
Valorisation de coproduits agricoles dans des panneaux composites biosourcés

Angélique Mahieu¹, Sébastien Alix², Nathalie Leblanc¹

1. Unité Agri'terr, UniLaSalle

3 rue du Tronquet, 76130 Mont-Saint-Aignan, France
angelique.mahieu@unilasalle.fr

2. LISM/IFTS Université de Reims Champagne-Ardenne

7 boulevard Jean Delautre, BP 50028, 08005 Charleville-Mézières, France

RÉSUMÉ. Dans le but de valoriser des coproduits de l'agriculture et de préserver les ressources en bois, des panneaux composites de particules agglomérées ont été élaborés à partir de deux résidus agricoles : les anas de lin et l'écorce de tournesol. Les panneaux ont été mis en œuvre par deux procédés : avec l'ajout d'une colle synthétique classique (urée-formaldéhyde) ou sans ajout d'aucun liant extérieur. Les matériaux obtenus présentent un comportement mécanique variable face au mode de mise en forme suivant qu'ils contiennent en majorité l'un ou l'autre des coproduits agricoles. Le mode de mise en œuvre de ce type de panneaux composites doit donc être adapté en fonction de la nature de l'agroressource utilisée. Tous les panneaux composites étudiés présentent de bonnes propriétés d'isolation thermique. Un panneau aggloméré 100 % biosourcé présentant une bonne cohésion est obtenu à partir des anas de lin.

ABSTRACT. In the aim of agricultural byproduct valorization and wood resource preservation, composites particleboards have been elaborated from two agricultural residues: flax shives and sunflower bark. The particleboards have been processed by two different ways: with addition of classical synthetic glue (urea-formaldehyde) or without any extern binder. The boards show variable mechanical responses to the process (with or without glue) depending on their flax shives or sunflower bark proportions. The process and the binder used must be adapted to the type of agroresource used to perform these particleboards. All the studied composite materials show good thermal insulation properties. A 100 % biobased particleboard with good cohesion has been obtained from flax shives.

MOTS-CLÉS : valorisation d'agroressources renouvelables, anas de lin, panneaux composites thermopressés, écorce de tournesol, propriétés mécaniques et thermiques, résistance à l'eau.

KEYWORDS: renewable agroresource valorisation, flax shives, thermopressed composites boards, sunflower bark, thermal and mechanical properties, water resistance.

DOI:10.3166/RCMA.26.313-329 © Lavoisier 2016

Extended abstract

Nowadays, because the timber market is becoming more and more competitive, the particleboard manufacturers are looking for new sources of vegetal raw material supplier. At the same time, the use of healthier, safer and more environmental friendly materials becomes a priority in the building sector. In this context, some agricultural byproducts as annual plant stems can be an interesting alternative because they are abundant, renewable and safe. Moreover their porous structure gives them interesting properties as building materials such as lightness and thermal insulation capacity. There have been many studies on different agroresources in order to substitute wood in particleboards. For example rice, rape and wheat straw, coconut husk and bagasse, kenaf, sisal, flax and hemp shives, sunflower and corn stalks can be cited. Usually the chosen agroresource corresponds to the locally available resource. In order to diversify raw material supply sources of a particleboard manufacturer located in the northwest of France, two agricultural byproducts have been studied: flax shives and sunflower bark. By diversifying raw materials, each region could possibly use its most available agroresource. Moreover the use of agricultural byproducts in the manufacturing of mass consumer materials for the building or the furnishing would allow to bring a new source of income to the farmers who produce them.

The particleboards are made at a laboratory scale by thermocompression of the raw particles with a target density of 500 kg/m³. Flax shives and sunflower bark are blended in various proportions. The vegetal particles are bonded by two methods:

- with a classical synthetic binder (urea formaldehyde resin) at 20% w/w.
- without addition of any binder. In that case water is sprayed on the vegetal particles before the forming process at 80% w/w. The lignocellulosic compounds contained in the agroresources can act as binders.

Due to their morphology and composition, flax shives and sunflower bark do not present the same behavior according to the type of binder and process used to prepare the corresponding particleboards. With UF resin, the panel based on sunflower bark presents the better bending strength with 3.1 MPa. Without binder addition, the better result is obtained for the flax shives panel with 3.8 MPa and the bending strength is proportional to the flax shives rate. So the type of binder used should be adapted to the chosen agroresource. Because all panels have the same density (500 kg.m⁻³), no significant difference has been observed between the thermal conductivities of the studied panels. They all presented good thermal insulation properties with a conductivity that goes between 0.073 and 0.078 W.m⁻¹.K⁻¹. The type of binder used has a large influence on the panel behavior after water immersion. Indeed the synthetic binder protects the vegetal particles from water absorption. The particleboards processed without binder addition swell much more than these containing UF resin. The process without binder addition allows to obtain totally biosourced particleboards with flax shives but their water resistance must be improved. By optimizing the formulation and the process, both agroresources can be used as particleboards in furniture or door panel used in a dry environment.

1. Introduction

Le marché du bois étant de plus en plus concurrentiel, les fabricants de panneaux de particules sont à la recherche de nouvelles sources d'approvisionnement en matières premières. Dans un même temps, le développement de matériaux respectueux de la santé humaine et de l'environnement constitue un enjeu prioritaire pour le domaine des matériaux du bâtiment. Dans ce contexte, les coproduits de l'agriculture, comme les tiges de plantes annuelles, constituent une alternative intéressante puisque ces ressources sont abondantes, renouvelables et sans danger pour la santé humaine. Elles présentent en outre, de par leur structure poreuse, des propriétés très intéressantes pour les matériaux du bâtiment, auxquelles elles peuvent apporter une bonne isolation thermique (Mahieu *et al.*, 2015). Les parois végétales des tiges de plantes cultivées ont également montré un intérêt du point de vue de leur résistance mécanique qui est comparable à celle de certaines espèces de bois (Wu *et al.*, 2010). De nombreuses études portent sur l'utilisation de résidus de l'agriculture comme matières premières pour la réalisation de panneaux composites.

Au cours du projet industriel Dipp (*Development of Innovative Particleboard Panels*) regroupant 25 partenaires européens, différents matériaux naturels recyclés ont été utilisés pour élaborer des panneaux pour une application ameublement (Balducci *et al.*, 2008). Parmi plusieurs fibres végétales testées dans le cadre de ce programme (chanvre, kenaf, tournesol, maïs, miscanthus, colza, peuplier, déchets de bois), beaucoup ont montré de sérieuses limites mécaniques lorsqu'elles constituaient le seul composant du panneau mais les panneaux composites tricouches se sont avérés plus intéressants. Parmi la littérature scientifique on trouve également des études sur des panneaux à base de diverses agroressources parmi lesquelles la paille de riz (Wei *et al.*, 2015), la paille de blé (Halvarsson *et al.*, 2009), la moelle de maïs (Wang et Sun, 2002), la tige de tournesol (Mati-Baouche *et al.*, 2014), la noix de coco, la bagasse (Panyakaew et Fotios, 2011) et la fibre de kenaf (Widyorini *et al.*, 2005). L'agroressource utilisée correspond généralement aux ressources disponibles localement. Différents panneaux non issus du bois présentent des propriétés suffisantes pour permettre leur utilisation comme matériaux d'ameublement par exemple (Klimek *et al.*, 2016).

Dans le but de diversifier les sources d'approvisionnement d'un industriel fabricant de panneaux agglomérés à base d'anas de lin, l'écorce de tournesol a été étudiée selon le même protocole de fabrication des panneaux agglomérés, c'est-à-dire liés par de la colle synthétique (urée-formaldéhyde, UF). Ce type de liant est très utilisé par l'industrie mais ne garantit pas l'innocuité pour la santé humaine et l'environnement en raison de l'émission de composés organiques volatiles toxiques. Différents composés biosourcés sont étudiés pour leur rôle potentiel de liant dans les panneaux de particules agglomérés. C'est le cas de la lignine (Ghaffar et Fan, 2014) ou du lignosulfonate (Privas et Navard, 2013), des protéines avec notamment le gluten (Khosravi *et al.*, 2011) ou encore de la gomme arabique (Abuarra *et al.*, 2014). Les tanins sont étudiés pour leur capacité à modifier la résine UF, donnant une colle partiellement biosourcée (Pizzi, 2006). Ce type de colle a notamment été utilisé avec succès pour lier des particules d'écorce de tournesol (Khrstova *et al.*,

1998). Une autre alternative à l'ajout de liant dans les panneaux de particules est l'utilisation d'un procédé de mise en œuvre qui permet d'obtenir l'adhésion entre les particules végétales sans ajout d'aucun autre composé. Cette technique tire parti de la composition interne à la matière végétale, riche en composés lignocellulosiques qui peuvent eux-mêmes créer l'adhésion entre les particules. Pour cela les composés doivent être extraits de la matière végétale par la vapeur et activés, notamment par la température. D'après la littérature, deux procédés permettent d'atteindre cet objectif : la thermocompression sur la matière végétale bien humidifiée (Halvarsson *et al.*, 2009) ou l'injection de vapeur dans le moule lors du pressage (Xu *et al.*, 2003). Le principal inconvénient de ces techniques est le temps de pressage qui peut être long mais cela permet d'aboutir à des panneaux de particules agglomérés 100 % biosourcés et composés uniquement de matière végétale ce qui peut limiter les coûts.

Dans ces travaux, nous étudions les propriétés des panneaux composites agglomérés d'anas de lin et d'écorce de tournesol, et les comparons à celles des panneaux à particules de bois classiques. Les anas de lin et l'écorce de tournesol sont des coproduits agricoles peu, voire non valorisés, à l'heure actuelle. Ils sont issus de cultures abondantes en France. Leur utilisation dans la fabrication de matériaux de grande consommation pour le bâtiment ou l'ameublement permettrait d'apporter une nouvelle source de revenu aux agriculteurs qui les produisent. L'utilisation de différentes agroressources dans la fabrication des panneaux de particules permettra de diversifier les sources d'approvisionnement et d'adapter le choix de la matière première en fonction des ressources disponibles localement dans différentes régions. Nos panneaux seront soit liés avec de la colle synthétique UF (20 % massique, proportion utilisée dans les panneaux industriels), soit agglomérés par thermocompression sans ajout de liant supplémentaire (de l'eau est vaporisée sur les particules pour permettre l'extraction des composés lignocellulosiques). Un matériau 100 % biosourcé est ainsi mis au point. Nous verrons comment les propriétés de ces panneaux varient en fonction de l'agroressource utilisée et du mode de mise en œuvre. Les matières premières végétales et les différents panneaux composites ont été caractérisés pour déterminer et comparer leurs propriétés mécaniques, thermiques et de résistance à l'eau.

2. Matériaux et protocoles expérimentaux

Les anas de lin sont des morceaux de bois séparés de la tige de la plante lors de l'étape de teillage permettant d'en retirer les fibres. Ce sont des coproduits de l'industrie des fibres de lin textiles. Ces coproduits sont actuellement utilisés en majorité pour la fabrication de panneaux de particules, comme litière animale ou comme couvre-sol en horticulture. Les anas de lin utilisés sont fournis par l'industriel à l'initiative de ce projet. Ils sont séparés en deux lots de granulométries différentes : un lot de particules appelées « fines » et un lot de particules plus grossières, qui sont issus d'un tamisage industriel. La répartition granulométrique de ces lots est présentée dans la partie « résultats ».

L'écorce de tournesol est un coproduit de l'industrie oléagineuse. Elle est issue du broyage des tiges de tournesol et de la séparation de la moelle contenue

initialement dans les tiges. Elle n'est pas valorisée à l'heure actuelle, les cannes de tournesol sont laissées aux champs. L'écorce de tournesol utilisée est fournie par un agriculteur de la région Centre de la France. Elle a été broyée par l'ensilage sur champs. Elle est rebroyée en laboratoire et tamisée pour séparer deux lots : les particules « fines » tamisées entre 0,5 et 2 mm et les « grosses » entre 2 et 5 mm.

La figure 1 présente une illustration des deux types de particules végétales étudiées dans ces travaux. On remarque quelques résidus de moelle dans l'écorce de tournesol ainsi que quelques graines de lin dans les anas de lin.

La colle synthétique utilisée est une résine urée-formol commerciale de classe E1 pour le dégagement de formaldéhyde (teneur ≤ 8 mg/100 g de panneau sec).



Figure 1. Particules végétales utilisées pour la réalisation de panneaux agglomérés, à gauche l'écorce de tournesol, à droite les anas de lin



Figure 2. Exemples de panneaux obtenus, à base d'écorces de tournesol à gauche, d'anas de lin à droite

Des panneaux composites tricouches de $150 \times 150 \times 15 \text{ mm}^3$ (figure 2) sont réalisés par thermocompression (presse SCAMEX) à 190°C dans un moule fait sur-mesure. Les particules d'agroressources sont soit mélangées avec de la colle UF (20 % massiques (m/m)) et subissent alors 10 min de pressage pour la réticulation de la colle. Soit elles sont vaporisées d'eau (80 % m/m), dans ce cas 45 min de pressage

sont nécessaires à l'évaporation de l'eau et à la création de liaisons qui vont donner la cohésion au matériau. Les panneaux tricouches sont composés de particules fines pour les couches supérieures et inférieures (2 x 1/6 en masse) et de grosses particules au centre (2/3 en masse) pour se rapprocher au plus près de la façon dont est fabriqué ce type de panneau industriellement. Différents ratios lin/tournesol sont testés. La quantité de matière disposée dans le moule est déterminée par rapport au volume final du panneau pour atteindre une densité cible de 500 kg/m³ après compression (des cales entre le piston et le moule imposent l'épaisseur finale du panneau). Les panneaux obtenus sont conditionnés à environ 50 % d'humidité relative et à température ambiante avant analyse.

Des observations au microscope électronique à balayage sont réalisées sur les particules végétales pour comparer leurs structures internes et visualiser leur porosité. Ces observations sont réalisées sur un MEB Hitachi TM 3000, les coupes de matière végétale sont observées sans coloration et sous vide.

L'analyse thermogravimétrique (ATG) est une technique d'analyse de la stabilité thermique des composés étudiés car elle permet le suivi de la perte de masse d'un échantillon en fonction de la température ou du temps sous une atmosphère contrôlée. Dans cette étude, les thermogrammes sont réalisés à l'aide d'une thermobalance Netzch TG 209 F1. La masse initiale des échantillons se situe entre 8 et 12 mg. Ils sont placés dans des creusets en alumine. Les mesures sont réalisées entre 30 °C et 800 °C avec une vitesse de chauffage de 10 °K/min sous une atmosphère inerte d'azote.

Les propriétés mécaniques ont été mesurées sur l'ensemble des panneaux par la méthode de flexion 3 points (TA.XTplus texture analyser) avec un capteur de force de 500 N, sur des échantillons de 150 x 30 x 15 mm³, à 6 mm.min⁻¹, à humidité et température ambiantes. Ces essais déterminent l'aptitude à la déformation d'un matériau sur deux appuis avec une application de l'effort à mi-distance. Les mesures ont été répétées 5 fois pour chaque panneau. La contrainte de rupture en flexion est calculée par la relation suivante et reportée en fonction de la déformation, la contrainte maximale à la rupture, notée MOR (modulus of rupture) est relevée.

$$\sigma = 3 F x L / (2 x l x e^2)$$

F : la charge totale appliquée à la rupture en flexion (en N)

L : la distance en mm entre les axes des appuis cylindriques (100 mm)

l : la largeur de l'éprouvette (en mm)

e : l'épaisseur de l'éprouvette (en mm).

Le module d'élasticité (MOR) est déterminé sur la partie linéaire de la courbe (entre 10 et 40 % de la contrainte maximale) à l'aide de la formule suivante :

$$E = L^3 x \Delta F / (4 x l x e^3 x \Delta f)$$

f : flèche impliquée par le déplacement (en mm).

La conductivité thermique (λ en $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$) caractérise le flux de chaleur traversant le matériau lorsque des températures différentes sont imposées sur ses deux faces. Elle a été mesurée pour les différents panneaux sur un appareil HFM (*Heat Flow Meter*) 436 de Netzsch à 20 °C avec un gradient de température entre les faces supérieures et inférieures de 20 °C. Les résultats présentés sont une moyenne de 4 mesures par panneau.

La norme NF EN 15197 définit les spécifications à respecter pour des panneaux de lin à usages généraux. Parmi celles-ci une limite est imposée par rapport au gonflement des matériaux après immersion dans l'eau. Pour caractériser ce gonflement sur nos matériaux, trois échantillons de 50 x 50 x 15 mm³ de chaque panneau ont été immergés dans l'eau pendant 48 h. L'évolution de leurs dimensions a été mesurée permettant de calculer la variation totale de volume des échantillons.

3. Résultats et discussion

3.1. Caractérisation des agroressources

Le tamisage des anas de lin pour séparer les deux fractions de granulométries différentes est délicat car les particules présentent des épaisseurs faibles. La longueur des particules récupérées peut donc être supérieure à la maille du tamis. Ceci n'est pas le cas avec les écorces de tournesol qui sont plus épaisses et donc plus faciles à séparer par tamisage. Le tableau 1 regroupe l'ensemble des caractéristiques morphologiques des deux agroressources étudiées et la figure 3 montre la répartition granulométrique des particules dans les deux lots de tailles différentes pour les deux agroressources. Il est à noter qu'une faible proportion de moelle, environ 4 % m/m, est présente dans les écorces de tournesol. Il s'agit essentiellement de résidus de moelle restés collés sur les écorces. Cela peut avoir un impact sur les propriétés des panneaux agglomérés, la moelle étant beaucoup moins dense que l'écorce, moins résistante mécaniquement, plus absorbante et plus isolante (Sun *et al.*, 2013).

Tableau 1. Caractéristiques des deux agroressources

Caractéristiques	Anas de lin	Écorces de tournesol
épaisseur	entre 0,1 et 0,4 mm	entre 0,3 et 3,5 mm
largeur	entre 0,2 et 3,2 mm	entre 0,4 et 6,0 mm
souplesse	flexible	Dur et cassant
densité en vrac	100 ± 4 kg/m ³	180 ± 5 kg/m ³
densité lot 0,5-2 mm	107 ± 3 kg/m ³	175 ± 2 kg/m ³
densité lot 2-5 mm	96 ± 5 kg/m ³	186 ± 6 kg/m ³
Conductivité thermique à 20 °C	42 ± 4 mW.m ⁻¹ .K ⁻¹	51 ± 5 mW.m ⁻¹ .K ⁻¹

La granulométrie des agroressources est déterminée par tamisage sur une tamiseuse vibrante Retsch à puissance maximale pendant 10 minutes. Différents tamis sont utilisés avec des ouvertures de 200 μm , 500 μm , 710 μm , 1 mm, 2 mm et 4 mm. Les différentes fractions séparées sont pesées pour déterminer la proportion massique de chacune.

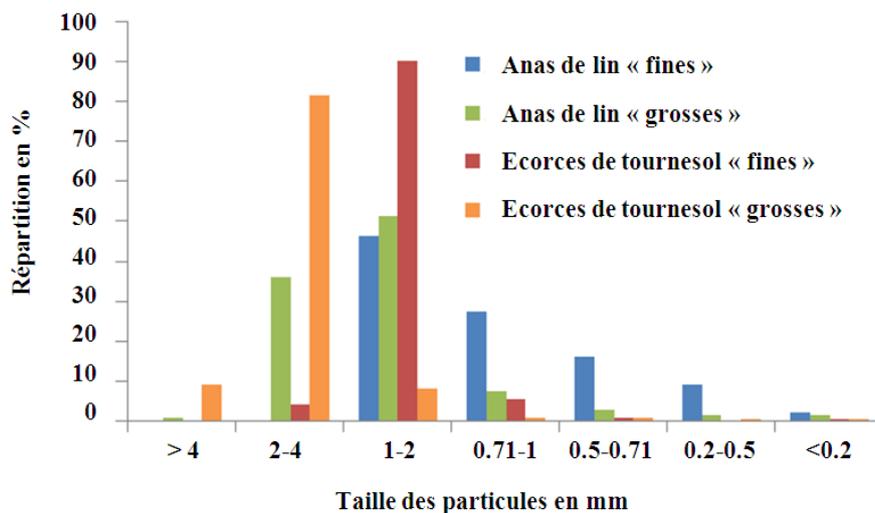


Figure 3. Répartition granulométrique des lots de particules

Ce graphique met en évidence la différence de répartition granulométrique des particules au sein d'un lot identifié de même taille (appelés « fines » ou « grosses ») suivant qu'il s'agit d'anas de lin ou d'écorce de tournesol. Les anas de lin à particules « fines » sont plus fins que l'écorce de tournesol du même lot avec la présence de particules de taille inférieure à 0,5 mm et environ 50 % de particules entre 1 et 2 mm alors que l'écorce de tournesol « fines » présente 90 % de particules entre 1 et 2 mm. De même les anas de lin à particules dites « grosses » sont plus fins que l'écorce de tournesol « grosses ». En effet tandis que l'écorce de tournesol « grosses » contient essentiellement des particules entre 2 et 4 mm (80 %), ce qui correspond bien au tamisage réalisé pour la séparation des lots, les anas de lin (tamisés industriellement pour la séparation des lots) contiennent seulement 40 % de particules entre 2 et 4 mm et 60 % de particules passant sous le tamis de 2 mm. Cette différence de granulométrie entre les deux agroressources pourra avoir un impact sur l'effet de l'adhésion suivant que les particules sont agglomérées avec de la colle synthétique ou par évaporation d'eau.

Grâce à leur faible densité et leur grande porosité, les agroressources étudiées présentent une conductivité thermique très faible. La différence de densité mesurée entre les anas de lin et l'écorce de tournesol explique la différence mesurée sur la conductivité thermique. Plus la densité d'un matériau est faible plus son pouvoir

isolant est élevé. Avec des conductivités thermiques en vrac à 20 °C respectives de 42 et 51 mW.m⁻¹.K⁻¹ (tableau 1) les anas de lin et l'écorce de tournesol sont de bons candidats pour la réalisation de matériaux destinés à l'isolation dans le bâtiment.

La structure alvéolaire des anas de lin et de l'écorce de tournesol est observée par microscopie électronique à balayage (figure 4). Les alvéoles semblent moins nombreuses dans l'écorce de tournesol avec une plus grande variation de dimensions et des parois plus épaisses, ce qui explique la densité plus élevée de cette agroressource par rapport aux anas de lin. Ces derniers présentent des alvéoles plus fines et plus homogènes en dimensions.

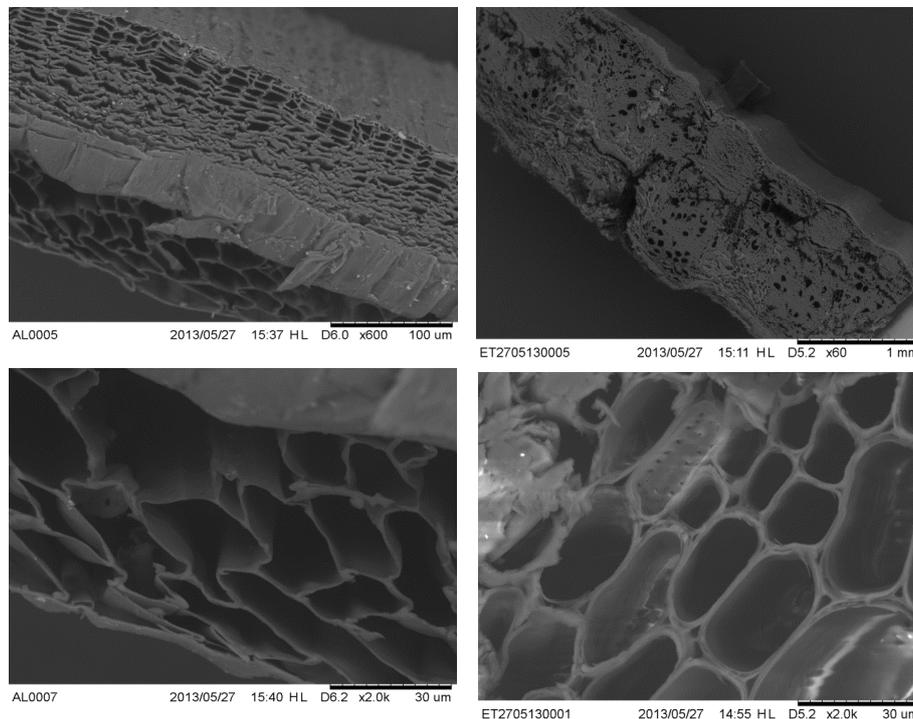


Figure 4. Micrographes d'anas de lin (à gauche) et d'écorces de tournesol (à droite)

Pour vérifier la résistance thermique des agroressources, leur stabilité thermique est analysée à l'aide d'une balance thermogravimétrique. La perte de masse de la matière est suivie en fonction de l'augmentation de la température et permet de déterminer la température de dégradation des matières végétales. La figure 5 regroupe les thermogrammes des différentes agroressources étudiées. Deux sauts principaux sont observés sur les courbes, correspondant aux dégradations de différents composés des matériaux étudiés :

– La première perte de masse se produisant à une température inférieure à 100 °C correspond au départ de l'eau libre contenue dans les échantillons. Nous présentons la moelle de tournesol en plus de l'écorce et des anas pour comparaison. Les anas de lin et l'écorce de tournesol, conservés à environ 50 % HR perdent 6 à 7 % d'eau alors que la moelle perd 14 % d'eau environ. Ceci est dû à la structure plus alvéolée de la moelle qui permet de retenir plus d'humidité. Les résidus de moelle contenus dans l'écorce de tournesol utilisée auront donc un comportement différent des particules d'écorce lors de la mise en œuvre des panneaux.

– Une deuxième perte de masse démarre vers 220 °C et s'accélère vers 300 °C jusqu'à 350 °C. Elle correspond à la dégradation de l'hémicellulose, cellulose et lignine, composés principaux de la matière végétale. On n'observe pas de différence significative entre les températures de dégradation principales de l'écorce de tournesol et des anas de lin. Leurs compositions chimiques sont donc proches mais cette technique ne permet pas de différencier les composés entre eux.

Les températures de dégradation thermique se situent au-delà des 200 °C pour les trois matières, donc la mise en œuvre à 190 °C n'entraîne pas de dégradation thermique des agroressources.

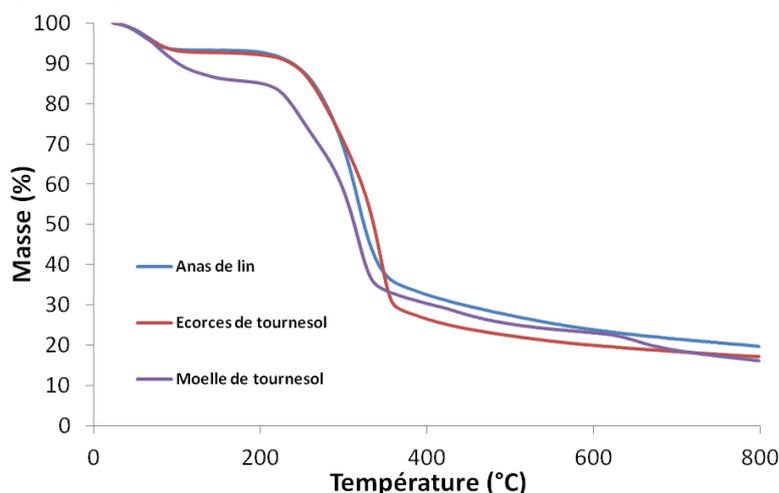


Figure 5. Thermogrammes des agroressources étudiées

3.2. Propriétés mécaniques des panneaux agglomérés

Les résultats des tests de flexion trois points sont présentés sur la figure 6. Les panneaux d'agroressources à 500 kg.m⁻³ montrent une évolution intéressante des propriétés mécaniques en fonction de la nature de l'agroressource et du type de liant. La contrainte maximale à la rupture (MOR) et le module d'élasticité (MOE) varient en fonction des proportions lin/tournesol et l'évolution du comportement mécanique des panneaux en fonction de cette composition est différente selon que les panneaux sont mis en forme avec de la colle synthétique ou sans ajout de liant.

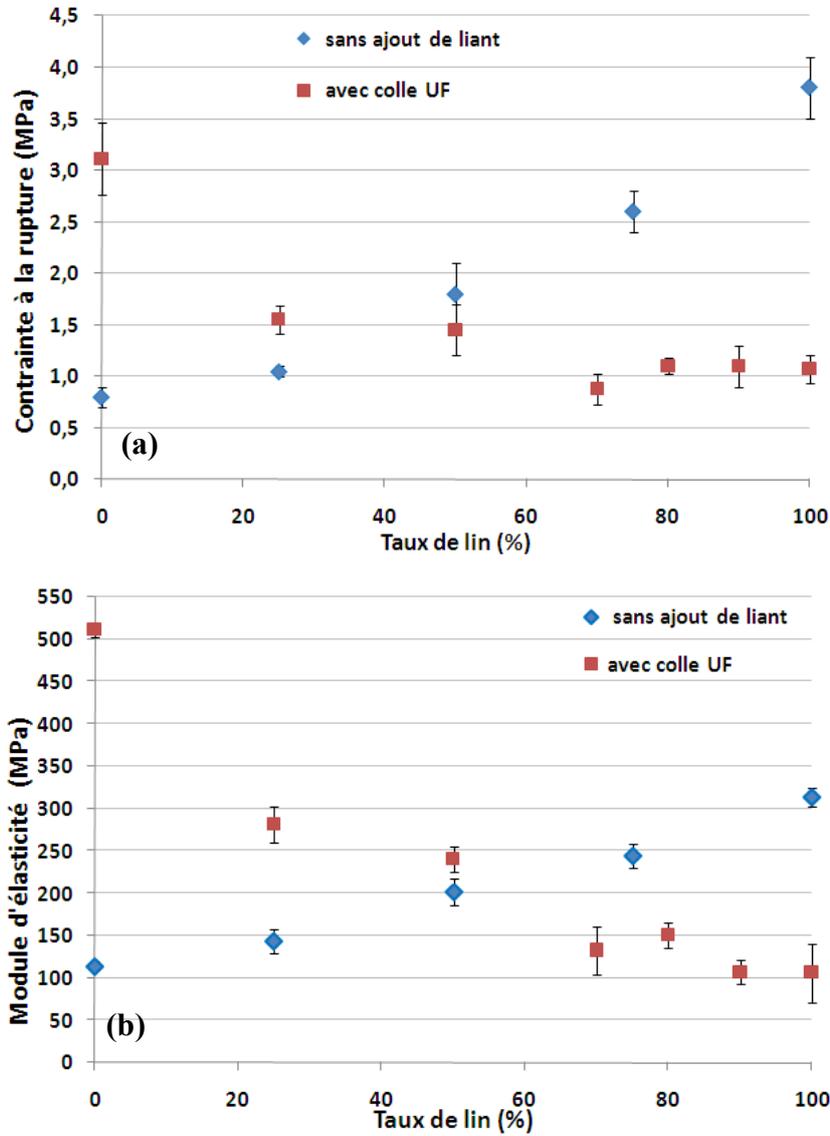


Figure 6. Propriétés mécaniques des panneaux en fonction de leur formulation : contrainte maximale à la rupture (a) et module d'élasticité (b)

Dans le cas des panneaux liés avec de la colle UF, plus la formulation contient d'écorce de tournesol, plus les panneaux sont résistants mécaniquement, jusqu'à environ 70 % de lin, au-delà de quoi les propriétés des panneaux stagnent à des

valeurs faibles (environ 1 MPa en contrainte maximale et 100 à 150 MPa en module d'élasticité). Avec la colle UF le panneau le plus résistant est donc celui composé de 100 % d'écorce de tournesol, avec un MOR d'environ 3,1 MPa et un MOE d'environ 500 MPa. Au contraire dans le cas des panneaux sans ajout de colle, les matériaux sont d'autant plus résistants qu'ils contiennent plus d'anas de lin. Les propriétés mécaniques mesurées semblent proportionnelles au taux de lin dans le panneau. Le panneau sans colle synthétique le plus résistant est donc celui composé de 100 % d'anas de lin avec un MOR d'environ 3,8 MPa et un MOE d'environ 320 MPa. Des propriétés comparables ont été obtenues sur des panneaux à base de noix de coco ou de bagasse (Panyakaew et Fotios, 2011). Dans le cas présenté ici, les panneaux contenant le moins d'anas de lin présentent des propriétés mécaniques faibles, proches de celles obtenues pour les panneaux contenant beaucoup d'écorce de tournesol liés avec la colle UF.

Ce comportement opposé des différentes agroressources en fonction du type de mise en œuvre des panneaux peut être expliqué par la morphologie des agroressources. L'écorce de tournesol est plus dure, plus épaisse et plus dense que les anas de lin qui sont fins et souples. De plus l'écorce de tournesol étant plus dense que les anas de lin, elle présente moins de volume à masse égale lors de la fabrication des panneaux. La quantité de colle UF est constante à 20 % m/m. Proportionnellement à la surface des particules végétales dans un panneau, il y a donc plus de colle en surface des particules d'écorce de tournesol qu'en surface des anas de lin. Cela peut expliquer que les panneaux de tournesol présentent de meilleures propriétés mécaniques que les panneaux de lin avec la colle UF.

Au contraire, dans le cas de la mise en œuvre des panneaux sans ajout de colle, ce sont les composés hydrosolubles contenus dans les agroressources qui permettent l'adhésion des particules entre elles. Ces composés sont extraits par la vapeur dégagée lors de la thermocompression des agroressources auxquelles 80 % m/m d'eau a été ajoutée. Dans ce cas la surface de contact entre les particules est essentielle (Kurokochi et Sato, 2015). Les anas de lin, de densité inférieure à celle de l'écorce de tournesol, présentent plus de volume de matière dans les panneaux mis en forme à densité finale constante, donc une plus grande surface de contact. Cela peut expliquer les meilleures propriétés mécaniques des panneaux d'anas de lin sans colle. La composition chimique des agroressources est également un facteur important dans le cas de ce type de mise en œuvre. Les anas de lin peuvent contenir une proportion plus importante de composés responsables de l'adhésion que l'écorce de tournesol. Différentes études s'intéressent à des panneaux de particules sans ajout de liant (Pintiaux *et al.*, 2015) et citent notamment la plastification de la lignine (Bouajila *et al.*, 2005 ; Sun *et al.*, 2014) et la création de liaisons hydrogène entre molécules d'hémicellulose de particules en contact (Hubbe, 2006 ; Widyorini *et al.*, 2005), comme causes de l'adhésion. Cette étude devra être complétée par l'analyse précise des composés extractibles de nos agroressources.

Le type de mise en œuvre utilisé doit donc être adapté à l'agroressource choisie. Les anas de lin permettent d'obtenir des panneaux de particules 100 % biosourcés qui présentent une résistance mécanique aussi bonne que celle des panneaux d'écorce de tournesol liés par une colle synthétique, à l'échelle laboratoire. Le

panneau 100 % anas de lin sans ajout de liant donne la meilleure contrainte maximale à la rupture avec 3,8 MPa, tandis que le module d'élasticité le plus élevé est obtenu pour le panneau 100 % écorce de tournesol lié par la colle UF avec 500 MPa. L'écorce de tournesol ne peut pas être liée efficacement par un procédé sans ajout de liant mais un liant d'origine naturelle pourrait être recherché pour obtenir des panneaux 100 % biosourcés à partir d'écorce de tournesol. Les deux coproduits agricoles testés permettent d'obtenir, en fonction du liant utilisé, des panneaux de particules agglomérés présentant une cohésion suffisante.

3.3. Propriétés thermiques des panneaux

La figure 7 présente la conductivité thermique à 20 °C de chacun des panneaux étudiés. Les variations sont faibles d'un matériau à un autre. La conductivité thermique est comprise entre 0,073 et 0,078 W.m⁻¹.K⁻¹ pour l'ensemble des matériaux. Ces valeurs sont plus élevées que celles obtenues pour de la laine de verre ou de chanvre par exemple (0,04 à 0,05 W.m⁻¹.K⁻¹) mais elles sont plus faibles que celles obtenues pour des panneaux en aggloméré classiques de fibres de bois à densité comparable (0,15 W.m⁻¹.K⁻¹).

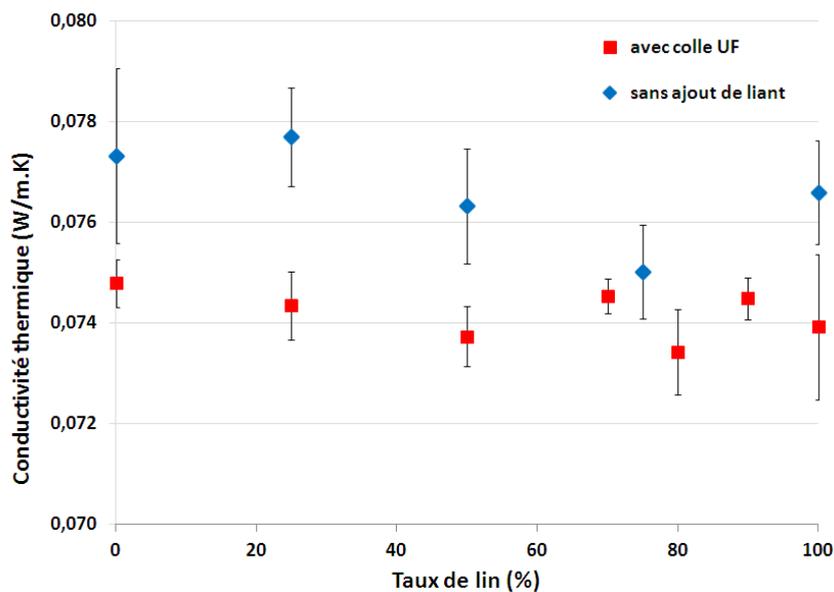


Figure 7. Conductivité thermique des panneaux en fonction de leur formulation

Les panneaux sans colle synthétique contenant jusqu'à 50 % d'écorce de tournesol présentent une conductivité thermique supérieure de quelques mW.m⁻¹.K⁻¹ aux matériaux avec colle UF mais les différences sont faibles. La proportion

lin/tournesol n'influe pas sur la capacité d'isolation thermique des panneaux. La différence de λ observée sur les particules végétales en vrac (tableau 1) n'apparaît plus lorsque les agroressources sont mises sous forme de panneaux. En effet cette différence ($42 \text{ mW.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour les anas de lin contre $51 \text{ mW.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ pour l'écorce de tournesol) est due à la densité des particules brutes mais les panneaux mis en œuvre, quelle que soit leur composition en lin ou tournesol, font la même densité, 500 kg.m^{-3} , ce qui explique le peu de variation de conductivité observée entre les différents panneaux. L'augmentation de la conductivité thermique pour une même agroressource entre le vrac ou la matière en panneau est due à la compression des particules pendant la mise en forme. L'écorce de tournesol, de masse volumique supérieure à celle des anas de lin est moins compressée que ces derniers lors de la mise en forme du panneau pour atteindre une même densité cible de 500 kg.m^{-3} . Les conductivités thermiques finales des panneaux sont donc proches, qu'ils soient faits d'anas de lin ou d'écorce de tournesol.

3.4. Gonflement des panneaux après immersion dans l'eau

Le gonflement d'échantillons de différents panneaux après 48 heures d'immersion dans l'eau est représenté par la variation totale de volume des échantillons mesurés, sur la figure 8. Le gonflement a lieu essentiellement sur l'épaisseur du panneau, dans le sens inverse de la compression.

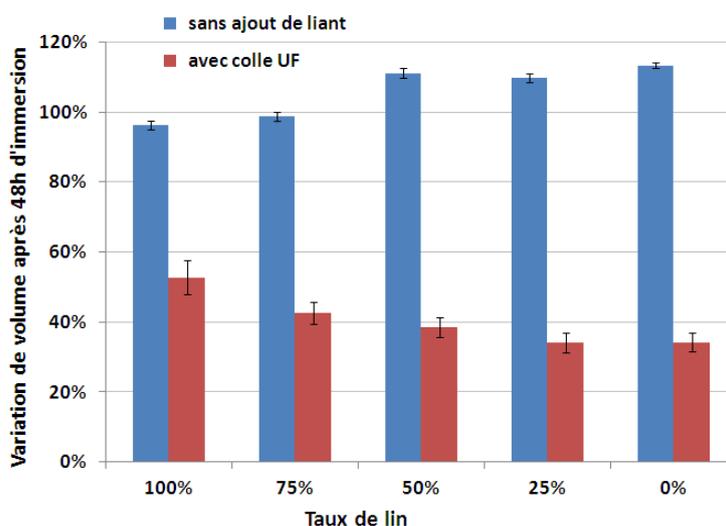


Figure 8. Gonflement des différents panneaux après immersion

La colle synthétique permet de limiter le gonflement des panneaux d'agroressources. Les panneaux liés par la colle UF prennent entre 34 et 53 % en épaisseur quand ils sont constitués de 0 % à 100 % de lin respectivement. Leur

comportement en immersion dans l'eau diffère légèrement en fonction des proportions lin/tournesol. Une diminution de l'augmentation du volume après immersion est observée quand le taux de tournesol augmente dans les panneaux liés avec la colle synthétique. Le panneau 100 % tournesol avec colle UF prend 35 % de moins de volume que le panneau 100 % lin après l'immersion. La substitution des anas de lin par de l'écorce de tournesol dans les panneaux de particules agglomérés par une colle synthétique a un effet bénéfique sur la résistance à l'eau des panneaux. La rigidité des particules d'écorce de tournesol contrairement aux anas de lin qui présentent une structure plus souple, peut expliquer la moins grande sensibilité au gonflement des panneaux contenant plus d'écorce de tournesol. Une autre explication peut être le fait que grâce à leur masse volumique plus élevée, la proportion de colle par unité de surface soit plus élevée sur l'écorce de tournesol que sur les anas de lin.

La variation du volume des échantillons de panneaux liés sans ajout de colle après l'immersion est 2 à 3 fois supérieure à celle des panneaux liés avec la colle UF. Les panneaux sans ajout de liant prennent entre 114 % et 96 % en épaisseur lorsqu'ils contiennent de 0 % à 100 % d'anas de lin respectivement, soit un écart de 15 % du volume pris entre les panneaux 100 % lin et 100 % tournesol. L'évolution du comportement en immersion dans l'eau des panneaux agglomérés sans colle en fonction de la proportion lin/tournesol semble l'inverse de celle des panneaux avec la colle synthétique. Cela est cohérent avec l'effet précédemment observé sur la résistance mécanique de ces panneaux. Mais cette variation en fonction du taux lin/tournesol reste faible. L'évolution la plus significative est l'augmentation générale du gonflement pour les panneaux sans colle synthétique. Une solution devra être recherchée pour limiter l'absorption d'eau des panneaux 100 % biosourcés comme l'ajout d'un composé hydrophobe naturel par exemple.

4. Conclusion et perspectives

Cette étude a montré la faisabilité de valoriser deux coproduits agricoles, les anas de lin et l'écorce de tournesol dans la fabrication de panneaux composites agglomérés. Ces agroressources peuvent être liées avec une colle synthétique classique ou sans ajout de liant externe. Les propriétés des panneaux obtenus sont comparables à celles des panneaux de particules de bois classiques en termes de résistance mécanique (à l'échelle laboratoire) et de conductivité thermique. Le procédé de mise en forme des panneaux agglomérés sans ajout de colle synthétique est plus respectueux de l'environnement, il permet d'obtenir un panneau de particules agglomérées 100 % biosourcé à base de coproduits qui présente une tenue mécanique suffisante, dans le cas où les anas de lin sont majoritaires, mais les panneaux obtenus sont moins résistants à l'eau. Les deux agroressources testées ne présentent pas le même comportement vis-à-vis de la mise en forme avec ou sans colle synthétique. L'écorce de tournesol ne pourra être utilisée qu'avec la colle synthétique. La formulation choisie et le procédé utilisé devront donc être adaptés en fonction de l'agroressource choisie mais les deux peuvent être utilisées dans la fabrication de panneaux de particules. Les propriétés thermiques de l'ensemble des

panneaux étudiés sont intéressantes mais la résistance à l'eau est insuffisante dans le cas des panneaux agglomérés sans ajout de liant externe. Ces matériaux pourront être envisagés pour des applications comme âme de porte ou dans l'ameublement pour un usage non travaillant en milieu sec exclusivement. La valorisation de ces nouvelles matières premières permettra de diversifier les sources d'approvisionnement pour les industriels, d'apporter une source de revenus complémentaire aux agriculteurs et d'adapter la composition des panneaux composites en fonction des ressources disponibles localement.

Remerciements

Nous tenons à remercier l'ADEME pour le financement du projet BIP PANOVEGE, ainsi que l'industriel De Sutter Frères, porteur du projet.

Bibliographie

- Abuarra A., Hashim R., Bauk S., Kandaiya S., Taghizadeh Tousi E. (2014). Fabrication and characterization of gum Arabic bonded Rhizophora spp. Particleboards. *Materials and Design*, vol. 60, p. 108-115.
- Balducci F., Harper C., Meinschmidt P., Dix B., Sanasi A. (2008). Development of Innovative Particleboard Panels. *Wood Industry*, vol. 59, p. 131-136.
- Bouajila J., Limare A., Joly C., Dole P. (2005). Lignin plasticization to improve binderless fiberboard mechanical properties. *Polymer Engineering and Science*, vol. 45, p. 217-224.
- Ghaffar S. H., Fan M. (2014). Lignin in straw and its applications as an adhesive. *International Journal of Adhesion and Adhesives*, vol. 48, p. 92-101.
- Halvarsson S., Edlund H., Norgren M. (2009). Manufacture of non-resin wheat straw fibreboards. *Industrial Crops and Products*, vol. 29, p. 437-445.
- Hubbe M.A. (2006). Bonding between cellulosic fibers in the absence and presence of dry-strength agents – a review. *BioResources*, vol. 1, p. 281-318.
- Khosravi S., Nordqvist P., Khabbaz F., Johansson M. (2011). Protein-based adhesives for particleboards – Effect of application process. *Industrial Crops and Products*, vol. 34, p. 1509-1515.
- Khristova P., Yossifov N., Gabir S., Glavche I., Osman Z. (1998). Particle boards from sunflower stalks and tannin-modified UF resin. *Cellulose Chemistry and Technology*, vol. 32, p. 327-337.
- Klímek P., Meinschmidt P., Wimmer R., Plinke B., Schirp A. (2016). Using sunflower (*Helianthus annuus* L.), topinambour (*Helianthus tuberosus* L.) and cup-plant (*Silphium perfoliatum* L.) stalks as alternative raw materials for particleboards. *Industrial Crops and Products*, vol. 92, p. 157-164.
- Kurokochi Y., Sato M. (2015). Effect of surface structure, wax and silica on the properties of binderless board made from rice straw. *Industrial Crops and Products*, vol. 77, p. 949-953.

- Mahieu A., Lenormand H., Leblanc N., Vivet A. (2015). 100 % biobased particleboards based on new agricultural wastes. *In Proceedings of the First International Conference on Bio-based Building Materials*, Clermont-Ferrand, France
- Mati-Baouche N., De Baynast H., Lebert A., Sun S., Lopez-Mingo C. J. S., Leclaire P., Michaud P. (2014). Mechanical, thermal and acoustical characterizations of an insulating bio-based composite made from sunflower stalks particles and chitosane. *Industrial Crops and Products*, vol. 58, p. 244-250.
- Panyakaew S., Fotios S. (2011). New thermal insulation boards made from coconut husk and bagasse. *Energy and Buildings*, vol. 43, p. 1732-1739.
- Pintiaux T., Viet D., Vandenbossche V., Rigal L., Rouilly A. (2015). Binderless materials obtained by thermo-compressive processing of lignocellulosic fibers: a comprehensive review. *BioResources*, vol. 10, p. 1-49.
- Pizzi A. (2006). Recent developments in eco-efficient bio-based adhesives for wood bonding: opportunities and issues. *Journal of Adhesion Science and Technology*, vol. 20, p. 829-846.
- Privas E., Navard P. (2013). Preparation, processing and properties of liginosulfonate-flax composite boards, *Carbohydrate Polymers*, vol. 93, p. 300-306.
- Sun S., Mathias J.D., Toussaint E., Grédiac M. (2013). Hygromechanical characterization of sunflower stems. *Industrial Crops and Products*, vol. 46, p. 50-59.
- Sun Y.-C., Lin Z., Peng W.-X., Yuang T.-Q., Xu F., Wu Y.-Q., Yang J., Wang Y.-S., Sun R.-C. (2014). Chemical changes of raw materials and manufactured binderless boards during hot pressing: lignin isolation and characterization. *BioResources*, vol. 9, p. 1055-1071.
- Wang D., Sun X. (2002). Low density particleboard from wheat straw and corn pith, *Industrial Crops and Products*, vol. 15, p. 43-50.
- Wei K., Lv C., Chen M., Zhou X., Dai Z., Shen D. (2015). Development and performance evaluation of a new thermal insulation material from rice straw using high frequency hot-pressing. *Energy and Buildings*, vol. 87, p. 116-122.
- Widyorini R., Xu J., Watanabe T., Kawai S. (2005). Chemical changes in steam-pressed kenaf core binderless particleboard. *Journal of Wood Science*, vol. 39, p. 651-662.
- Wu Y., Wang S., Zhou D., Xing C., Zhang Y., Cai Z. (2010). Evaluation of elastic modulus and hardness of crop stalks cell walls by nano-indentation. *Bioresources Technology*, vol. 101, p. 2867-2871.
- Xu J., Han G., Wong E.D., Kawai S. (2003). Development of binderless particleboard from kenaf core using steam injection pressing. *Journal of Wood Science*, vol. 49, p. 327-332.

