



# CARACTÉRISATION DES LONGUEURS DE FIBRES DANS DIFFÉRENTS TYPES DE COMPOSITES POLYPROPYLÈNE-FIBRES DE VERRE COURTES— 2<sup>ème</sup> PARTIE. ETUDE DES MATÉRIAUX APRÈS INJECTION

JEAN-PIERRE TANCREZ,<sup>1\*</sup> FRANÇOIS RIETSCH<sup>1</sup> et JOSÉ PABIOT<sup>2</sup>

Laboratoire de Caractérisation des Polymères et Composites, Ecole Universitaire d'Ingenieurs de Lille (EUDIL), U.S.T. LILLE, 59655 Villeneuve d'Ascq Cedex et <sup>2</sup>Ecole des Mines de Douai, Département Technologie des Polymères et Composites, 941 rue Charles Bourseul, B.P. 838, 59508 Douai Cedex, France

(Received 29 October 1993; received for publication 22 April 1994)

**Résumé**—Le but de ce travail, portant sur l'injection de composites à matrice polypropylène renforcée de fibres de verre courtes, est d'étudier les relations qui peuvent exister entre:

- certaines compositions de matrice et d'ensimage et certains paramètres d'injection
- les distributions de longueurs de fibres dans des éprouvettes moulées par injection
- les caractéristiques mécaniques associées.

Nous avons montré que:

- (1) Quand les différents polypropylènes utilisés comme matrice ont des viscosités comparables à l'état non renforcé, leur nature a peu d'influence sur les distributions de longueurs de fibres dans les pièces moulées par injection.
- (2) A l'opposé, la composition de l'ensimage recouvrant les fibres a une grande influence sur les distributions de longueurs de fibres dans les pièces moulées par injection: l'incorporation d'un agent de couplage de type aminosilane + polypropylène modifié anhydride maléique dans l'ensimage entraîne toujours un accroissement des longueurs moyennes de fibres et une réduction de la dispersion en longueur.
- (3) La modification de certains paramètres d'injection tels que la vitesse de vis, la température du fourreau ou le niveau de contrepression entraîne toujours une variation logique des longueurs moyennes de fibres mais:
  - quand les fibres sont ensimées sans agent de couplage, une réduction de longueur est toujours accompagnée d'une réduction des caractéristiques mécaniques
  - a l'opposé, quand un agent de couplage de type aminosilane + polypropylène modifié anhydride maléique est incorporé dans l'ensimage, la corrélation entre longueur moyenne des fibres et caractéristiques mécaniques est beaucoup moins évidente. Ce phénomène a été interprété en termes de modifications structurales à l'interphase entre matrice polypropylène et fibres de verre.

## 1. INTRODUCTION

Les besoins sans cesse croissants de l'Industrie en matériaux devant satisfaire à des exigences de plus en plus sévères à des coûts de plus en plus réduits, ont conduit au développement récent d'un certain nombre de matériaux parmi lesquels on peut citer les composites à matrice thermoplastique renforcée de fibres de verre courtes.

Le renforcement par des fibres de verre courtes permet souvent d'améliorer considérablement certaines caractéristiques de la matrice de départ telles que la stabilité dimensionnelle après moulage, le module et les contraintes admissibles et ceci tout en conservant la possibilité d'utiliser le moulage par injection comme moyen de mise en oeuvre en production de grande série.

De nombreux travaux théoriques ou expérimentaux ont montré que les caractéristiques mécaniques de ces composites dépendent fortement des longueurs

de fibres renforçantes et que ces longueurs dépendent elles mêmes des conditions de mise en oeuvre.

Dans un article précédent, nous avons fait le point sur les méthodologies utilisables pour mesurer les longueurs de fibres à l'intérieur de composites à matrice Polypropylène (PP) renforcée de 30% en poids de Fibres de Verre Courtes (FVC) [1].

Nous avons notamment mis en évidence le fait que la taille de la zone explorée a une influence considérable sur la fiabilité et la représentativité des résultats obtenus.

Nous avons vu également que les populations de fibres peuvent être caractérisées par leurs **longueurs moyennes**:

$$\text{en nombre: } L_n = \frac{\sum_i l_i \cdot n_i}{\sum_i n_i}$$

Tableau 1. Caractéristiques des deux PP utilisés

	Homopolymère	Copolymère
Masses moléculaires		
$M_n$	40.000	40.200
$M_w$	140.000	192.000
$M_w/M_n$	3,49	4,76
Melt flow index (dg/min)		
230 °C et 21,6N	17	14
230 °C et 50N	58	60
190 °C et 50N	24	23

( $n_i$  est le nombre de fibres de longueur  $l_i$ )  
ou en longueur:

$$L_i = \frac{\sum l_i^2 \cdot n_i}{\sum l_i \cdot n_i}$$

et leurs **dispersités**: No. 1:

$$\text{disp. 1} = \frac{L_i - L_n}{L_n}$$

ou dispersité No. 2:

$$\text{disp. 2} = \frac{\text{Ecart} - \text{type}}{L_n}$$

Dans cet article, nous nous proposons de caractériser les populations de fibres à l'intérieur d'éprouvettes moulées par injection et de préciser quelles relations existent entre:

- la composition du matériau (*matrice et ensimage*)
- les conditions de mise en oeuvre (*paramètres d'injection*)
- les longueurs de fibres
- les caractéristiques mécaniques.

## 2. INJECTION EN CONDITIONS STANDARD

### 2.1. Paramètres étudiés

Les paramètres que nous avons étudiés lors du moulage par injection en conditions standard sont:

(1) La composition du composite:

- Nature de la matrice: polypropylène homopolymère (PP) ou alliage polypropylène (PP: 86%) + polyéthylène (PE: 3%) + élastomère éthylène-propylène (EPR: 11%).

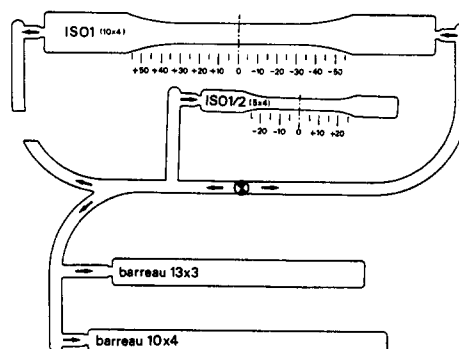


Fig. 1. Moule grappe (cotes en mm).

- Nature de l'ensimage recouvrant les fibres: présence ou absence parmi les différents constituants de l'ensimage d'un agent de couplage Aminosilane + PP modifié anhydride maléique ayant pour rôle d'améliorer la tenue mécanique de l'interface PP-FV en modifiant chimiquement l'interphase.
- Le taux de fibres était fixé à 30% en poids.

(2) La température de moule: 20 ou 50 °C.

Les caractéristiques principales des deux matrices sont indiquées dans le Tableau 1 ci-après.

Comme déjà indiqué dans [1], nous avons identifié les différents matériaux grâce à un système de références alpha-numériques composées de trois blocs de chiffres et lettres.

- Le premier bloc indique la nature de la matrice:  
H: iPP Homopolymère  
C: mélange PP + PE + EPR ("Copolymère").
- Le second bloc indique le taux de fibres et la nature de l'ensimage:  
30EC: 30% en poids de FVC ensimées avec agent de couplage  
30NR: 30% en poids de FVC ensimées sans agent de couplage.
- Le troisième bloc précise les conditions de mise en oeuvre:  
I20: Injection en conditions standard dans un moule à +20 °C

Tableau 2. Paramètres d'injection standard

	Diamètre:	38 mm
Vis	Vitesse:	50 T/min
Fourreau: profil de température	zone 1 (alimentation):	180 °C
	zone 2:	200 °C
	zone 3:	220 °C
	zone 4:	230 °C
	zone 5 (buse):	230 °C
Température effective de la matière injectée:		236 à 237 °C
Température du moule:		20 et 50 °C
Contre pression:		20 bars
Vitesse d'injection:		9,1 cm <sup>3</sup> /sec
Temps de remplissage du moule:		4,4 sec
Pression & temps de maintien:		800 bars.15 sec
Temps de refroidissement:		40 sec
Durée totale d'un cycle:		72 sec

Tableau 3. Paramètres caractéristiques des longueurs de fibres pour les éprouvettes injectées dans le moule grappe en conditions standard

		H.30EC	H.30NR	C.30EC	C.30NR
$L_n$ (mm)	T moule = +20°C	0,545	0,357	0,525	0,363
	T moule = +50°C	0,528	0,418	0,544	0,375
disp.1	T moule = +20°C	0,411	0,527	0,478	0,711
	T moule = +50°C	0,356	0,407	0,301	0,512

I50: Injection en conditions standard dans un moule à +50°C.

## 2.2. Conditions d'injection

Les matériaux ont été injectés dans un moule grappe comportant 4 empreintes (cf. Fig. 1) monté sur une presse Billion H280/90 tonnes.

Des essais préalables nous avaient permis de sélectionner une gamme de paramètres d'injection standard utilisables avec tous les matériaux qu'ils soient ou non renforcés de fibres (cf. Tableau 2).

Les travaux de Karian et Scheirer [2] sur l'optimisation des conditions d'injection du PP nous ont en particulier suggéré qu'une température d'injection d'environ 230°C était un bon compromis permettant d'injecter correctement à la fois des PP vierges et d'autres renforcés de 30% de fibres de verre.

Ces paramètres standard ont été retenus car ils permettent d'assurer à la fois:

- un malaxage et une homogénéisation corrects de la matière fondue
- une dégradation thermique a priori limitée de la matrice [3, 4] et une attrition raisonnable des fibres
- l'absence de défauts visibles (*défauts de surface, bulles, retraits trop importants, gauchissements*, etc.) pour tous les matériaux
- une bonne homogénéité des caractéristiques (*dimensions, masses*) pendant toute la durée de l'injection d'une série d'éprouvettes.

Des séries d'environ 250 grappes ont été injectées dans ces conditions standard pour chacun des matériaux de l'étude. Des séries plus courtes ont également été injectées dans des conditions non standard afin d'étudier en particulier l'influence des conditions d'injection sur les longueurs de fibres (cf. Section 3).

## 2.3. Longueurs des fibres

Les populations de fibres présentes dans les éprouvettes injectées ont fait l'objet d'une étude systématique comparable à celle qui avait été réalisée sur les granules [1].

Les valeurs de  $L_n$  et de eq. disp1 obtenues dans les éprouvettes injectées pour les 4 matériaux renforcés et les 2 températures de moule sont reportées dans le Tableau 3 et Fig. 2.

On voit que les longueurs moyennes en nombre sont relativement indépendantes de la nature de la matrice et de la température du moule mais qu'elles dépendent par contre fortement de la présence ou de l'absence de l'agent de couplage dans l'ensimage.

\*Largeur  $\approx$  2 mm; hauteur  $\approx$  1 mm; longueur  $\approx$  3 mm.

La dispersité quant-à elle dépend de la nature de l'ensimage et de la température du moule: elle est systématiquement plus élevée dans les matériaux injectés dans un moule à +20°C et/ou dont l'ensimage ne comporte pas d'agent de couplage. Cette dernière tendance, qui avait déjà été observée pour les granules non encore injectés, est surtout marquée dans le cas des composites à matrice copolymère.

## 2.4. Interprétation

La dépendance de la dispersité vis à vis de la température du moule peut surprendre de prime abord quand on se réfère à un certain nombre de travaux [5-9] qui ont montré que lors de l'extrusion ou de l'injection, l'essentiel de la dégradation des fibres se produit dans le système vis-fourreau pendant les toutes premières phases du procédé, en particulier à l'interface polymère solide-polymère fondu [7, 8].

Kamal *et al.* [10] ont quand même mis en évidence le fait que la longueur des fibres après injection dépend certes des paramètres liés au système vis-fourreau mais également de la **géométrie du seuil d'injection**.

Dans notre cas, le moule grappe que nous avons utilisé a des seuils d'injection de dimensions réduites.\* Le cisaillement intense que subit le matériau lors du passage du seuil doit vraisemblablement entraîner une dégradation des fibres dans la matrice fondue suivant le modèle de flambage de Forgacs et Mason [11].

Dans ce modèle, la dégradation des fibres est directement reliée aux contraintes de cisaillement existant dans la matrice. Or, pour une vitesse d'injection déterminée, ces contraintes sont d'autant plus élevées que la viscosité de la matrice est elle même élevée.

On peut donc raisonnablement imaginer qu'une modification de la température du moule entraîne une modification de la température et de la viscosité de

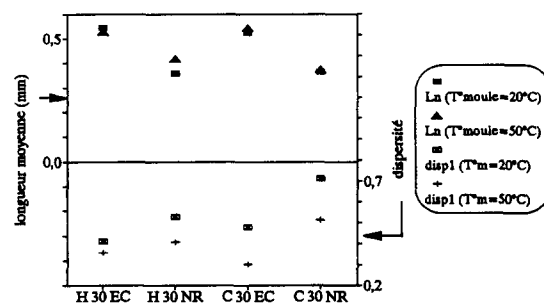


Fig. 2. Paramètres caractéristiques des longueurs de fibres pour les éprouvettes injectées dans le moule grappe en conditions standard.  $L_n$ : longueur moyenne en nombre; L1: longueur moyenne en longueur disp1: dispersité No. 1  $[(L1 - L_n)/L_n]$ .

Tableau 4. Paramètres d'injection standard et modifiés

	Contre pression (bar)	Vitesse vis (T/min)	T° vis-fourreau					Vitesse injection cm <sup>3</sup> /sec	T° moule (°C)
			Zone 1 trémie	Zone 2	Zone 3	Zone 4	Zone 5 buse		
std	2	50	180	200	220	230	230	9,1	50
d1	5	100	150	180	210	230	230	9,1	50
d2	5	100	120	150	180	230	230	9,1	50
d3	25	100	120	150	180	230	230	9,1	50

la matrice et donc des processus de dégradation apparaissant au niveau du seuil.†

Nous pourrions également envisager de relier cette dépendance de la dégradation des fibres vis-à-vis de la température du moule aux contraintes de cisaillement existant, dans l'empreinte proprement dite, entre le coeur et la peau de la pièce pendant la phase de remplissage et surtout la phase de maintien.

Cette dégradation peut être modélisée soit par un modèle de Forgacs et Mason [11], soit par un modèle de Mittal et Gupta [7, 8] suivant qu'elle se produit dans une zone où la matrice est totalement fondue ou dans une zone d'interface liquide-solide.

Ici aussi, on sait que les contraintes de cisaillement responsables de la dégradation des fibres dépendent de la vitesse de refroidissement de la peau et donc de la température du moule.

Mais il faut remarquer que, dans le cas des coposites PP-FVC, Spahr *et al.* [12] ont montré qu'on n'observe pas de variations de longueur entre la peau et le coeur d'éprouvettes injectées contrairement à ce qui a été mis en évidence sur d'autres matériaux comme les composites PA-FVC [13]. Cette différence de comportement a été attribuée au profil de vitesses plus aplati dans le cas du PP que dans celui du PA.

On remarque également qu'à ensimages identiques, les longueurs moyennes des fibres sont comparables dans les composites à matrice homopolymère et dans ceux à matrice copolymère alors que dans les granulés ces longueurs moyennes étaient sensiblement différentes.

Ceci peut s'expliquer d'une part en rappelant que les 2 matrices ont été choisies car elles présentent des viscosités tout à fait comparables à l'état fondu (cf. Tableau 1) et d'autre part en s'appuyant sur les observations de Arroyo et Avalos [14] qui ont remarqué que la dégradation se produisant lors de l'injection est d'autant plus prononcée que les fibres sont longues.

Il est donc compréhensible que l'on observe une relative uniformisation des longueurs de fibres après injection pour des matériaux dont les matrices ont des viscosités comparables à l'état fondu.

Le paramètre ayant l'influence la plus marquée, à la fois sur les longueurs moyennes et sur les dispersités, est donc sans conteste l'ensimage: la présence d'un agent de couplage aminosilane + PP modifié dans l'ensimage se traduit systématiquement par une augmentation de la longueur moyenne et une diminution de la dispersité.

Nous n'avons pas trouvé une littérature abondante sur les relations pouvant exister entre la nature de l'ensimage et la dégradation des fibres.

On peut citer les travaux de Richards et Simms [15] qui évoquent le fait que l'ensimage puisse avoir une influence importante sur la dégradation des fibres de verre lors de l'injection ainsi que la Thèse de H. Renard [16] dans laquelle l'auteur observe l'existence d'une corrélation entre longueur des fibres et nature de l'ensimage dans des coposites PP-FVC pour lesquels l'ensimage des fibres est partiellement constitué de PP greffé avec du méthacrylate de glycidile.

Il faut toutefois noter que, dans ce dernier cas, la corrélation observée entre longueur moyenne des fibres et taux de méthacrylate de glycidile n'est pas très nette et que l'auteur ne propose pas d'interprétation au phénomène observé.

H. Renard a quand même observé que, plus le taux de méthacrylate de glycidile greffé sur les chaînes PP est élevé, plus la viscosité à l'état fondu du PP modifié est elle aussi élevée.

On pourrait supposer que cette augmentation de viscosité puisse provoquer une augmentation de la dégradation des fibres dans la matrice fondue conformément aux prévisions du modèle de Forgacs et Mason déjà évoqué précédemment.

Nous pouvons enfin citer les travaux de Raj *et al.* [17] qui ont montré que le traitement de surface de fibres de cellulose pouvait faciliter leur dispersion dans une matrice PP.

Or, nous savons que la dégradation des fibres dépend, au moins en partie, des interactions mécaniques pouvant exister entre elles et par voie de conséquence de leur dispersion.

Lorsque les fibres restent très groupées, elles peuvent former des amas relativement isolés les uns des autres et leur dégradation reste alors limitée (*de même d'ailleurs que l'efficacité du renforcement*) [7].

A l'opposé, K. Friedrich *et al.* ont montré grâce à des composites à taux de fibres variables que, plus la dispersion des fibres est élevée, plus leur dégradation est faible [12, 18, 19].

Nous voyons donc que les relations pouvant exister entre la nature de l'ensimage et la dégradation des fibres sont complexes et qu'il est difficile de trouver une explication à l'augmentation de longueur moyenne et à la diminution de dispersité liées à la présence de l'agent de couplage dans l'ensimage.

Nous avons poursuivi l'étude en modifiant certains paramètres d'injection de manière à modifier également les longueurs de fibres dans les éprouvettes. Le but était de préciser quelles relations peuvent exister entre conditions de mise en oeuvre, longueurs de fibres et caractéristiques mécaniques.

†Notons toutefois que le seuil d'injection est une zone où la température du matériau fondu peut évoluer de manière importante sous l'effet de l'autoéchauffement provoqué par le cisaillement intense à cet endroit.

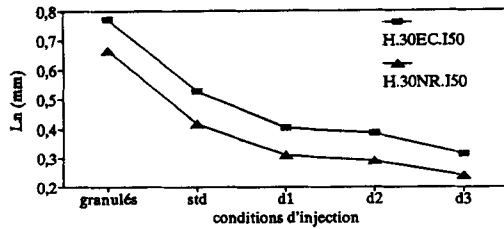


Fig. 3. Evolution de la longueur moyenne des fibres en fonction des conditions d'injection.

Tableau 5.

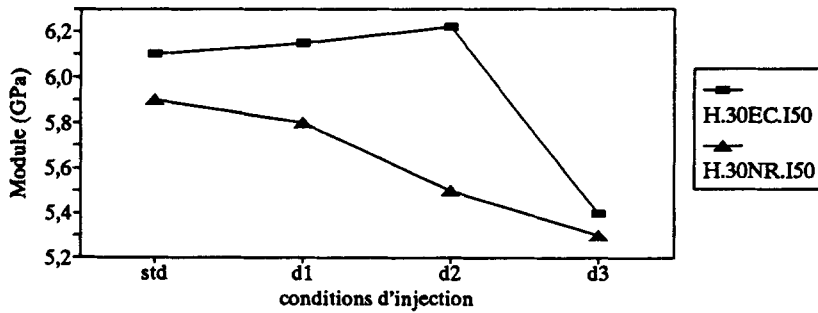
	$L_n$ (mm)	$L_l$ (mm)	disp. l
H.30NR.I50-std	0,418	0,588	0,407
H.30EC.I50-d1	0,405	0,596	0,472

### 3. MODIFICATION DES CONDITIONS D'INJECTION

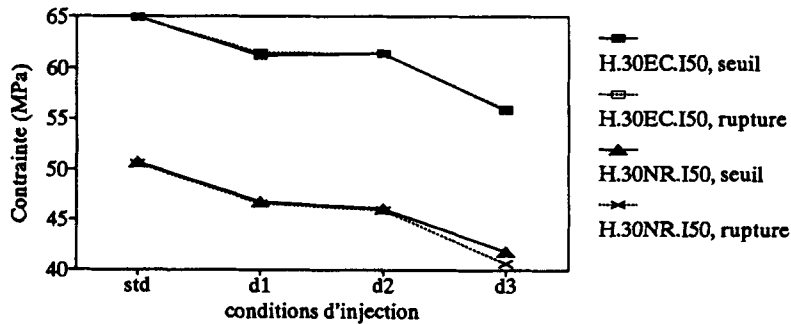
#### 3.1. Conditions d'injection

Filbert [20] a identifié les paramètres ayant une influence déterminante sur les longueurs de fibres dans les pièces injectées. Ce sont:

#### a. Module



#### b. Contraintes au seuil d'écoulement et à la rupture



#### c. Allongements au seuil d'écoulement et à la rupture

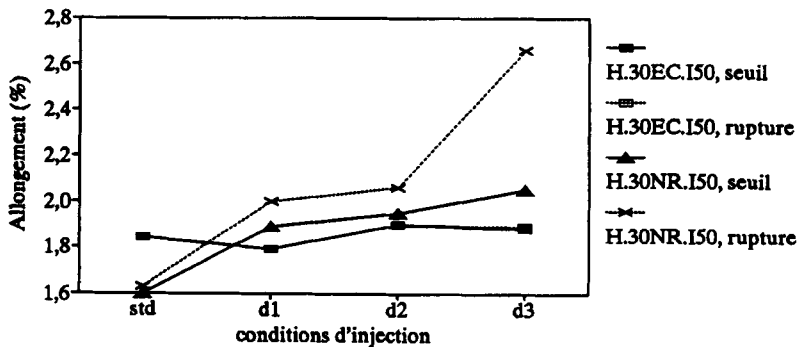


Fig. 4(a-c). Evolution des caractéristiques en traction en fonction des conditions d'injection.

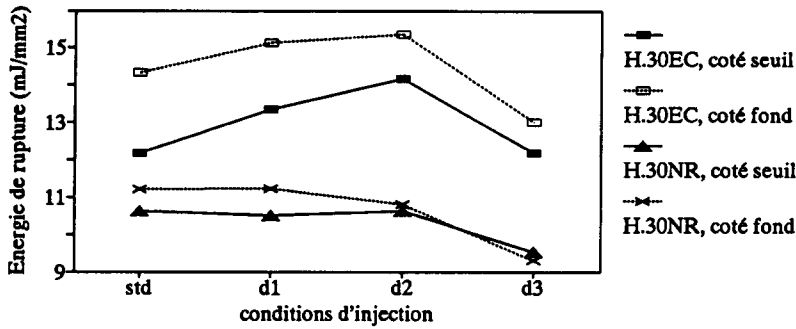


Fig. 5. Evolution de l'énergie de rupture en fonction des conditions d'injection. Choc Charpy sur éprouvettes non entaillées prélevées coté seuil d'injection et coté fond dans les barreaux de  $4 \times 10 \times 154$  mm.

- la température dans la zone d'alimentation et de fusion
- la vitesse de rotation de la vis
- le niveau de contre-pression.

L'influence prépondérante de la température a été confirmée par Kaliske et Seifert [21].

Compte-tenu de ces observations, nous avons injecté un certain nombre d'éprouvettes en H.30EC et H.30NR dans le moule grappe à  $+50^\circ\text{C}$  en utilisant les paramètres indiqués dans le Tableau 4.

La référence "std" correspond aux conditions d'injection standard. Les références "d1", "d2" et "d3" correspondent à des conditions d'injection de sévérité croissante.

Comme on peut le remarquer, les modifications ne concernent que la première partie du système vis-fourreau.

### 3.2. Longueurs des fibres

Les longueurs des fibres présentes dans les éprouvettes ont été mesurées suivant la même méthodologie que précédemment.

On constate que l'augmentation de sévérité des conditions d'injection se traduit par une diminution régulière de la longueur moyenne et qu'une fois de plus les fibres dont l'ensimage contient un agent de couplage (H.30EC) sont plus longues que celles dont l'ensimage n'en contient pas (H.30NR).

Une analyse plus approfondie met en évidence le fait que les populations de fibres dans H.30NR.I50-

std et H.30EC.I50-d1 sont relativement comparables (cf. Tableau 4).

### 3.3. Caractéristiques mécaniques

Les éprouvettes injectées ont été testées en traction conventionnelle (Normes NF.T51.034 et ASTM.D638M) et en choc Charpy (Normes NF.T51.035 et ASTM.D256) dans des conditions identiques à celles déjà décrites dans un article précédent [22].

Les résultats sont reportés sur les Figs 4(a-c) et 5.

Nous avons également reporté l'évolution du module et de l'énergie de rupture en fonction de la longueur moyenne en nombre (cf. Figs 6 et 7).

### 3.4. Interprétation

On voit que le module de H.30NR.I50 décroît régulièrement avec la longueur moyenne, ce qui est

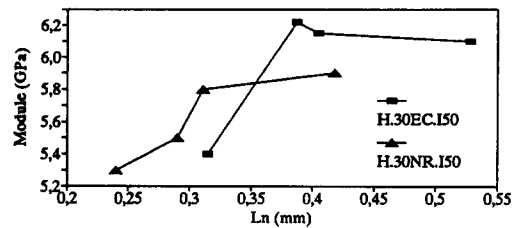


Fig. 6. Evolution du module en traction en fonction de la longueur moyenne en nombre  $L_n$ .

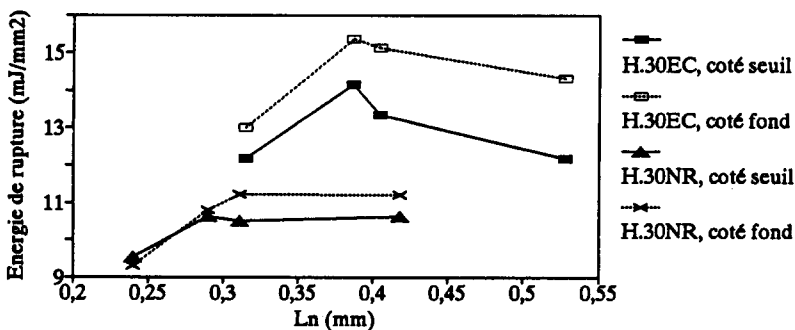


Fig. 7. Evolution de l'énergie de rupture en choc Charpy en fonction de la longueur moyenne en nombre  $L_n$ .

tout à fait cohérent avec les modèles théoriques classiques relatifs aux composites à fibres courtes [23–28].

Le module de H.30EC.150 présente quant-à lui un comportement surprenant car il croît lorsque  $L_n$  passe de 0,53 à 0,4 mm (*passage de std à d2*) ce qui est totalement incohérent avec les modèles théoriques.

Les contraintes au seuil d'écoulement et à la rupture pour H.30EC.150 sont très supérieures à celles obtenues avec H.30NR.150 et elles décroissent lorsque la longueur moyenne croît [cf. Fig. 4(b)]. Ici aussi, ce comportement est parfaitement cohérent avec les modèles théoriques [29–35].

Les allongements au seuil d'écoulement et à la rupture sont pratiquement indépendants des conditions d'injection pour H.30EC.150 [cf. Fig. 4(c)] alors qu'ils augmentent lorsque la longueur moyenne diminue pour H.30NR.150, surtout en ce qui concerne l'allongement à la rupture dans les conditions d3.

En ce qui concerne les énergies de rupture en choc Charpy (cf. Figs 5 et 7), on observe que:

- Les énergies de rupture de H.30EC.150 sont systématiquement supérieures à celles de H.30NR.150. Ceci a déjà été observé par ailleurs et a été interprété en termes d'énergie dissipée lors de la décohesion et de l'extraction (*pull-out*) des fibres en relation avec la qualité de l'interface [36].
- Les énergies de rupture des éprouvettes prélevées côté fond du barreau sont systématiquement supérieures à celles des éprouvettes prélevées côté seuil d'injection. Ce phénomène a lui aussi été déjà observé et attribué aux variations d'orientation des fibres entre le seuil et le fond [36].
- Cette dépendance de l'énergie de rupture vis-à-vis de l'orientation des fibres est d'autant plus marquée que les fibres sont longues et l'adhésion à l'interface élevée.
- L'énergie de rupture est maximale pour les éprouvettes en H.30EC.150 injectées dans les conditions d2 c'est à dire lorsque la longueur moyenne est voisine de 0,4 mm.

On sait que l'énergie de rupture d'un composite à fibres courtes est maximale lorsque la longueur des

fibres est égale à la longueur critique  $l_c$  [37]. Cette longueur critique, qui dépend de la qualité de l'interface, a été mesurée par un certain nombre d'auteurs dans le cas des composites PP-FVC.

On voit que, dans le cas où la matrice est constituée de PP homopolymère et que l'ensimage ne contient pas d'agent de couplage, la longueur critique pour des fibres de diamètre 14,5  $\mu\text{m}$  est d'environ 3,5 mm et qu'elle est comprise entre 1 et 2 mm lorsque l'ensimage contient un agent de couplage.

Elle ne descend à environ 0,6 mm que dans le cas où la matrice est *entièrement* constituée de PP modifié chimiquement (i.e. *greffé*).

Les observations que nous avons effectuées en microscopie électronique à balayage sur des surfaces de rupture d'éprouvettes en PP-FVC confirment ces ordres de grandeur:  $l_c \approx 1$  à 2 mm pour H.30EC;  $l_c \approx 3$  mm pour H.30NR [36].

Nous voyons donc que le maximum qui apparaît vers 0,4 mm sur la courbe énergie de rupture-longueur moyenne pour H.30EC.150 est assez difficilement explicable en termes de longueurs de fibres. Il en est d'ailleurs de même pour celui apparaissant sur la courbe module-longueur moyenne.

On peut imaginer que les conditions de malaxage particulières utilisées en d2 (*et également en d1*) peuvent modifier d'autres paramètres que la seule longueur moyenne  $L_n$ : l'homogénéité de dispersion des fibres dans la matrice par exemple ou encore le degré d'enchevêtrement existant au voisinage immédiat des fibres entre les chaînes de PP homopolymère de la matrice et celles de PP modifié de l'ensimage ce qui serait parfaitement cohérent avec d'autres résultats obtenus en spectroscopie mécanique par exemple [36].

En ce qui concerne H.30NR.150, l'énergie de rupture décroît régulièrement en même temps que la longueur des fibres (cf. Fig. 7), ce qui est tout à fait cohérent avec les modèles théoriques.

Nous voyons donc que la modification des paramètres liés au système vis-fourreau entraîne une variation sensible des répartitions en longueur des fibres mais que ceci s'accompagne d'évolutions parfois inattendues des caractéristiques mécaniques des composites ensimés avec agent de couplage.

Ces évolutions inexplicables des caractéristiques mécaniques laissent supposer l'existence de modifi-

Tableau 6. Valeurs de la longueur critique  $l_c$  à 23 °C pour les composites PP-FVC

Référence	Ensimage et matrice	Diamètre des fibres $d$ ( $\mu\text{m}$ )	Valeur de $l_c$ mesurée (mm)	Facteur de forme critique ( $l_c/d$ )	Valeur de $l_c$ pour des fibres de $d = 14,5 \mu\text{m}$
[8]	FV avec agt. de couplage, matrice PP homopol.	7,5	0,83	111	1,61 mm
[8]	FV sans agt. de couplage, matrice PP homopol.	7,5	1,85	247	3,58 mm
[38]	FV avec agt. de couplage, matrice PP homopol.	23	3,1	136	1,97 mm
[38]	FV avec agt. de couplage, matrice PP modifié chimiquement	23	0,9	41	0,59 mm
[29]	FV avec agt. de couplage, matrice PP homopol.	12	0,78	65	0,942 mm

cations structurales imparfaitement maîtrisées au niveau de l'interface ou de l'interphase fibres-matrice.

En tout état de cause, quelles que soient les conditions d'injection et la nature de l'ensimage, il est clair que la quasi totalité des fibres présentes dans les éprouvettes injectées en PP + 30% FVC est de taille sous-critique.

#### 4. SYNTHÈSE, CONCLUSION

Cette étude nous a permis de préciser les influences respectives d'un certain nombre de paramètres:

- nature de la matrice
- présence d'un agent de couplage dans l'ensimage
- paramètres d'injection

sur les longueurs de fibres présentes à l'intérieur de composites PP + 30% FVC moulés par injection ainsi que sur les caractéristiques mécaniques associées.

Il est clair que les longueurs de fibres sont relativement indépendantes de la nature de la matrice: PP homopolymère ou mélange PP + PE + EPR, au moins dans le cas où, non renforcées, ces différentes matrices présentent des viscosités comparables à l'état fondu.

Les longueurs de fibres sont par contre très dépendantes de la présence d'un agent de couplage du type aminosilane + PP modifié anhydride maléique dans l'ensimage: Les longueurs moyennes sont toujours plus élevées et les dispersités plus faibles lorsque l'ensimage contient ce type d'agent de couplage.

La température du moule a une influence marquée plus au niveau de la dispersité qu'au niveau de la longueur moyenne.

La littérature peu abondante dans ce domaine permet cependant de formuler un certain nombre d'hypothèses quant aux origines physiques des relations existant entre les différents paramètres étudiés et les caractéristiques des populations de fibres.

La modification des paramètres liés au système vis-fourreau entraîne toujours une évolution logique de la longueur moyenne des fibres: une augmentation de la sévérité des conditions d'injection entraîne une diminution systématique de la longueur moyenne.

L'immense majorité des fibres présentes dans les composites injectés étant de taille sous-critique, cette diminution de la longueur moyenne est systématiquement accompagnée d'une diminution des caractéristiques mécaniques pour les composites renforcés de fibres ensimées sans agent de couplage.

Dans le cas des composites dont les fibres ont été ensimées avec agent de couplage du type aminosilane + PP modifié anhydride maléique, l'augmentation de sévérité des conditions d'injection entraîne toujours une diminution des longueurs moyennes mais celle-ci peut être accompagnée d'une augmentation de certaines caractéristiques mécaniques.

Ce phénomène apparemment paradoxal a été interprété comme étant lié à une modification physique de l'interface-interphase entre fibres et matrice due à la modification des conditions de plastification et de malaxage dans le système vis-fourreau.

En conclusion, nous soulignerons le fait que la présence d'un agent de couplage aminosilane + PP modifié dans l'ensimage a une double influence:

- Lors de la mise en oeuvre, à l'état fondu, elle entraîne une diminution plus faible des longueurs moyennes  $L_n$  et  $L_l$  que dans le cas où l'ensimage ne contient pas d'agent de couplage
- Après refroidissement, à l'état solide, elle entraîne une augmentation de la contrainte de cisaillement ultime de l'interface fibres-matrice et donc une diminution de la longueur critique ( $l_c$ ) introduite par Kelly et Tyson [24].

Il serait en fait logique d'intégrer ces 2 notions a priori différentes que sont la résistance de l'interface et la longueur moyenne des fibres dans un paramètre unique que nous pourrions appeler **longueur moyenne relative** (en nombre ou en longueur):

$$Lr_n = \frac{L_n}{l_c} \quad \text{et} \quad Lr_l = \frac{L_l}{l_c}.$$

Ces longueurs moyennes relatives  $L_n$  et  $L_l$  permettraient de situer les longueurs moyennes non pas dans l'absolu mais par rapport à la longueur critique  $l_c$ . Ce qui est beaucoup plus logique sur le plan de l'interprétation du comportement mécanique du composite.

On voit que les évolutions provoquées par la présence d'un agent de couplage aminosilane + PP modifié dans l'ensimage (*augmentation relative des longueurs moyennes et diminution de la longueur critique*) se traduisent toutes deux par une augmentation des longueurs moyennes relatives des fibres, indépendamment de la nature de la matrice.

*Remerciements*—Nous tenons à remercier Messieurs Thierry Cloutault et Patrick Loue, Ingénieurs de l'Ecole des Mines de Douai ainsi que les sociétés D.S.M. Kunststoff B.V., Vetrotex International, Peugeot S.A. pour l'aide qu'ils nous ont apportée dans la réalisation de cette étude.

#### BIBLIOGRAPHIE

1. J.-P. Tancrez, F. Rietsch et J. Pabiot. *Eur. Polym. J.* **30**, 803 (1994).
2. H. G. Karian et W. J. Schreier. *ANTEC* **89**, 316 (1989).
3. E. L. Stewart et M. Bradley. *J. Plast. Films Sheet.* **7**, 355 (1991).
4. A. Larena, M. U. de la Orden et J. Martinez Urreaga. *Polym. Degrad. Stabil.* **36**, 81 (1992).
5. R. von Turkovitch et L. Erwin. *Polym. Eng. Sci.* **23**, 743 (1983).
6. J. M. Lunt et J. B. Shortall. *Plast. Rubber Process.* **5**, 37 (1980).
7. R. K. Mittal, V. B. Gupta et P. K. Sharma. *Comp. Sci. Technol.* **31**, 295 (1988).
8. V. B. Gupta, R. K. Mittal, P. K. Sharma, G. Mennig et J. Wolters. *Polym. Comp.* **10**, 8 (1989).
9. B. Fisa. *Polym. Comp.* **6**, 232 (1985).
10. R. Kamal, L. Song et P. Singh. *Polym. Comp.* **7**, 323 (1986).
11. O. L. Forgacs et S. G. Mason. *J. Coll. Sci.* **14**, 457 (1959).
12. D. E. Spahr, K. Friedrich, J. M. Schultz et R. S. Bailey. *J. Mater. Sci.* **25**, 4427 (1990).
13. J. Karger-Kocsis et K. Friedrich. *Comp. Sci. Tech.* **32**, 293 (1988).



14. M. Arroyo et F. Avalos. *Polym. Comp.* **10**, 117 (1989).
15. R. W. Richards et D. Simms. *Composites*, 214 (1971).
16. H. Renard. Thèse de Docteur-Ingénieur, Lyon (1985).
17. R. G. Raj, B. V. Kokta, F. Dembele et B. Sanschagrin. *J. appl. Polym. Sci.* **38**, 1987 (1989).
18. K. Friedrich, R. Walter, H. Voss et J. Karger-Kocsis. *Composites* **17**, 205 (1986).
19. H. Voss et K. Friedrich. *J. Mater. Sci.* **21**, 2889 (1986).
20. W. C. Filbert. *SPE J.* **25**, 65 (1969).
21. G. Kaliske et H. Seifert. *Plaste Kautsch.* **9**, 739 (1975).
22. J-P. Tancrez, F. Rietsch et J. Pabiot. *Eur. Polym. J.* **30**, 789 (1994).
23. H. L. Cox. *Br. J. appl. Phys.* **3**, 72 (1952).
24. A. Kelly et W. R. Tyson. *J. Mech. Phys. Solids* **13**, 329 (1965).
25. M. R. Pigott. *Load Bearing Fibre Composites*. Pergamon Press, Oxford (1980).
26. H. Krenchel. *Fibre Reinforcement*. Akademisk Forlag, Copenhagen (1964).
27. H. Fukuda et T. W. Chou. *Fibre Sci. Technol.* **15**, 243 (1981).
28. J. C. Halpin. *J. Compos. Mater.* **3**, 732 (1969).
29. W. H. Bowyer et M. G. Bader. *J. Mater. Sci.*, 1315 (1972).
30. M. R. Pigott. *Failure Processes in Fiber Composites* (edited by W. Brostow and R. D. Corneliussen), pp. 443–462. Hansen (1986).
31. E. Z. Stowell et T. S. Liu. *J. Mech. Phys. Solids* **9**, 242 (1961).
32. R. Hill. *Proc. R. Soc. A* **193**, 281 (1948).
33. V. D. Azzi et S. W. Tsai. *Exp. Mech.* **5**, 283 (1965).
34. J. C. Halpin et J. L. Kardos. *Polym. Eng. Sci.* **18**, 496 (1978).
35. J. K. Lee. *Polym. Eng. Sci.* **8**, 195 (1968).
36. J-P. Tancrez. Thèse de Doctorat, Université de Lille (1994).
37. M. J. Folkes. *Short Fibre Reinforced Thermoplastics*. Research Studies Press, Wiley, New York (1985).
38. F. Ramsteiner et R. Theysohn. *Composites*, 111 (1979).

**Abstract**—The aim of this work, dealing with injection moulding of short glass fibres reinforced-polypropylene matrix composites, was to investigate the interrelations which can exist between:

- some matrix and fibres-size composition and injection moulding parameters
- fibre length distributions in injection moulded test pieces
- associated mechanical characteristics.

We have shown that:

- (1) when the different unreinforced polypropylenes used as matrices have quite identical molten state viscosities, they have little influence on the glass lengths distributions in injection moulded pieces
- (2) on the opposite, the glass fibres size composition can exert a strong influence on fibres lengths distributions in injection moulded pieces: the incorporation of an aminosilane + anhydrid-maleic-polypropylene modified coupling agent in the fibres size always involves an increase of mean fibres lengths and a decrease of the fibres lengths scattering
- (3) the alteration of some injection parameters like screw speed, barrel temperature or back pressure level always involves expected changes of mean fibre lengths but:
  - when the fibres are sized without coupling agent, a fibre length reduction is always associated with a decrease of mechanical characteristics
  - on the opposite, when an aminosilane + anhydrid-maleic-polypropylene modified coupling agent is incorporated in the fibre size, the interrelation between mean fibre lengths and mechanical characteristics is far less clear. This phenomenon has been interpreted in terms of structural changes at the interface between polypropylene matrix and glass fibres.