

Valorisation durable des arbres de Noël comme fibres de renforts pour des applications biocomposites

VIRETTO Amandine¹, BRANCHERIAU Loïc¹, TAGUET Aurélie², OTAZAGHINE Belkacem², CORN Stéphane³ & BENEZET Jean-Charles²

¹UR BioWooEB, CIRAD, 34398 Montpellier, France

²PCH, IMT-Mines Alès, 30100 Alès, France

³LMGC, IMT-Mines Alès, Univ. Montpellier, CNRS, 30100 Alès, France

amandine.viretto@cirad.fr

Mots clefs : Déchets verts, Arbres de Noël, Eco-conversion, Fibres Lignocellulosiques, Biocomposites

Contexte

La prise de conscience à l'échelle mondiale, comme à l'échelle locale, de l'impact de nos sociétés et de notre consommation sur l'environnement (pollution des sols et des océans, réchauffement climatique, ...) pousse les industriels, les chercheurs et les acteurs locaux du développement économique à agir. Ainsi, les industriels cherchent à orienter leur production selon une approche plus durable afin de limiter le poids de leur activité sur notre environnement. Il en est de même pour les collectivités qui cherchent de nouvelles solutions pour diminuer l'empreinte carbone de leurs habitants. Une manière de réduire l'impact environnemental de nos activités est la réutilisation des biens et la valorisation des déchets/sous-produits. La valorisation durable des déchets solides lignocellulosiques comme fibres de renforts dans les matériaux biocomposites apparaît comme une des alternatives aux matériaux composites pétrosourcés. De nombreux travaux ont porté sur la valorisation de déchets (Viretto 2021) ou de sous-produits lignocellulosiques (Berthet 2015, Lammi 2019, David 2020) en tant que charges de renforts dans des matériaux biocomposites. Les solutions développées se sont montrées aussi performantes que des matériaux composites conventionnels tout en permettant d'appréhender les problématiques d'éco-conception et de gestion de la fin de vie des matériaux.

Chaque année en janvier, après les fêtes de fin d'année, les trottoirs de nos villes sont jonchés de sapins de Noël. Même s'il s'agit d'une pollution ponctuelle, il n'en demeure pas moins que la gestion de la fin de vie de ces arbres constitue une problématique pour les collectivités. En France, plus de six millions d'arbres sont vendus pour les fêtes (Kantar 2020), constituant une biomasse saisonnière non négligeable. Les deux essences d'arbre de Noël les plus répandues en France sont l'épicéa commun, *Picea abies* et le sapin de nordmann, *Abies nordmanniana* (Kantar 2020). Lorsque ces arbres sont collectés et « recyclés », ils sont généralement broyés pour être utilisés en paillis ou en bois énergie.

L'objectif de ce projet est de proposer une alternative de valorisation durable de cette biomasse pour des applications matériaux biocomposites entièrement biosourcés et biodégradables.

Matériel et Méthode

La biomasse étudiée est constituée d'arbres de Noël (tronc, branches et aiguilles) collectés en janvier 2021 par Alès Agglomération (département du Gard). Le biopolymère utilisé est le PLA, acide polylactique (4043D NatureWorks).

Deux lots représentatifs de l'épicéa commun et du sapin de nordmann, constitués de trois arbres chacun ont été pré-broyés puis séchés à température ambiante pendant un mois. Ils ont ensuite été broyés plus finement grâce à un broyeur à couteaux SM300 (Retsch) avec un premier

passage sur une grille à 8mm puis sur une seconde grille à 4mm. Un tamisage mécanique a été réalisé afin d'estimer la taille des fibres à l'aide d'une tamiseuse Octagon 200 cl (Endecotts).

L'analyse de composition biochimique des fibres a été réalisée suivant un protocole adapté à partir des normes ASTM (D1102-84, D1103-60, D1104-56, D1106-96). La stabilité thermique des fibres a été évaluée par analyse thermogravimétrique Setsys Evolution (Setaram) suivant un protocole de chauffe de 30°C à 900°C à 10°C/min sous atmosphère inerte. La densité vraie a été mesurée à l'aide d'un pycnomètre à gaz AccuPyc 1330 (Micrometrics) sous flux d'hélium.

Les formulations ont été réalisées au mélangeur interne R3000 (Haake PolyLab System) à 170°C et 60rpm avec un temps de séjour de 10min en faisant varier le taux de fibres jusqu'à 80wt% (en pourcentage massique). Les fibres et le PLA ont été étuvés au préalable à 60°C pendant 24h. Les formulations obtenues ont été mises en forme à l'aide d'une presse hydraulique chauffante (100T Darragon) sous forme de plaques 10x10x0.4cm³ à 170°C avec une compression progressive jusqu'à 100bars. Les plaques ont ensuite été découpées en barreaux de 1cm de large pour réaliser différents essais. La mesure de la densité vraie des biocomposites a été faite également à l'aide du pycnomètre à hélium afin de déterminer les taux de porosité. La résistance au choc a été testée par des essais Charpy sur des barreaux entaillés à l'aide d'un *Mouton Charpy* (Zwick) avec une énergie fixée à 7,5J.

Premiers Résultats

Caractérisations des fibres

Les fibres résultant des différentes étapes de broyage ont été caractérisées du point de vue de leur composition biochimique, de leur stabilité thermique, de leur densité vraie et de leur distribution en taille des particules.

L'estimation de la distribution en taille des particules a été obtenue par tamisage mécanique, enchainant six tamis de taille décroissante (3,15mm, 2mm, 1,6mm, 0,8mm, 0,4 mm et 0,25mm). La représentation graphique a démontré une allure de gaussienne centrée autour de 0,8mm pour les deux types de fibres. Toutefois, nous pouvons souligner une légère différence de répartition en taille : les fibres de Nordmann sont plus nombreuses dans les classes de tailles supérieures à 0,8mm (wt%Nordmann_{2mm} = 12,97 vs wt%Epicea_{2mm} = 5,54) alors que les fibres d'Epicea sont plus nombreuses dans les classes de tailles inférieures à 0,8mm (wt%Epicea_{<0.25mm} = 10,59 vs wt%Nordmann_{<0.25mm} = 7,31).

L'analyse de la composition biochimique des fibres a été réalisée par extractions successives dont les résultats obtenus sont résumés dans Tab. 1. Des différences sont observées entre les deux types de fibres notamment au niveau des taux de lignine et de cellulose. Le taux de lignine est plus important pour les fibres de Nordmann (%Lignine_{Nordmann} = 38 vs %Lignine_{Epicea} = 25) alors que le taux de cellulose est inversement plus important pour les fibres d'Epicea (%Cellulose_{Epicea} = 38 vs %Cellulose_{Nordmann} = 25). Un taux de lignine plus important pour les fibres de Nordmann pourrait expliquer les tailles plus importantes observées au tamisage, étant donné que la lignine est reconnue comme étant le composé le plus récalcitrant de la paroi cellulaire végétale et donc, le plus résistant à la dégradation chimique, biologique et mécanique (Barakat 2013).

La stabilité thermique des fibres a été évaluée par ATG et a montré peu de différences entre les fibres d'Epicea et de Nordmann. Il est important de souligner que les températures de début de dégradation (T_{onset Epicea} = 189°C et T_{onset Nordmann} = 202°C) sont supérieures à la température de mise en œuvre (T_{melt} = 170°C).

Les densités vraies mesurées ne présentent pas de différences significatives entre les deux types de fibres ($d_{\text{Epicea}} = 1,287 \pm 0,003$ et $d_{\text{Nordmann}} = 1,275 \pm 0,007$).

Tab. 1 : Caractéristiques physico-chimiques des fibres d'Epicea et de Nordmann obtenues après broyage

	Composition biochimique					Stabilité thermique		Densité vraie (3 mesures)
	Extract. (%)	Lignine (%)	Hémicell. (%)	Cellulose (%)	Cendres (%)	T _{onset} (°C)	T _{deg max} (°C)	
Epicea	13	25	20	38	4	189	339	1,287 ± 0,003
Nordmann	13	38	21	25	3	202	340	1,275 ± 0,007

Formulations des biocomposites PLA-fibres de Nordmann

Un taux croissant de fibres de Nordmann a été ajouté progressivement au PLA en voie fondue jusqu'à atteindre la limite de processabilité. A 80wt% de fibres, il n'était plus possible d'obtenir un compound présentant suffisamment de matrice polymère pour assurer la cohésion du système. Les formulations réalisées sont répertoriées dans Tab. 2. Des plaques 10x10x0.4 cm³ ont été obtenues par thermocompression pour chacune des formulations, puis découpées en barreaux en fonction des essais de caractérisations.

Caractérisations des biocomposites PLA-fibres de Nordmann

Les biocomposites ont été caractérisés du point de vue de leur densité afin d'évaluer leur porosité. Le taux de porosité totale est important autour de 20 – 30 % comme nous pouvons le voir dans Tab. 2. Il est intéressant de souligner que le taux de porosité fermée mesuré est très faible lorsqu'il n'est pas nul. Ceci n'est pas aberrant étant donné que les fibres sont majoritaires dans le système, formant un réseau de fibres laissant une part importante de porosités ouvertes, le PLA n'est pas présent en quantité suffisante pour assurer son rôle de matrice et d'imprégnation des fibres.

La résistance au choc a été évaluée par des essais Charpy sur des barreaux entaillés qui permettent de déterminer l'énergie consommée par la rupture d'un échantillon du matériau considéré. Les énergies mesurées pour les différentes formulations sont présentées dans Tab. 2. Nous observons une diminution de la résistance au choc lorsque le taux de fibres augmente. Il peut également être souligné que la valeur de l'énergie absorbée lors du choc se stabilise autour de 1,8 kJ/m².

Tab. 2 : Densités et résistance au choc des biocomposites PLA-fibres de Nordmann

Formulations	Densités et Porosités					Résistance au choc
	Densité apparente	Densité vraie	Porosité Totale (%)	Porosité Fermée (%)	Porosité ouverte (%)	a _{cN} (kJ/m ²) (5 mesures)
50PLA/50Nordmann	1,0119	1,2387	20,7	2,4	20,7	2,5 ± 0,5
37PLA/63Nordmann	1,0925	1,2518	14,2	1,5	12,7	2,1 ± 0,4
30PLA/70Nordmann	0,8758	1,2875	30,7	0	30,7	1,8 ± 0,1

25PLA/75Nordmann	1,0136	1,2796	20,2	0	20,2	1,9 ± 0,1
20PLA/80Nordmann	0,9263	1,2730	27,2	0	27,2	1,7 ± 0,1

Conclusions et perspectives

Des premiers résultats intéressants ont été obtenus dans le cadre de cette étude préliminaire sur la valorisation des arbres de Noël comme fibres de renforts pour des applications biocomposites. Des matériaux cohésifs ont été obtenus jusqu'à des taux de fibres de 80% dont les propriétés mécaniques sont intéressantes pour des applications matériaux à faibles exigences. A ce stade, beaucoup de questions ont été soulevées et seulement peu de réponses ont pu être apportées. Tout un travail reste donc à mener pour mieux comprendre et valoriser ces matériaux. Nous sommes donc intéressés à poursuivre ce travail dans le cadre d'un projet collaboratif de plus grande envergure.

Remerciements

Ces premiers résultats ont été obtenus au cours d'un exercice pédagogique avec des étudiants de 2^{ème} année de l'IMT-Mines Alès, Salma Daoufa et Ryan Jay Carino. De plus, les auteurs souhaitent remercier Alès Agglomération qui nous a fourni la matière première et qui est fortement intéressée pour poursuivre son implication dans le cadre d'un projet collaboratif.

Références

- Barakat, A., de Vries, H., Rouau, X., (2013). Dry fractionation process as an important step in current and future lignocellulose biorefineries: A review, *Bioresource Technology*, 134, 362–373.
- Berthet M.A., Angellier-Coussy H., Chea V., Guillard V., Gastaldi E., Gontard N. (2015) Sustainable food packaging: Valorising wheat straw fibres for tuning PHBV-based composites properties, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 72, 139-147.
- David G., Vannini M., Sisti L., Marchese P., Celli A., Gontard N., Angellier-Coussy H. (2020) Eco-conversion of two winery lignocellulosic wastes into fillers for biocomposites: Vine shoots and wine pomaces, *Polymers*, 12(7), 1530.
- Kantar (2020) « L'achat de sapin pour les Fêtes de Noël 2019 », étude Kantar réalisée en avril 2020 pour FranceAgriMer et Val'hor.
- Lammi S., Gastaldi E., Gaubiac F., Angellier-Coussy H. (2019) How olive pomace can be valorized as fillers to tune the biodegradation of PHBV based composites, *Polymer Degradation and Stability*, 166, 325-333.
- Viretto A., Gontard N., Angellier-Coussy H. (2021) Urban parks and gardens green waste: A valuable resource for the production of fillers for biocomposites applications, *Waste Management*, 120, 538-548.