotte du fabricant dont les caractéristiques sont voisines. Les compositions des panneaux sont présentées dans le tableau ci-dessous.

Tableau V-3 : Formulations testées

	Chènevotte (%)	Liant C30%	
		Mélasses (% proportion sèche)	PAE (%proportion sèche)
Essai 1 : Chènevotte séchée pendant 12h à 105°C	89.9	7.07	3.03
Essai 2 : Chènevotte non séchée	89.9	7.07	3.03

La ligne pilote est composée de :

- Un mélangeur pour appliquer le liant sur les chènevottes, (similaire à ceux de la ligne industrielle). La préparation du liant est réalisée manuellement.
- Un saupoudreur pour la conformation du mat (similaire à celui de la ligne industrielle).
- Un système de convoyage du mat automatisé.
- Une pré presse à plateaux chauffants.
- Une presse à plateaux chauffants.
- Un séchoir à air chaud (similaire au séchoir continu de la ligne industrielle).

Le mat est comprimé à 40 mm à une température de 185°C pendant 900s. Pour ces essais, la prépresse a été utilisée pour réaliser l'étape de thermocompression. Il n'a pas été nécessaire d'utiliser la deuxième presse. Les panneaux après fabrication sont séchés pendant 30 min à 130°C.



Figure V-19 : Illustration des étapes de fabrication sur la ligne pilote

(a : préparation du liant ; b et c : introduction de la chènevotte et du liant respectivement dans le mélangeur ; d : introduction de la chènevotte encollée dans le saupoudreur ; e : conformation du mat sur le tapis de convoyage ; f : thermopressage du mat ; g : convoyage du panneau ; h : récupération du panneau en sortie de la ligne pilote)

Le panneau obtenu à partir de la formulation utilisant une chènevotte non séchée est encore très humide à cœur. Une faible réaction de réticulation semble avoir eu lieu mais la cohésion est suffisante pour ne pas induire de déformation lors du retour élastique après ouverture de la presse. Le panneau utilisant la chènevotte séchée est plus rigide et le cœur ne semble pas aussi humide. Après séchage des deux panneaux, les propriétés semblent similaires.

Ces essais montrent qu'il est possible d'utiliser une chènevotte non séchée si le panneau est séché après fabrication. On peut supposer que, pour des masses volumiques faibles comme celle du panneau rigide de chènevotte, les pressions de vapeur au cœur du panneau ne sont pas aussi importantes que dans le cas d'un panneau de particules. Ainsi le risque de délamination (« blowing », phénomène d'explosion liée à la pression de vapeur au cœur du panneau) est fortement diminué. Une autre caractéristique de ce procédé est que même si le liant n'a pas complètement réagi durant l'étape de thermo-pressage, la chaleur apportée lors de l'étape de séchage permet de compléter la réaction. Ces résultats sont encourageants car cela signifie que la formulation et le procédé de fabrication sont compatibles pour la production du panneau rigide isolant. Ainsi une production sur ligne industrielle est envisageable. La partie suivante présente ces essais.

V.3.3 Production sur la ligne industrielle du fabricant

L'objectif de cette partie est maintenant de tester le même procédé de fabrication à l'échelle industrielle.

V.3.3.1 Matériel et méthodes

Un grade de chènevotte Biofibat® a été utilisé pour ces essais. Le liant utilisé est composé de mélasse de canne et de PAE (résine Hercules CA1920). Le pH de la solution a été augmenté à l'aide d'oxyde de magnésium selon les recommandations du fournisseur de la résine afin d'augmenter la réactivité du liant (favorisée en milieu alcalin). Bien que la ligne permette le dosage et le mélange des constituants du liant de manière automatisée, la préparation a été réalisée manuellement pour des raisons pratiques. Les chènevottes sont encollées à l'aide de l'unité de mélange illustrée Figure V-20.a. Les proportions chènevotte/liant sec sont 89.7%:10.3%. La composition du liant est détaillée dans le tableau ci-dessous.

Tableau V-4 : Composition du liant

Composants	Teneur solide du produit/de la matière (%)	Parts massiques solides	Parts massiques d'eau (Provenant des solutions)	Teneur solide du liant (%)
Mélasse	73 %	70	26	44%
PAE	20 %	30	120	
MgO	100 %	15	0	

Après 4 min de mélange, le mélangeur est vidé automatiquement et la matière est convoyée vers le saupoudreur (Figure V-20). De manière similaire aux essais menés sur ligne pilote, le saupoudreur disperse la matière sur le tapis de convoyage (largeur de 2.2m) et une brosse vient ajuster l'épaisseur du mat pour qu'elle soit constante et homogène. Le mat est convoyé vers la pré-presse à plateau chauffant, où le mat est thermopressé à l'épaisseur finale visée. Les dimensions des plateaux sont de 2m x 4m. Les différents paramètres de testés sont présentés dans le Tableau V-5. Le panneau sorti de presse (dim 2 m x 4 m) est transporté vers l'unité de séchage continue. Le séchage est réalisé pendant 45 min à 130°C. Les étapes du procédé sont illustrées sur les figures suivantes (Figure V-20 et Figure V-21).

Tableau V-5 : Paramètres de fabrication testés

Référence de l'essai	Température des plateaux (°C)	Epaisseur du mat (mm)	Temps de chauffe dans la presse (s)	Epaisseur finale visée (mm)
Essai T900-M120	185	120	900	50
Essai T750-M110	185	120	750	50
Essai T900-M110	185	110	900	50
Essai T750-M100	185	100	750	50



Figure V-20 : Ligne industrielle utilisée pour la production des panneaux rigides de chènevotte.
Source des images : (CMF Greentech, 2016)

(a. unité de préparation du liant et de mélange granulat/liant; b. conformation du mat ; c. convoyage du mat dans la presse à plateaux chauffants)



Figure V-21 : Ligne industrielle utilisée pour la production des panneaux rigides de chènevotte (suite). Source des images : (CMF Greentech, 2016)

(a. Thermopressage du mat ; b. convoyage du panneau vers l'unité de séchage ; c. récupération du panneau à la sortie du séchoir ; d. manutention et contrôle du panneau)

V.3.3.2 Résultats et discussion

(a) Observations sur le procédé de fabrication

Les figures ci-dessous (Figure V-22, Figure V-23, Figure V-24 et Figure V-25) illustrent les panneaux de chènevotte produits sur la ligne industrielle. Ces essais montrent que ce procédé automatisé est compatible avec les formulations développées dans les chapitres précédents. Les panneaux obtenus avec une hauteur de mat de 120 mm présentent une bonne cohésion comme le montre le profil de coupe présenté Figure V-24. La masse volumique de 260 kg/m^3 est un peu élevée par rapport à la valeur ciblée. L'augmentation de la masse volumique pourrait être liée à la granulométrie du lot de chènevotte utilisé pour cette production. Les granulats semblent plus fins que ceux utilisés précédemment.

Des essais ont été menés afin de réduire le temps de pressage. Il a été observé que plus le temps de pressage est faible, plus la surface du panneau est rugueuse et le panneau fragile. La cohésion à cœur après séchage est pénalisée. On pourrait supposer que le temps de chauffe permet une densification des faces par déformations plastiques, ce qui contribue à renforcer le panneau.

Il convient donc de conserver le temps de chauffe de 900 s pour un panneau de 50 mm d'épaisseur.

Ces essais démontrent que l'industrialisation de la fabrication du panneau composite développé dans cette thèse est possible. Pour confirmer ces résultats, les propriétés mécaniques et les conductivités thermiques, des panneaux sont évaluées. Les résultats sont présentés dans le Tableau V-6 et le Tableau V-7.



Figure V-22 : Panneau rigide isolant de chènevotte (dimensions 2 m x 4 m)



Figure V-23 : Découpe des panneaux aux dimensions finales



Figure V-24 : Profil de découpe



Figure V-25 : Panneaux rigides isolants aux dimensions finales (sans profil rainure et languette)

(b) Propriétés des panneaux industrialisés

Tableau V-6 : Propriétés mécaniques des panneaux rigides de chènevotte

Ref panneau	ρ (kg/m ³)	Compression			Flexion	
		$\sigma_{c,max}$ (MPa)	E_c (Mpa)	$\sigma_{c,10}$ (MPa)	$\sigma_{f,max}$ (MPa)	E_f (MPa)
Essai T900-M120	261 ± 4	0.988 ± 0.007	13.5 ± 0.2	1.223 ± 0.020	2.169 ± 0.171	92.6 ± 4.0
Essai T900-M110	237 ± 2	0.576 ± 0.003	9.1 ± 0.1	0.864 ± 0.006	1.456 ± 0.032	71.0 ± 5.6
Essai T750-M100	184 ± 5	0.419 ± 0.021	5.4 ± 0.5	0.502 ± 0.032	0.589 ± 0.041	32.5 ± 0.5

Tableau V-7 : Conductivités thermiques des panneaux rigides de chènevotte déterminées par la méthode fluxmétrique (dimensions des panneaux 600 mm x 600mm x 50 mm)

Ref panneau	ρ_{sec} (kg/m ³)	Conductivité thermique λ (W/(m.K))
Essai T900-M120	263	0.0613
Essai T900-M110	218	0.0572
Essai T750-M110	213	0.0559

Les résultats obtenus confrontés aux valeurs présentées sur les figures IV-11, 13, 14, 15 et 16 s'inscrivent dans les tendances identifiées pour les composites de ce type. On peut cependant constater que les propriétés mécaniques, à masse volumique identique, sont un peu pénalisées (effet de la dérive de la granulométrie de chènevotte).

V.4 Conclusion du chapitre V

Ce chapitre a permis de présenter les différents essais menés afin de transposer le procédé de production du panneau composite isolant de chènevotte sur un outillage industriel.

Les premiers essais menés sur la thermopresse à double bande n'ont pas permis de produire le panneau rigide de chènevotte en continu. En effet, plusieurs problématiques associées à l'outil industriel mais aussi à la formulation du composite ont été rencontrées. La longueur de la zone de chauffe n'a pas permis d'apporter le temps de chauffe nécessaire à la réticulation du panneau à cœur. De plus, le profil de compression de l'outil n'était pas adapté pour les mats épais, ce qui a engendré un refoulement de matière à l'entrée de la presse. Les problématiques associées à la formulation du composite et plus particulièrement à l'humidité initiale du mat ont pu être identifiées et résolues en pré-séchant les granulats de chènevotte avant l'application du liant. Malgré les difficultés rencontrées, ces essais ont permis d'identifier de nouveaux critères de mise en forme difficilement prévisibles à l'échelle du laboratoire. De plus, ils ont permis de valider les méthodes associées à plusieurs étapes de la fabrication industrielle du panneau composite telles que l'application du liant sur les granulats à l'aide d'un mélangeur à soc et la conformation continue du mat à l'aide d'une unité de saupoudrage.

Un nouvel essai a été mené sur une presse industrielle à plateaux chauffants. En prenant en compte les résultats obtenus sur la presse continue, la formulation du matériau a été révisée pour éviter de rencontrer les mêmes problématiques. Le pré-séchage de la chènevotte et la modification de la formulation ont permis de réduire la teneur en eau du mat aux valeurs d'humidités traditionnellement utilisées pour les panneaux de particules. En adaptant l'outillage au panneau composite et en réalisant certaines étapes du procédé manuellement, ces essais ont finalement permis de produire 85 panneaux rigides isolants de chènevotte. Ils ont démontré la possibilité de produire le panneau composite sur cet outillage industriel. En revanche, même si le procédé semble satisfaisant, l'outil utilisé ne s'avère pas adapté à une réelle production industrielle en raison de problèmes de non homogénéité du champ de température.

Ces résultats nous ont mené à réaliser un troisième essai industriel sur un outil de production entièrement automatisé et qui serait potentiellement exploitable par l'entreprise pour produire le panneau. Certaines étapes du procédé de fabrication sont différentes des procédés testés jusqu'ici. La compatibilité de la formulation du panneau a été testée préalablement sur la ligne pilote du fabricant. Les essais ont montré qu'il est possible de fabriquer le panneau composite de chènevotte sans séchage préalable du granulat à condition que le panneau soit séché après l'étape de thermo-pressage. Après validation des conditions de mise en forme sur la ligne pilote, la fabrication entièrement automatisée du panneau a été testée sur la ligne industrielle du fabricant. Les résultats concluants de ces essais permettent d'appréhender sereinement l'industrialisation du panneau composite biosourcé isolant.

Un cahier des charges du procédé industriel de mise en forme du panneau rigide de chènevotte a pu être construit. Le procédé idéal doit comprendre soit une étape de pré-séchage du granulat avant encollage et thermopressage, soit une étape de séchage après thermopressage.

Le traitement thermomécanique a un impact déterminant sur les propriétés finales du composite. C'est pourquoi, l'outil doit permettre d'appliquer un temps de chauffe suffisamment long pour réticuler le cœur du panneau et permettre le maintien de la pression pendant ce temps.

Chapitre VI Fonctionnalisation des panneaux rigides : focus sur la réaction au feu

Le caractère potentiellement combustible des produits dont la formulation intègre des granulats ou un liant biosourcés impose une adaptation de la formulation en intégrant des ajouts susceptibles de modifier la réaction au feu du composite. Ce chapitre vise à explorer de nouvelles solutions pour améliorer la réaction au feu du panneau composite rigide élaboré avec des granulats végétaux. Nous avons vu dans le chapitre I les problématiques environnementales et sanitaires associées à l'utilisation des retardateurs de flamme traditionnels. Plusieurs solutions potentiellement moins toxiques ont été identifiées et présentées dans la synthèse bibliographique. L'objectif de cette partie est d'évaluer l'efficacité de ces nouveaux traitements et de les comparer avec les traitements retardateurs de flamme traditionnels.

Deux approches sont développées. Dans la première approche, les traitements sont appliqués sur les granulats de chènevotte en vrac. Les profils de décomposition thermique sont analysés par analyse thermogravimétrique et thermodifférentielle. Ensuite, les panneaux composites sont fabriqués par thermopressage à l'aide des chènevottes prétraitées et du liant biosourcé thermodurcissable. La réaction au feu des panneaux fonctionnalisés est évaluée au moyen de différents essais de caractérisation. Par ailleurs, les propriétés mécaniques des panneaux et la masse volumique apparente des panneaux sont déterminées afin d'évaluer l'impact du traitement sur ces deux caractéristiques.

Dans une deuxième approche, la réaction au feu des composites à base de liant minéral est abordée. Les performances des composites chènevotte/liant oxysulfate de magnésium sont comparées à celles obtenues sur les composites à liant organique traités avec des retardateurs de flamme.

VI.1 Amélioration de réaction au feu du panneau composite chènevotte/liant biosourcé thermodurcissable

VI.1.1 Prétraitement de la chènevotte en vrac

VI.1.1.1 Solutions testées et méthode d'application

Le Tableau VI-1 présente les formulations des différents traitements envisagés. Les caractéristiques des produits utilisés sont présentées dans le chapitre II. Les additifs solides sont solubilisés dans l'eau avant application sur la chènevotte. L'acide borique et le sulfate de magnésium heptahydraté sont dissouts dans l'eau pour former des solutions dont les proportions solides sont respectivement de 4%*m* et 20%*m*. L'acide sulfurique et l'acide phosphorique sont dilués jusqu'à obtenir une solution concentrée à 10%*m*. Le retardateur de flamme commercial SYNTHRO-NYL SNP 1813s®, concentré initialement à 50%, est dilué pour produire une solution concentrée à 25%. Les particules de silice fonctionnalisées sont réceptionnées dans une solution concentrée à 7%*m* et la solution est utilisée telle quelle.

Les solutions sont appliquées sur la chènevotte à l'aide d'un mélangeur de laboratoire SAMA, illustré Figure VI-1. 500g de chènevotte sont traités par batch et l'opération est répétée pour traiter 4kg de chènevotte par formulation. Lorsque deux additifs sont utilisés en combinaison, la solution de sulfate de magnésium est toujours appliquée en deuxième. Le temps de mélange est fixé à 3 min pour chaque batch. Les chènevottes traitées sont ensuite séchées pendant 2 semaines à 60°C dans une étuve.



Figure VI-1 : Mélangeur de laboratoire SAMA utilisé pour l'application des traitements sur la chènevotte

Tableau VI-1 : Composition des prétraitements appliqués sur la chènevotte

Traitement	Chènevotte	Acide sulfurique (SA)	Acide phosphorique (PA)	Particules de silices fonctionnalisées (PSF)	Acide borique (AB)	Sulfate de magnésium heptahydraté (SMH)	Synthro-Nyl SNP 1813s® (RF commercial)
A Témoin	100	-	-	-	-	-	-
B 10SMH	90	-	-	-	-	10	-
C 20SMH	80	-	-	-	-	20	-
D 3AS-10SMH	87	3	-	-	-	10	-
E 3AP-10SMH	87	-	3	-	-	10	-
F 3PSF-10SMH	87	-	-	3	-	10	-
G 3AB-10SMH	87	-	-	-	3	10	-
H 13RF Commercial	87	-	-	-	-	-	13

Pour chaque traitement, les valeurs sont exprimées en parts solides.

VI.1.1.2 Analyses thermogravimétriques et thermodifférentielles de la chènevotte traitée

Les échantillons sont caractérisés suivant la méthode décrite dans la partie II.1.6.1.

(a) ATG-ATD de la chènevotte en vrac non traitée

La Figure VI-2 illustre la courbe ATG-ATD de la chènevotte non traitée. Une perte de masse de 9% associée à un pic endothermique peut être observée entre 25 et 105°C. Ce pic correspond à l'évaporation de l'eau. Un état stable est noté entre 105 et 220°C, ce qui signifie qu'il n'y a pas de dégradation thermique sur cette plage de valeurs. Une importante perte de masse de 90% à 34% a lieu entre 220°C et 370°C. Le flux de chaleur montre que cette perte de masse correspond à deux réactions exothermiques distinctes. La première, ayant lieu entre 220 et 330°C, est supposée correspondre à la dégradation thermique des hémicelluloses, tandis que la deuxième, ayant lieu entre 330 et 420°C, à celle de la cellulose. La décomposition des lignines n'est pas facilement identifiable car elle se décompose progressivement de 100°C à 900°C (Yang et al., 2007). Ces résultats sont en adéquation avec les résultats de Yang *et al.* (Yang et al., 2007).

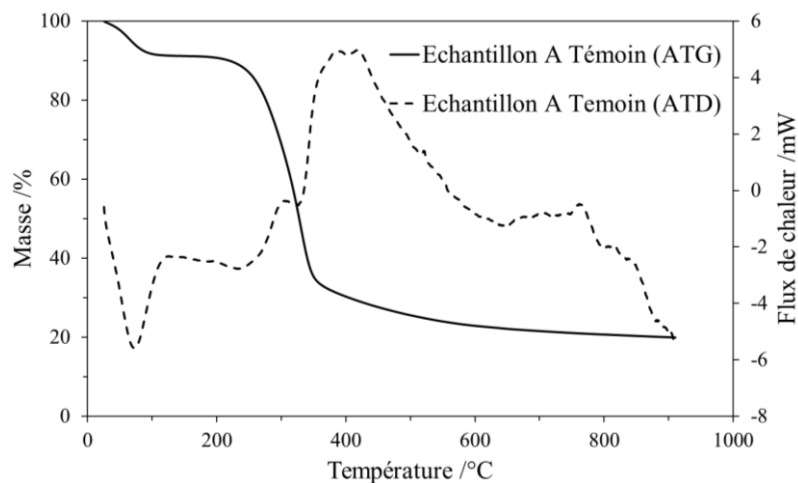


Figure VI-2 : ATG-TD de la chènevotte non traitée

(b) ATG-ATD du sulfate de magnésium heptahydraté

La Figure VI-3 illustre les courbes ATG-ATD du sulfate de magnésium heptahydraté (sel d'Epson). La perte de masse commence à 55°C et se termine après 350°C. Après 350°C, la fraction massique résiduelle est stabilisée à 49.3%. La courbe de l'ATD montre que chaque perte de masse est accompagnée d'une réaction endothermique. Six réactions endothermiques peuvent être distinguées à 65°C, 103°C, 126°C, 160°C, 185°C et 260°C respectivement. Les fractions massiques résiduelles après chaque perte de masse sont représentées sur la Figure VI-3. Ces valeurs sont proches des valeurs théoriques de fractions massiques résiduelles (calculées à partir du nombre de molécules d'eau résiduelles dans l'hydrate) illustrées dans le Tableau VI-2. Cela signifie que chaque perte de masse correspond à l'évaporation d'une molécule d'eau cristallisée de l'hydrate de sulfate de magnésium. La stabilisation de la fraction massique de l'échantillon à 49.3% signifie que le sulfate de magnésium a atteint son état anhydre. Ces résultats sont en adéquation avec les observations de Elvira-León *et al.* (Elvira-León et al., 2016). En effet, l'auteur explique que le comportement retardateur de flamme du

sulfate de magnésium heptahydraté provient de la décomposition endothermique de l'hydrate qui « refroidit » la phase condensée avant la pyrolyse de la cellulose et dilue la phase gazeuse avec la vapeur d'eau générée lors de la décomposition.

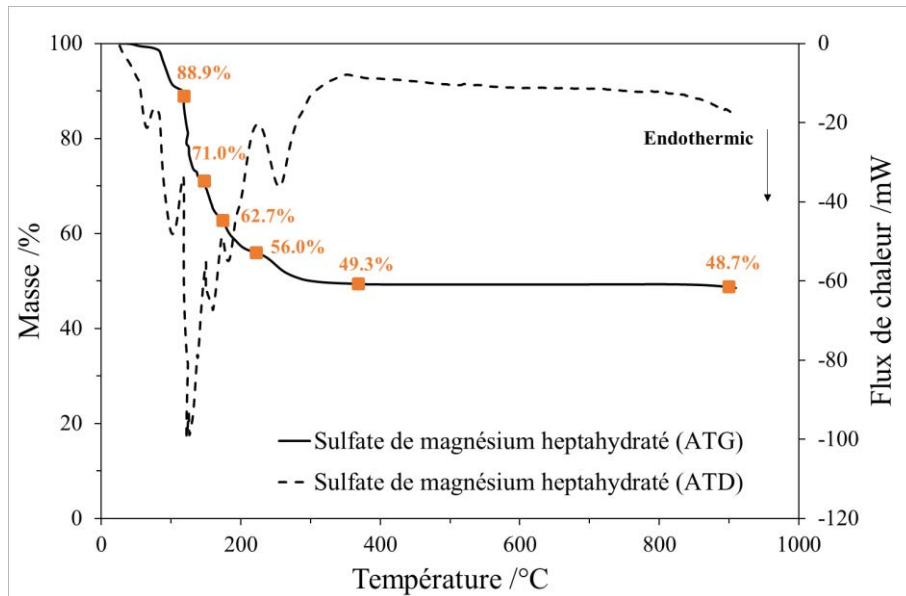


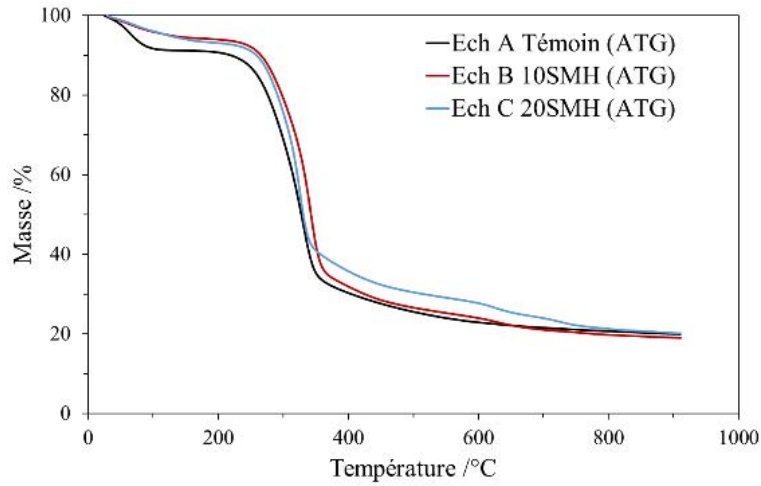
Figure VI-3 : Courbes ATG-ATD du sulfate de magnésium heptahydraté

Tableau VI-2 : Masses moléculaires et fractions massiques résiduelles théoriques des hydrates de sulfate de magnésium

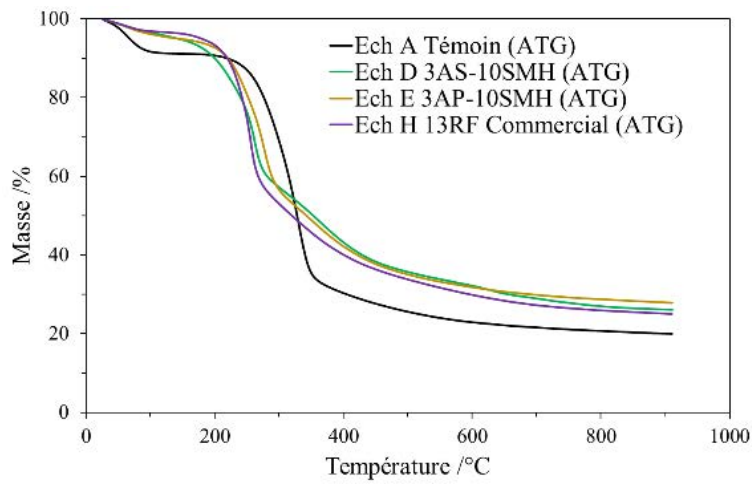
Forme de l'hydrate	Masse moléculaire* (g/mol)	Fraction massique résiduelle théorique**
MgSO₄.7H₂O	246.473	100.0%
MgSO₄.6H₂O	228.458	92.7%
MgSO₄.5H₂O	210.443	85.4%
MgSO₄.4H₂O	192.428	78.1%
MgSO₄.3H₂O	174.413	70.8%
MgSO₄.2H₂O	156.398	63.5%
MgSO₄.1H₂O	138.383	56.1%
MgSO₄ anhydre	120.368	48.8%

(* Les masses moléculaires sont calculées à l'aide de la formule suivante $M_w(\text{MgSO}_4.X\text{H}_2\text{O}) = 120.368 + 18.015X$. **La fraction massique résiduelle théorique est calculée à l'aide du ratio $M_w(\text{MgSO}_4.X\text{H}_2\text{O})/M_w(\text{MgSO}_4.7\text{H}_2\text{O})$.

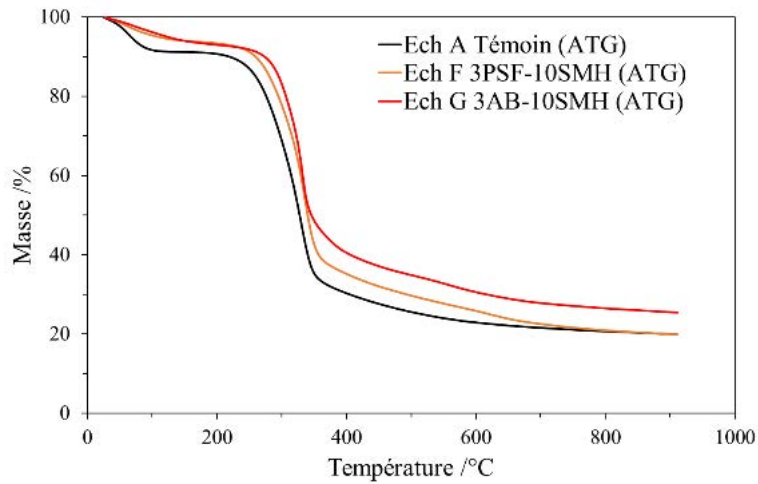
(c) **ATG des chènervottes en vrac traitées**



a)



b)



c)

Figure VI-4: ATG des chènervottes traitées et non traitées en vrac.

(SMH: Sulfate de magnésium heptahydraté, AS: Acide Sulfurique, AP: Acide Phosphorique, AB: Acide Borique, PSF: Particules de Silice Fonctionnalisées, RF Commercial: Retardateur de Flamme commercial)

Tableau VI-3 : Température de début de pyrolyse (T_{onset}); Température du taux de dégradation maximale (T_{MDR}) et les masses résiduelles déterminés par analyse des courbes ATG.

Echantillon	T_{onset} /°C	T_{MDR} /°C	Masse résiduelle /%		
			À 300°C	À 430°C	À 600°C
A Témoin	236	328	68.89	28.62	22.90
B 10SMH	253	341	79.15	29.69	24.00
C 20SMH	251	324	75.59	33.52	27.74
D 3AS-10SMH	183	260	57.17	39.92	32.19
E 3AP-10SMH	206	275	56.54	39.25	31.81
F 3PSF-10SMH	249	335	77.83	33.18	25.86
G 3AB-10SMH	270	329	83.15	38.31	30.59
H 13RF Commercial	196	253	53.01	37.64	29.87

(Les températures de 300°C, 430°C and 600°C ont été définies de manière arbitraire afin de surligner les différences de comportement de décomposition entre les échantillons)

La Figure VI-5.a montre que les échantillons B et C traités respectivement avec 10% et 20% de sulfate de magnésium heptahydraté, ont un profil de décomposition similaire à l'échantillon témoin A non traité. Les températures de début de pyrolyse (T_{onset}) des deux traitements, présentées dans le Tableau VI-3, sont sensiblement plus élevées de 15°C par rapport à l'échantillon non traité.

Cette observation pourrait signifier que le sulfate de magnésium améliore la stabilité thermique des hémicelluloses. Cela pourrait être expliqué par une réaction de réticulation des hémicelluloses par les ions Mg^{2+} (réticulation par complexation) telle qu'évoquée par Yin qui a obtenu un hydrogel d'alginate réticulé par les ions Mg^{2+} (Yin et al., 2015). Les températures du taux de dégradation maximale (T_{MDR}) des échantillons B et C ont lieu respectivement à 341°C et 328°C. Ces valeurs se trouvent dans la même plage de T_{MDR} que celle obtenues pour l'échantillon non traité (328°C). Cette observation suggère que le sulfate de magnésium n'affecte pas la stabilité thermique de la cellulose.

La Figure VI-5.b compare les profils de décomposition des échantillons A témoins, D 3AS-10SMH, E 3AP-10SMH et H 13 RF commercial, correspondant aux échantillons de chènevotte non traitée, traitée avec 3% d'acide sulfurique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté, 3% d'acide phosphorique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté, et 13% de retardateur de flamme commercial (ammonium phosphate/sulfate) respectivement. Les trois échantillons traités ont un profil de décomposition similaire, significativement différent de l'échantillon non traité. En effet, comme illustré dans le Tableau VI-3, les valeurs de T_{onset} des échantillons D, E et H sont de 183 °C, 206°C et 196°C respectivement et les valeurs de T_{MDR} de 260°C, 275°C et 253°C alors que l'échantillon non traité présente des valeurs de T_{onset} et de T_{MDR} de 236°C et 328°C respectivement. À 300°C, les masses résiduelles des échantillons traités sont comprises entre 53.01 % et 57.17%, alors que la masse résiduelle de l'échantillon non traité est de 68.89%. À 430°C, la tendance s'inverse, l'échantillon non traité présente une masse résiduelle de 28.62% alors que les échantillons traités présentent une masse résiduelle comprise en 37.64% et 39.92%.

Le comportement des échantillons D, E et H peut être expliqué par la théorie de la formation de char (présentée dans le chapitre II), bien connue pour les retardateurs de flamme à base de phosphate. Sous l'effet de la chaleur, les composés azotés de retardateur de flamme combinant des ions ammonium et phosphate/sulfate se décomposent, ce qui aboutit à la formation d'acide phosphorique ou sulfurique. Ces acides vont modifier la réaction de pyrolyse des molécules de cellulose en anticipant leur dégradation et en catalysant la réaction de déshydratation, ce qui aboutit à la formation de liaisons carbone-carbone. Comme présenté dans la synthèse bibliographique, la formation de charbon est un processus en

compétition avec la formation de laevoglucose, composé responsable de la formation de gaz combustibles. (Huang, Pan, & Perng, 1975; Mngomezulu et al., 2014).

Pour les échantillons D et E traités respectivement avec de l'acide sulfurique et de l'acide phosphorique sans sel d'ammonium, l'effet des traitements semble similaire au traitement H utilisant un retardateur de flamme commercial base ammonium phosphate/sulfate. Ces résultats sont prometteurs mais leur efficacité en tant que retardateur de flamme ne peut pas être confirmée uniquement par ATG-ATD.

La Figure VI-5.c illustre les profils de décomposition des échantillons F 3PSF-10SMH (3% particules de silices fonctionnalisées + 10% $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$) et G 3AB-10SMH (3% acide borique + 10% $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$). Les deux traitements n'affectent pas de manière significative la température du taux de dégradation maximal. En effet, les valeurs de T_{MDR} des échantillons F et G sont respectivement 335°C et 329°C contre 328°C pour l'échantillon A non traité. Cependant les traitements semblent augmenter la température de début de dégradation T_{onset} . La valeur de T_{onset} de l'échantillon F 3PSF-10SMH augmente de 13°C par rapport à celle de l'échantillon non traité, et celle de l'échantillon G 3AB-10SMH augmente de 34°C. La valeur de T_{onset} de l'échantillon F 3PSF-10SMH est proche des valeurs des échantillons B 10SMH et C 20SMH, intégrant uniquement du sulfate de magnésium heptahydraté. Cela suggère que l'augmentation de T_{onset} de l'échantillon F est simplement liée à la présence de sulfate de magnésium heptahydraté et que les particules de silices fonctionnalisées ne modifient pas la stabilité thermique de la cellulose. Dans la littérature, il est supposé que les particules de silices agissent comme retardateur de flamme dans la phase condensée en formant une couche protectrice à la surface du matériau qui protège le substrat de la source de chaleur (Mngomezulu et al., 2014). Ce mécanisme n'implique pas de réaction chimique avec la matière végétale lors de sa pyrolyse, ce qui explique pourquoi le profil de décomposition est similaire à l'échantillon B comprenant 10% de sulfate de magnésium heptahydraté.

L'échantillon G contenant de l'acide borique et du sulfate de magnésium heptahydraté, a une valeur T_{onset} plus élevée que celles des échantillons B et C traités uniquement avec du sulfate de magnésium. Ces résultats signifient que l'acide borique améliore la stabilité thermique des hémicelluloses. Uner *et al.* ont obtenu des résultats similaires sur du bois traité avec différentes proportions d'acide borique (Uner et al., 2016). Cependant, aucune explication n'a été donnée. Uddin *et al.* ont observé des résultats similaires sur du chitosan et des nano fibrilles de cellulose traitée avec de l'acide borique (Uddin, Ago, & Rojas, 2017). Cette augmentation de la stabilité pourrait être expliquée par une réaction de complexation entre les polysaccharides et l'acide borique (Pappin, Kiefel, & Houston, 2012; Wang, Li, & Winandy, 2004).

Dans la littérature, il est aussi expliqué que l'acide borique agit en phase condensée de manière similaire aux phosphates en favorisant la déshydratation de la cellulose et des hémicelluloses et en anticipant la pyrolyse. Cependant, dans notre cas, cette anticipation n'est pas clairement visible sur la courbe d'ATG (Figure VI-5.c). Il est possible que, dans notre cas, la quantité d'acide borique soit trop faible pour observer l'anticipation de la réaction de pyrolyse. En revanche, il est facilement identifiable que la quantité de charbon à 900°C a été augmentée par rapport à l'échantillon non traité car la fraction massique résiduelle de l'échantillon G est proche de celle de l'échantillon H traité avec le retardateur de flamme commercial (ammonium phosphate/sulfate). Ceci pourrait être expliqué par une réaction d'estérification entre les composés borés et les groupements hydroxyles de la cellulose et des hémicelluloses (Uddin et al., 2017; Wang et al., 2004). Nous avons également vu dans la partie bibliographique que l'acide borique protège le substrat non pyrolysé en créant une couche protectrice vitreuse à la surface du matériau lors de sa décomposition. En revanche, cela ne peut pas être observé par ATG/TD.

VI.1.2 Réaction au feu des panneaux ignifugés

VI.1.2.1 Fabrication des panneaux et découpe des échantillons

Les panneaux traités avec les différents retardateurs de flamme sont réalisés à partir des chènevottes prétraitées présentées dans la sous-partie précédente. Les panneaux sont fabriqués à l'aide d'une presse à plateaux chauffants de laboratoire suivant la méthode décrite dans la partie IV.1.2 (chapitre IV). Le liant C30% composé de mélasse et de PAE est utilisé. La proportion de liant ajoutée est ajustée en fonction de la formulation de sorte à ce que le ratio chènevotte (sans additif):liant soit de 10.4%.

Les panneaux de dimensions 600 mm x 600 mm x 50 mm sont découpés pour produire :

- 5 échantillons de dimensions 50 mm x 50 mm x 50 mm pour les essais de compression
- 3 échantillons de dimensions 260 mm x 120 mm x 50 mm pour les essais de flexion
- 3 échantillons de dimensions 250 mm x 90 mm x 50 mm pour les essais à la petite flamme
- 3 échantillons de dimensions 100 mm x 100 mm x 50 mm pour les essais au calorimètre à cône.

Les essais au brûleur, dont le protocole sera présenté par la suite, sont conduits sur des chutes du panneau. Pour les essais à l'épiradiateur, une nouvelle campagne de fabrication a été menée. Les formulations seront présentées dans la sous-partie correspondante.

VI.1.2.2 Observations

L'inspection visuelle des panneaux produits à partir des chènevottes traitées donne des informations pertinentes sur la qualité du panneau et ses performances. L'impact du traitement ignifugeant sur les propriétés du panneau peut être facilement observé comme illustré Figure VI-5.

Les panneaux fabriqués à partir des chènevottes traitées avec 10% et 20% de sulfate de magnésium (traitement B et C) semblent présenter une bonne cohésion. Le sulfate de magnésium ne semble pas interférer avec la réaction de réticulation du liant. De même, la cohésion du panneau contenant de l'acide borique et celle du panneau contenant les particules de silices fonctionnalisées ne semblent pas avoir été pénalisées.

Les prétraitements des chènevottes à l'acide sulfurique, l'acide phosphorique et le retardateur de flamme commercial (ammonium sulfate/phosphate) ont fortement influencé les caractéristiques du panneau.

En effet, les panneaux traités avec l'acide phosphorique et le RF commercial semblent fragilisés par les prétraitements et le panneau prétraité à l'acide sulfurique n'a présenté aucune cohésion des granulats après l'étape de thermocompression. La diminution de la cohésion pourrait être expliquée par deux phénomènes. Premièrement, le traitement acide empêche la polymérisation du liant biosourcé normalement favorisée dans la plage des pH alcalins. Cette hypothèse permettrait d'autant plus d'expliquer pourquoi le panneau traité avec l'acide sulfurique (acide fort) ne présente aucune cohésion. Deuxièmement, il est possible que le traitement acide dégrade les propriétés mécaniques des granulats de chènevotte et donc réduit les propriétés mécaniques globales du composite.

Par ailleurs, pour ces trois traitements, les faces des panneaux se sont noircies pendant l'étape de thermocompression. Cette réaction est probablement liée à l'anticipation de la dégradation de la cellulose mise en évidence pour ces traitements par analyse ATG.

Une forte odeur d'ammoniac a été détectée lors de la fabrication du panneau traité avec le retardateur de flamme commercial (échantillon H) composé d'ammonium sulfate/phosphate. Le dégagement

d'ammoniac pourrait provenir d'une réaction entre le traitement retardateur de flamme et le liant faiblement alcalin, car cette plage de pH favorise la transformation des ions ammonium en ammoniac.

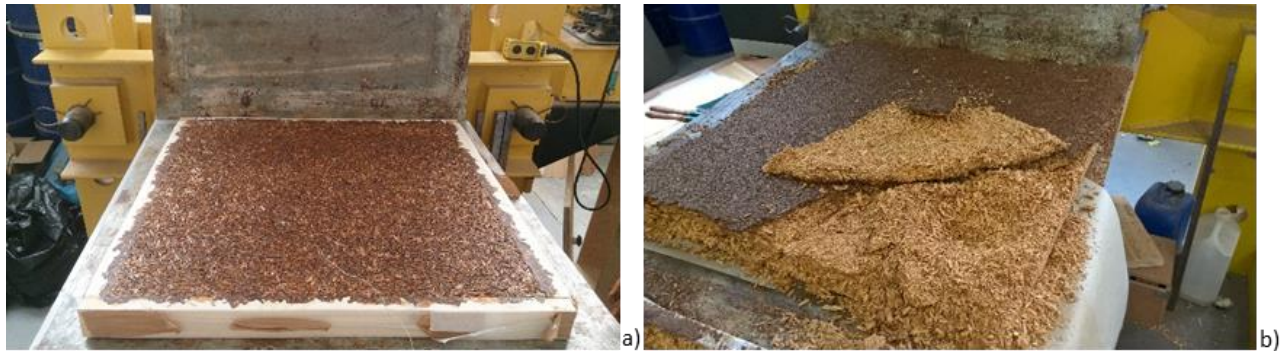


Figure VI-5 : Effet du traitement retardateur de flamme sur l'aspect du panneau (a. panneau non traité b. traité avec de l'acide sulfurique)

VI.1.2.3 Evaluation de l'inflammabilité des composites par l'essai à la petite flamme

Tableau VI-4 : Résultats de l'essai à la petite flamme conduit sur les panneaux de chènevotte traités

Echantillon	Masse volumique/ kg/m ³	Propagation de la flamme après 15 s d'exposition	Longueur carbonisée moyenne après 15s d'exposition (mm)	Propagation de la flamme après 30 s d'exposition	Longueur carbonisée moyenne après 30 s d'exposition (mm)
A Témoin	187 ± 3	Non	83 ± 3	Non	113 ± 20
B 10SMH	208 ± 5	Non	75 ± 0	Non	110 ± 5
C 20SMH	234 ± 8	Non	67 ± 3	Non	104 ± 8
D 3AS-10SMH			-		
E 3AP-10SMH	217 ± 4	Non	75 ± 5	Non	112 ± 8
F 3PSF-10SMH	202 ± 4	Non	73 ± 3	La flamme s'est propagée sur un des trois échantillon	148 ± 54 (118 ± 11)*
G 3AB-10SMH	214 ± 5	Non	62 ± 6	Non	88 ± 3
H 13RF Commercial	208 ± 3	Non	72 ± 3	Non	93 ± 8

*longueur moyenne carbonisée et écart type en ne prenant pas en considération l'échantillon qui s'est enflammé

Tous les panneaux ont passé avec succès le test des expositions durant 15 s et 30 s à la petite flamme à l'exception du panneau traité avec les particules de silice fonctionnalisées. Pour ce dernier, un des échantillons n'a pas satisfait les critères suite à l'exposition de 30 s car la flamme s'est propagée sur une longueur supérieure à 150 mm. Ce résultat pourrait être expliqué par le fait que les particules de silice fonctionnalisées sont dispersées dans une solution d'IMS (« Industrial Methylated Spirit », 99% éthanol), solvant hautement inflammable qui peut augmenter l'inflammabilité des échantillons s'il est ajouté en excès. La solution de particules de silice fonctionnalisées utilisées pour ces essais est concentrée à 7% (teneur solide). Par conséquent, la quantité importante d'IMS incorporée dans le composite pourrait être responsable de l'augmentation de l'inflammabilité des échantillons. Une étude complémentaire pourrait être menée afin d'identifier si la réduction de la teneur de solvant dans la solution permet de résoudre cette problématique et d'améliorer l'effet retardateur de flamme du traitement. Cette piste est en cours d'évaluation par le fournisseur (TWI, UK).

L'échantillon G traité avec 3% d'acide borique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté, et l'échantillon H traité avec le retardateur de flamme commercial présentent les plus faibles longueurs carbonisées après l'exposition de 30 s à la flamme. Ces résultats confirment l'efficacité des traitements traditionnellement utilisés pour réduire l'inflammabilité des isolants. Tous les autres traitements ont permis de réduire la longueur carbonisée en comparaison à l'échantillon non traité. De plus, plus la teneur de sulfate de magnésium est élevée, plus la longueur carbonisée diminue. Ces résultats montrent que les traitements ont bien un effet retardateur de flamme sur le panneau rigide. En revanche, il est difficile de quantifier leur efficacité et de les comparer seulement à partir de cet essai.



Figure VI-6 : Propagation de la flamme observée sur l'échantillon traité avec 3% de particules de silice fonctionnalisées et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté (Ech F 3PSF-10SMH)

VI.1.2.4 Essais au calorimètre à cône

La Figure VI-7 présente le taux de dégagement de chaleur (« Heat Release Rate », noté HRR) et le taux de perte de masse (« Mass Loss Rate », noté MLR) évalués lors de l'essai au calorimètre à cône. Une nette différence peut être observée entre l'échantillon témoin non traité (Ech A) et les échantillons traités. Tous les échantillons présentent une réponse similaire avec une ignition retardée et un affaiblissement des pics du taux de dégagement de chaleur et de perte de masse. Tous les échantillons se sont enflammés avant de se consumer par incandescence, à l'exception de ceux traités avec le traitement retardateur de flamme commercial (Ech H 13RF commercial). En effet, pour ce traitement, seulement un échantillon s'est enflammé. Les deux autres se sont consumés par incandescence. Ce traitement a permis d'obtenir de loin les plus faibles pics de taux de dégagement de chaleur et de perte de masse.

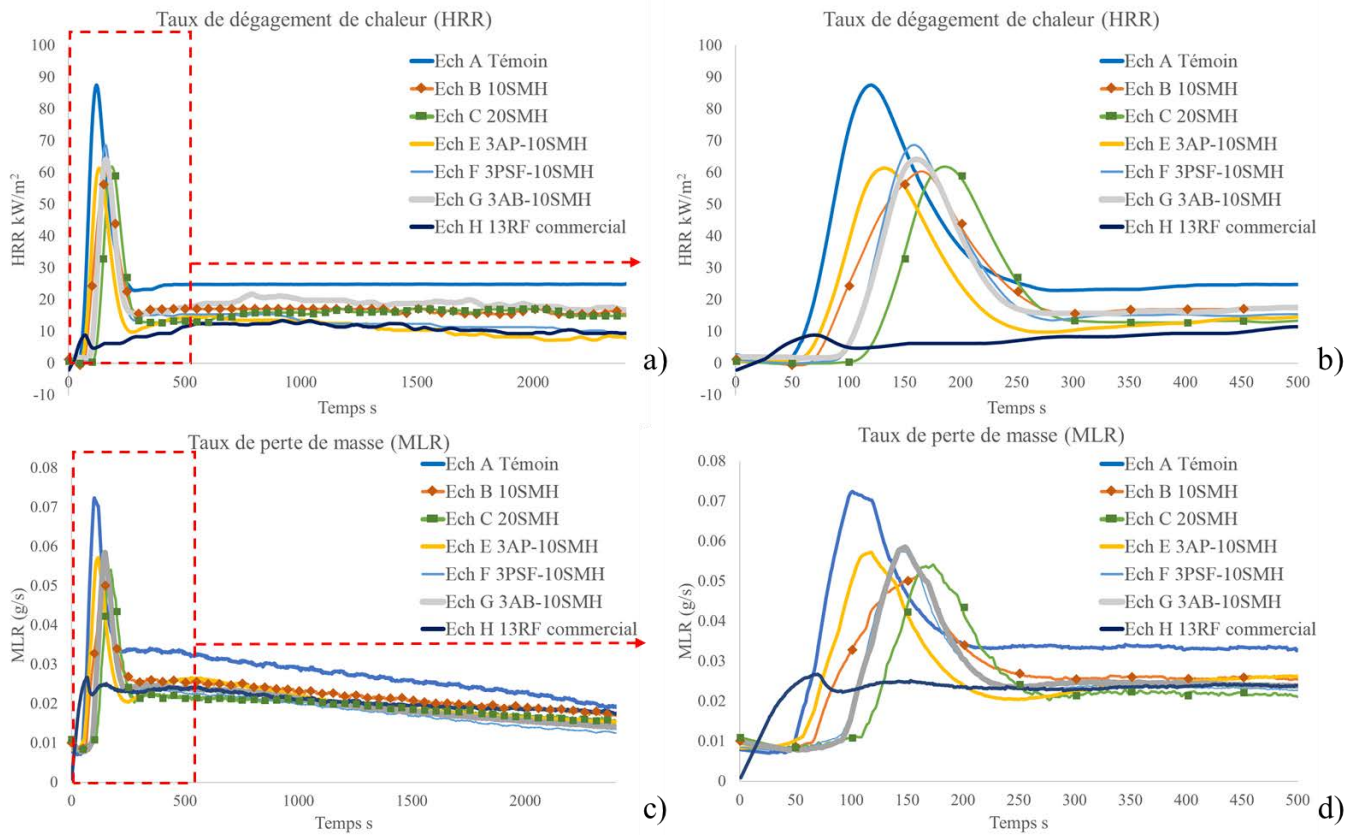


Figure VI-7 : Taux de dégagement de chaleur et de perte de masse

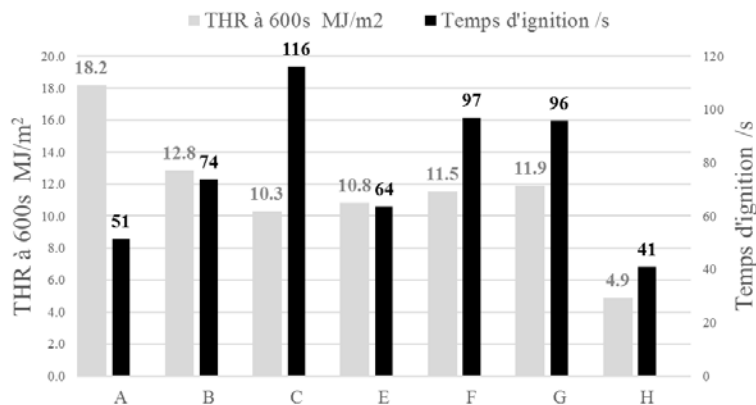


Figure VI-8 : Chaleur totale dégagée à 600s (THR) et temps d'ignition

Comme illustré Figure VI-9.a, le sulfate de magnésium contribue grandement à l'augmentation du temps d'ignition. En effet, pour les échantillons A témoin, B 10SMH et C 20SMH, les temps d'ignition mesurés sont 51s, 74s et 116s respectivement (Figure VI-8). Cela peut être expliqué par la décomposition endothermique de l'hydrate de sulfate de magnésium qui retarde l'ignition par effet de refroidissement. De plus, l'eau évaporée de l'hydrate contribue à réduire la concentration de gaz combustibles dans de la phase gazeuse par effet de dilution, ce qui réduit la réaction de combustion et donc la quantité de chaleur dégagée. La chaleur totale dégagée (THR) par l'échantillon B 10SMH est de 12.8 MJ/m². Cette dernière est fortement réduite par rapport à l'échantillon A témoin dont la valeur de THR est de 18.2 MJ/m². En revanche, l'échantillon C 20SMH dont la valeur de THR est de 10.3 MJ/m² ne présente pas une amélioration significative par rapport à l'échantillon B 10SMH.

Les résultats obtenus avec les échantillons G traités avec 3% d'acide borique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté sont proches de ceux obtenus pour les échantillons F traités avec 3% de particules de silice fonctionnalisées et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté (Figure VI-9.b). En effet, les temps d'ignition sont respectivement 96s et 97s, et les valeurs de THR de 11.9 et 11.5 MJ/m². Pour les deux traitements, les temps d'ignition sont plus élevés que celui de l'échantillon B traité uniquement avec 10% de sulfate de magnésium heptahydraté. Cela pourrait être expliqué par la formation d'une couche protectrice de silice à la surface du matériau agissant comme barrière à la chaleur et qui protège la zone non exposée de la pyrolyse. Ces résultats sont très prometteurs pour le traitement utilisant les particules de silices fonctionnalisées car il est beaucoup moins toxique que l'acide borique pour une efficacité comparable.

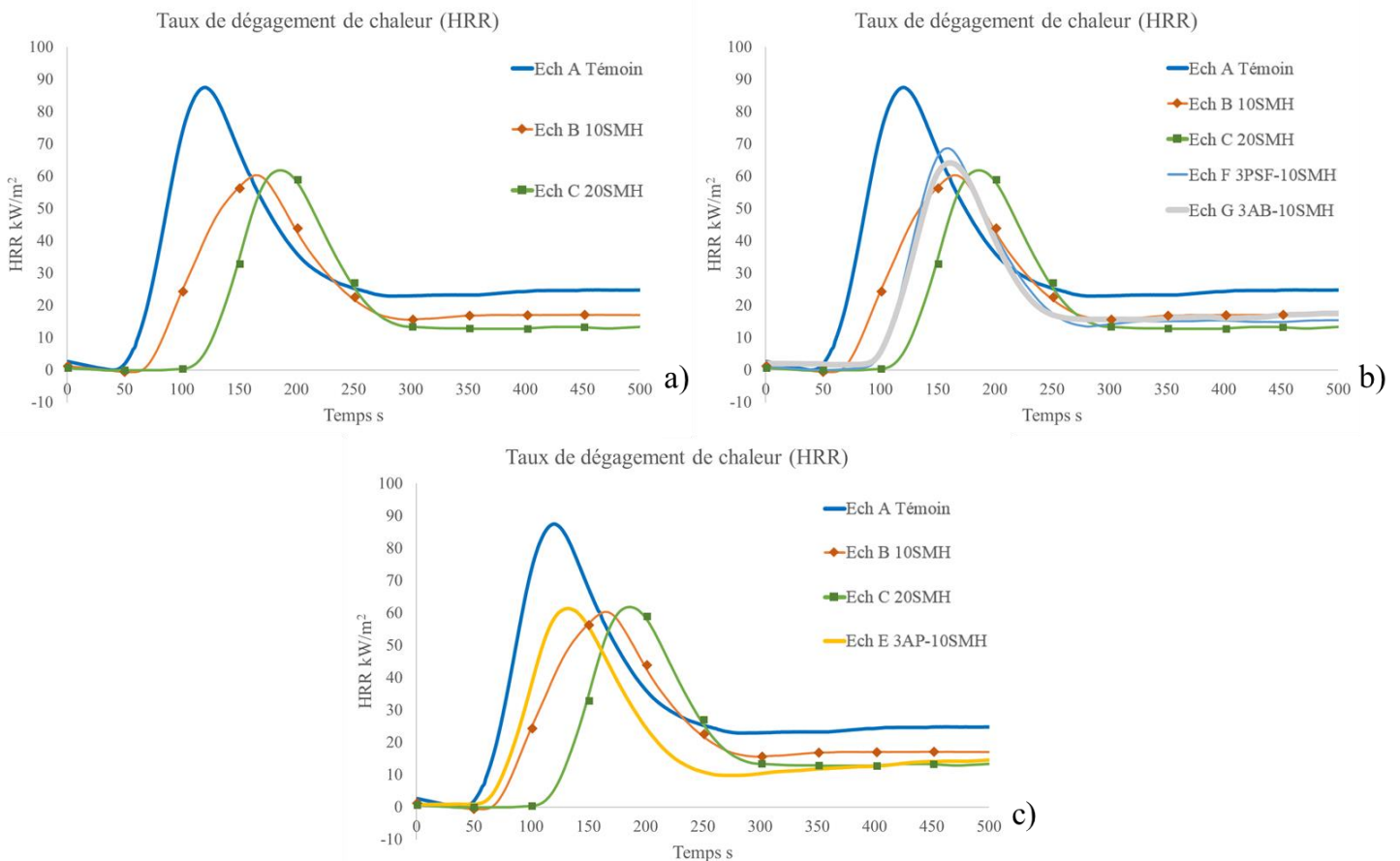


Figure VI-9 : Comparaison des taux de dégagement de chaleur pour les différents traitements

Les échantillons E traités avec 3% d'acide phosphorique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté montrent un temps d'ignition de 64 s et une valeur de THR de 10.8 MJ/m². On peut observer sur la Figure VI-9.c que le temps d'ignition est réduit par rapport à l'échantillon B contenant uniquement du sulfate de magnésium heptahydraté mais plus élevé que l'échantillon non traité. La réduction du temps d'ignition par rapport à l'échantillon B peut être liée à la décomposition anticipée associée à la présence d'acide phosphorique, mise en évidence par l'analyse ATG-ATD. De manière similaire au traitement commercial ammonium sulfate/phosphate, l'acide phosphorique catalyse la réaction de déshydratation de la cellulose. D'autre part, le fait que le temps d'ignition reste tout de même supérieur à l'échantillon non traité peut être lié à la présence de sulfate de magnésium, qui, comme vu précédemment, retarde l'ignition. La valeur de THR de l'échantillon E est plus faible que celle obtenue avec les échantillons traités à l'acide borique (THR 11.9 MJ/m²) et avec les particules de silices fonctionnalisées (THR 11.5 MJ/m²). Ces résultats montrent que l'acide phosphorique combiné avec du sulfate de magnésium améliore de manière importante les performances au feu du panneau rigide.

VI.1.2.5 Propriétés mécaniques et masses volumiques apparentes des panneaux traités

Tableau VI-5 : Masses volumiques apparentes et propriétés mécaniques en compression et en flexion des panneaux de chènevotte

Echantillon	ρ / kg/m ³	Résistance en flexion ($\sigma_{f,max}$)/ MPa	Module d'élasticité en flexion E _f / MPa	Résistance en compression ($\sigma_{c,max}$)/ MPa	Module d'élasticité en compression E _c / MPa	Résistance en compression à 10% de déformation ($\sigma_{c,10}$)/ MPa
A Témoins	192 ± 5	0.871 ± 0.087	45 ± 1	0.622 ± 0.060	12.1 ± 0.9	0.811 ± 0.042
B 10SMH	219 ± 1	0.963 ± 0.070	50 ± 2	0.447 ± 0.040	9.3 ± 1.0	0.709 ± 0.035
C 20SMH	232 ± 8	0.960 ± 0.093	60 ± 6	0.578 ± 0.037	14.3 ± 0.8	0.921 ± 0.019
D 3AS-10SMH	Pas de cohésion					
E 3AP-10SMH	225 ± 2	0.444 ± 0.006	31 ± 3	0.491 ± 0.018	6.9 ± 0.9	0.609 ± 0.040
F 3PSF-10SMH	207 ± 3	0.535 ± 0.031	26 ± 1	0.523 ± 0.016	6.6 ± 0.2	0.618 ± 0.014
G 3AB-10SMH	212 ± 2	0.740 ± 0.076	38 ± 1	0.670 ± 0.040	11.5 ± 1.1	0.860 ± 0.045
H 13RF Commercial	211 ± 3	0.408 ± 0.060	27 ± 1	0.390 ± 0.042	5.3 ± 0.2	0.475 ± 0.043

La caractérisation mécanique des panneaux fabriqués à partir des chènevottes traitées confirme les observations présentées précédemment. Les traitements ont un effet important sur les propriétés mécaniques du panneau. Dans tous les cas, le traitement retardateur de flamme mène à une augmentation de la masse volumique apparente du panneau, comprise entre 8 et 20%.

Les échantillons B et C traités respectivement avec 10% et 20% de sulfate de magnésium présentent des résistances en flexion plus élevées que l'échantillon non traité A. En effet, les résistances en flexion sont 0.963 MPa et 0.960 MPa pour les échantillons B et C, et 0.870 MPa pour l'échantillon A. De plus, les modules d'élasticité en flexion de ces deux échantillons augmentent de 5 et 15 MPa respectivement par rapport à l'échantillon non traité A dont le module E_f est de 45 MPa. Cette augmentation des propriétés

mécaniques pourrait être expliquée par l'amélioration de la réticulation du liant et des polysaccharides de la matière par les ions Mg^{2+} comme suggéré précédemment. D'autre part, l'augmentation de la masse volumique apparente des composites traités pourrait être responsable de l'amélioration des performances mécaniques par densification.

Les propriétés mécaniques du panneau G traités avec 3% d'acide borique et 10% de sulfate de magnésium ne semblent pas avoir été influencées par rapport à l'échantillon non traité. Sa résistance en flexion de 0.740 MPa est légèrement diminuée par rapport à l'échantillon non traité (0.871 MPa). Cependant, le traitement semble améliorer la résistance en compression à 10% de déformation car le panneau traité présente une valeur $\sigma_{c,10}$ de 0.860 MPa, plus élevée que celle de l'échantillon non traité dont la valeur est de 0.811 MPa.

Les propriétés mécaniques du panneau E traité avec l'acide phosphorique combiné avec du sulfate de magnésium heptahydraté, et du panneau H traité avec le traitement RF commercial sont significativement réduites. En effet, les résistances en flexion sont respectivement 0.444 MPa et 0.408 MPa alors que celle du panneau non traité est de 0.870 MPa. Les modules d'élasticités en flexion sont diminués de 14 MPa et 18 MPa respectivement par rapport au panneau non traité dont le module E_f est de 45 MPa. Cette réduction des propriétés mécaniques pourrait être expliquée par l'interaction entre le traitement et le liant ce qui pénalise la réaction de réticulation dans les faibles pH comme suggéré précédemment.

VI.1.2.6 Essais au brûleur

(a) Principe de l'essai

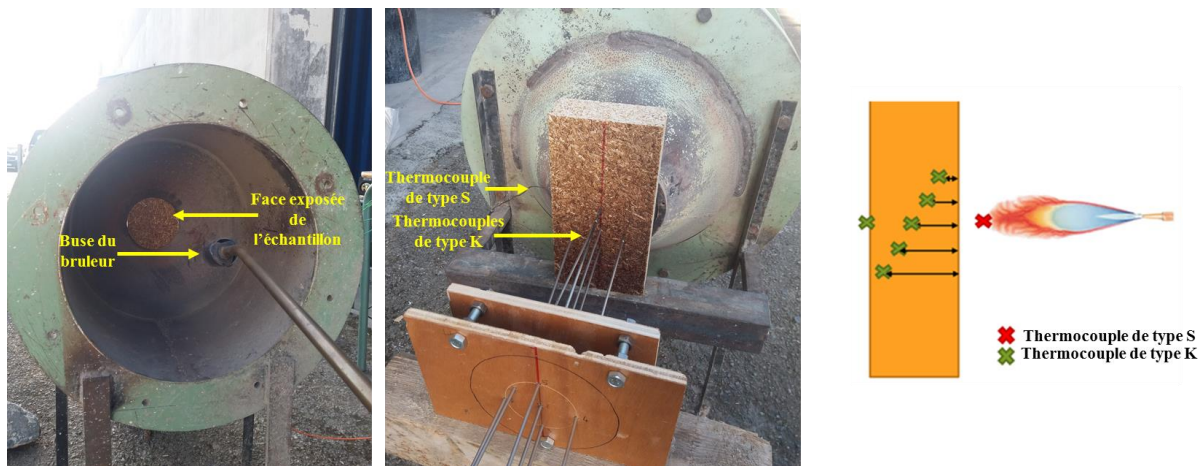


Figure VI-10 : Illustration du dispositif expérimental pour l'essai au brûleur

L'objectif de cet essai est de comparer l'effet des différents traitements retardateurs de flamme sur la propagation de chaleur au sein du panneau exposé pendant 180 s à la flamme d'un brûleur. Pour cela, un essai non standardisé a été développé. Le dispositif de l'essai est illustré ci-dessous (Figure VI-10). 5 thermocouples de type K sont placés à l'intérieur du panneau à 10 mm, 20mm, 30mm, 40mm et 50mm de la face exposée au brûleur, notés respectivement Tck 10mm, Tck 20mm, Tck 30mm, Tck 40mm, Tck 50mm. Un autre thermocouple de type K, noté Tck FNE, est placé sur la face non exposée du panneau. La température de la flamme du brûleur est contrôlée à l'aide d'un thermocouple de type S, noté TcS flamme. La température de la flamme est ajustée manuellement en contrôlant le débit de gaz. La température visée est de 800°C. Un réglage manuel du débit de gaz ne permet pas de garantir scrupuleusement une température constante. Les essais ont été menés sur des chutes des panneaux étudiés dans la sous-partie précédente. Ce montage permet de solliciter l'échantillon dans des conditions

qui s'apparentent à un essai de résistance au feu. Ici la température ne suit pas une courbe de feu conventionnelle (Feu Iso 834 par exemple) mais est maintenue constante. La cinétique de diffusion de la chaleur au sein du matériau constitue un indicateur intéressant pour interpréter les différents phénomènes physiques mis en jeu.

(b) Résultats et discussion

Pour le panneau A non traité, la température à 10 mm de profondeur de la face exposée commence à croître après 35 s, et se stabilise à 100°C. Après 200 s, la température dépasse 100°C pour atteindre 120°C à la fin de l'essai. A 20 mm de profondeur, la température commence à croître après 90s et se stabilise à 100°C. A 30 et 40 mm de profondeur, la température commence à croître après 150s et augmente progressivement pour atteindre 80°C après 250 s. Les fluctuations observées sur les thermocouples Tck 50 mm et Tck FNE ne sont pas liées aux transferts de chaleur dans l'échantillon, mais à une fuite d'air chaud sur le côté de l'échantillon qui peut avoir réchauffé la température derrière le panneau. Cette hypothèse peut être confirmée par le fait que, dès que la flamme du brûleur est éteinte (à 180 s), la température des thermocouples décroît rapidement.

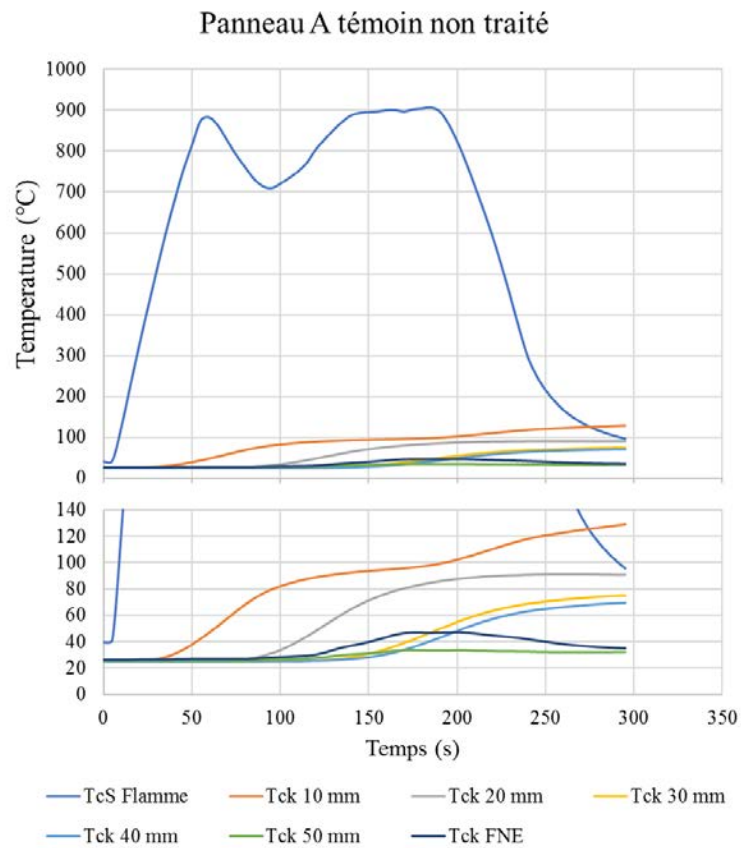


Figure VI-11 : Profils des températures au sein du panneau A témoin (non traité).

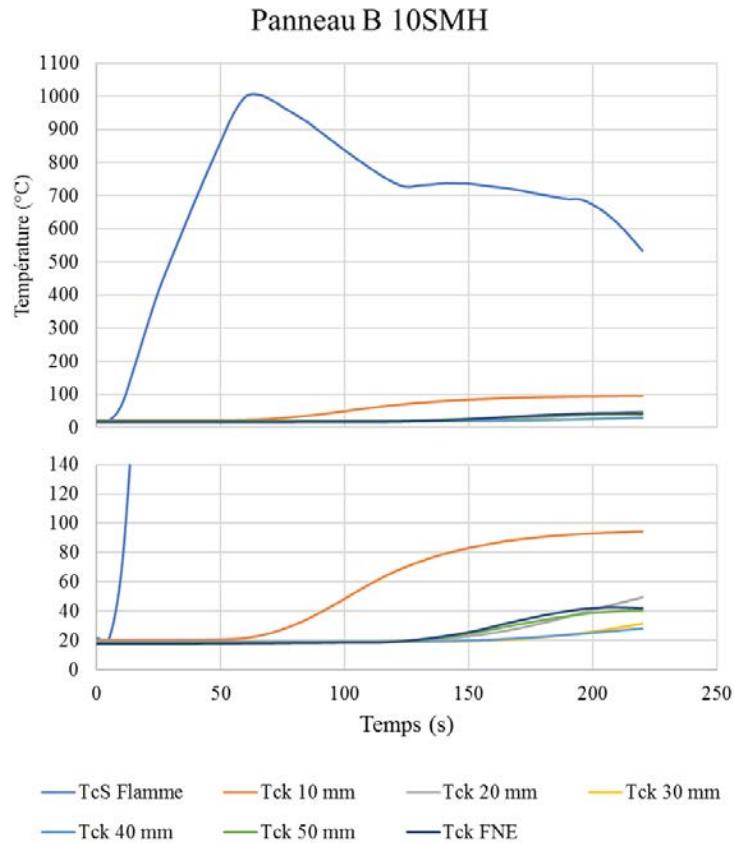


Figure VI-12 : Profils des températures au sein du panneau B traité avec 10% de sulfate de magnésium heptahydraté

Le profil de température dans le panneau traité avec 10% de sulfate de magnésium heptahydraté (Figure VI-12) montre un effet important de l'additif. En effet, l'élévation de température à 10 mm de profondeur, débutant après 75s, est significativement retardée par rapport à l'échantillon non traité. A 10 mm de profondeur, la température n'a pas excédé 100°C avant la fin de l'essai. La température à 20 mm de profondeur commence à croître après 140°C et n'a pas dépassé 55°C. Ces résultats confirment les résultats obtenus à l'aide des essais au calorimètre à cône. En effet, le sulfate de magnésium heptahydraté retarde l'élévation de température par effet de refroidissement de la phase condensée (décomposition endothermique).

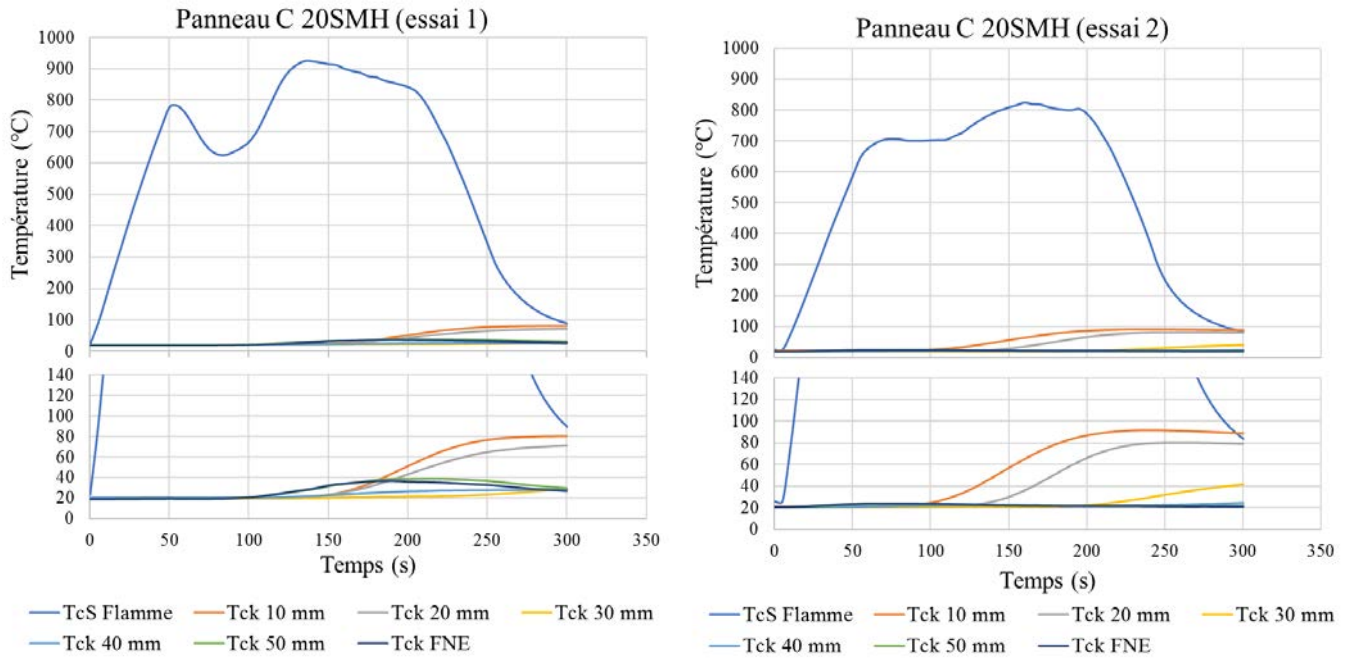


Figure VI-13 : Profils des températures au sein du panneau C traité avec 20% de sulfate de magnésium heptahydraté (a. échantillon 1 ; b. échantillon 2)

Les essais menés sur les échantillons C traités avec 20% de sulfate de magnésium illustrent d'autant plus l'effet retardateur de flamme du sulfate de magnésium heptahydraté par « refroidissement » (Figure VI-13). L'élévation de température à 10 mm commence après 175 s et 100 s pour les essais 1 et 2 respectivement. Les températures n'ont pas dépassé 100°C.

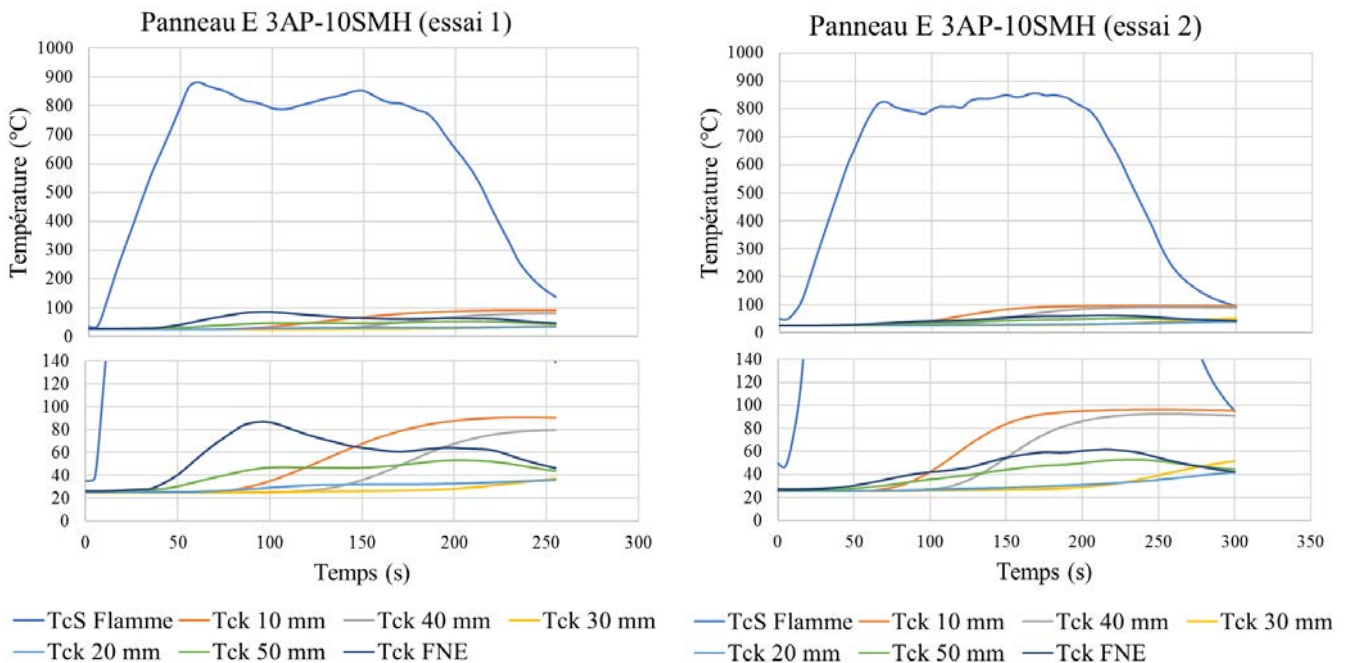


Figure VI-14 : Profils des températures au sein du panneau E traité avec 3% d'acide phosphorique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté

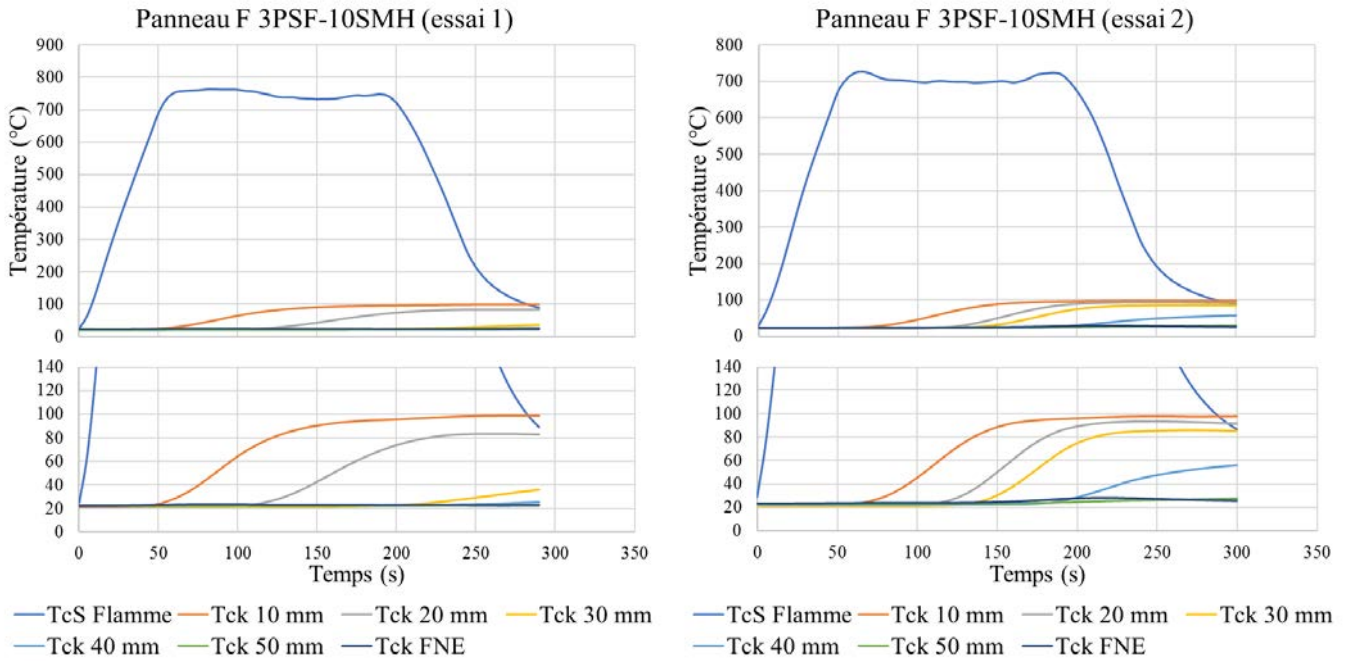


Figure VI-15 : Profils des températures au sein du panneau F traité avec 3% de particules de silice fonctionnalisées et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté

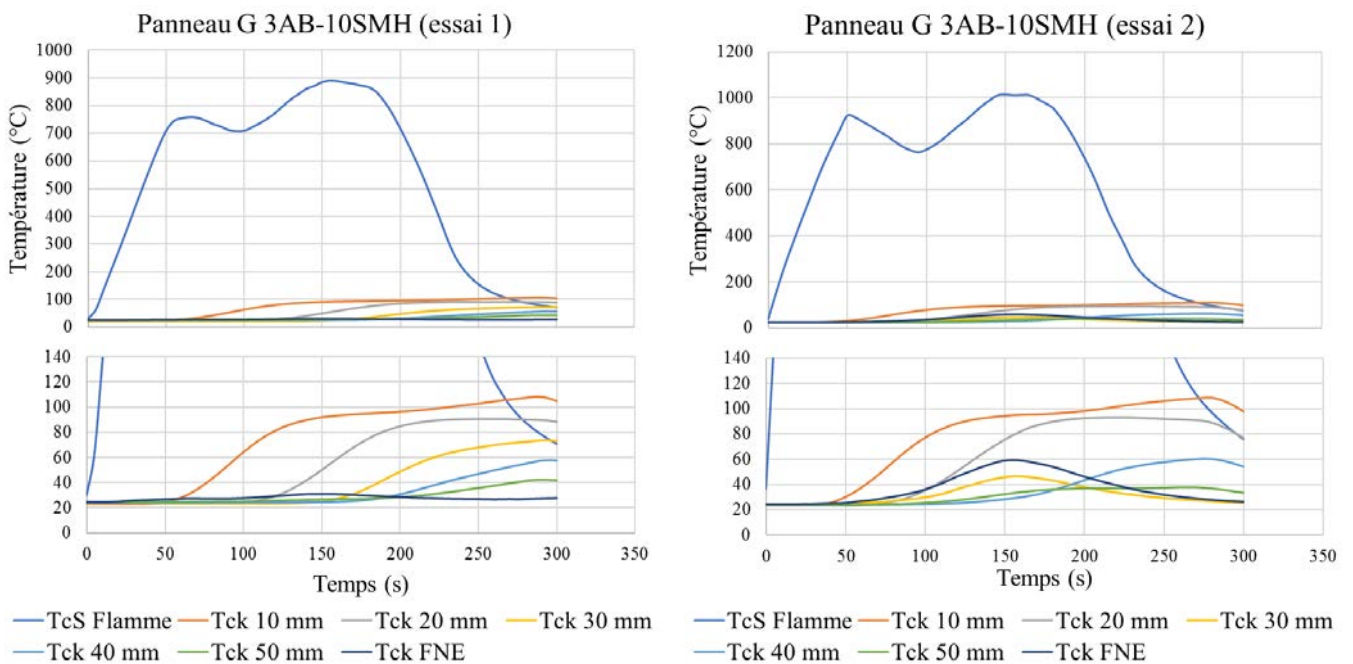


Figure VI-16: Profils des températures au sein du panneau G traité avec 3% d'acide borique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté

Les panneaux E, F et G présentent des profils de température similaires à l'échantillon traité avec 10% de sulfate de magnésium. Pour chacun de ces panneaux, l'élévation de la température est retardée par rapport au panneau non traité. Ce retard peut être expliqué par la présence de sulfate de magnésium heptahydraté, pour chacune de ces formulations. Les effets des particules de silices fonctionnalisées, de l'acide borique et de l'acide phosphorique respectivement ne sont pas clairement identifiables avec cette méthode de caractérisation.

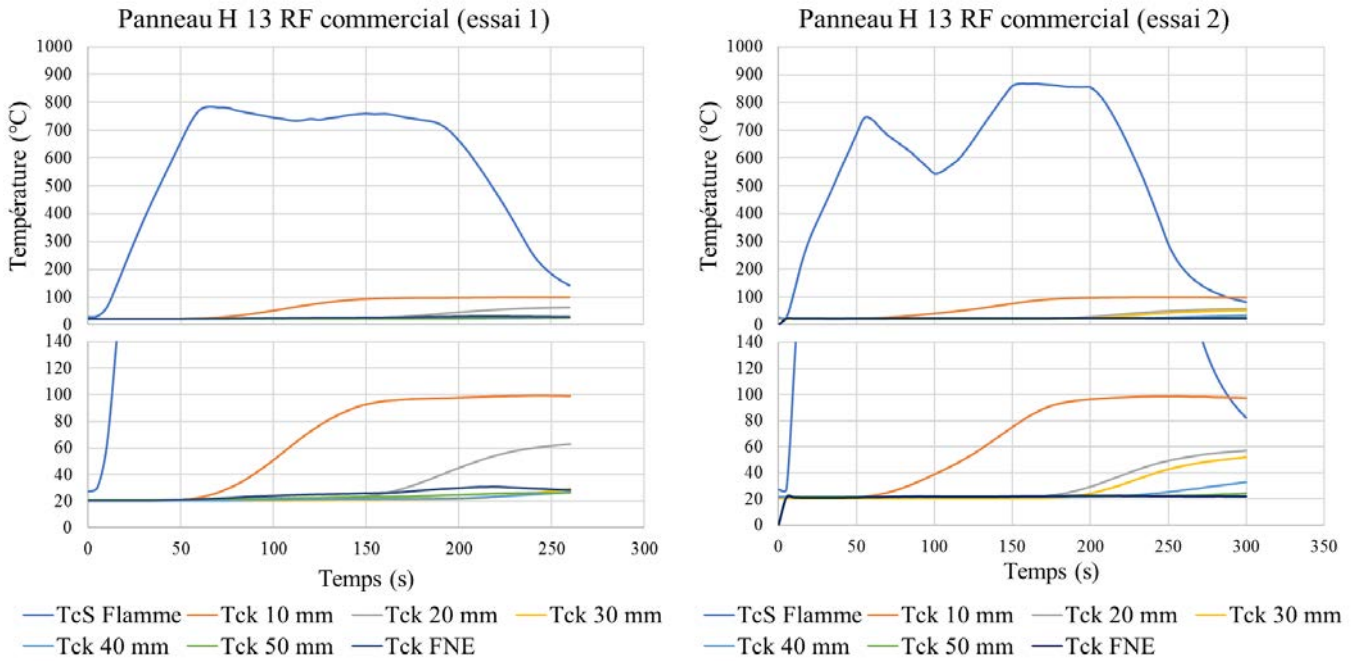


Figure VI-17 : Profils des températures au sein du panneau H traité avec 13% de retardateur de flamme commercial ammonium sulfate/phosphate

Le panneau H traité avec 13% de RF commercial ammonium sulfate/phosphate retarde significativement la propagation de chaleur dans l'épaisseur du panneau (Figure VI-17). En effet, la température à 10 mm de profondeur commence à croître après 75 s et ne dépasse pas 100°C après 250 s. Ce comportement est assez similaire à celui du panneau traité avec 10% de sulfate de magnésium heptahydraté. En revanche, la principale différence est que, à 20 mm de profondeur, l'élévation de température commence après 175 s et ne dépasse pas 55°C. Ce retard important à 20 mm de profondeur pourrait être expliqué par la formation d'une couche protectrice de charbon à la surface de l'échantillon qui protège par isolation thermiquement la zone non exposée. Ces résultats illustrent la haute efficacité des traitements retardateur de flamme à base d'ammonium phosphates/sulfates.

VI.1.3 Optimisation des traitements ignifuges

Dans la sous-partie précédente, nous avons montré l'efficacité de différentes solutions exemptes de sels d'ammonium et de dérivés du bore, pour améliorer la réaction au feu du composite. Le traitement combinant acide phosphorique et sulfate de magnésium heptahydraté a permis de diminuer significativement la réaction au feu du composite. Cependant, les propriétés mécaniques des panneaux ont été fortement pénalisées par le traitement. Dans cette sous partie nous présentons des essais prospectifs réalisés afin d'identifier un traitement qui ne pénalise pas les propriétés mécaniques du panneau composite et donc potentiellement exploitable pour la fabrication du panneau de chènevotte ignifugé.

Nous avons supposé précédemment que la réduction des propriétés mécaniques était due à une interaction entre le liant et le traitement trop acide. Ainsi, afin de rehausser le pH du traitement et d'éviter l'interaction avec la réaction de réticulation du liant biosourcé, le sulfate de magnésium a été remplacé par de l'hydroxyde de magnésium.

La réaction au feu des panneaux composites a directement été évaluée par des essais de caractérisation à l'épiradiateur selon la norme NF P 92 501 par le laboratoire CREPIM, France. Les performances du traitement sans ammonium et sans bore, sont comparées au traitement traditionnel utilisant de l'acide borique.

VI.1.3.1 Formulations testées

Les granulats de chènevotte sont prétraités avec les additifs retardateurs de flamme suivant la procédure décrite dans la partie VI.1. Les prétraitements appliqués sur la chènevotte sont présentés dans le tableau ci-dessous.

Tableau VI-6: Prétraitements appliqués sur la chènevotte pour les essais à l'épiradiateur

Reference du traitement	Chènevotte	Retardateur de flamme 1		Retardateur de flamme 2		Commentaires
	Parts	Additif	Parts	Additif	Parts	
Non traité	100	-	-	-	-	Témoin non traité
I 3AP-10Mg(OH)₂	87	Acide phosphorique	3	Hydroxide de magnésium	10	Sans sel ammonium et sans acide borique
J 3AB-10Mg(OH)₂	87	Acide borique	3	Hydroxide de magnésium	10	Traitement de référence
K 5AB-10SMH	85	Acide borique	5	Sulfate de magnésium hept	10	Traitement de référence (fortement traité)

VI.1.3.2 ATD-TG des granulats de chènevotte traités

La Figure VI-18 illustre les courbes des ATG de la chènevotte non traitée (ref A), des chènevottes traitées avec 3% d'acide phosphorique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté (ref E) et 3% d'acide phosphorique et 10% d'hydroxyde de magnésium $Mg(OH)_2$ (ref I) respectivement. La courbe de décomposition de l'échantillon I ne présente aucune similitude avec la courbe de décomposition de l'échantillon E. En effet, la décomposition thermique de l'échantillon I n'est pas anticipée et les valeurs de T_{onset} et T_{MDR} , respectivement de 249 °C et 343°C (Tableau VI-7), sont proches de celles obtenues pour l'échantillon non traité, étant respectivement de 236°C et 328°C. Cette observation signifie que l'acide phosphorique n'a pas catalysé la réaction de déshydratation de la cellulose et des hémicelluloses. Il est possible qu'une réaction ait lieu entre l'acide phosphorique et l'hydroxyde de magnésium formant une phase d'oxyphosphate de magnésium stable thermiquement. La catalyse de la déshydratation de la cellulose pour favoriser la formation de charbon étant le mécanisme de base des retardateurs utilisant des phosphates, il est possible que le traitement ne soit pas aussi efficace que celui combinant acide phosphorique et sulfate de magnésium.

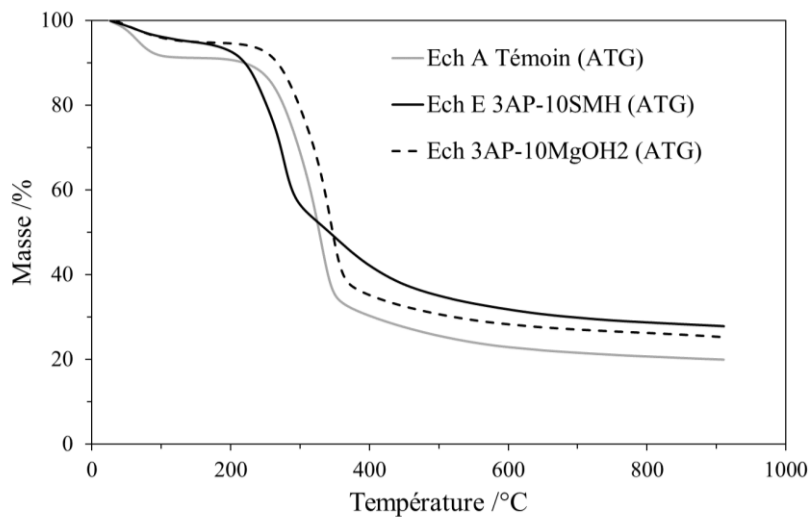


Figure VI-18 : Comparaison des courbes ATG des granulats de chènevotte traités avec les différents additifs

(Ref A : témoin non traité, Ref E traité avec 3% d'acide phosphorique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté ; et Ref I : 3% d'acide phosphorique et 10% d'hydroxyde de magnésium $Mg(OH)_2$)

Tableau VI-7 : Comparaison des températures de début de pyrolyse (T_{onset}); Températures du taux de dégradation maximale (T_{MDR}) et des masses résiduelles déterminés par analyse des courbes ATG.

Echantillon	T_{onset} /°C	T_{MDR} /°C	Masse résiduelle /%		
			À 300°C	À 430°C	À 600°C
A Témoin	236	328	68.89	28.62	22.90
E 3AP-10SMH	206	275	56.54	39.25	31.81
3AP 10Mg(OH)₂	249	343	69.93	33.48	28.30

VI.1.3.3 Résultats des essais à l'épiradiateur et discussion

Les panneaux de chènevotte traitée de dimensions 600 mm x 600 mm x 50 mm sont fabriqués à l'aide de la presse à plateaux chauffants de laboratoire et du liant C30% suivant la méthode décrite dans la partie IV.1.2. Chaque panneau est découpé pour produire deux échantillons de dimensions 400 mm x 300 mm x 50 mm.

Pour le panneau traité à l'acide phosphorique (ref I), la substitution du sulfate de magnésium heptahydraté par de l'hydroxyde de magnésium a permis de ne pas pénaliser la réaction de réticulation car le panneau réalisé semble présenter la même cohésion que le panneau non traité. Cela démontre que les diminutions des propriétés mécaniques observées dans la partie VI.2.5 sont effectivement liées aux faibles pH induits par les traitements acides. L'étape de thermo-pressage n'a pas entraîné le noircissement des faces du panneau. Cette observation reste compatible avec les résultats des ATG présentées précédemment. Le traitement n'a pas conduit à une déshydratation anticipée.

Tableau VI-8 : Résultats des essais à l'épiradiateur sur les panneaux rigides de chènevotte

Traitements	Ref A : Panneau non traité (témoin)		Ref I : 3AP-10Mg(OH) ₂	
	Echantillon 1	Echantillon 2	Echantillon 1	Echantillon 2
Indice q	84.9	54.7	22.1	39.6
\bar{q} moyen	69.8		30.8	
Classement M	Potentiellement M4		M3	

Tableau VI-9 : Résultats des essais à l'épiradiateur sur les panneaux rigides de chènevotte (suite)

Traitements	Ref J : 3AB -10Mg(OH) ₂		Ref K : 5AB-10SMH	
	Echantillon 1	Echantillon 2	Echantillon 1	Echantillon 2
Indice q	4.6	3.1	2.4	3.2
\bar{q} moyen	3.9		2.8	
Classement M	M2		M2	

Ces résultats démontrent clairement l'efficacité des différents traitements retardateurs de flamme. Le panneau non traité est classé potentiellement M4, ce qui correspond au classement « facilement inflammable ». Les échantillons traités avec 5% d'acide borique et 10% de sulfate de magnésium heptahydraté (ref K) présentent les meilleurs résultats avec une classement M2. Un des échantillons sur les deux a atteint les exigences du classement M1, correspondant au plus haut classement envisageable pour un matériau non minéral (combustible). D'après la table des correspondances présentées dans le chapitre II, la réaction au feu pourrait correspondre aux critères de l'Euroclasse C. Les échantillons traités avec 3% d'acide borique et 10% d'hydroxyde de magnésium (Ref J) atteignent aussi les exigences de la classification M2. Les résultats sont proches de ceux obtenus avec le panneau traité avec 5% d'acide borique et 10% de sulfate de magnésium. Cependant, il est difficile de conclure si l'hydroxyde de magnésium est un meilleur retardateur de flamme que le sulfate de magnésium heptahydraté car les proportions en acide borique ne sont pas identiques. Ces résultats seront approfondis ultérieurement mais l'hypothèse ne pourra pas être validée dans le cadre de cette thèse.

Les résultats obtenus pour le panneau traité avec 3% d'acide phosphorique combiné avec 10% d'hydroxyde de magnésium (Ref I) sont prometteurs. En effet, le traitement ne contenant pas de sel d'ammonium, ni de composé à base de bore, a permis d'atteindre les exigences du classement M3 (potentiellement Euroclasse D). A titre de comparaison, le classement M3 correspond à la réaction au feu d'un panneau de particule (de bois) non traité d'une masse volumique apparente de 600 kg/m³. Ainsi, ce nouveau traitement permet de réduire grandement les risques liés à l'inflammabilité du produit, tout en évitant les problématiques environnementales et sanitaires associées à l'utilisation de l'acide borique.

Ces essais ne permettent cependant pas de comparer l'efficacité du traitement E (3%AP – 10%SMH) avec celle du traitement I (3%AP – 10%Mg(OH)₂) pour améliorer la réaction au feu du composite. Il serait pertinent de compléter ces essais avec un test de comparaison entre les deux traitements.

VI.2 Analyse de la réaction au feu des composites chènevotte/liant oxysulfate de magnésium

L'objectif de cette partie est d'évaluer la réaction au feu des composites de chènevotte liés avec le liant d'oxysulfate de magnésium développé dans le chapitre III. Cette étude permettra d'évaluer la différence de réaction au feu entre les composites ignifugés à base de liants organiques et les composites utilisant un liant minéral d'oxysulfate de magnésium.

VI.2.1 Préparation des éprouvettes

Trois formulations de composites liés avec le ciment magnésien sont testées. Seule la proportion liant humide:chènevotte varie. Les compositions sont détaillées dans le tableau ci-dessous. Le grade chènevotte Biofibat (Cavac Biomatériaux) est utilisé.

Tableau VI-10 : Détail des formulations des composites de chènevotte liée avec le ciment d'oxysulfate de magnésium pour la caractérisation de la réaction au feu

Ref éch	Ratios				Détail de la composition en parts massiques			
	Teneur en chènevotte kg/m ³	Ratio L/C*	Ratio Sol:MgO	Ref solution	Chèn	MgO	Solution de MgSO ₄ .7H ₂ O	Stabilys A046
C200	200	2	1	S50%	200	200	200 de S50%	-
C150	200	1.5	1	S50%	200	150	150 de S50%	-
C100	200	1	1	S50%	200	100	100 de S50%	-

Le liant d'oxysulfate de magnésium et les composites sont préparés suivant les méthodes décrites dans les parties II.1.2.3 et II.1.2.4 respectivement. Pour chaque formulation, trois échantillons de dimensions 100 mm x 100 mm x 50 mm et un échantillon de dimensions 300 mm x 400mm x 50 mm sont fabriqués par moulage puis activation thermique. Les échantillons de dimensions 100 mm x 100 mm x 50 mm sont utilisés pour caractériser le composite au calorimètre à cône. L'échantillon de dimension 300 mm x 400mm x 50 mm est découpé pour produire deux échantillons de dimensions 300 mm x 200 mm x 50 mm qui seront caractérisés à l'aide du test au brûleur présenté dans la partie VI.1.2.6.

Les masses volumiques apparentes des composites C100, C150 et C200 sont respectivement 322, 380 et 465 kg/m³.

VI.2.2 Caractérisation au calorimètre à cône : comparaison des résultats avec les panneaux organiques

La Figure VI-19 illustre les courbes du taux de dégagement de chaleur et du taux de perte de masse en fonction du temps pour les trois formulations des composites à liant minéral C100, C150 et C200. Aucun des échantillons ne s'est enflammé sous le flux de chaleur de 15 kW/m^2 , ce qui explique l'allure des courbes avec une ignition tardive. Les échantillons se sont consumés par incandescence. La Figure VI-20 compare les évolutions des taux de dégagement de chaleur des composites chènevotte/liant minéral avec les panneaux de chènevotte/le liant organique C30% non traité et celui traité avec le retardateur de flamme commercial à base d'ammonium sulfate/phosphate.

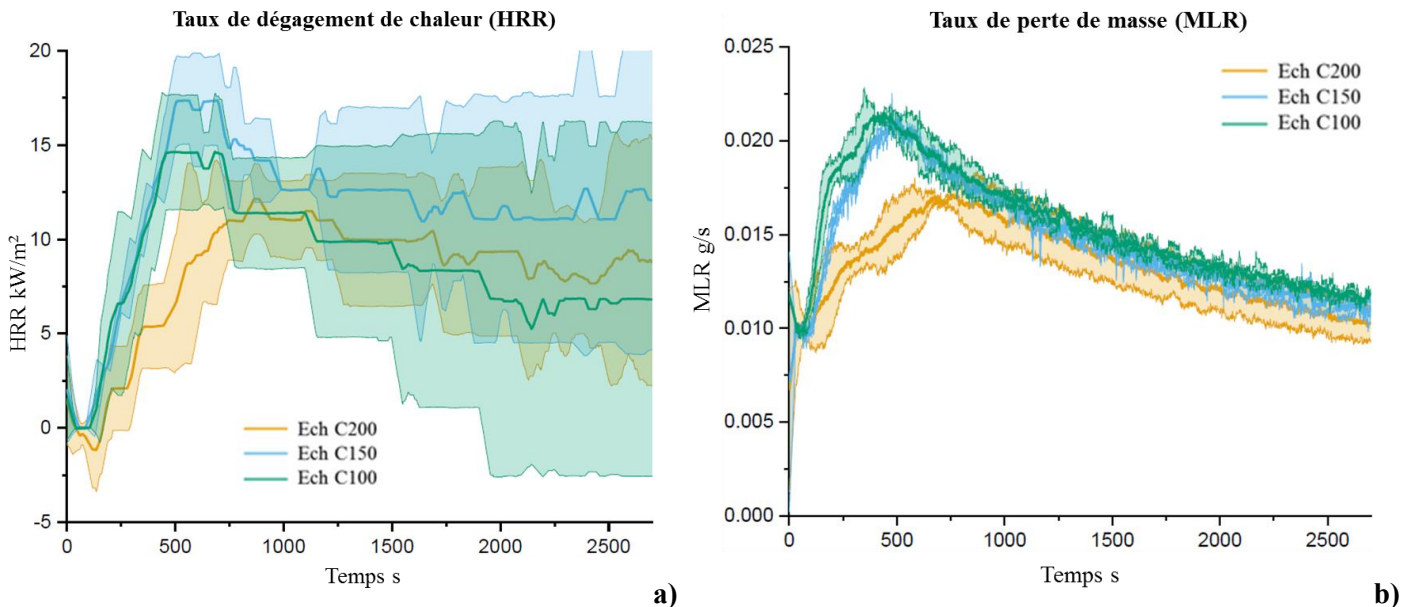


Figure VI-19: Taux de dégagement de chaleur a) et de perte de masse b) des composites chènevotte/liant oxysulfate de magnésium.

Les taux de dégagement de chaleur et de perte de masse sont significativement réduits par rapport au composite chènevotte/liant organique non traité. Les écarts types des courbes du taux de dégagement de chaleur des composites à liant minéral (Figure VI-19) sont larges, ce qui rend difficile la comparaison des composites C100, C150 et C200. Cependant, on peut observer que les composites C100 et C150 ont un comportement assez similaire tandis que le composite C200 présente un pic du taux dégagement de chaleur affaibli par rapport aux autres composites.

L'évolution du taux de dégagement de chaleur pour les trois composites utilisant le liant d'oxysulfate de magnésium sont assez similaires aux panneaux organiques traités avec le RF commercial (traitement H). En effet, comme présenté dans la Figure VI-21, les quantités de chaleur totale dégagée à 600s par les échantillons C100, C150 et C200 sont respectivement 4.8 , 5.1 et 2.1 MJ/m^2 . La quantité de chaleur dégagée du composite de chènevotte/liant organique traité H (ammonium sulfate/phosphate) est de 4.9 MJ/m^2 .

Les temps d'ignition (ignition de la réaction de combustion par incandescence) des composites sont significativement augmentés par rapport aux panneaux à liant organique. En effet, les temps d'ignition des composites C100, C150 et C200 sont respectivement 157, 159 et 290s et ceux des composites à liant organique A (non traité) et H (RF commercial) sont respectivement 51 et 41s.

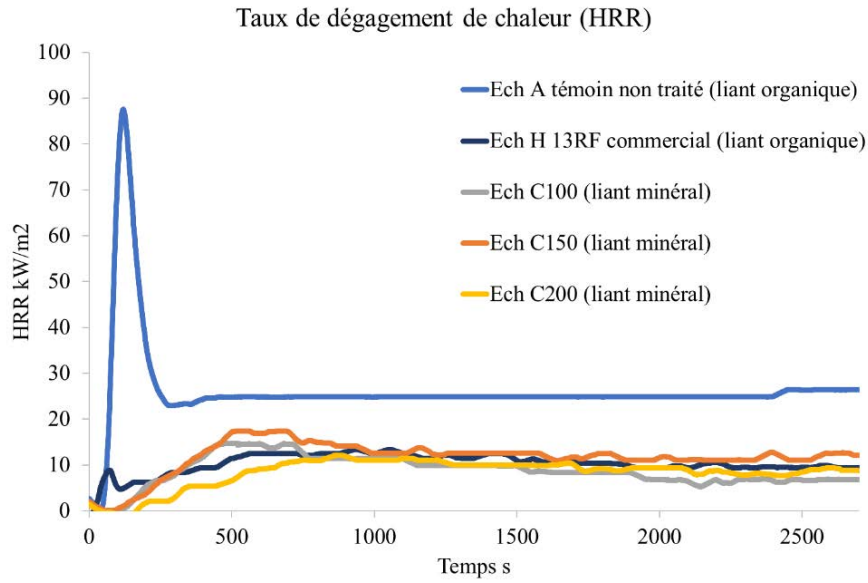


Figure VI-20 : Comparaison du taux de dégagement de chaleur composites chènevotte/liant minéral et chènevotte/liant organique (ignifugé et non traité)

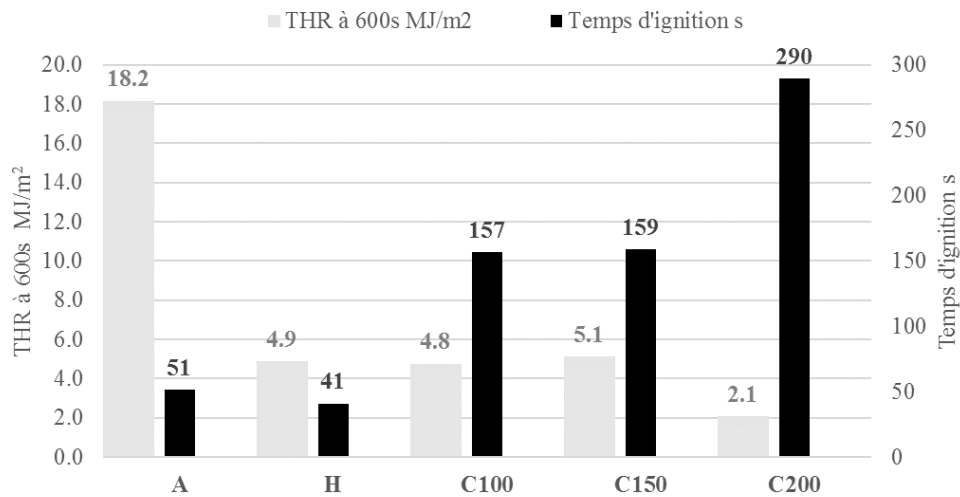


Figure VI-21 : Comparaison de la chaleur totale dégagée à 600s (THR à 600s) et du temps d'ignition entre les échantillons à liant organique et minéral

Ces résultats illustrent l'excellent comportement au feu des composites végétaux utilisant un liant oxysulfate de magnésium. Comme, présenté dans la synthèse bibliographique, ce comportement peut être expliqué d'une part, par la quantité importante de chaleur absorbée par le liant par décomposition endothermique des phases d'oxysulfate de magnésium et, d'autre part, par le dégagement de vapeur d'eau qui dilue la phase gazeuse.

VI.2.3 Essais au brûleur

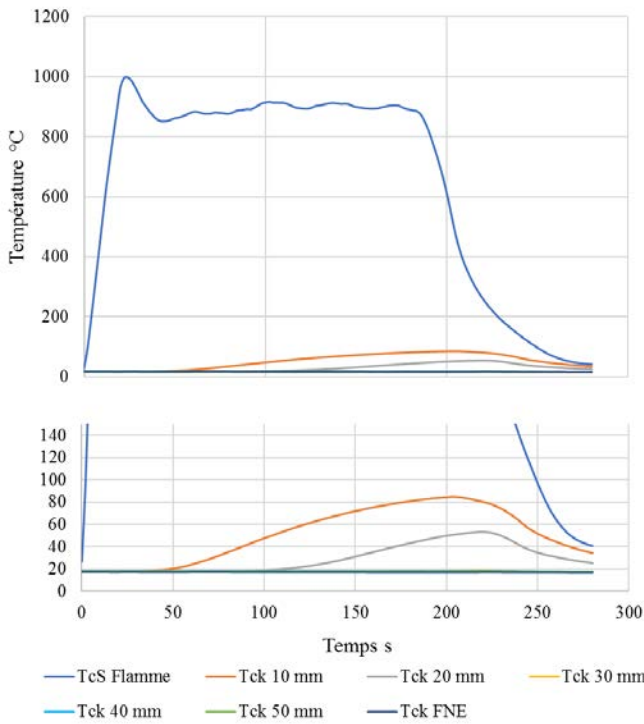


Figure VI-22 : Profils des températures au sein du composite chènevotte/liant oxysulfate de magnésium C100

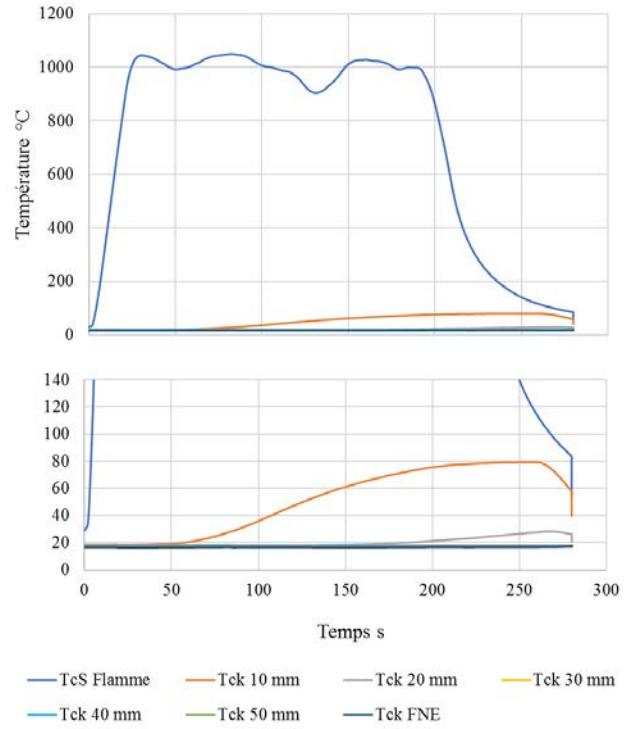


Figure VI-23 : Profils des températures au sein du composite chènevotte/liant oxysulfate de magnésium C150

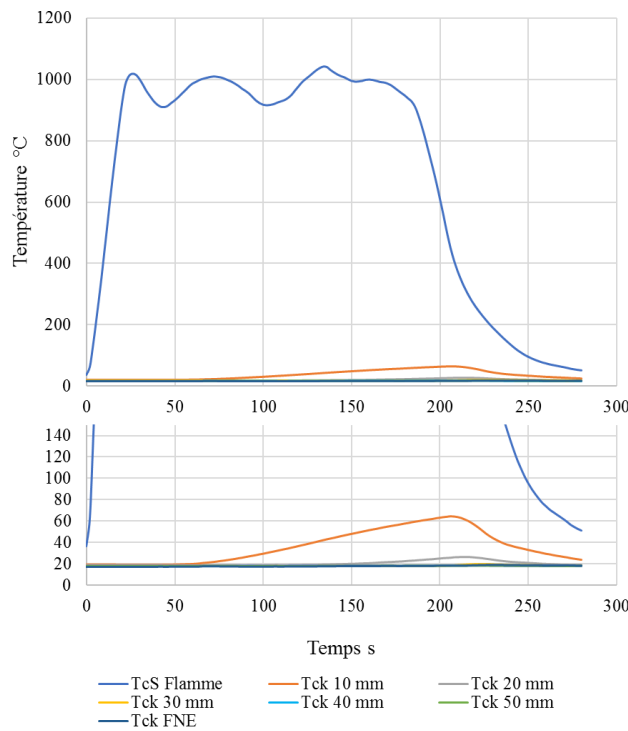


Figure VI-24 : Profils des températures au sein du composite chènevotte/liant oxysulfate de magnésium C200

Pour le composite C100 (Figure VI-22), seuls les thermocouples placés à 10mm et 20mm de la face exposée à la flamme du brûleur ont enregistré une élévation de température pendant l'essai. L'élévation de la température est beaucoup plus lente que pour les composites à liant organique. À 10 mm de la face exposée, la température commence à augmenter après 50s d'exposition et croît progressivement pour atteindre 85°C à la fin de l'essai. A 20 mm de la face exposée, la température commence à croître après 110 s et atteint 55°C à la fin de l'essai.

Le profil des températures dans le composite C150 (Figure VI-23) est presque similaire à celui du composite C100, à la différence que l'élévation de la température à 20 mm de la face exposée à la flamme est retardée par rapport au composite C100. En effet, la température enregistrée par le thermocouple Tck 20 mm commence à croître après 170 s et ne dépasse pas 28°C.

Les températures dans le composite C200 ne dépassent pas 65 °C à 10 mm de la face exposée. L'élévation de température débute 70 s après le début de l'exposition à la flamme. À 20 mm, l'élévation de température débute 160 s après le début de l'exposition et ne dépasse pas 30°C.

Ces résultats montrent que les composites de chènevotte liés avec le liant d'oxysulfate de magnésium sont de bons isolants au feu et ce, même pour une faible proportion de liant. Plus la proportion de liant dans le matériau est élevée, plus la propagation de chaleur au sein du composite est ralentie. Pour les trois formulations, la combustion de l'échantillon s'est arrêtée dès le retrait de la flamme. Une légère production de fumée a été observée pour l'échantillon C100 pendant l'essai mais les dégagements se sont arrêtés après le retrait de la flamme.

Même si ces essais n'ont pas de valeurs vis-à-vis de normes en vigueur, les résultats obtenus permettent de mettre en évidence des différences de comportement entre les composites utilisant un liant organique traités avec des retardateurs de flamme et les panneaux utilisant un liant minéral. Ces observations ouvrent donc de nouvelles perspectives d'application pour ce type de composite.



Figure VI-25 : Échantillons C100 après l'essai au brûleur

VI.3 Conclusion du chapitre VI

La première partie de ce chapitre s'est focalisée sur l'amélioration de la réaction au feu du panneau composite de chènevotte et de liant biosourcé therm durcissable. Les développements portent essentiellement sur la recherche d'additifs innovants permettant de se substituer aux retardateurs de flammes traditionnels à base de sels d'ammonium ou de dérivés du bore. Tous les traitements testés ont permis de réduire l'inflammabilité des composites sans trop pénaliser les masses volumiques apparentes du composite. Cependant, selon la nature des additifs, les propriétés mécaniques du panneau ont pu être conservées ou drastiquement diminuées. Une interaction entre les additifs ignifugeants et le liant pénalisant la réaction de réticulation a été mise en évidence. La diminution des performances mécaniques est d'autant plus marquée que le traitement est acide.

Le sulfate de magnésium heptahydraté a permis d'améliorer significativement la réaction au feu du composite par refroidissement de la phase condensée (décomposition endothermique) et dilution de la phase gazeuse avec un dégagement de vapeur d'eau. Avantagusement, le traitement n'a pas pénalisé les propriétés mécaniques du composite. Les traitements combinant de l'acide phosphorique et des particules de silices fonctionnalisées respectivement en combinaison avec du sulfate de magnésium heptahydraté se sont montrés plus efficaces pour réduire la réaction au feu du composite que le traitement combinant de l'acide borique et du sulfate de magnésium heptahydraté.

La deuxième campagne d'essais a permis d'évaluer la réaction au feu des composites selon le test normé à l'épiradiateur. Les échantillons composites prétraités avec une combinaison d'acide phosphorique et d'hydroxyde de magnésium ont atteint les exigences du classement M3. Ces résultats sont prometteurs car le traitement n'inclut également pas de sel d'ammonium ni de dérivé du bore. Les analyses thermogravimétriques ont montré que le traitement n'agit pas sur la matière cellulosique de la même manière que le traitement combinant de l'acide phosphorique et du sulfate de magnésium heptahydraté. Des essais complémentaires sont donc nécessaires pour évaluer et comparer l'efficacité de ces deux traitements pour améliorer la réaction au feu des composites développés dans cette thèse mais aussi potentiellement d'autres matériaux cellulosiques.

Ensuite, les résultats des essais de caractérisation de la réaction au feu des composites de chènevotte/liant oxysulfate de magnésium ont été présentés et comparés avec ceux des panneaux composites chènevotte/liant biosourcé therm durcissable traités. Les résultats ont permis de montrer l'excellent comportement au feu des composites utilisant le liant magnésien. Même pour la plus faible proportion de liant dans le composite, les performances déterminées étaient du même ordre de grandeur que celles mesurées sur le composite organique traité avec le retardateur de flamme commercial (ammonium sulfate-phosphate).

A partir des données identifiées dans ce chapitre, une analyse multicritère est nécessaire pour évaluer quels sont les compromis de formulation acceptables. A cette fin, trois critères sont utilisés pour classer les différents composites : la réaction au feu, la masse volumique et la performance sanitaire. Les critères choisis sont classés de 4 (très favorable) à 1 (médiocre) (Tableau VI-11). Les résultats sont visuellement analysés sur la Figure VI-26. En référence au composite non ignifugé, on constate que le motif caractéristique des différents traitements dans la représentation radar est plus ou moins décentré.

Tableau VI-11 : Définition des critères de comparaison

Classe	Réaction au feu	Masse volumique	Performances sanitaires (subjectif)
4	Ininflammable/ Difficilement inflammable	< 200 kg/m ³	Ne contient aucun produit classé CMR, favorisant les émanations de COV. Ne requiert pas de précaution spécifique lors de la fabrication ou la mise en œuvre.
3	Faiblement inflammable	200-250 kg/m ³	Utilise des produits nécessitant des précautions lors de la fabrication mais ne sont pas CMR et n'émettent pas de COV.
2	Modérément inflammable	250-300 kg/m ³	Pas d'additif classé CMR/faible risque de dégradation de qualité de l'air.
1	Facilement inflammable	>300 kg/m ³	Additifs classés CMR ou fort risque de dégradation de la qualité de l'air.

Tableau VI-12 : Classification des composites

Types de composite	Réaction au feu	Masse volumique	Performances sanitaires
Composite chènevotte-liant organique non traité	1	4	4
Composite chènevotte-liant organique ignifugé avec les traitements traditionnels	4	3	1
Composite chènevotte-liant organique ignifugé avec les traitements sans ammonium/sans bore	3	3	3
Composite chènevotte-liant oxysulfate de magnésium	4	1	4

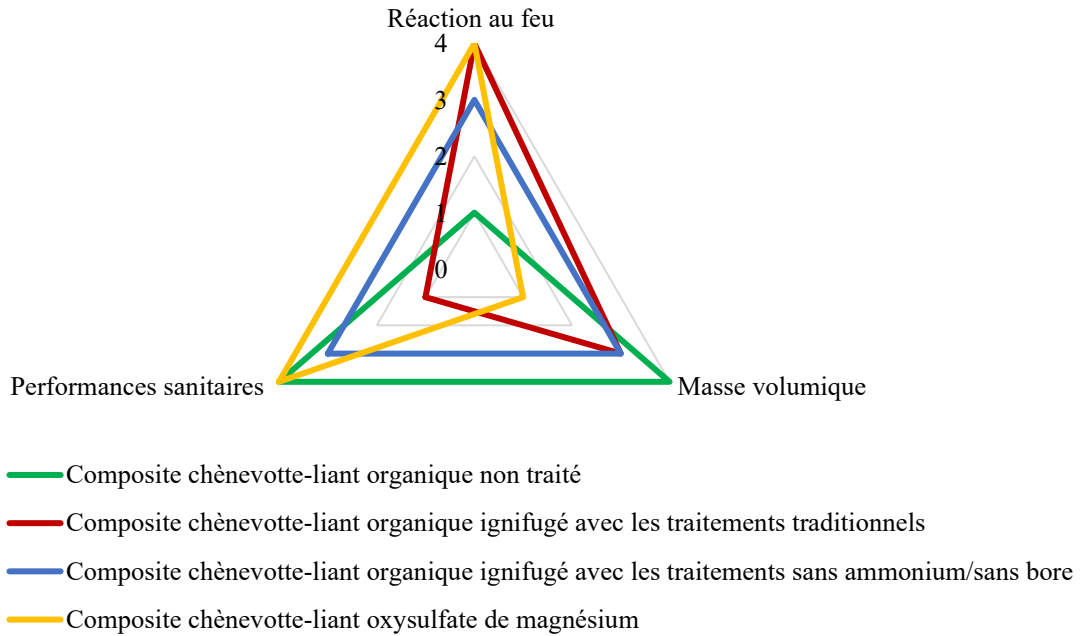


Figure VI-26 : Représentation multicritère des performances des différents composites

Il ressort de cette analyse que deux moyens d'améliorer la réaction au feu du composite sont acceptables sans induire de dégradation des performances sanitaires et présentent des compromis différents :

- Le traitement sans ammonium ou sans bore étudié dans la première partie pourra être utilisé pour améliorer la réaction au feu des composites sans modifier significativement la masse volumique apparente du composite. Ce traitement permettra donc de conserver une faible valeur de conductivité thermique.
- Pour les applications tolérant des masses volumiques plus élevées, l'utilisation du liant d'oxysulfate de magnésium est une solution intéressante permettant d'une part d'assurer la cohésion du composite et d'autre part d'améliorer sa réaction au feu.

Conclusion générale et perspectives

Menés dans le cadre d'une collaboration entre le Laboratoire de Génie Civil et de Génie Mécanique de l'Université de Rennes 1 et l'entreprise CAVAC Biomatériaux, ces travaux de thèse associés au déroulement du projet européen ISOBIO ont porté sur l'étude de la valorisation de la chènevotte associée à des liants organiques ou minéraux pour développer des composites isolants rigides destinés à l'isolation des bâtiments.

Au travers d'une synthèse bibliographique, les propriétés spécifiques des matériaux issus de granulats végétaux ont pu être évoquées, ce qui a permis d'identifier les différents axes de recherche envisagés.

Initialement, différentes agro-ressources accessibles pour Cavac Biomatériaux ont été envisagées. Les travaux de caractérisation de ces ressources, initiés dans le cadre du projet ISOBIO permettent de compléter les bases de données existantes et fournissent les éléments nécessaires à la sélection des agro-ressources dont les caractéristiques sont adaptées à la réalisation du panneau rigide isolant. Les résultats ont montré que toutes les agro-ressources étudiées présentent intrinsèquement des propriétés intéressantes, avec de faibles masses volumiques apparentes en vrac, de faibles conductivités thermiques et de hautes capacités de régulation hydrique. La chènevotte et les broyats de paille de colza ont été retenus comme les candidats favoris pour le développement de panneaux composites isolants car ces ressources présentent un bon compromis entre performances thermiques, hydriques et masses volumiques apparentes. La chènevotte est finalement sélectionnée pour la suite des travaux, la collecte et le traitement de la paille de chanvre étant déjà maîtrisée par Cavac Biomatériaux.

La suite des travaux a consisté à explorer différentes formulations de liants potentiellement exploitables pour agglomérer les granulats végétaux en se basant sur différentes solutions identifiées dans la littérature. L'objectif principal étant d'identifier des solutions alternatives permettant de se substituer totalement ou en partie des résines synthétiques, en particulier en exploitant des composés biosourcés. Ainsi, deux types de liants ont été étudiés : un liant majoritairement composé de biopolymères organiques (la matrice végétale) et un liant minéral d'oxysulfate de magnésium. Les résultats ont montré que les dérivés d'amidon, la farine de soja, et la mélasse de canne sont des matrices biosourcées intéressantes pour lier les granulats végétaux car ces liants sont particulièrement compatibles avec la chènevotte. Les composites réalisés à partir de ces liants ont atteint des performances mécaniques compatibles avec les applications visées. Cependant, l'ajout d'un réticulant s'est avéré indispensable pour améliorer la réactivité du liant afin qu'il soit compatible avec les procédés de fabrication et pour améliorer la résistance à l'eau du composite. La comparaison de différents réticulants a permis de sélectionner la résine PAE. Cet additif, couramment utilisé dans l'industrie Papetière pour améliorer la résistance à l'eau du papier, s'est montré particulièrement compatible avec les matrices végétales testées. La mélasse de canne a finalement été sélectionnée car il s'agit d'un coproduit de l'industrie du sucre grandement disponible et à faible coût, sans incidence sur la ressource alimentaire (ce qui n'est pas le cas de l'amidon et du soja). L'association de la mélasse de canne avec la résine PAE, a permis de réaliser des composites présentant des gammes de valeurs des caractéristiques d'usage (résistance mécanique, conductivité thermique, régulation hygrique) répondant au cahier des charges.

La caractérisation des propriétés des panneaux chènevotte/liant biosourcé thermodurcissable a permis d'identifier de nombreux paramètres clés :

- Les propriétés mécaniques en compression et en flexion dépendent principalement de la masse volumique apparente du panneau composite, de la teneur volumique en granulat et de la proportion de réticulant dans le composite.
- La conductivité thermique à l'état sec dépend principalement de la masse volumique apparente du composite. Cependant, la tendance observée en présence de liant n'est pas la même que celle observée pour les agroressources en vrac. Il semblerait que l'étape de thermocompression entraîne une déformation du granulat, réduisant la porosité intragranulaire, ce qui pénalise d'autant plus la conductivité thermique du composite.
- La valeur tampon hydrique du composite semble évoluer de manière croissante avec la masse volumique du composite. De manière similaire à la conductivité thermique, l'étape de thermopressage pénalise la valeur tampon hydrique du composite car à masse volumique équivalente les valeurs obtenues sur les agro ressources en vrac sont plus élevées. Cette observation pourrait également être expliquée par la diminution de la porosité intragranulaire engendrée par l'étape de fabrication. L'incorporation de paraffine pénalise très légèrement la valeur MBV du composite. Ces résultats sont encourageants car cela signifie que le panneau conserve sa perméabilité à la vapeur et sa capacité de sorption même après addition d'agent hydrophobe.
- Les panneaux composites développés ont une capacité d'absorption d'eau liquide élevée due à la structure fortement poreuse de la chènevotte. L'addition d'un hydrofugeant permet de réduire l'absorption d'eau par capillarité dans le panneau mais n'empêche pas la saturation en eau des porosités dans la zone immergée.

L'étude de l'agglomération des granulats de chènevotte avec le liant d'oxysulfate de magnésium a montré que les propriétés mécaniques du composite dépendent principalement de la masse volumique apparente et plus particulièrement de la teneur volumique en liant. Plusieurs formulations du liant oxysulfate de magnésium ont été testées. Une potentielle influence de la rhéologie du liant humide sur les propriétés mécaniques du composite a été identifiée. Les effets de l'incorporation de STPP dans la formulation sont doubles car l'additif permet d'une part de réduire la quantité d'eau nécessaire à la préparation du liant et d'améliorer la rhéologie du mélange par effet de défloculation. La possibilité de combiner le liant minéral d'oxysulfate de magnésium avec un liant organique biosourcée a été explorée. Les résultats ont montré que le couplage d'un liant organique en combinaison du liant minéral permet d'améliorer les propriétés mécaniques du composite sans pénaliser sa masse volumique apparente.

Au global, les travaux de formulation ont montré que l'utilisation d'un liant biosourcé therm durcissable permet de réaliser des composites ayant des masses volumiques apparentes comprises entre 150 et 250 kg/m³ tandis que ceux obtenus en utilisant le liant magnésien ont une masse volumique apparente plutôt comprises entre 250 et 500 kg/m³.

Les essais menés afin d'identifier un procédé de mise en forme adapté à la fabrication du panneau composite à liant organique ont permis d'écarter plusieurs pistes initialement envisagées. Ainsi, la fabrication d'un composite autolié ou utilisant un liant dont la prise se fait par séchage s'est avérée trop complexe. En effet, le procédé nécessite des conditions spécifiques de pression, de chaleur et d'humidité qui impliquent soit d'augmenter la masse volumique du composite, soit d'augmenter la teneur en eau du mat et donc le temps de séchage. Ceci est dû au fait que, pour mobiliser les propriétés adhésives des constituants ligno-hemicellulosiques, le procédé requiert :

- Soit une combinaison de chaleur et de pression importante pour les mats contenant une faible teneur en humidité (cas du panneau de paille compressée CSB)

- Soit un séchage intensif pour les mats contenant une forte teneur en humidité (cas du procédé humide des panneaux isolants en fibres de bois), ce qui n'est pas favorable à la réduction de l'énergie grise du matériau.

Ainsi, ces résultats nous ont orienté vers le choix d'un procédé de fabrication par voie sèche nécessitant l'utilisation d'un liant thermodurcissable. Les essais de fabrication par thermopressage ont montré que ce type de procédé est adapté à la réalisation de panneaux composites dans la plage de masse volumique visée (entre 150-250 kg/m³) et pour l'épaisseur visée. Ces essais ont également permis de valider d'une part la formulation du liant biosourcé thermodurcissable mais aussi de démontrer l'importance du réticulant lors de l'étape de fabrication. Le procédé impliquant une combinaison de pression de compactage et un traitement thermique, plus aisé par contact que par un flux d'air chaud, a permis de réaliser les composites avec des temps de chauffe spécifiques suffisamment faibles pour envisager une transposition du procédé sur un outillage industriel.

Quatre outils industriels ont été testés pour produire le panneau rigide isolant dans un contexte de production réaliste. Les essais ont finalement abouti à l'identification d'un procédé entièrement automatisé compatible avec la production industrielle du panneau rigide isolant à base de granulats de chènevotte liés avec le liant thermodurcissable retenu. Ces essais ont permis de mettre en évidence plusieurs points techniques importants :

- L'humidité est un paramètre essentiel à prendre en considération dès l'étape de formulation. En effet, la fabrication du panneau rigide avec un liant thermodurcissable requiert impérativement soit une étape de séchage préalable du granulat, soit une étape de séchage du panneau après fabrication. Plus le mat sera humide, plus le traitement thermique requis pour réticuler le liant au cœur du panneau sera important.
- Le thermopressage du panneau sur outillage continu est complexe. Ceci est lié au fait qu'en utilisant un chauffage par contact, les temps de chauffe nécessaires à la réticulation du liant au cœur du panneau sont élevés pour les épaisseurs visées. De plus, le maintien de la pression de compactage, typiquement 0,25 MPa doit être assuré. Cela impose donc un outillage industriel peu conventionnel, dimensionné en conséquence, composé d'une longue zone de pressage et de chauffage par contact. A titre d'exemple, pour fabriquer un panneau de 50 mm à une vitesse de convoyage de 2 m/min avec les paramètres identifiés dans la thèse (temps spec 18 s/mm), la longueur de la zone de thermopressage doit être de 30 m. Ce type d'outillage existe mais nécessite un investissement tel qu'il ne convient pas aux volumes de production envisagés.
- Etant donné qu'il n'est pas facile d'avoir accès à des outils industriels continus pour réaliser des essais production, notre choix s'est porté sur un procédé utilisant un pressage phasé avec chauffage par contact (presse à plateaux chauffants), ce qui a permis de contrôler facilement les paramètres de mise en forme. Les essais concluants ont démontré la possibilité de produire le panneau composite isolant à l'échelle industrielle, les temps de traitement thermique pouvant être contourné par l'utilisation de presses multi-étages. En revanche, il est fort probable que le traitement thermique par contact ne soit pas la solution la plus adaptée pour chauffer rapidement le cœur du panneau et que les capacités des presses utilisées soient surdimensionnées par rapport au besoin de pression de compactage qui reste limité (0.25 MPa).
- Ces observations nous permettent donc de définir le procédé industriel continu idéal :
 - o Séchage des granulats (séchoir flash) et encollage par pulvérisation (mélangeur à socs continu),
 - o Conformation du mat par saupoudrage sur le tapis de convoyage,

- Pré presse continue pour réduire l'épaisseur du mat et faciliter l'entrée dans le four de calibrage,
- Four continu assurant le calibrage de l'épaisseur du mat accompagné d'un traitement thermique par convection : Le four doit permettre d'appliquer simultanément une pression de compactage de 0.25 MPa et un flux d'air chaud et/ou de vapeur d'eau pour réaliser le traitement thermique nécessaire à l'activation du liant. La longueur de la zone de calibration doit être dimensionnée en fonction de la vitesse spécifique de chauffe et des épaisseurs envisagées.

Enfin, le dernier chapitre s'est focalisé sur la recherche d'additifs permettant d'améliorer la réaction au feu du panneau composite sans pénaliser ses performances environnementales et sanitaires. Plusieurs pistes exemptes de sels d'ammonium et de dérivés du bore ont été identifiées. Les résultats ont montré que l'utilisation d'acide phosphorique, d'acide sulfurique, de particules de silices fonctionnalisées en combinaison avec du sulfate de magnésium heptahydraté ou de l'hydroxyde de magnésium pouvaient dans certains cas aboutir à de meilleures performances que les traitements utilisant de l'acide borique. Ensuite la caractérisation des composites réalisés à partir du liant d'oxysulfate de magnésium a permis de montrer leur excellente réaction au feu.

Au final, dans ce chapitre deux solutions ont été proposées pour améliorer la réaction au feu du composite sans pénaliser les performances sanitaires du matériau. La première consiste à incorporer les additifs sans ammonium/sans bore dans la formulation du panneau composite utilisant le liant organique. Cette première solution s'est montrée particulièrement adaptée pour conserver une faible masse volumique apparente tout en améliorant la réaction au feu du composite. La deuxième solution consiste à utiliser le liant minéral d'oxysulfate de magnésium lorsque l'application ne nécessite pas de faibles masses volumiques apparentes.

A l'issue de ces travaux, nous pouvons conclure que les principaux objectifs définis pour cette thèse sont atteints :

- Des solutions innovantes de formulation et de fonctionnalisation permettent de proposer des composites biosourcés dont les performances sont particulièrement adaptées à l'utilisation comme produit isolant dans le secteur du bâtiment,
- Un nouveau produit d'isolation thermique avec un procédé de fabrication industriel adapté a été développé. Le produit répond aux exigences de qualité et de performance imposées par le secteur de la construction. Ces résultats offrent de nouvelles solutions exploitables par l'entreprise pour valoriser ses agro-ressources.

Bilan des performances du panneau composite isolant :

Les caractéristiques principales du panneau composite sont présentées ci-dessous et sont confrontées à celles des produits commerciaux :

- Le panneau composite présente une faible conductivité thermique comprise entre 0.050 et 0.060 W/(m.K) pour des masses volumiques comprises entre 150 – 250 kg/m³. Les panneaux rigides de fibres de bois présentent une meilleure conductivité thermique proche de 0.040 W/(m.K). En revanche, cette différence n'a pas un impact significatif sur la résistance thermique car pour une épaisseur de 50 mm, les valeurs de R pour un panneau de chènevotte ($\lambda = 0.055$ W/(m.K)) et de fibres de bois sont respectivement 1.25 et 0.91 W/(m.K). Cette différence n'est pas significative à l'échelle de l'enveloppe du bâtiment. Dans tous les cas un complément d'isolation thermique est nécessaire (généralement semi-rigide).
- Le panneau rigide développé est un bon/excellent régulateur hydrique avec une valeur tampon hydrique proche de 2 g/(m².%HR). Son utilisation en isolation par l'intérieur contribue à améliorer le confort hydrique et à réduire les besoins en ventilation, dans la mesure où il est associé à un revêtement adapté et suffisamment perméable.
- Les facteurs de résistance à la vapeur d'eau μ_{0-50} (0-50% HR) et μ_{53-88} (53-88% HR) du panneau composite de chènevotte (déterminés dans le cadre du projet ISOBIO) sont respectivement 4.6 et 11. Ces faibles valeurs montrent la haute perméabilité à la vapeur d'eau du panneau composite. Cette propriété est avantageuse notamment pour l'isolation par l'extérieur des bâtiments où la perméabilité à la vapeur conditionne la pérennité de la paroi vis à vis des risques de condensation.
- Les propriétés mécaniques du panneau composite rigide sont nettement supérieures aux propriétés mécaniques des autres matériaux isolants rigides avec une résistance en compression à 10% de déformation pouvant dépasser 1 MPa. A titre de comparaison, les résistances en compression à 10% de déformation pour les autres matériaux isolants rigides sont de 0.15 à 0.25 MPa pour les mousses polyuréthanes (Soprema), de 0.07 à 0.12 MPa pour les mousses en polystyrène expansé (Sto, DRYVIT), de 0.3 à 0.6 MPa pour les mousses polystyrène extrudé (Styrodur, BASF) et de 0.15 à 0.25 MPa pour les panneaux isolants de fibres de bois dont la masse volumique est proche de 200 kg/m³ (Steico, Pavatex, Isonat, Gutex etc.). Les propriétés mécaniques élevées sont favorables notamment dans le cas d'une isolation thermique par l'extérieur où le système doit résister aux sollicitations extérieures (impact, résistance au vent etc.).
- L'absorption d'eau liquide du composite reste un point à améliorer, notamment si des applications en tant que pare-pluie sont visées. Cependant, cet aspect n'est pas limitant tant que le matériau reste protégé par un écran pare pluie ou par un enduit adapté, par exemple à base de chaux (solution mise en œuvre dans le cas du projet ISOBIO).
- La réaction au feu du composite peut être améliorée par le traitement ignifugeant, l'Euroclasse potentiellement accessible étant C voire B, classement requis pour certaines applications. Par exemple, cela peut permettre de répondre aux exigences de certains systèmes d'isolation par l'extérieur vis-à-vis des feux de façade en ERP.

Dans le cadre du projet Européen ISOBIO, les performances thermiques, mécaniques et hygriques des panneaux composites de chènevotte isolants ont pu être évaluées en conditions réelles, notamment dans le cas d'une isolation thermique par l'extérieur.

Perspectives de recherche et développement

Cette thèse ouvre de nouvelles perspectives de recherche et de développement pour valoriser les agro-ressources dans le domaine de la construction. Les résultats obtenus appellent également quelques travaux complémentaires :

- **Explorer d'autres agro-ressources** : La thèse s'est focalisée uniquement sur les performances des panneaux composites issus de granulats de chènevotte. Maintenant que le procédé et les formulations sont identifiées, il pourrait être intéressant d'explorer d'autres agro-ressources pour réduire la masse volumique apparente du composite et/ou réduire la capacité d'absorption d'eau liquide du composite. Le colza est certainement le candidat à évaluer en premier.
- **Formuler un liant 100% biosourcé thermodurcissable** : L'étape de formulation du liant s'est principalement focalisée sur la recherche d'un réticulant répondant au cahier des charges. Cependant, tous les réticulants testés sont des produits de synthèse. Identifier de nouvelles techniques de réticulation (réticulant biosourcé à base de tannin, traitement enzymatique etc.) répondant aux exigences techniques permettrait de formuler un panneau composite isolant entièrement biosourcé.
- **Formuler un liant hybride organique/minéral** : Nous avons vu que les liants minéraux d'oxysulfate de magnésium sont compatibles avec les liants organiques. Cette observation ouvre de nouvelles perspectives de formulation de liants hybrides organiques/minéraux. Ce liant hybride pourrait permettre de combiner l'excellent comportement au feu des composites à liant magnésien et les faibles masses volumiques associées à des propriétés mécaniques élevées, caractéristiques des composites utilisant un liant organique thermodurcissable. L'incidence sur les propriétés hygriques serait intéressante à identifier.
- **Optimiser le procédé de fabrication** : La production du composite à l'aide d'un procédé de thermopresse phasé a été validée et les paramètres limitants ont été déterminés (temps de chauffe spécifique, épaisseur du panneau et pression de compactage). Maintenant, il est nécessaire d'étudier la transposition du procédé discontinu vers un procédé continu. Cette étape nécessitera donc d'explorer de nouvelles méthodes de traitement thermique permettant de réduire le temps de chauffe spécifique. Par conséquent, il conviendra d'évaluer la possibilité d'utiliser un four de calibration continu comprenant un système injection vapeur/air chaud tel que le four ContiTherm® (Siempelkamp) présenté dans la partie I.4.2.
- **Etudier la durabilité des composites issus d'agro-ressources** : La durabilité du composite sous différents types de sollicitations (résistance aux environnements humides, résistance au gel/dégel, résistance au développement fongique etc.) doit être évaluée. Cela permettra d'identifier les performances sur le long terme, les applications envisageables à l'échelle du bâtiment et de définir les méthodes de mise en œuvre. Cette thématique a déjà été abordée par Viel *et al.* (Viel et al., 2019). Il conviendra de poursuivre cette étude et d'élargir la nature des sollicitations. Le tout doit permettre d'envisager une certification du produit associé à son système constructif défini en fonction de l'application visée (panneau formant complément d'isolation en support d'enduit, sous toiture...).

Références bibliographiques

- Ademe. (2014, janvier). Bâtiment économe en énergie. Les clés pour réussir son projet de construction ou de rénovation. Consulté à l'adresse https://www.ademe.fr/sites/default/files/assets/documents/guide_eie_bbc_bourgogne.pdf
- AFNOR. (2001, juillet). NF EN 12667 : Performance thermique des matériaux et produits pour le bâtiment - Détermination de la résistance thermique par la méthode de la plaque chaude gardée et la méthode fluxmétrique - Produits de haute et moyenne résistance thermique.
- AFNOR. (2004, février). NF P92-507 : Sécurité contre l'incendie Bâtiment - Matériaux d'aménagement Classement selon leur réaction au feu.
- AFNOR. (2013a, février). NF EN ISO 11925-2 : Essais de réaction au feu - Allumabilité des produits soumis à l'incidence directe de la flamme - Partie 2 : essai à l'aide d'une source à flamme unique.
- AFNOR. (2013b, mai). NF EN 826 : Produits isolants thermiques destinés aux applications du bâtiment - Détermination du comportement en compression. AFNOR.
- AFNOR. (2013c, mai). NF EN 1609 : Produits isolants thermiques destinés aux applications du bâtiment - Détermination de l'absorption d'eau à court terme : essai par immersion partielle. AFNOR.
- AFNOR. (2013d, mai). NF EN 12089 : Produits isolants thermiques destinés aux applications du bâtiment - Détermination du comportement en flexion. AFNOR.
- Ait-Kheddache, A. (2013). Traitement d'ignifugation du bois d'ingénierie par des revêtements intumescents. Rouyn-Noranda. Consulté à l'adresse <http://depositum.uqat.ca/559/>
- AKR, D. by H.-. (2016, juin 27). Cellulosic Technology Overview. Consulté 8 novembre 2018, à l'adresse <http://akrcorp.kr/en/cellulosic-technology/cellulosic-technology-overview/>
- Alavi, K. (2017). US20170158800A1. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US20170158800A1/en>
- Allen, A. J., Wescott, J. M., Varnel, D. F., & Evans, M. A. (2011). WO2011150203A2. World Intellectual Property Organization. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/WO2011150203A2/fr?q=WO+2011150203+A2+>
- Alongi, J., Carletto, R. A., Bosco, F., Carosio, F., Di Blasio, A., Cuttica, F., ... Malucelli, G. (2014). Caseins and hydrophobins as novel green flame retardants for cotton fabrics. *Polymer Degradation and Stability*, 99, 111-117. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2013.11.016>
- Alongi, J., Carletto, R. A., Di Blasio, A., Cuttica, F., Carosio, F., Bosco, F., & Malucelli, G. (2013). Intrinsic intumescent-like flame retardant properties of DNA-treated cotton fabrics. *Carbohydrate Polymers*, 96(1), 296-304. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2013.03.066>
- Amaral-Labat, G. A., Pizzi, A., Gonçalves, A. R., Celzard, A., Rigolet, S., & Rocha, G. J. M. (2008). Environment-friendly soy flour-based resins without formaldehyde. *Journal of Applied Polymer Science*, 108(1), 624-632. <https://doi.org/10.1002/app.27692>

- Amziane, S., & Arnaud, L. (2013). *Bio-aggregate-based building materials: applications to hemp concretes*. John Wiley & Sons.
- Amziane, S., & Collet, F. (2017). *Bio-aggregates Based Building Materials: State-of-the-Art Report of the RILEM Technical Committee 236-BBM (Vol. 23)*. Springer.
- Amziane, S., Collet, F., Lawrence, M., Magniont, C., Picandet, V., & Sonebi, M. (2017). Recommendation of the RILEM TC 236-BBM: characterisation testing of hemp shiv to determine the initial water content, water absorption, dry density, particle size distribution and thermal conductivity. *Materials and Structures*, 50(3), 167. <https://doi.org/10.1617/s11527-017-1029-3>
- AQC. (2016). Rapport REX « Matériaux bio-sourcés - 12 enseignements à connaître ». Consulté à l'adresse <http://www.energievie.pro/sites/default/files/uploads/rapport-rex-materiaux-bio-sources-enseignements.pdf>
- ASTM International. (2017). ASTM E1354-17: Standard Test Method for Heat and Visible Smoke Release Rates for Materials and Products Using an Oxygen Consumption Calorimeter. ASTM International.
- Bajpai, P. (2016). Structure of Lignocellulosic Biomass. In P. Bajpai, *Pretreatment of Lignocellulosic Biomass for Biofuel Production* (p. 7 - 12). Singapore: Springer Singapore. https://doi.org/10.1007/978-981-10-0687-6_2
- Balducci, F., Harper, C., Meinschmidt, P., Dix, B., & Sanasi, A. (2008). Development of Innovative Particleboard Panels. *DRVNA INDUSTRIJA*, 7.
- Bao, S., Daunch, W. A., Sun, Y., Rinaldi, P. L., Marcinko, J. J., & Phanopoulos, C. (2003). Solid state two-dimensional NMR studies of polymeric diphenylmethane diisocyanate (PMDI) reaction in wood. *Forest products journal*, 53(6), 63–72.
- Bawn, C. E. H., Hirst, E. L., & Young, G. T. (1940). The nature of the bonds in starch. *Transactions of the Faraday Society*, 36, 880. <https://doi.org/10.1039/tf9403600880>
- Baysal, E., Yalinkilic, M. K., Altinok, M., Sonmez, A., Peker, H., & Colak, M. (2007). Some physical, biological, mechanical, and fire properties of wood polymer composite (WPC) pretreated with boric acid and borax mixture. *Construction and Building Materials*, 21(9), 1879–1885.
- Berthold, J., Rinaudo, M., & Salmeñ, L. (1996). Association of water to polar groups; estimations by an adsorption model for ligno-cellulosic materials. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 112(2-3), 117-129. [https://doi.org/10.1016/0927-7757\(95\)03419-6](https://doi.org/10.1016/0927-7757(95)03419-6)
- Birck, C., Degoutin, S., Tabary, N., Miri, V., & Bacquet, M. (2014). New crosslinked cast films based on poly(vinyl alcohol): Preparation and physico-chemical properties. *Express Polymer Letters*, 8(12), 941-952. <https://doi.org/10.3144/expresspolymlett.2014.95>
- Bosco, F., Carletto, R. A., Alongi, J., Marmo, L., Di Blasio, A., & Malucelli, G. (2013). Thermal stability and flame resistance of cotton fabrics treated with whey proteins. *Carbohydrate Polymers*, 94(1), 372-377. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2012.12.075>
- Bourbonnais, G. (2009). Les protéines: structure. Consulté 12 décembre 2018, à l'adresse https://babel.cegep-ste-foy.qc.ca/profs/gbourbonnais/pascal/fya/chimcell/notesmolecules/proteines_2.htm

- Bourebrab, M. A., Durand, G. G., & Taylor, A. (2017). Development of Highly Repellent Silica Particles for Protection of Hemp Shiv Used as Insulation Materials. *Materials*, 11(1), 4.
- Bourebrab, M. A., Oben, D. T., Durand, G. G., Taylor, P. G., Bruce, J. I., Bassindale, A. R., & Taylor, A. (2018). Influence of the initial chemical conditions on the rational design of silica particles. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 88(2), 430–441.
- Brady, J., Weinstein, B., & Kelly, M. D. (2010). EP2223941A1. European Union. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/EP2223941A1/en?q=EP+2223941A1>
- Branda, F., Malucelli, G., Durante, M., Piccolo, A., Mazzei, P., Costantini, A., ... Bifulco, A. (2016). Silica Treatments: A Fire Retardant Strategy for Hemp Fabric/Epoxy Composites. *Polymers*, 8(8), 313. <https://doi.org/10.3390/polym8080313>
- Cai, Z., Birkeland, M., Wescott, J. M., O'Dell, J., & Winandy, J. E. (2009). Effects of press sizes on internal steam pressure during particleboard hot-pressing process. *FOREST PRODUCTS JOURNAL*, 59(4), 5.
- Cannon, A. (2011). Interactions between adhesives from natural sources and paper substrates. In *Proceedings of Symposium 2011—Adhesives and Consolidants for Conservation: Research and Applications* (p. 1–16).
- Carslaw, H., & Jaeger, J. (1959). *Conduction of heat in solids*: Oxford Science Publications. Oxford, England.
- Cérézo, V. (2005). Propriétés mécaniques, thermiques et acoustiques d'un matériau à base de particules végétales: approche expérimentale et modélisation théorique. Institut National des Sciences Appliquées, Lyon.
- Chen, H. (2014). Chemical Composition and Structure of Natural Lignocellulose. In H. Chen, *Biotechnology of Lignocellulose* (p. 25-71). Dordrecht: Springer Netherlands. https://doi.org/10.1007/978-94-007-6898-7_2
- CMF Greentech. (2016). Il primo impianto di materiali a base Canapa in Italia - CMF Greentech. YouTube. Consulté à l'adresse <https://www.youtube.com/watch?v=x7IkTusVegs&t=1s>
- Cognard, P. (2001). Colles et adhésifs Caractéristiques et types. *Techniques de l'ingénieur Les matériaux de construction*, base documentaire: TIB224DUO.(ref. article: c960). Consulté à l'adresse <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/construction-et-travaux-publics-th3/les-materiaux-de-construction-42224210/colles-et-adhesifs-c960/>
- Collet, F. (2004). Caractérisation hydrique et thermique de matériaux de Génie Civil à faibles impacts environnementaux. Institut National des Sciences Appliquées de Rennes.
- Collet, F., Chamoin, J., Pretot, S., & Lanos, C. (2013). Comparison of the hygric behaviour of three hemp concretes. *Energy and Buildings*, 62, 294-303. <https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2013.03.010>
- Collet, F., & Prétot, S. (2014). Thermal conductivity of hemp concretes: variation with formulation, density and water content. *Construction and Building Materials*, 65, 612 - 619. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2014.05.039>

- Comité National des Coproduits. (2012). Mélasse de betterave et de canne. Consulté 29 novembre 2018, à l'adresse http://idele.fr/no_cache/recherche/publication/idelesolr/recommends/melasse-de-betterave-et-de-canne.html
- Constructions & Bioressources. (2013, novembre). Les filières des matériaux de construction biosourcés : plan d'actions, avancées & perspectives.
- Cossement, M., & Henrion, J.-M. (2005). US20050215153A1. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US20050215153A1/en?q=US20050215153>
- Cousins, W. J. (1976). Elastic modulus of lignin as related to moisture content. *Wood Science and Technology*, 10(1), 9-17. <https://doi.org/10.1007/BF00376380>
- Cousins, W. J. (1978). Young's modulus of hemicellulose as related to moisture content. *Wood Science and Technology*, 12(3), 161-167. <https://doi.org/10.1007/BF00372862>
- CSTB. (2012, mars). Règles Th-U Fascicule 2 : Matériaux.
- CSTB. (2019). Déclarations environnementales de produits. Consulté 3 janvier 2019, à l'adresse <http://evaluation.cstb.fr/fr/declarations-environnementales/>
- CSTB, & LNE. (2018, juillet 1). Cahier Technique 1 : Détermination de la conductivité thermique. ACERMI. Consulté à l'adresse <http://www.acermi.com/documents-reference/cahiers-techniques/>
- Dang, L., Nai, X., Dong, Y., & Li, W. (2017). Functional group effect on flame retardancy, thermal, and mechanical properties of organophosphorus-based magnesium oxysulfate whiskers as a flame retardant in polypropylene. *RSC Adv.*, 7(35), 21655-21665. <https://doi.org/10.1039/C7RA02863F>
- Delorme, M. (2013, février). RT2012 et RT2020 - pourquoi utiliser le bois. Présenté à Eurobois. Consulté à l'adresse <http://www.fibra.net/docs/RT2012%20et%20RT2020%20-%20pourquoi%20utiliser%20le%20bois.pdf>
- Dieffenbacher. (2018). Wood based panel solutions. Consulté à l'adresse <https://www.dieffenbacher.de/catalog/files/assets/basic-html/page-1.html>
- Diquelou, Y. (2013). Interactions entre les granulats de chanvre et les liants à base de ciment et de chaux: Mécanismes de la prise et propriétés des interfaces formées dans les agrobétons (PhD Thesis). PhD Thesis, Reims.
- Dotan, A. (2014). 15 - Biobased Thermosets. In H. Dodiuk & S. H. Goodman (Éd.), *Handbook of Thermoset Plastics (Third Edition)* (p. 577 - 622). Boston: William Andrew Publishing. <https://doi.org/10.1016/B978-1-4557-3107-7.00015-4>
- ECHA. (2015). Response to comments document (RCOM) on the Annex XV dossier proposing restrictions on Inorganic ammonium salts. Consulté à l'adresse <https://echa.europa.eu/documents/10162/f2adc4b1-13fb-4de0-82f4-c24af60f3511>
- ECHA. (2018, novembre 24). Formaldehyde - Substance Information - ECHA. Consulté 14 novembre 2018, à l'adresse <https://echa.europa.eu/fr/substance-information/-/substanceinfo/100.000.002>
- Éco Infos. (2018, janvier 18). Réglementation Thermique 2020 : Les Objectifs - Énergies Renouvelables. Consulté 8 janvier 2019, à l'adresse <https://www.les-energies->

- renouvelables.eu/conseils/reglementation-thermique-2012/lobjectif-de-la-reglementation-thermique-2020/
- El Mansouri, N., Pizzi, A., & Salvadó, J. (2007). Lignin-based wood panel adhesives without formaldehyde. *Holz Als Roh- Und Werkstoff*, 65(1), 65-70. <https://doi.org/10.1007/s00107-006-0130-z>
- Elvira-León, J. C., Chimenos, J. M., Isábal, C., Monton, J., Formosa, J., & Haurie, L. (2016). Epsomite as flame retardant treatment for wood: Preliminary study. *Construction and Building Materials*, 126, 936-942. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2016.09.107>
- Espinoza-Herrera, R. (2009). *Panneaux en gypse et particules de bois renforcés avec du ciment Portland*. Université de Laval, Québec.
- Evon, P., Vinet, J., Rigal, M., Labonne, L., Vandebossche, V., & Rigal, L. (2015). New Insulation Fiberboards from Sunflower Cake With Improved Thermal and Mechanical Properties. *Journal of Agricultural Studies*, 3, 194-211.
- Ferdosian, F., Pan, Z., Gao, G., & Zhao, B. (2017). Bio-Based Adhesives and Evaluation for Wood Composites Application. *Polymers*, 9(12), 70. <https://doi.org/10.3390/polym9020070>
- Finqueneisel, G., & Weber, J. V. (2009, décembre). Les mécanismes primaires de pyrolyse de la biomasse. Présenté à Séminaire Biomasse.
- Frihart, C., Hunt, C., & Birkeland, M. (2014). Soy Proteins as Wood Adhesives. In W. Gutowski & H. Dodiuk, *Recent Advances in Adhesion Science and Technology in Honor of Dr. Kash Mittal* (p. 277-292). CRC Press. <https://doi.org/10.1201/b16347-21>
- Gatineau. (2015). Le Feu. Consulté à l'adresse http://www.gatineau.ca/portail/default.aspx?p=securite_publique/pompiers/jeunes/feu
- Guilié, C. (2013, octobre). Cours de combustion 2ième partie. Combustions réelles, combustibles complexes. Consulté à l'adresse http://intranet.iut-longwy.uhp-nancy.fr/cours_en_ligne/GUILIE-Christian/Cours%20de%20combustion%202eme%20partie.pdf
- Guillaume, E., Marguis, D., Saragoza, L., & Yardin, C. (2013). Incertitude sur la mesure par un «cône calorimètre» du dégagement de chaleur produit lors de la combustion d'un matériau Uncertainty on heat release rate measurement with cone calorimeter during the combustion.
- Gutex. (2012, juin). Why Gutex ? History, Panufacturing and Products.
- Hampson, C., Mueller, G., & Appley, C. (2012). US20120205572A1. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US20120205572A1/en?q=US20120205572+A1>
- Hawkins, C. M., Hernandez-Torres, J. M., & Chen, L. (2011). US20110086567A1. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US20110086567A1/en?q=US20110086567>
- Heraklith. (2019). Home - Heraklith. Consulté 24 février 2019, à l'adresse <https://www.heraklith.com/>
- Hidalgo-Medina, J. P. (2015). Performance-based methodology for the fire safe design of insulation materials in energy efficient buildings. The University of Edinburgh, UK.
- Horrocks, A. R., Price, D., & Price, D. (2001). *Fire Retardant Materials*. Woodhead Publishing.

- Hshieh, F.-Y. (1998). Shielding effects of silica-ash layer on the combustion of silicones and their possible applications on the fire retardancy of organic polymers. *Fire and Materials*, 22(2), 69 - 76. [https://doi.org/10.1002/\(SICI\)1099-1018\(199803/04\)22:2<69::AID-FAM640>3.0.CO;2-U](https://doi.org/10.1002/(SICI)1099-1018(199803/04)22:2<69::AID-FAM640>3.0.CO;2-U)
- Huang, K.-S., Pan, K.-C., & Perng, C.-N. (1975). Pyrolysis of Cellulose I. Effect of Diammonium Phosphate on Fire Retardation. *Journal of the Chinese Chemical Society*, 22(1), 57 - 68. <https://doi.org/10.1002/jccs.197500008>
- Huchette, M. (1969). La transformation de l'amidon pour usages industriels et alimentaires. *Annales*, 296, 308.
- IIT Roorkee. (2012, juillet). Ammonium phosphates. Lecture 22. Phosphorus Fertilizers. Indian Institute of Technology Roorkee. Consulté à l'adresse <https://nptel.ac.in/courses/103107086/module3/lecture7/lecture7.pdf>
- Imal Pal Group. (2016, mai). General Catalog. Consulté à l'adresse http://www.imalpal.com/pdf_download/catalogo_generale.pdf
- Innofirewood. (2015). Innovative eco-efficient high fire performance wood products for demanding applications. Consulté 13 décembre 2018, à l'adresse <http://virtual.vtt.fi/virtual/innofirewood/>
- International Organization for Standardization. (2015). ISO 5660-1 : Reaction-to-fire tests—heat release, smoke production and mass loss rate—Part 1: heat release rate (cone calorimeter method) and smoke production rate (dynamic measurement).
- Isikgor, F. H., & Becer, C. R. (s. d.). Lignocellulosic Biomass: A Sustainable Platform for Production of Bio-Based Chemicals and Polymers, 61.
- Jaffrennou, B., Obert, E., & Kaplan, B. (2014). US20140137771A1. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US20140137771A1/en?q=us+20140137771>
- Jaffrennou, B., Serughetti, D., & Douce, J. (2015). US8951341B2. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US8951341B2/en?q=us+8951341>
- Janssens, M. L. (1991). Measuring rate of heat release by oxygen consumption. *Fire Technology*, 27(3), 234 -249. <https://doi.org/10.1007/BF01038449>
- Jiang, Y., Lawrence, M., Ansell, M. P., & Hussain, A. (2018). Cell wall microstructure, pore size distribution and absolute density of hemp shiv. *Royal Society Open Science*, 5(4), 171945. <https://doi.org/10.1098/rsos.171945>
- Jiang, Yunhong, Lawrence, M., Hussain, A., Ansell, M., & Walker, P. (2018). Comparative moisture and heat sorption properties of fibre and shiv derived from hemp and flax. *Cellulose*. <https://doi.org/10.1007/s10570-018-2145-0>
- Karibati. (2015). Intérêts & potentiels. Consulté 27 février 2019, à l'adresse <http://www.karibati.fr/materiaux-biosources/interets-potentiels/>
- Kashiwagi, T., Gilman, J. W., Butler, K. M., Harris, R. H., Shields, J. R., & Asano, A. (2000). Flame retardant mechanism of silica gel/silica. *Fire and Materials*, 24(6), 277-289. [https://doi.org/10.1002/1099-1018\(200011/12\)24:6<277::AID-FAM746>3.0.CO;2-A](https://doi.org/10.1002/1099-1018(200011/12)24:6<277::AID-FAM746>3.0.CO;2-A)

- Kelly, M. D. (2013). US8445564B2. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US8445564/en>
- Kiljunen, S., Tiusanen, G., Lappalainen, E., Lehtinen, S., & Hotanen, U. (2011). WO2011042610A1. World Intellectual Property Organization. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/WO2011042610A1/en?q=wo+2011042610A1>
- Labat, G., BAGUENARD, C., & Billon, L. (2018). WO2018083269A1. World Intellectual Property Organization. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/WO2018083269A1/fr?q=Labat+G%2c+Baguenard+C%2c+Billon+L%2c+inventors;+2018+May+11.+%E2%80%9CNovel+fire-retardant+composition%E2%80%9D.+World+Patent+WO%2f2018%2f083269>
- Latif, E., Lawrence, M., Shea, A., & Walker, P. (2015). Moisture buffer potential of experimental wall assemblies incorporating formulated hemp-lime. *Building and Environment*, 93, 199 - 209. <https://doi.org/10.1016/j.buildenv.2015.07.011>
- Legifrance. Arrêté du 21 juin 2013 relatif à l'interdiction de mise sur le marché d'importation, de vente et de distribution et de fabrication d'isolants à base de ouate de cellulose adjuvantés de sel d'ammonium (2013). Consulté à l'adresse <https://www.legifrance.gouv.fr/affichTexte.do?cidTexte=JORFTEXT000027650722&dateTexte=&categorieLien=id>
- Lei, H., Pizzi, A., Navarrete, P., Rigolet, S., Redl, A., & Wagner, A. (2010). Gluten Protein Adhesives for Wood Panels. *Journal of Adhesion Science and Technology*, 24(8 - 10), 1583 - 1596. <https://doi.org/10.1163/016942410X500963>
- Lester, U., Shooshtari, K. A., Asrar, J., Guo, Z., & Zhang, M. (2014). EP2730631A1. European Union. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/EP2730631A1/fr?q=EP+2730631+A1+>
- Li, K. (2007). US7252735B2. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US7252735B2/en?q=us7252735+B2>
- Li, K., Peshkova, S., & Geng, X. (2004). Investigation of soy protein-kymene[®] adhesive systems for wood composites. *Journal of the American Oil Chemists' Society*, 81(5), 487 - 491. <https://doi.org/10.1007/s11746-004-0928-1>
- Liu, L., Li, H., Lazzaretto, A., Manente, G., Tong, C., Liu, Q., & Li, N. (2017). The development history and prospects of biomass-based insulation materials for buildings. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 69, 912-932. <https://doi.org/10.1016/j.rser.2016.11.140>
- Magniont, C. (2010). Contribution à la formulation et à la caractérisation d'un écomatériau de construction à base d'agroressources (PhD Thesis). Université de Toulouse, Université Toulouse III-Paul Sabatier.
- Mantanis, G. I., Athanassiadou, E. T., Barbu, M. C., & Wijnendaele, K. (2018). Adhesive systems used in the European particleboard, MDF and OSB industries. *Wood Material Science & Engineering*, 13(2), 104-116. <https://doi.org/10.1080/17480272.2017.1396622>

- Masina, N., Choonara, Y. E., Kumar, P., du Toit, L. C., Govender, M., Indermun, S., & Pillay, V. (2017). A review of the chemical modification techniques of starch. *Carbohydrate Polymers*, 157, 1226-1236. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2016.09.094>
- Mati-Baouche, N. (2015). Conception d'isolants thermiques à base de broyats de tiges de tournesol et de liants polysaccharidiques. Université Blaise Pascal – Clermont II, Institut Pascal Axe Génie des Procédés Energétique et Biosystèmes.
- Mazhoud, B. (2017). Elaboration et caractérisation mécanique, hygrique et thermique de composites bio-sourcés. Université Bretagne Loire, INSA Rennes.
- McLaggan, M. S. (2016). Novel fire testing frameworks for Phase Change Materials and hemp-lime insulation. The University of Edinburgh, UK.
- Mingzhu, P., Hailan, L., & Changtong, M. (2013). Flammability of nano silicon dioxide-wood fiber-polyethylene composites. *Journal of Composite Materials*, 47(12), 1471 - 1477. <https://doi.org/10.1177/0021998312448499>
- Mngomezulu, M. E., John, M. J., Jacobs, V., & Luyt, A. S. (2014). Review on flammability of biofibres and biocomposites. *Carbohydrate Polymers*, 111, 149 - 182. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2014.03.071>
- Mortensen, L. H., Rode, C., & Peuhkuri, R. (2005). Full scale tests of moisture buffer capacity of wall materials. In *Proceedings of the 7th Symposium on Building Physics in the Nordic Countries (Vol. 2, p. 662-669)*.
- Neya, B. (2002). Valorisation de la biomasse du Burkina faso: faisabilité de panneaux de particules à base de déchets agricoles et recherche de nouveaux biocides pour la préservation du bois à partir d'essences naturellement durables (PhD Thesis). Université Henri Poincaré-Nancy 1.
- Nguyen, T. T. (2010). Contribution à l'étude de la formulation et du procédé de fabrication d'éléments de construction en béton de chanvre (PhD Thesis). Université de Bretagne Sud.
- Olbrich, H. (1963). *The Molasses Book*. Fermentation Technologist, Institute für Zuckerindustrie, Berlin (Germany).
- Pacorel, B., & Hampson, C. A. (2014). US8900495B2. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US8900495B2/en?q=molasses+binder+US+8900495>
- Palumbo, M. (2015). Contribution to the development of new bio-based thermal insulation materials made from vegetal pith and natural binders: hygrothermal performance, fire reaction and mould growth resistance. Universitat Politècnica de Catalunya, Barcelona.
- Pan, Z., Zheng, Y., Zhang, R., & Jenkins, B. M. (2007). Physical properties of thin particleboard made from saline eucalyptus. *Industrial crops and products*, 26(2), 185-194.
- Pappin, B., Kiefel, M. J., & Houston, T. A. (2012). Boron-Carbohydrate Interactions. *Carbohydrates - Comprehensive Studies on Glycobiology and Glycotechnology*. <https://doi.org/10.5772/50630>
- Pavatex. (2019). Home - Pavatex. Consulté 24 février 2019, à l'adresse <http://www.pavatex.com/en/home/>
- Peters, N. K. (2018). Contact for DOE Bioenergy Research Centers, 32.

- Picandet, V., Tronet, P., & Baley, C. (2012). Caractérisation granulométrique des chènevottes. XXX E Rencontres AUGCIBPSA Chambéry Savoie.
- Pisanova, E., & Mandal, H. (2010). US7807749B2. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US7807749B2/en?q=US+7807749>
- Pizzi, A., & Mittal, K. L. (Éd.). (2003). Handbook of adhesive technology (2nd ed., rev. and expanded). New York: M. Dekker.
- Pizzi, Antonio. (2016). Wood products and green chemistry. *Annals of Forest Science*, 73(1), 185-203. <https://doi.org/10.1007/s13595-014-0448-3>
- Prime, R. B. (2014, mai 5). Thermoset Characterization Part 4: Introduction to Gelation. Consulté 12 novembre 2018, à l'adresse <https://polymerinnovationblog.com/thermoset-characterization-part-4-introduction-gelation/>
- Prinz, K. (2011). Flame retardant and dyeing treatment of cellulose fabrics using a combined" grafting from" and PIGP process (PhD Thesis). ETH Zurich.
- Prior, W. L. (1967). US3320077A. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US3320077A/en>
- Protectflame. (2019). Fire Grades. Consulté 15 février 2019, à l'adresse <https://protecflam.com/en/fire-grades/>
- Rahman. (2012). Les retardateurs de flammes, encore plus dangereux ? Consulté 13 décembre 2018, à l'adresse <https://www.techniques-ingenieur.fr/actualite/articles/les-retardateurs-de-flammes-encore-plus-dangereux-6799/>
- Ressel, J. (2008). Adhesive application. Presentation during the 3rd International Wood Academy, University of Hamburg, 25–02.
- Ressel, J. B. (2015, septembre). CAS Wood Based Panels. Modules 1 to 6. Universität Hamburg.
- Rode, C., Peuhkuri, R., Hansen, K. K., Time, B., Svennberg, K., Arfvidsson, J., & Ojanen, T. (2005). NORDTEST PROJECT ON MOISTURE BUFFER VALUE OF MATERIALS, 6.
- Rode, C., Peuhkuri, R., Time, B., Svennberg, K., & Ojanen, T. (2007). Moisture buffer value of building materials. *Journal of ASTM International*, 4(5), 1–12.
- Ross, R. J., & others. (2010). Wood handbook: wood as an engineering material. USDA Forest Service, Forest Products Laboratory, General Technical Report FPL-GTR-190, 2010: 509 p. 1 v., 190.
- Salmén, L. (2004). Micromechanical understanding of the cell-wall structure. *Comptes Rendus Biologies*, 327(9), 873-880. <https://doi.org/10.1016/j.crv.2004.03.010>
- Schartel, B. (2010). Phosphorus-based flame retardancy mechanisms—old hat or a starting point for future development? *Materials*, 3(10), 4710–4745.
- Schott & Meissner. (2019). Schott & Meissner Maschinen- und Anlagenbau. Consulté 22 février 2019, à l'adresse <https://schott-meissner.de/>

- Shutt, T. C. (2017). WO2017014782A1. World Intellectual Property Organization. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/WO2017014782A1/en?inventor=Thomas+C.+Shutt>
- Siempelkamp. (2012, février). Wood-fiber insulation board. Siempelkamp dry process. Consulté à l'adresse https://www.siempelkamp.com/fileadmin/media/Englisch/MaschinenundAnlagen/prospekte/Siempelkamp_wood-fiber_insulation_board-eng.pdf
- Siempelkamp. (2019). Wood-based panel plants - Siempelkamp. Consulté 27 février 2019, à l'adresse <https://www.siempelkamp.com/index.php?id=732&L=2>
- Simatupang, M. H., & Geimer, R. L. (1990). Inorganic binder for wood composites: feasibility and limitations. In *Proceedings of Wood Adhesive Symposium*, Forest Product Resources Society (p. 169–176).
- Sinka, M., Sahmenko, G., Korjakins, A., & Bajare, D. (2017, juin). LIME-HEMP CONCRETE (LHC) ENHANCEMENT USING MAGNESIUM BASED BINDERS. Faculty of Civil Engineering, Institute of Materials and Structures.
- Siqueira, E. J. (2012). Polyamidoamine epichlorohydrin-based papers: mechanisms of wet strength development and paper repulping. *Laboratoire de Génie des Procédés Papetiers*. Université de Grenoble.
- Sterling, E., Arundel, A., & Sterling, T. (1985). Criteria for human exposure to humidity in occupied buildings. *ASHRAE transactions*, 91(1B), 611–622.
- Stevulova, N., Cigasova, J., Purcz, P., Schwarzova, I., Kacik, F., & Geffert, A. (2015). Water Absorption Behavior of Hemp Hurds Composites. *Materials*, 8(5), 2243 - 2257. <https://doi.org/10.3390/ma8052243>
- Suchsland, O., & Woodson, G. E. (1987). Fiberboard manufacturing practices in the United States. *Agriculture handbook/United States*. Dept. of Agriculture (USA).
- Swift, B. L. (2011). US20110190425A1. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US20110190425A1/en?q=US+20110190425A1>
- Thoemen, H., Irle, M., & Sernek, M. (Éd.). (2010). *Wood-based panels: an introduction for specialists*. London: Brunel Univ. Press.
- Tomak, E. D., & Cavdar, A. D. (2013). Limited oxygen index levels of impregnated Scots pine wood. *Thermochimica acta*, 573, 181–185.
- Tran Le, A. D., Maalouf, C., Mai, T. H., Wurtz, E., & Collet, F. (2010). Transient hygrothermal behaviour of a hemp concrete building envelope. *Energy and Buildings*, 42(10), 1797 - 1806. <https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2010.05.016>
- Trksak, R., Solarek, D. B., Vitry, S., Rodrigues, K. A., Yuan-Huffman, Q. W., & Puhlfuerss, A. (2010). US20100330376A1. United States. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/US20100330376A1/en?q=us20100330376>
- Troitzsch, J. (1990). *Fire retardant plastics*. Carl Hanser Verlag, *International Plastics Flammability Handbook*. 2 nd Edition, 43–62.

- Troitzsch, J. H. (1998). Overview of flame retardants. *Chemistry today*, 16.
- Uddin, K. M. A., Ago, M., & Rojas, O. J. (2017). Hybrid films of chitosan, cellulose nanofibrils and boric acid: Flame retardancy, optical and thermo-mechanical properties. *Carbohydrate Polymers*, 177, 13 -21. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2017.08.116>
- Umurigirwa, B. S. (2014). *Élaboration et caractérisation d'un agromatériau chanvre-amidon pour le Bâtiment* (Thèse de doctorat). Université de Reims Champagne-Ardenne, France.
- Uner, I. H., Deveci, I., Baysal, E., Turkoglu, T., Toker, H., & Peker, H. (2016). Thermal analysis of Oriental beech wood treated with some borates as fire retardants. *Maderas. Ciencia y tecnología*, 18(2), 293 -304. <https://doi.org/10.4067/S0718-221X2016005000027>
- Verbeek, C. J. R., & Berg, L. E. van den. (2010). Extrusion Processing and Properties of Protein-Based Thermoplastics. *Macromolecular Materials and Engineering*, 295(1), 10 - 21. <https://doi.org/10.1002/mame.200900167>
- Viel, M. (2018). *Développement de composites bio-sourcés destinés à l'isolation des bâtiments*. Université Bretagne Loire, Université de Rennes 1.
- Viel, M., Collet, F., & Lanos, C. (2018). Chemical and multi-physical characterization of agro-resources' by-product as a possible raw building material. *Industrial Crops and Products*, 120, 214 - 237. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2018.04.025>
- Viel, M., Collet, F., Lecieux, Y., François, M. L. M., Colson, V., Lanos, C., ... Lawrence, M. (2019). Resistance to mold development assessment of bio-based building materials. *Composites Part B: Engineering*, 158, 406-418. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.09.063>
- Walling, S. A., & Provis, J. L. (2016). Magnesia-Based Cements: A Journey of 150 Years, and Cements for the Future? *Chemical Reviews*, 116(7), 4170-4204. <https://doi.org/10.1021/acs.chemrev.5b00463>
- Wang, Q., Li, J., & Winandy, J. (2004). Chemical mechanism of fire retardance of boric acid on wood. *Wood Science and Technology*, 38(5). <https://doi.org/10.1007/s00226-004-0246-4>
- Wescott, J. M., & Birkeland, M. J. (2008). WO2008011455A1. World Intellectual Property Organization. Consulté à l'adresse <https://patents.google.com/patent/WO2008011455A1/fr?q=WO+2008011455A1+>
- Wescott, J. M., Traska, A., Frihart, C. R., & Lorenz, L. (2005). Durable soy-based adhesive dispersions. *Wood Adhesives 2005 : November 2-4, 2005 ... San Diego, California, USA*. Madison, WI : Forest Products Society, 2005: ISBN: 1892529459: Pages 263-269. Consulté à l'adresse <https://www.fs.usda.gov/treesearch/pubs/27044>
- Xiao, B., Sun, X. F., & Sun, R. (2001). Chemical, structural, and thermal characterizations of alkali-soluble lignins and hemicelluloses, and cellulose from maize stems, rye straw, and rice straw. *Polymer Degradation and Stability*, 74(2), 307-319. [https://doi.org/10.1016/S0141-3910\(01\)00163-X](https://doi.org/10.1016/S0141-3910(01)00163-X)
- Yang, H., Yan, R., Chen, H., Lee, D. H., & Zheng, C. (2007). Characteristics of hemicellulose, cellulose and lignin pyrolysis. *Fuel*, 86(12), 1781-1788. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2006.12.013>

- Yin, M., Xu, F., Ding, H., Tan, F., Song, F., & Wang, J. (2015). Incorporation of magnesium ions into photo-crosslinked alginate hydrogel enhanced cell adhesion ability. *Journal of Tissue Engineering and Regenerative Medicine*, 9(9), 1088-1092. <https://doi.org/10.1002/term.2011>
- Zhang, N., Li, S., Xiong, L., Hong, Y., & Chen, Y. (2015). Cellulose-hemicellulose interaction in wood secondary cell-wall. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 23(8), 085010. <https://doi.org/10.1088/0965-0393/23/8/085010>
- Zhang, S. (2016, mars 4). Sawdust/wood chips rotary dryer/drum dryer. YouTube. Consulté à l'adresse www.youtube.com/watch?v=t2x4acSBetE
- Zhang, Y., Zhu, P. C., & Edgren, D. (2010). Crosslinking reaction of poly(vinyl alcohol) with glyoxal. *Journal of Polymer Research*, 17(5), 725-730. <https://doi.org/10.1007/s10965-009-9362-z>

Annexes

Annexe A (1/3) : Formulations de liants biosourcés identifiées dans la littérature

Applications	Polymères biosourcés	Additifs/réticulants	Commentaires	Sources
Panneaux contreplaqués	Farine de soja dénaturée (forte teneur en protéine)	pMDI ou Polyamido Amine Epichlorohydrine (PAE)	Les contreplaqués encollés avec la formulation contenant 20% de réticulant ont pu passer le test des trois immersions/séchages.	(WO2008011455A1, 2008)
Panneaux contreplaqués	Farine de soja dénaturée (forte teneur en protéine)	pMDI, poly Hexaméthylendiisocyanate (pHDI) ou PAE	Idem	(WO2011150203A2, 2011)
Panneaux particules	Farine de soja ou Lignines	Glyoxal (glyoxalisation des lignines ou de la farine de soja) Combiné avec des tannins de mimosa et/ou du PMDI	Les résultats ont montré qu'une formulation contenant plus de 70% de matière biosourcée et exempte de formaldéhyde, permettait de fabriquer des panneaux de particules répondant aux exigences pour une application en intérieur. Les temps de pressage des panneaux sont comparables aux liants conventionnels base formaldéhyde.	(Amaral-Labat et al., 2008)
Laine de verre	Protéines de soja combinées avec des sucres réducteurs (dextrose)	Urée ou des dérivés + Glyoxal + Sulfate d'ammonium + Phosphate d'ammonium	La formulation permet d'obtenir un liant thermodurcissable. Plusieurs réactions de réticulation interviennent notamment la réaction de Maillard entre les composés aminés et les groupes carbonyles des carbohydrates	(EP2730631A1, 2014)
Panneaux de particules	Protéine de Gluten	Formaldéhyde ou glyoxal + Tannins combinés avec Hexamine et/ou pMDI	Panneaux répondant aux exigences d'application intérieur Colle composée à 90-95% de biosourcés en utilisant une combinaison d'une résine Tannin-Hexamine avec une résine Gluten-Formaldéhyde ou Gluten-Glyoxal Colle composée à 80-70% de biosourcée en combinant la formulation Gluten-formaldéhyde ou glyoxal avec 20-30% pMDI	(Lei et al., 2010)
Laine de verre	Mélasses	Combinaison d'acides polycarboxyliques (acide citrique + acide acrylique) + catalyseur sodium hypophosphite	Réticulation par estérification des groupements hydroxyles des sucres de la mélasses	(US8900495B2, 2014)

Annexe A (2/3) : Formulations de liants biosourcés identifiées dans la littérature

Applications	Polymères bio-sourcés	Additifs/réticulants	Commentaires	Sources
Panneaux contreplaqués	Amidon (Combiné avec du polyvinyle alcool et polyvinyle acétate au comportement similaires car fonctions hydroxyles).	Urée + Glyoxal Catalyseur nitrate d'ammonium ou nitrate d'aluminium	Essais sur des contreplaqués. Les résultats obtenus avec la formulation sont supérieurs à ceux encollés avec la référence UF	(US7807749B2, 2010)
Panneaux OSB	Farine de soja	Phénol Formaldéhyde PF Possibilité de combinaison avec du pMDI	Faible diminution des propriétés mécaniques en substituant 50% de PF. La farine de soja permet d'augmenter de manière significative le « pot-life * » de la colle comparée au PF seul. (*Temps durant lequel la colle est utilisable après mélange des différents constituants)	(Wescott et al., 2005)
Laines minérales	Dextrose	Ammonium citrate + agents de couplage au silane	Substitution d'une résine PF. La réaction de réticulation se base sur la réaction de Maillard entre les sucres réducteurs et les réactifs aminés (ammonium polycarboxylate). Résultats similaires voir améliorés par rapport à une colle PF seule.	(US20110190425A1, 2011)
Laines minérales	Protéine de soja Dextrose	Latex acrylique Acide polycarboxylique Sulfate d'ammonium + UF	Substitution partielle de résine UF par la nouvelle formulation. Résultat équivalent à la résine UF seule	(US8445564B2, 2013)
Laines minérales	Mélasse de betterave ou Mélange de dextrines avec du glucose	Acide citrique (acide polycarboxylique) + Hypophosphite de sodium (catalyseur)	Réaction de réticulation par polyestérification	(US8951341B2, 2015)
Laines minérales	Sucres réducteurs + Sucres hydrogénés	Acide citrique (acide polycarboxylique) + Hypophosphite de sodium (catalyseur)	Réaction de réticulation par polyestérification	(US20140137771A1, 2014)
Panneaux de particules	Lignine	Glyoxal pMDI et/ou Triacetine	Les panneaux particules réalisées avec cette formulation présentent des performances plus élevées qu'un panneau de particule liée à l'aide d'une résine PF, pour des temps de pressage significativement réduits.	(El Mansouri et al., 2007)

Annexe A (3/3) : Formulations de liants biosourcés identifiées dans la littérature

Applications	Polymères bio-sourcés	Additifs/réticulants	Commentaires	Sources
Panneaux MDF	Dérivés d'amidon ou des dérivés de cellulose tels que Carboxy Methylcellulose (CMC) ou des alginates	Plusieurs réticulants ont été testés : Sodium tripolyphosphate (catalyseur Urée), sodium tetraborate decahydrate (borax), solution d'ammonium styrene maléique anhydre estérifiée (Ammonium SMA), résine de polyamido-amine epichlorohydrine (PAE), ammonium ou potassium zirconium carbonate et des silanes.	Les meilleures résistances à l'eau des liants formulés ont été obtenues avec les résines d'ammonium SMA, de PAE, et les agents de couplages silanes comme réticulants.	(US20100330376A1, 2010)
Laines minérales	Malto dextrines (dérivés d'amidon)	Acide citrique ou des acides polyacryliques (acides poly carboxyliques). Catalyseur sodium hypophosphite. Ajout d'agent de couplage au silane. Dans certains cas : Triethanolamine ou diethanolamine	Une formulation composée à 60% de malto dextrine combinées avec les réticulants présentés a permis d'obtenir des résultats similaires à ceux obtenus avec une résine 100% acrylique. L'ajout de triethanolamine ou du diethanolamine permet d'augmenter la réaction de réticulation.	(US20110086567A1, 2011)
Laines minérales	Amidons ou dextrines	Résine acrylique	-	(US20050215153A1, 2005)
Panneaux de bois	Farine protéique de soja Ou lignines	Polyamidoamine epichlorohydrine (PAE)	-	(US7252735B2, 2007)
Panneaux de bois	Chitosan Ou lignines	acide citrique + sodium hypophosphite	-	(WO2011042610A1, 2011)
Laines minérales	Dextrine	mono ammonium phosphate + 20% d'une émulsion de copolymères acryliques (latex)	Résultats équivalents à une résine UF	(EP2223941A1, 2010)
	Dextrose	Mélatamine ou urée + Glyoxal + sels d'ammonium (ammonium sulfate et di ammonium phosphate)	Plusieurs réactions de réticulation ont lieux notamment la réaction de Maillard. Composition liante et qui améliore le comportement au feu	(US20170158800A1, 2017)
Panneaux bois et laines minérales	Dextrose	sulfate d'ammonium + hydroxyde d'ammonium + agents de couplage	Réticulation par la réaction de Maillard	(US20120205572A1, 2012)

Annexe B (1/2) : Propriétés mécaniques et thermiques des panneaux composites de chènevotte

N° du panneau	$\rho / \text{kg/m}^3$	Résistance en flexion ($\sigma_{f,max}$) / MPa	Module d'élasticité en flexion E_f / MPa	$\rho / \text{kg/m}^3$	Résistance en compression ($\sigma_{c,max}$) / MPa	Module d'élasticité en compression E_c / MPa	Résistance en compression à 10% de déformation ($\sigma_{c,10}$) / MPa	ρ_{sec} (23°C ; 0%HR) / kg/m^3	λ (fil chaud) (23°C ; 0%HR) W/(m.K)	λ (Flux-métrique) (23°C ; 0%HR) W/(m.K)
1	168 ± 8	0.499 ± 0.201	39.6 ± 8.1	152 ± 13	0.198 ± 0.044	7 ± 2	0.384 ± 0.085	164 ± 10	0.0709 ± 0.0017	-
2	172 ± 4	0.292 ± 0.032	25.1 ± 6.8	155 ± 5	0.269 ± 0.010	4 ± 0	0.331 ± 0.032	156 ± 2	0.0690 ± 0.0017	-
3	175 ± 6	0.896 ± 0.101	53.2 ± 2.7	179 ± 1	0.360 ± 0.063	16 ± 2	0.723 ± 0.016	157 ± 4	0.0688 ± 0.0025	0.05279
4	178 ± 4	0.925 ± 0.143	81.7 ± 14.3	173 ± 6	0.430 ± 0.019	19 ± 3	0.708 ± 0.057	174 ± 2	0.0721 ± 0.0023	0.05240
5	192 ± 5	0.871 ± 0.088	44.9 ± 1.1	200 ± 4	0.622 ± 0.060	12 ± 1	0.672 ± 0.347	187 ± 4	0.0755 ± 0.0030	-
6	204 ± 3	0.947 ± 0.063	37.7 ± 1.9	202 ± 6	0.741 ± 0.069	7 ± 0	0.657 ± 0.035	188 ± 6	0.0754 ± 0.0021	-
7	199 ± 7	1.428 ± 0.228	83.5 ± 11.2	187 ± 7	0.450 ± 0.024	20 ± 1	0.884 ± 0.062	208 ± 7	0.0846 ± 0.0033	0.05824
8	212 ± 9	1.774 ± 0.203	150.1 ± 27.0	217 ± 10	1.016 ± 0.168	37 ± 6	1.409 ± 0.201	207 ± 13	0.0818 ± 0.0034	-
9	195 ± 4	1.273 ± 0.025	105.0 ± 2.5	188 ± 4	0.631 ± 0.052	17 ± 1	0.908 ± 0.056	190 ± 6	0.0785 ± 0.0030	-
10	185 ± 9	1.030 ± 0.230	82.8 ± 9.2	176 ± 3	0.518 ± 0.070	16 ± 2	0.796 ± 0.040	192 ± 6	0.0793 ± 0.0022	0.05574

Annexe B (2/2) : Propriétés mécaniques et thermiques des panneaux rigides de chènevotte

N° du panneau	ρ / kg/m ³	Résistance en flexion ($\sigma_{f,max}$) / MPa	Module d'élasticité en flexion EI / MPa	ρ / kg/m ³	Résistance en compression ($\sigma_{c,max}$) / MPa	Module d'élasticité en compression E_c / MPa	Résistance en compression à 10% de déformation ($\sigma_{c,10}$) / MPa	ρ_{sec} (23°C ; 0%HR) / kg/m ³	λ (fil chaud) (23°C ; 0%HR) W/(m.K)	λ (Flux-métrique) (23°C ; 0%HR) W/(m.K)
11	205 ± 7	1.329 ± 0.187	124.5 ± 10.7	194 ± 7	0.586 ± 0.109	19 ± 2	0.938 ± 0.123	193 ± 13	0.0760 ± 0.0040	-
12	175 ± 6	0.829 ± 0.128	50.0 ± 9.7	175 ± 4	0.484 ± 0.027	9 ± 1	0.688 ± 0.037	175 ± 4	0.0761 ± 0.0027	0.05201
13	206 ± 3	1.394 ± 0.073	87.8 ± 9.6	200 ± 5	0.504 ± 0.036	16 ± 1	0.874 ± 0.058	196 ± 5	0.0742 ± 0.0014	-
14	173 ± 6	0.295 ± 0.031	11.4 ± 0.5	139 ± 16	<i>Pas de rupture visible</i>	2 ± 0	0.162 ± 0.028	154 ± 5	0.0750 ± 0.0028	-
15	206 ± 7	1.576 ± 0.190	97.2 ± 9.5	207 ± 5	0.828 ± 0.087	26 ± 2	1.181 ± 0.095	200 ± 10	0.0804 ± 0.0027	0.05766
16	159 ± 3	0.581 ± 0.048	52.2 ± 10.3	162 ± 2	0.337 ± 0.018	13 ± 1	0.617 ± 0.024	152 ± 8	0.0660 ± 0.0019	0.05083
17	193 ± 5	1.121 ± 0.186	81.8 ± 9.6	206 ± 2	0.648 ± 0.030	13 ± 1	0.941 ± 0.019	184 ± 8	0.0722 ± 0.0014	-
18	198 ± 0	1.242 ± 0.095	104.7 ± 1.6	203 ± 7	0.619 ± 0.050	19 ± 2	1.043 ± 0.103	193 ± 6	0.0793 ± 0.0026	0.05597
19	195 ± 5	0.985 ± 0.115	70.5 ± 10.6	214 ± 4	0.633 ± 0.022	17 ± 1	1.049 ± 0.028	187 ± 7	0.0746 ± 0.0019	-

Annexe C : Masses volumiques apparentes et conductivités thermiques au point sec des composites chènevotte/liant oxysulfate de magnésium (23°C et 0%HR)

Ref formulation	Masse volumique ρ_{sec} (23°C ; 0%HR) / kg/m³	Conductivité thermique λ (fil chaud) (23°C ; 0%HR) W/(m.K)
1	413 ± 3	0.1233 ± 0.0043
2	407 ± 1	0.1180 ± 0.0052
3	377 ± 5	0.1059 ± 0.0042
4	418 ± 5	0.1222 ± 0.0032
5	448 ± 2	0.1232 ± 0.0061
6	407 ± 7	0.1232 ± 0.0061
7	474 ± 7	0.1273 ± 0.0051
8	365 ± 2	0.1019 ± 0.0027
9	290 ± 1	0.0833 ± 0.0031
10	418 ± 3	0.1138 ± 0.0039
11	298 ± 3	0.0860 ± 0.0010
12	458 ± 9	0.1196 ± 0.0026
13	267 ± 1	0.0841 ± 0.0025
14	331 ± 3	0.1021 ± 0.0030
15	402 ± 4	0.1175 ± 0.0036
16	325 ± 4	0.0935 ± 0.0021

Annexe D : Valeurs tampon hydrique des panneaux composites de chènevotte

Ref panneau	Masse volumique apparente à 23°C et 50%HR (kg/m ³)			MBV adsorption g/(m ² .%HR)			MBV désorption g/(m ² .%HR)			MBV Moyen g/(m ² .%HR)		
	Valeurs	Moy	<i>e-t</i>	Valeurs	Moy	<i>e-t</i>	Valeurs	Moy	<i>e-t</i>	Valeurs	Moy	<i>e-t</i>
P1	156	155 ± 2		2.13	2.10 ± 0.04		2.20	2.16 ± 0.05		2.16	2.13 ± 0.04	
	155			2.13			2.18			2.15		
	152			2.06			2.11			2.08		
P2	152	153 ± 9		1.86	1.96 ± 0.09		1.94	2.04 ± 0.09		1.90	2.00 ± 0.09	
	148			1.98			2.05			2.02		
	159			2.05			2.12			2.08		
P3	138	145 ± 29		2.26	2.25 ± 0.03		2.34	2.34 ± 0.02		2.30	2.29 ± 0.03	
	147			2.22			2.32			2.27		
	149			2.28			2.36			2.32		
P4	201	203 ± 10		2.40	2.48 ± 0.08		2.49	2.56 ± 0.08		2.44	2.52 ± 0.08	
	204			2.55			2.64			2.60		
	203			2.48			2.56			2.52		
P5	224	222 ± 7		3.03	2.59 ± 0.39		3.13	2.69 ± 0.38		3.08	2.64 ± 0.38	
	218			2.38			2.48			2.43		
	224			2.35			2.47			2.41		
P6	235	233 ± 13		2.17	2.12 ± 0.04		2.28	2.24 ± 0.04		2.22	2.18 ± 0.04	
	227			2.08			2.20			2.14		
	237			2.12			2.23			2.18		
P7	257	261 ± 6		2.24	2.36 ± 0.10		2.41	2.53 ± 0.10		2.32	2.44 ± 0.10	
	259			2.40			2.58			2.49		
	268			2.43			2.60			2.51		

Annexe E (1/3) : Essais sur la thermopresse continue à double bandes – Paramètres et interprétations

N° d'essai	Conformation du mat	Paramètres	Observations	Hypothèses/problématiques
<p align="center">1</p> <p>Caractéristiques visées : 8% de liant 180-200 kg/m³ Epaisseur : 50 mm</p>	<p>A l'aide de l'unité de saupoudrage</p>	<p>Unité de préchauffage : OFF</p> <p>Unité de thermopressage : T°C = 190°C.</p> <p>Profil d'épaisseurs = 60 – 50 -50 mm</p> <p>Vitesse de convoyage 0.2 m/min (=10 min de chauffe)</p>	<p>Pas de cohésion</p> <p>Panneau non réticulé à cœur et très humide.</p> <p>La masse surfacique du panneau très éloignée de la valeur cible :</p> <p>Le mat est trop épais à l'entrée de l'unité de thermopressage</p> <p>Refoulement de la matière</p>	<p>Temps de chauffe trop faible</p> <p>Besoin d'éviter Refoulement de la matière à l'entrée de l'unité de thermopressage</p> <p>Teneur en liant trop faible</p>
<p align="center">2</p> <p>Caractéristiques visées : 8% de liant 180-200 kg/m³ Epaisseur : 50 mm</p>	<p>Manuelle dans un cadre flexible</p>	<p>Unité de préchauffage : OFF</p> <p>Unité de thermopressage : T°C = 190°C.</p> <p>Profil d'épaisseurs = 60 – 50 -50 mm</p> <p>Vitesse de convoyage 0.2 m/min (=10 min de chauffe) + 15 min d'arrêt dans la zone de chauffe</p>	<p>Panneau non réticulé et toujours humide</p>	<p>Le panneau est trop épais pour réticuler le panneau à cœur.</p> <p>La réduction de l'épaisseur du panneau peut améliorer la réticulation au centre du panneau et réduire le refoulement de matière à l'entrée de la thermopresse.</p>
<p align="center">3</p> <p>Caractéristiques visées : 10% de liant 180-200 kg/m³ Epaisseur : 50 mm</p>	<p>Manuelle dans un cadre flexible</p>	<p>Unité de préchauffage : 120 °C – Ventilation élevée (70%)</p> <p>Unité de thermopressage : T°C = 190°C.</p> <p>Profil d'épaisseurs = 60 – 50 -50 mm</p> <p>Vitesse de convoyage 0.2 m/min (=10 min de chauffe) + 15 min d'arrêt dans la zone de chauffe</p>	<p>Non concluant</p>	<p align="center">-</p>

Annexe E (2/3) : Essais sur la thermo-presse continue à double bandes – Paramètres et interprétations

N° d'essai	Conformation du mat	Paramètres	Observations	Hypothèses/problématiques
<p align="center">4</p> <p>Caractéristiques visées : 10% de liant 180-200 kg/m³ Épaisseur : 25 mm</p>	Manuelle dans un cadre flexible	Unité de préchauffage : OFF Unité de thermopressage : T°C = 190°C. Profil d'épaisseurs = 35-25-25 mm Vitesse de convoyage 0.2 m/min (=10 min de chauffe) + 15 min d'arrêt dans la zone de chauffe	Faces des panneaux dégradées par le traitement thermique. Panneau non réticulé à cœur et toujours humide. L'humidité empêche la réticulation à cœur, même pour une faible épaisseur et de long temps de chauffe.	L'humidité du mat est trop élevée. La teneur en humidité de la chènevotte doit être réduite avant l'application du liant. L'unité de préchauffage pourrait permettre de réduire l'épaisseur du mat avant l'entrée dans l'unité de thermopressage.
<p align="center">5</p> <p>Caractéristiques visées : 10% de liant 180-200 kg/m³ Épaisseur : 50 mm</p>	Manuelle	Chènevottes séchées à l'aide de l'unité de préchauffage avant encollage Unité de préchauffage : Utilisée pour réduire l'épaisseur du mat de 100mm à 60mm Unité de thermopressage : T°C = 190°C. Profil d'épaisseurs = 60-50-50 Vitesse de convoyage 0.2 m/min (=10 min de chauffe) + 15 min d'arrêt dans la zone de chauffe	Cohésion du panneau et le mat n'a pas été refoulé à l'entrée de l'unité de thermopressage. Le panneau est moins humide à cœur ce qui a permis à la réaction de réticulation d'avoir lieu.	L'étape de prépressage est nécessaire pour réduire l'épaisseur du mat avant l'entrée dans l'unité de thermopressage. L'humidité est le paramètre limitant. Le séchage de la matière est nécessaire avant l'application du liant. La réduction de la proportion de liant pourrait permettre de réduire la teneur d'humidité du mat et accélérer la réticulation au cœur du panneau.

Annexe E (3/3) : Essais sur la thermopresse continue à double bande – Paramètres et interprétations

N° d'essai	Conformation du mat	Paramètres	Observations	Hypothèses/problématiques
<p align="center">6</p> <p align="center">Caractéristiques visées : 8% de liant 180-200 kg/m³ Epaisseur : 50 mm</p>	<p align="center">Manuelle</p>	<p>Chênevottes séchées à l'aide de l'unité de préchauffage avant encollage</p> <p>Unité de préchauffage : Utilisée pour réduire l'épaisseur du mat de 100mm à 60mm</p> <p>Unité de thermopressage : T°C = 190°C.</p> <p>Profil d'épaisseurs = 60-50-50</p> <p>Vitesse de convoyage 0.2 m/min (=10 min de chauffe) + 15 min d'arrêt dans la zone de chauffe</p>	<p align="center">Panneau cohésif mais plus fragile que la formulation n°5.</p> <p align="center">Pas de refoulement de matière.</p>	<p align="center">La proportion de liant ne doit pas être diminuée car cela pénalise les propriétés mécaniques du panneau. La teneur solide du liant doit être augmentée afin de réduire au maximum la teneur en eau du mat.</p>
<p align="center">7</p> <p align="center">Caractéristiques visées : 8% de liant 180-200 kg/m³ Epaisseur : 50 mm</p>	<p align="center">Manuelle</p>	<p>Le liant est modifié pour augmenter sa teneur solide.</p> <p>Chênevottes séchées à l'aide de l'unité de préchauffage avant encollage</p> <p>Unité de préchauffage : Utilisée pour réduire l'épaisseur du mat de 100mm à 60mm</p> <p>Unité de thermopressage : T°C = 190°C.</p> <p>Profil d'épaisseurs = 60-50-50</p> <p>Vitesse de convoyage 0.2 m/min (=10 min de chauffe) + 15 min d'arrêt dans la zone de chauffe</p>	<p align="center">Bonne cohésion du panneau.</p> <p align="center">Pas de refoulement de matière.</p>	

Annexe F : Installation des panneaux rigides et des démonstrateurs (Projet Européen ISOBIO)



Titre : Panneaux composites bio-sourcés destinés à l'isolation des bâtiments : Caractérisation des ressources et procédé de production.

Mots clés : Matériaux bio-sourcés, Chanvre, Isolation thermique, Transposition industrielle

Résumé : L'objectif de cette thèse est de développer de nouveaux composites isolants biosourcés à partir de coproduits de l'agriculture exploitables dans le secteur du bâtiment. Les travaux s'organisent en trois principales étapes : La première, au travers d'un travail de formulation et de caractérisation, vise à évaluer les propriétés mécaniques, thermiques et hygriques de composites biosourcés obtenus par agglomération de granulats végétaux avec différents types de liants biosourcés et minéraux. Plusieurs agro-ressources sont envisagées (paille de blé, colza, anas, chènevotte et rafles de maïs). Une solution associant des granulats de chènevotte avec un liant biosourcé thermosettable est sélectionnée.

La suite des travaux se focalise sur la recherche

d'un procédé de mise en forme adapté à la fabrication de panneaux rigides isolants réalisés à partir de la formulation du composite de chènevotte. La fabrication de panneaux composites est testée sur différents outillages disponibles en laboratoire ainsi que sur des outils industriels permettant de tester les différentes technologies existantes. La possibilité de fabriquer le panneau rigide isolant de chènevotte sur une ligne de production industrielle entièrement automatisée est démontrée.

Enfin, de nouvelles solutions permettant d'améliorer la réaction au feu des panneaux composites sont testées ce qui permet d'identifier des solutions adaptées au composite étudié.

Title : Bio-based composite panels for building insulation: Characterization of resources and production process.....

Keywords : Bio-based materials, Hemp, Thermal insulation, Industrial scale transposition

Abstract : The objective of this thesis is to develop new insulation composites from agricultural by-products for building applications. The research work is divided in three main steps:

The first one focuses on the formulation of bio-based composites obtained by agglomeration of vegetal aggregates with different types of binders (bio-based or mineral binders), and on the characterization of their mechanical, thermal and hygric properties. Several bio-aggregates are envisaged (wheat straw, rape straw, flax shiv, hemp shiv and corn cob). A solution combining hemp shiv aggregates bonded with a bio-based thermosetting adhesive is selected. The next step aims to identify a suitable manufacturing process to produce rigid

insulation panels using the previously determined composite formulation. Several manufacturing trials are conducted on different laboratory and industrial tools which allow to experiment existing manufacturing technologies. The possibility to produce the rigid insulation panel from hemp shiv at the industrial scale on a fully automatized production line is demonstrated.

Finally, new solutions to improve the fire reaction of the insulation panels are tested which allows to identify suitable solutions for the developed composites.