

---

# Élaboration des plaques de calage issues d'agroressources par extrusion réactive

## Optimisation des relations procédés-structures-propriétés

**Georges Abinader, Catherine Lacoste, Damien Erre**

*Groupe de Recherche en Sciences pour l'Ingénieur (GRESPI)  
Département Matériaux, Procédés et Systèmes d'Emballage (MPSE)  
ESIReims, Université de Reims Champagne-Ardenne (URCA)  
3 esplanade Roland Garros, F-51100 Reims, France  
Catherine.lacoste@univ-reims.fr*

---

*RÉSUMÉ. Les mousses de calage en plastique utilisées dans les emballages sont volumineuses et beaucoup de travaux s'intéressent à limiter leur production et à les remplacer par des matériaux biosourcés et/ou compostables mais avec des propriétés mécaniques comparables aux mousses en plastique pétrochimique. L'un des objectifs de ce travail est de comprendre et d'optimiser le procédé de fabrication des plaques de mousses de calage à base d'amidon afin d'assurer la stabilité et la reproductibilité du procédé. Les mousses présentant les meilleures propriétés de calage ont été caractérisées et leurs performances mécaniques, en termes d'absorption, d'amortissement et de transmission du choc lors du transport, ont été comparées à celles des mousses de calage traditionnelles d'origine pétrochimique. Nous avons étudié le vieillissement et la stabilité des propriétés des mousses à différentes conditions climatiques. Pour améliorer les propriétés et les performances mécaniques des mousses et réduire leur sensibilité à l'humidité, nous avons rajouté des fibres naturelles et des biopolymères à la formulation de base et étudié leurs effets sur les propriétés des mousses résultantes. Les mousses extrudées présentent des propriétés physiques et un pouvoir amortissant comparables aux mousses traditionnelles, type polyéthylène expansé, ce qui permet de les utiliser dans diverses applications dont principalement les calages.*

*ABSTRACT. Foam cushions used in packaging are very light and bulky and a lot of efforts have been made to limit their production and to replace them with materials that are from renewable resources but with comparable mechanical properties to the current petroleum plastic foams. Consequently, the aim of this paper, which consists on developing starch-based foam cushions by reactive extrusion, is to study the relationship between formulation, process, structure and properties. One of the research goals was to understand and optimize the manufacturing process of starch-based foam sheets to ensure the stability and the repeatability of the process. In this study, we determined the perfect « process / material » combination by studying the effects of the various ingredients of the formulation on the mechanical and structural properties of the resulting foams.*

*MOTS-CLÉS : mousses de calage en amidon, formulation, extrusion réactive, calage.*

*KEYWORDS: starch foams, formulation, reactive extrusion, cushion.*

DOI:10.3166/RCMA.26.383-400 © Lavoisier 2016

### **Extended Abstract**

Foam cushions used in packaging are very light and bulky and they are usually made from petroleum resources. A lot of efforts have been made to limit their production and to replace them with materials that are from renewable resources but with comparable mechanical properties to the current petroleum plastic foams. Consequently, the aim of this paper, which consists on developing starch-based foam cushions by reactive extrusion, is to study the relationship between formulation, process, structure and properties. Because wheat starch is very easy to obtain from agricultural resources in Europe, we chose to study the cushioning foam made with wheat starch. One of the research goals was to understand and optimize the manufacturing process of starch-based foam sheets to ensure the stability and the repeatability of the process. Once we managed to choose the best process conditions in term of rotation speed of the screws and feeding rate (the lower screw speed acceptable for the higher feeding rate) in order to obtain the starch foam that has the best expansion ratio, we determined the perfect « process / material » combination by studying the effects of the various ingredients of the formulation on the mechanical and structural properties of the resulting foams. Glycerol was used as a plasticizer and gluten was added to improve the elasticity of the foam as in the bread dough. Sodium bicarbonate was added to make the nucleation easy and to create carbon dioxide in order to enhance the expansion ratio. The foams with the best cushioning properties were formulated with high rates of glycerol and gluten and low rate of sodium carbonate.

This particular foam was then characterized and its mechanical performances in terms of absorption, cushioning and shock transmission during transport were compared to those of petrochemical foam cushions. Because our foams are made from starch, which is a natural resource that is very sensitive to humidity, we also studied the aging and stability of the foam properties at different climatic conditions. These studies allowed us to determine the long-term stability of the material and their behavior depending on their storage conditions (for different climatic conditions all around the world). In order to improve the mechanical properties of the foams and to reduce their moisture sensitivity, we added natural fibers and biopolymers to the formulation and studied their effects on the resulting properties. Polylactic acid polymers increased the rigidity of the foam but also improve its stability towards humidity. Long flax fibers enlarged the capability of our foam to protect objects during the transport, especially for heavy and non brittle items. Thus, the development of starch-based foams by reactive extrusion has been optimized. The extruded foams have comparable physical properties with the conventional plastic foams, like expanded polyethylene, allowing them to be used in various applications, especially as cushioning material.

## 1. Introduction

Les polymères synthétiques ont été utilisés pendant plusieurs années comme matériaux de base pour fabriquer de nombreux produits et divers emballages. Plus de 4 % de la production mondiale pétrolière servent à fabriquer des emballages en plastiques. De plus, 50 % de ces produits sont à usage unique et finissent dans les décharges (Planetoscope, 2016). D'où l'importance de trouver un substituant aux emballages en plastique ayant les mêmes propriétés mécaniques mais qui soit en même temps biosourcé et compostable. Plusieurs projets de recherche ont été conduits ces dernières années pour développer des plastiques biodégradables (Martin, 2001 ; Tara, 2005 ; Stanojlovic-Davidovic, 2006 ; Landreau, 2008). Ces matériaux sont majoritairement issus d'agroressources comme la cellulose, les microorganismes, la fécule de pomme de terre et diverses sources d'amidon. La biodégradabilité, la recyclabilité et le développement durable sont devenus des critères de choix pour la conception des produits surtout si ces matériaux sont à usage unique et non réutilisables.

Plusieurs secteurs d'activités s'intéressent aux matériaux biodégradables, notamment l'industrie des mousses de calage. Ayant de faibles densités mais étant volumineuses, les mousses de calage présentent de plus en plus un problème pour les entreprises, les municipalités et les centres de tri car elles sont difficilement recyclables et génèrent des surcoûts pour le tri, le recyclage et le transport. Beaucoup de travaux de recherche se consacrent à l'étude des calages pour essayer de limiter leur production et de les remplacer par des matériaux biodégradables issus d'agroressources. Le développement des mousses à base d'amidon par extrusion a aussi été étudié par d'autres auteurs. En effet, Bhatnagar et Hanna (1995) ont étudié les propriétés des mousses à base d'amidon extrudés. Chinnaswamy et Hanna (1987), Lee *et al.* (2009) et Robin *et al.* (2010) ont rajouté un agent gonflant comme l'eau ou du bicarbonate de sodium dans leur formulation qui se décompose à haute température et sous pression pour former les bulles de gaz de CO<sub>2</sub> permettant ainsi l'expansion des mousses. D'autres auteurs, comme Goel et Beckman (1995), Alavi *et al.* (1999 et 2003), Jeong et Toledo (2004), Cho et Rizvi (2009) et Muljana *et al.* (2009) ont préféré injecter directement au cours de l'extrusion du dioxyde de carbone ou de l'azote sous forme de fluide supercritique à basse température, provoquant ainsi la formation des bulles de gaz dans la matière. Della Valle *et al.* (1997) ont déterminé les relations entre les propriétés rhéologiques des amidons fondus et leur expansion lors de l'extrusion. Ils ont trouvé que l'expansion dépendait de la température d'extrusion, de la teneur en eau de l'amidon et de sa concentration en amylose. Bien que le procédé de fabrication des mousses à base d'amidon semble simple, la complexité réside dans la stabilité du procédé et dans les propriétés des mousses résultantes.

Dans ce contexte, un projet de recherche intitulé « Agrocalage » a été entrepris en 2008 dans le cadre du programme d'échange européen INTERREG IV entre la Wallonie et la France. Ce projet consiste à trouver un substituant aux plaques de mousses de calage issues de ressources pétrochimiques en développant un matériau de calage 100 % biodégradable issu des cultures locales de blé et de pomme de terre

à partir desquelles sont extraits les amidons. En effet, l'amidon est une matière première renouvelable peu coûteuse (1-2 €/kg). Grâce à son fort pouvoir de gélatinisation et sa haute viscosité, l'amidon peut être transformé en un matériau thermoplastique (TPS pour *ThermoPlastic Starch*) et utilisé pour remplacer les dérivées du pétrole dans diverses applications. Actuellement, les TPS ont été utilisés pour produire des feuilles ou des films dédiés à la fabrication de sacs en plastique.

La société Novamont (2016), en Italie, a été le principal leader sur le marché des polymères biodégradables avec une part de marché d'environ 55 à 60 % en 2003 (Frost et Sullivan, 2004). Elle a notamment développé en 2002, les premières particules de calage biodégradables type « chips » par extrusion. Sur le marché des calages, trois technologies émergentes ont été développées. La plus ancienne est celle des chips de calage, développées par extrusion à base de diverses sources d'amidon. Ces matériaux ont été commercialisés par plusieurs sociétés sous différents noms, par exemple Exabal® d'Agripack (France) (Agripack, 2016), Ecofoam® de National Starch & Chemical (USA) (Ingredion, 2015), Bio-Fill® de Propack (Australie) (Propack, 2014) et autres. La deuxième technologie est celle des plaques de mousses de champignons. Ce matériau de calage a été développé par la société Ecovative (USA) en utilisant des résidus agricoles et des champignons « mycélium » (Ecovative, 2016). La troisième technologie est celle qui consiste à extruder des plaques de mousses de calage à base d'amidon. Une déclinaison de Mater-Bi de la société Novamont (Italie) (Novamont, 2016), développée sous le nom de Wave, ainsi que Greencellfoam de la société KTM Industries (USA) (KTM Industries, 2016), sont des plaques de mousses de calage extrudées et laminées à froid. Cependant, cette technique avait jusqu'à présent trouvé un marché très limité. Cela est dû en partie aux difficultés techniques rencontrées dans la stabilité du procédé de fabrication des plaques de mousses, mais aussi à cause de leurs faibles performances mécaniques et élastiques comparées aux plaques de mousses pétrochimiques existantes. Ces différentes technologies ont montré que le marché actuel des mousses de calage est en pleine croissance. Mais la technique de fabrication des plaques de mousses biodégradables présente encore plusieurs verrous technologiques, ce qui nécessite de nombreux travaux de recherche afin d'essayer d'améliorer le procédé de fabrication et de trouver des solutions techniques aux propriétés spécifiques de ce matériau de calage.

## 2. Matériels et méthodes

### 2.1. Matières premières

Plusieurs matières d'origine végétale sont testées pour la fabrication de nos mousses dont l'amidon de blé, fourni par la société Chamtor (Bazancourt 51, France), composé de 25 % d'amylose et 75 % d'amylopectine. Il a une teneur en eau d'environ 13 % dans les conditions ambiantes de température ( $23 \pm 1^\circ\text{C}$ ) et d'humidité ( $50 \pm 2\%$ ). Le glycérol, fourni par la société ARD (Bazancourt-Pomacle 51, France), est rajouté comme plastifiant. De plus, le bicarbonate de sodium (SB), de la société Ecodis (France), est utilisé comme agent gonflant. Pour favoriser

l'élasticité, du gluten de blé, fourni également par la société Chamtor, est rajouté à la formulation de base. Le gluten a une teneur en eau d'environ 10 % dans les conditions ambiantes. D'autres matières sont testées et rajoutées à la formulation pour optimiser les propriétés des mousses résultantes. Les fibres de lin (de longueur 1 et 4 mm, respectivement nommées Lin1 et Lin4) sont fournies par la société Celabor (Wallonie, Belgique). L'acide polylactique (5200D-PLA), de la société BIOP (Allemagne), est utilisé en mélange avec l'amidon thermoplastique. Ce PLA est amorphe et a une température de transition vitreuse à 58 °C. Deux mousses de polyéthylène (PEE) (Etafoam 220, 35 kg/m<sup>3</sup> et Etafoam 400, 58 kg/m<sup>3</sup>) proviennent de la société Dow Chemical et servent de références pour comparer les propriétés des mousses de calage.

Chaque formulation est désignée par une nomenclature qui décrit ses constituants par des abréviations suivies du taux en pourcentage par rapport à l'amidon. Par exemple, la mousse [BG40g35L0,5] contient de l'amidon de Blé comme résine principale, avec 40 parts de glycérol comme plastifiant, 35 parts de gluten de blé et 0,5 part de levure de bicarbonate de sodium, pour 100 parts d'amidon (pca).

## **2.2. Mise en œuvre**

L'amidon de blé et le gluten de blé ont été mélangés avec le glycérol dans un turbo mélangeur SCAMEX de 50 L pour préparer le prémélange poudre [amidon gluten glycérol]. Le bicarbonate de sodium a été ajouté juste avant l'extrusion. Les additifs tels que le lin et le PLA ont été rajoutés via un second doseur. L'extrudeuse est une bivis corotative CLEXTRAL BC21 avec un profil de température fixé entre 70 et 140 °C le long du fourreau. Nous avons utilisé une filière bandelette (20 mm x 2 mm).

## **2.3. Caractérisation des mousses**

Après extrusion, les bandelettes de mousses de calage sont coupées en plaques de 15 cm de long et 2cm de large. Elles sont ensuite conservées pendant une semaine dans des conditions standard de température et d'humidité (23 ± 2°C et 50 ± 10 % d'humidité relative) selon la norme NF EN ISO 7214 (AFNOR, 2012). Le taux d'expansion de la mousse a été calculé en divisant la surface de section transversale de la mousse sur la surface en coupe transversale de la filière en mm<sup>2</sup>. Le résultat est la moyenne de 5 échantillons.

Les propriétés structurales ont été déterminées en utilisant un microscope numérique Capture Pro dnt®. Des tranches de 5 mm d'épaisseur ont été découpées à l'aide d'une double lame. La taille de la cellule et l'épaisseur de la paroi ont été calculées en utilisant le logiciel ImageJ 1,43.

Le module d'Young (E) de chaque formulation a été déterminé en utilisant une machine d'essai universelle Instron (modèle 33R4204). L'échantillon

(150 x 20 x 10 mm<sup>3</sup>) a été comprimé par une sonde métallique circulaire de 20 cm de diamètre à un taux de compression de 10 mm/min selon la norme ISO 7214.

Les essais de fluage en compression ont été effectués avec un DMA Q800 de TA Instruments sous humidité et température contrôlées. Le test de fluage/recouvrance a été réalisé avec des échantillons de 20 x 20 x 10 mm<sup>3</sup>, entre deux plateaux de 40 mm de diamètre, sous une contrainte de 10 kPa pendant cinq minutes. Cet essai de fluage a été suivi par dix minutes de relaxation.

Selon la norme NF ISO 4651, les courbes dynamiques d’amortissement ont été établies sur une machine de chute libre Lansmont munie d’un accéléromètre relié à un ordinateur. Ce test consiste à faire tomber un plateau en acier de masse connue (1 à 5 kg) sur une mousse de calage (ici sur des échantillons de 10 mm d’épaisseur) à une hauteur de chute (ici 46 cm) et sur une surface variables (30 à 300 cm<sup>2</sup>) prédéterminées. Le choc et le rebond du plateau sur le calage sont contrôlés et enregistrés par un accéléromètre mesurant la force d’amortissement du calage sur la mousse. Cette force est directement proportionnelle à l’accélération, mesurée en unités de gravité (avec G = 9,81 m/s<sup>2</sup>). Selon la norme ASTM D-3332, les produits fragiles ont un niveau de fragilité autour de 25 G, tandis que les produits robustes ont un niveau de fragilité supérieur à 120 G.

### 3. Résultats et discussions

#### 3.1. Machinabilité du procédé

Dans le but d’optimiser les paramètres du procédé d’extrusion, nous avons décidé de déterminer les effets de la vitesse de rotation des vis et du débit de matière sur l’expansion des mousses. Pour cela, nous avons réalisé une étude de machinabilité en variant les vitesses de rotation des vis de 100 à 600 tr/min et le débit matière de 11 à 51 kg/h lors de l’extrusion des mousses. À partir des résultats de cette étude nous avons trouvé les extrema à ne pas dépasser pour avoir un procédé fluide avec une expansion acceptable tout en restant dans la fenêtre de capacité de l’extrudeuse au niveau puissance et couple.

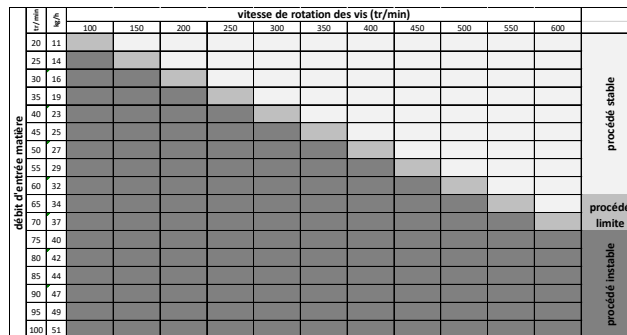


Figure 1. Plan de machinabilité du process

Les paramètres en gris clair (figure 1) correspondent à un processus stable fluide, ceux en gris moyen correspondent à un processus limite avec des couples moteurs élevés et en gris foncé ceux qui provoquent une instabilité du processus et un arrêt machine suite à des couples moteurs ou une pression en butée trop importants. Suite à ces résultats, nous avons retenu les paramètres aboutissant à un procédé stable afin d'observer les caractéristiques des mousses en fonction des conditions d'extrusion. Nous avons varié la vitesse de rotation des vis de 300 à 600 tr/min. Quant au débit de matière, nous l'avons fait varier de 11 à 21 kg/h et cela en gardant l'énergie mécanique spécifique (EMS) entre 300 et 500 kJ/kg, énergie nécessaire pour déstructurer complètement l'amidon sans le dégrader. Le meilleur ratio d'expansion a été obtenu pour une vitesse de rotation des vis de 300 tr/min et un débit de matière de 21 kg/h (figure 2). Cette expansion est due au fort cisaillement et une forte pression dans la filière. Nous constatons que les mousses sont visuellement les meilleures lorsque l'on approche les conditions limites de machinabilité. Leur taux d'expansion est maximal et les irrégularités sont moindres.

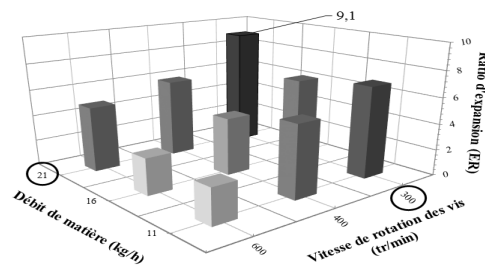


Figure 2. Effet du débit matière et de la vitesse de rotation des vis sur le ratio d'expansion

Dans le but de trouver la formulation optimale pour la production des mousses à base d'amidon de blé, nous avons ensuite déterminé les effets des trois ingrédients principaux de la formulation : le glycérol, le gluten et le bicarbonate de sodium.

### 3.2. Optimisation de la formulation

#### 3.2.1. Caractéristiques morphologiques

Sur la figure 3, nous remarquons qu'un taux élevé de bicarbonate de sodium dans la formulation produit des mousses très denses (a) à faible taux d'expansion (b). En fait, le bicarbonate de sodium se comporte à la fois comme un agent gonflant et un agent nucléant dans la matière. Sa présence dans la formulation stabilise l'expansion, en formant des cellules de tailles moyennes et uniformes, grâce aux bulles de dioxyde de carbone qu'il génère par sa décomposition sous l'effet de la température. Mais en augmentant le taux de bicarbonate de sodium, la nucléation

dans la pâte augmente, ce qui réduit l'épaisseur de la paroi cellulaire et diminue la mobilité des chaînes et l'extensibilité de la paroi cellulaire, provoquant ainsi une plus faible expansion à la sortie de la filière. En résumé, un taux élevé de bicarbonate de sodium provoque un effet négatif sur l'expansion et la densité volumique des mousses, contrairement au glycérol qui, à taux élevé, augmente l'expansion et la densité volumique des mousses. Le gluten ne provoque que des effets positifs, en augmentant l'expansion et en réduisant la densité volumique des mousses. Les mousses issues de la formulation [BG47g35L1] à taux élevé en glycérol et gluten et avec 1 pca de bicarbonate de sodium ont montré une structure cellulaire plus proche des propriétés recherchées des mousses de calage traditionnelles, en ayant une densité cellulaire élevée et une taille cellulaire faible avec une paroi épaisse.

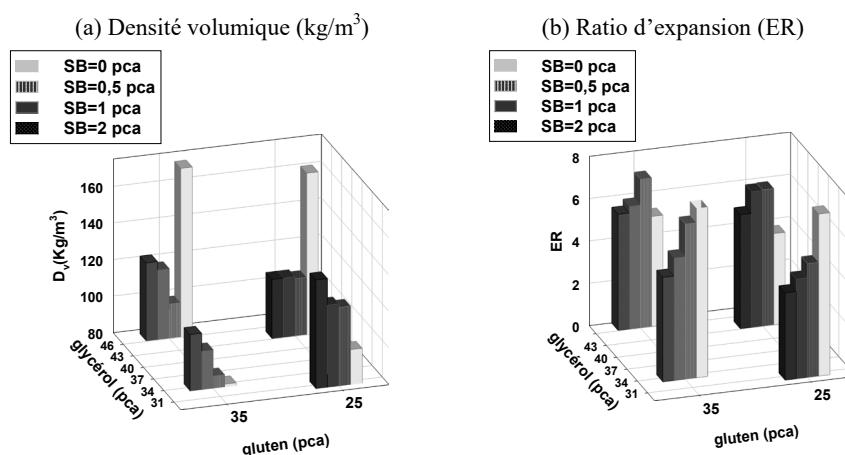


Figure 3. Effet du taux de glycérol, de gluten et du bicarbonate de sodium sur :  
(a) la densité volumique des mousses, (b) l'expansion des mousses.

### 3.2.2. Propriétés mécaniques.

D'autre part, les propriétés mécaniques les plus recherchées dans une mousse de calage traditionnelle sont caractérisées par : E le module d'Young qui traduit son comportement élastique sous l'effet de la contrainte, le taux de recouvrance qui désigne son pouvoir de récupération rapide et totale suite à une déformation et l'amortissement qui se traduit par la capacité à absorber les chocs et les vibrations lors du transport. Finalement, nous remarquons (figure 4) que les modules d'Young les plus faibles sont obtenus pour des formulations ayant un des deux ingrédients, glycérol ou gluten, à taux faible dans la formulation. Nous constatons (figure 5) que la résistance au fluage des mousses est dans la même gamme que celle des mousses en PEE.



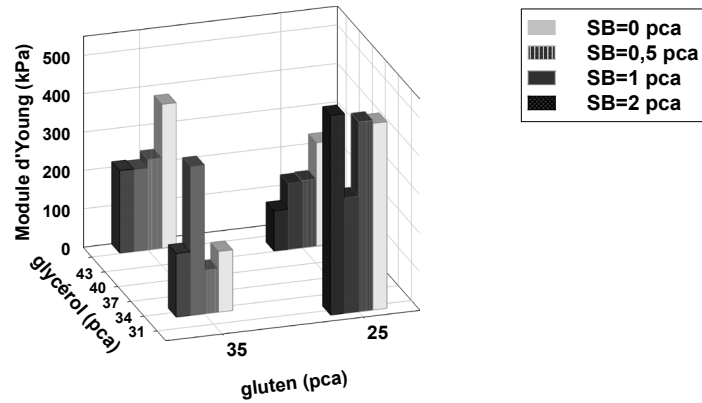


Figure 4. Effet du taux de glycérol et de gluten en fonction de la concentration en bicarbonate de sodium sur le module d'Young des mousses

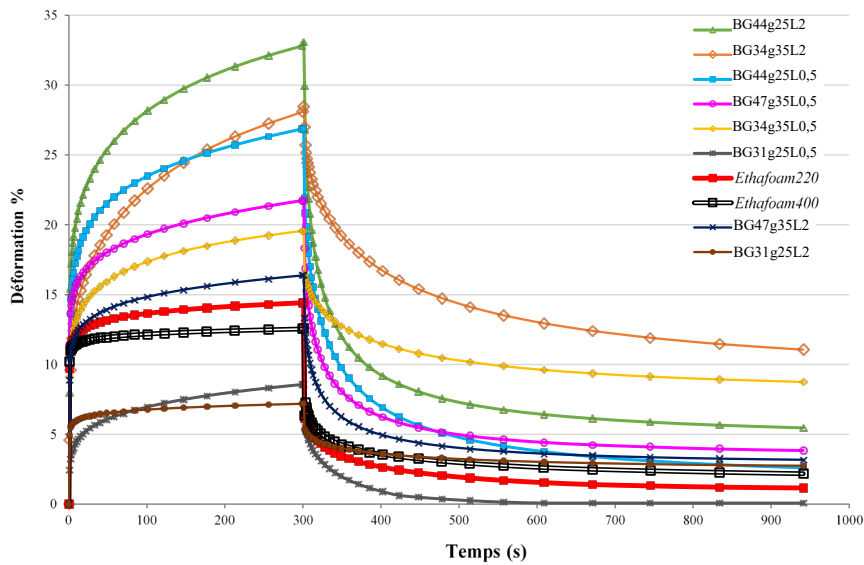


Figure 5. Déformation et recouvrance en fluage des différentes mousses AMICAL™ comparées à celles des mousses Ethafoam 220 et 400

Les mousses à taux élevé en glycérol et faible en gluten, ont de très bonnes propriétés d'élasticité et un pouvoir recouvrant plus élevé que les mousses issues de formulations à taux élevé en gluten. Le glycérol, utilisé comme plastifiant, favorise la mobilité des chaînes d'amidon. Il lubrifie les parois cellulaires des mousses, et les

rend ainsi plus élastiques avec des complaisances limites de recouvrance élevées et moins rigides, avec un module d'Young et des valeurs de viscosité à cisaillement nul faibles. Mais l'association d'un taux élevé de gluten et de glycérol donne des mousses avec de très bonnes propriétés élastiques et une forte résistance à la compression. Lorsque le taux est élevé en bicarbonate de sodium et faible en glycérol et gluten, la mobilité des chaînes d'amidon diminue, procurant des mousses rigides à viscosité à cisaillement nul élevée et à module d'Young élevée. Ceci peut être expliqué par la fissuration et l'effondrement des parois cellulaires des mousses après leur compression. Ces résultats sont en accord avec ceux de Lin *et al.* (1995), qui ont montré que les matériaux à forte résistance à la compression ne sont pas toujours appropriés pour l'amortissement.

Sur la figure 6, nous constatons que les courbes d'amortissement dynamique de nos mousses ont la forme de «U», forme typique aux mousses de calage traditionnelles, avec des pics d'accélération comparables à ceux des mousses Ethafoam. Les mousses à taux élevé de glycérol, présentent le pic d'accélération le plus bas (68 G), signe d'un très fort amortissement, avec une forme de courbe proche de celles des mousses Ethafoam 220 de faible densité. Ceci s'explique par l'élasticité et la souplesse élevée de ce matériau observées lors du test de fluage. Les propriétés d'amortissement de ces mousses sont probablement influencées par leur structure cellulaire, en termes de tailles cellulaires et d'épaisseur de parois élevées. Ces mousses offriraient une protection suffisante pour les produits à plus de 68 G de fragilité et à faible charge statique (entre 2 et 4 kPa), classés comme produits légers et moyennement fragiles.

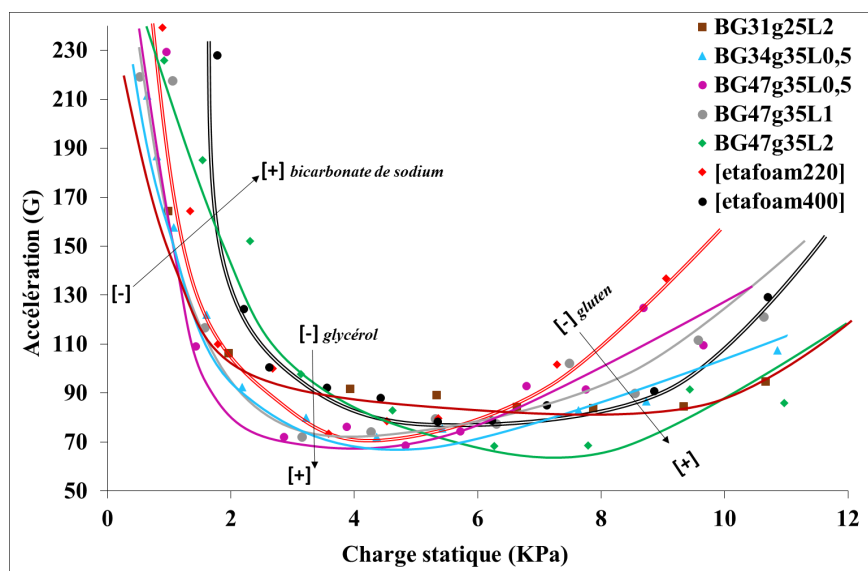


Figure 6. Courbes d'amortissement dynamiques de nos mousses de 15 mm d'épaisseur comparées aux Ethafoam 220 et 400 de même épaisseur lors d'une chute libre de 46 cm

Les mousses à taux élevé en gluten ont un pic d'amortissement de 75 G avec une large gamme de charges statiques allant de 3 à 8 kPa. Ces mousses de calages assureront une protection pour une gamme élevée de produits, allant de moyennement fragiles aux produits moyennement robustes. De plus, les mousses à taux élevé en SB seraient plus appropriées pour des produits lourds et moyennement robustes aux produits robustes avec un niveau de fragilité supérieur à 85 G. Enfin, les mousses à taux élevé en glycérol et en gluten, ont obtenu les meilleures propriétés de calage en termes d'amortissement et d'élasticité, avec un faible pic d'accélération (68 et 70 G) pour une large gamme de charges statiques (entre 2 et 7 kPa). Ces mousses fourniront donc une très bonne protection avec une forte absorption aux chocs pour un large choix de produits. Forts de tous ces résultats, nous avons plus particulièrement caractérisé la formulation de « base » |BG47g35L1| à taux élevé en glycérol et gluten et faible en bicarbonate de sodium.

### 3.2.3. Influence de l'humidité sur les propriétés des mousses

Dans le but d'élargir les secteurs d'utilisation de nos mousses sur le marché des emballages, nous évaluons leurs performances dans différentes conditions climatiques. En effet les mousses d'amidon sont hygroscopiques et leurs propriétés peuvent varier en modifiant leurs conditions de stockage. Par conséquent, une variation atmosphérique en température et humidité est susceptible d'affecter significativement leurs performances mécaniques. Pour cela, après l'extrusion nous avons stocké les bandelettes de nos mousses |BG47g35L1| sous trois conditions atmosphériques spéciales, en température et en humidité relative, pendant 48 h qui représentent les 3 principales zones climatiques de la planète par où peuvent transiter des produits emballés (normale :  $T = 23 \pm 1^\circ\text{C}$ ,  $50 \pm 2\%$  d'humidité relative ; très humide tempérée :  $T = 20 \pm 2^\circ\text{C}$ ,  $85 \pm 5\%$  d'humidité relative ; tropical :  $T = 40 \pm 2^\circ\text{C}$ ,  $85 \pm 5\%$  d'humidité relative, selon la norme ASTM D4332-89). Pour chaque condition climatique, nous avons effectué des tests de teneur en eau, de fluage et de compression statique. Les mousses |BG47g35L1| stockées dans des conditions très humides tempérées se déforment et ont une recouvrance plus facile que quand elles sont mises dans un climat dit normal (figure 7).

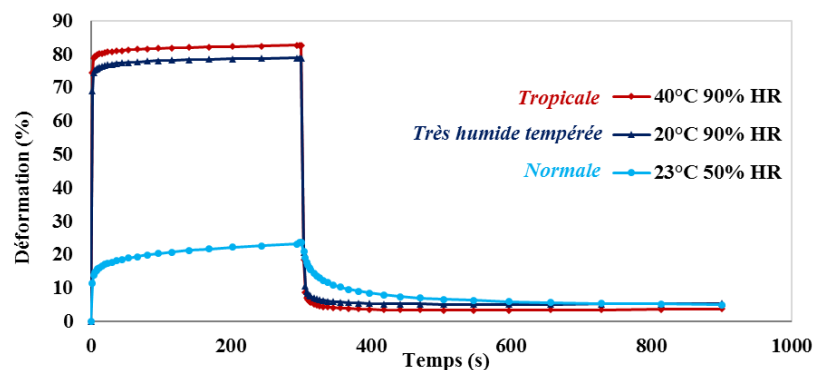


Figure 7. Déformation et recouvrance en fluage de compression de 0,01 MPa des mousses |BG47g35L1| à différentes conditions climatiques

L'augmentation de la teneur en eau des mousses [BG47G35L1] par absorption de l'humidité dans l'air augmente leur plasticité, ce qui les rend plus souples et élastiques que les mousses à faible teneur en eau. Les résultats des tests montrent qu'une variation atmosphérique en température et humidité est susceptible d'affecter significativement les performances mécaniques des mousses [BG47G35L1], surtout dans des conditions très humides à cause de leur forte hygroscopicité.

#### 3.2.4. Influence du vieillissement sur les propriétés des mousses.

Pour compléter cette étude, nous avons étudié l'évolution de la teneur en eau des mousses [BG47G35L1] en fonction du temps de stockage à 23 °C et 50 % d'humidité relative (figure 8). Les résultats indiquent que la teneur en eau des mousses est de l'ordre de 12 % au lendemain de leur fabrication mais elle diminue après 1 semaine de stockage à 23 °C et 50 % d'humidité relative et se stabilise à 8,5 % dès la première semaine de stockage.

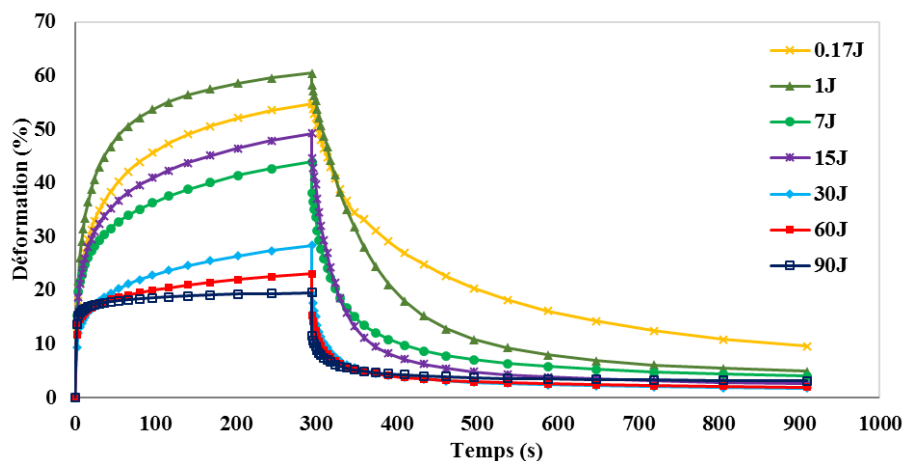


Figure 8. Déformation et recouvrance en fluage de compression de 0,01 MPa des mousses [BG47G35L1] après différents jours de stockage à 23 °C et 50 % HR.

Les mousses [BG47G35L1] testées 24 h après leur fabrication se déforment beaucoup plus et se recouvrent beaucoup moins qu'après plusieurs jours de stockage à 23 °C et 50 % HR (figure 8). À partir de 30 jours de stockage, la recouvrance des mousses, suite au fluage, est quasi immédiate, la déformation se stabilise rapidement. Nous pouvons ainsi considérer qu'après 30 jours de stockage les propriétés viscoélastiques des mousses [BG47G35L1] se stabilisent. Les résultats des tests de compression statique des mousses [BG47G35L1] confirment le test de fluage (figure 9). Le module d'élasticité des mousses augmente avec le temps de stockage. Après 3 mois de stockage à 23 °C et 50 % d'humidité relative, les mousses sont devenues plus rigides avec un module d'Young plus élevé par rapport aux mousses fraîchement fabriquées, 247,60 et 45,55 kPa respectivement.

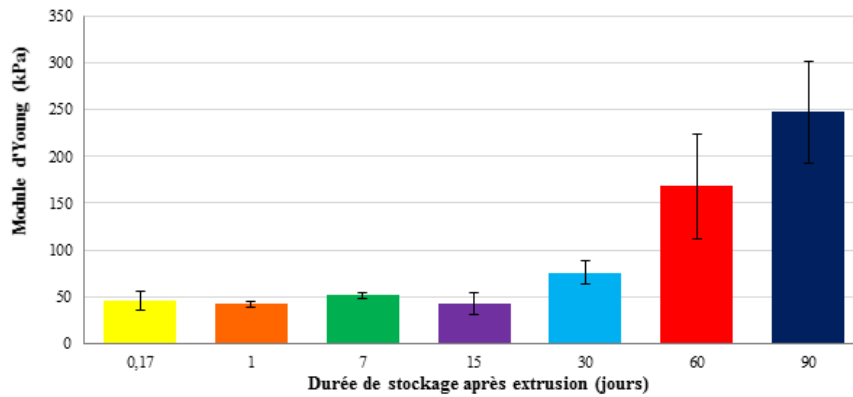


Figure 9. Module d'Young des mousses |BG47G35L1| en fonction du temps de stockage à 23 °C et 50 % HR

Les mousses |BG47G35L1| ont démontré des bonnes performances de calage pour l'emballage de transport en ayant des propriétés mécaniques comparables à celles des mousses Ethafoam. Les mousses ont confirmé leurs meilleures absorptions aux chocs par rapport aux mousses Ethafoam, en assurant par exemple une meilleure protection des cadres en verre à 46 cm de chute libre. Mais il est évident que les propriétés mécaniques des mousses étaient instables au cours du temps et sous différentes conditions climatiques et cela est surtout dû à leur forte hygroscopie. Nous avons cherché à diminuer cet effet négatif, en rajoutant des agents de renfort tel que la fibre de lin et un biopolymère tel que le PLA dans la formulation.

### 3.2.5. Influence de l'ajout d'additifs sur les propriétés des mousses

Au sein de la formulation, des taux élevés de PLA et des fibres longues de lin, ont produit des mousses avec des faibles ratios d'expansion et des densités volumiques élevées. Les valeurs maximales de densité volumique sont obtenues pour un taux élevé de PLA. Ceci peut être expliqué par l'augmentation de la viscosité de l'amidon thermoplastique à l'état fondu pour un taux élevé de PLA, induisant une dilatation faible de la matière. Les mousses sont ainsi plus denses à la sortie de la filière. Par ailleurs, la présence de PLA augmente la rigidité des mousses de 75 % (figure 11). Cela est principalement dû à la diminution de l'expansion et l'augmentation de la densité volumique et cellulaire des mousses pour un taux élevé en PLA. La valeur maximale de module d'Young (518,96 kPa) est obtenue pour un taux élevé en PLA. Elle est comprise entre le module des mousses Ethafoam 220 et celui des mousses Ethafoam 400. Quant aux fibres de lin, elles ont réduit le module d'Young des mousses ; les fibres courtes de lin l'ont réduit de 41 %, tandis que les fibres longues l'ont diminué de 45 % traduisant une modification de la structure cellulaire, notamment une diminution de l'épaisseur de la paroi des cellules d'amidon plastifié, ce qui diminue la résistance mécanique de la mousse.

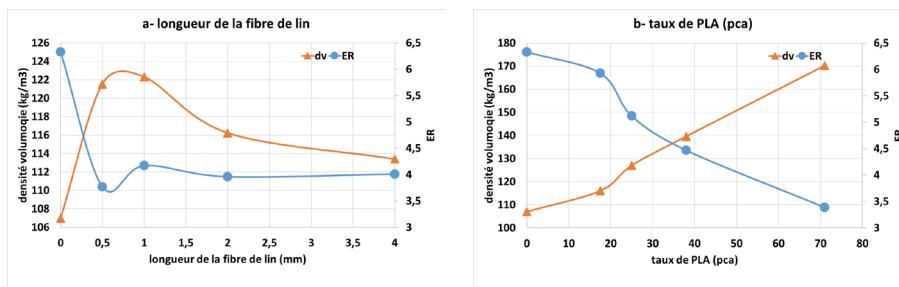


Figure 10. Effet des différents additifs (a- longueur des fibres de lin ; b- taux de PLA) sur l'expansion et la densité volumique des mousses résultantes

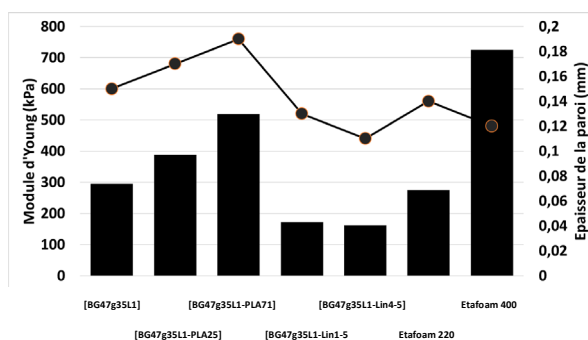


Figure 11. Variation du module d'Young (histogramme) et des épaisseurs de parois (courbe) en fonction des différentes formulations

Les résultats des tests de fluage effectués sur les différentes mousses indiquent que les mousses à différents taux d'additifs ont une recouvrance élastique de plus de 95 % suite à une faible compression (figure 12). Le PLA accroît la rigidité des mousses en augmentant la viscosité à cisaillement nul des mousses jusqu'à  $50,31 \cdot 10^7 \text{ Pa} \cdot \text{s}^{-1}$  pour les mousses à taux faible en PLA et jusqu'à  $57,10 \cdot 10^7 \text{ Pa} \cdot \text{s}^{-1}$  pour celles à taux élevé de PLA. Cela est principalement dû à leurs hautes densités et leurs modules d'Young élevés. Cette rigidité rend les mousses contenant du PLA moins élastiques, en diminuant leur complaisance limite de recouvrance jusqu'à  $0,68 \cdot 10^{-5} \text{ Pa}^{-1}$  pour les mousses à taux faible en PLA et  $0,64 \cdot 10^{-5} \text{ Pa}^{-1}$  pour celles à taux élevé de PLA. Quant aux fibres de lin, les courtes fibres n'ont pas d'effet important sur la rigidité et l'élasticité des mousses, ce qui rend leurs courbes de fluage comparables. Par contre, des longues fibres de lin dans la formulation, rigidifient les mousses [BG47G35L1]. Leur comportement élastique en termes de recouvrance est quasiment identique à celui des mousses Ethafoam 400.

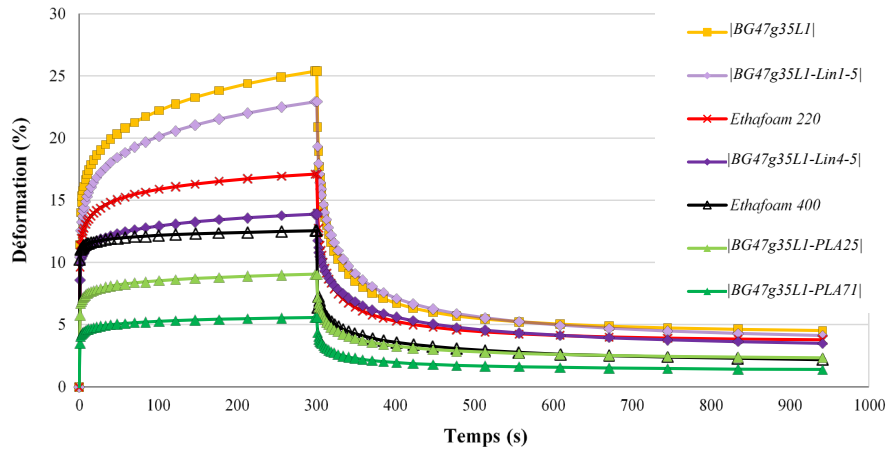


Figure 12. Déformation et recouvrance en fluage de compression de 0,01 MPa des différentes mousses |BG47G35L1| avec différents additifs comparées aux Ethafoam 220 et 400

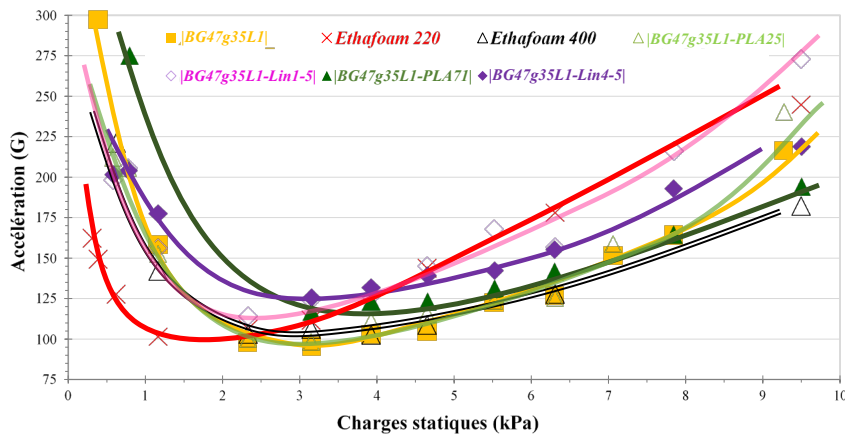


Figure 13. Courbes d'amortissement dynamiques des mousses |BG47g35L1| de 10 mm d'épaisseur avec différents additifs, comparés aux Ethafoam 220 et 400 à chute libre de 46 cm

La figure 13 montre l'évolution de la capacité d'amortissement des mousses |BG47G35L1| de 10 mm d'épaisseur, en fonction des divers additifs, lors d'une chute de 46 cm de haut. Nous remarquons que la totalité de nos mousses d'amidon

ont des courbes avec des minimums d'accélération comparables à ceux des mousses Ethafoam 400. Mais à cause de leur haute densité, les mousses à taux élevé en PLA ou à longues fibres de lin ont des minima d'accélération élevés de valeurs respectives 117 G et 126 G, avec une large gamme de charge statique, les rendant alors plus appropriées pour protéger des produits non fragiles et lourds. Par contre, un taux faible de PLA dans la formulation n'affecte pas significativement le pouvoir amortissant des mousses. Nous constatons que les mousses résultantes ont un minimum d'accélération de 98 G, proche de celui des mousses [BG47G35L1], qui est de 95 G, et meilleur que les Ethafoam 220 et 400 (Ethafoam 220 = 100 G / Ethafoam 400 = 105 G). Ces mousses seront, comme les mousses [BG47G35L1], adaptées pour protéger des produits peu fragiles. À partir de ces résultats, nous constatons que les additifs ont permis d'obtenir des mousses avec des pouvoirs amortissants différents, ce qui élargit davantage la gamme des mousses d'amidon susceptible d'offrir une protection suffisante pour des produits de différents degrés de fragilité.

#### 4. Conclusion

Une étude des effets des paramètres d'extrusion sur la machinabilité et l'expansion des mousses d'amidon de blé a été menée. Les meilleurs taux d'expansion sont obtenus à fort débit de matière (21 kg/h) et à une vitesse de rotation des vis moyenne (300 tr/min). Les propriétés physiques et morphologiques de nos mousses d'amidon dépendent bien-sûr de la formulation de base. Les mousses élaborées à partir d'un taux élevé de glycérol et de gluten et d'un faible taux de bicarbonate de sodium (notamment de 1 pca) présentent les meilleures performances mécaniques en termes d'élasticité, de résistance à la compression et d'amortissement aux chocs. Du point de vue mécanique, nos mousses d'amidon sont très compétitives face aux mousses pétrochimiques traditionnelles. En effet, elles ont de bonnes performances de calage pour l'emballage de transport en ayant des propriétés mécaniques comparables à celles des mousses Ethafoam. Néanmoins, un problème majeur peut freiner leur développement : les mousses d'amidon sont sensibles à l'humidité. Nous avons alors rajouté séparément deux additifs, le D-PLA, pour son caractère hydrophobe, et le lin. Ces additifs ont permis d'obtenir des mousses avec des pouvoirs amortissants différents, ce qui élargit davantage la gamme de nos mousses d'amidon susceptible d'offrir une protection suffisante pour des produits de différents degrés de fragilité. Nous sommes parvenus à mettre au point à l'échelle semi-pilote un panel de mousses d'amidon permettant de répondre à de nombreuses exigences en termes d'absorption de chocs et de vibration. Il faut maintenant parfaire le comportement aux conditions de vieillissement, pour garantir un stockage à long terme et passer à l'échelle industrielle.

#### Remerciements

*Les auteurs remercient le service technique de l'ESIREims pour l'aide apportée dans les différentes analyses. Les auteurs expriment leur reconnaissance envers les sociétés Chamtor, A.R.D et Celabor pour leur avoir fourni gracieusement les*



*matières premières. Cette étude a été partiellement financée par le programme européen INTERREG IV et par l'ESIREims.*

## Bibliographie

- AFNOR (2012). *NF EN ISO 7214, Plastiques alvéolaires - Polyéthylène - Méthodes d'essai.*
- Agripack (2016). *Particules de calage 100 % NATURELLES*  
<http://www.agripack.fr/menu.html>.
- Alavi S. H., Gogoi B. K., Khan M., Bowman B. J. and Rizvi S. S. H. (1999). Structural properties of protein-stabilized starch-based supercritical fluid extrudates. *Food Research International*, vol. 32, p. 107–118.
- Alavi S. H., Rizvi S. S. H. and Harriott P. (2003). Process dynamics of starch-based microcellular foams produced by supercritical fluid extrusion. I: model development. *Food Research International*, vol. 36, p. 309–319.
- Bhatnagar S. and Hanna M. A. (1995). Properties of extruded starch-based plastic foam. *Industrial Crops and Products*, vol. 4, p. 71–77.
- Chinnaswamy R. and Hanna M. A., (1987). Nozzle Dimension Effects on the Expansion of Extrusion Cooked Corn Starch. *Journal of Food Science*, vol. 52, no. 6, p. 1746–1747.
- Cho K. Y. and Rizvi S. S. H. (2009). 3D microstructure of supercritical fluid extrudates I: Melt rheology and microstructure formation. *Food Research International*, vol. 42, p. 595–602.
- Della Valle G., Vergnes B., Colonna P. and Patria A. (1997). Relations between rheological properties of molten starches and their expansion behaviour in extrusion. *Journal of Food Engineering*, vol. 31, p. 277–295.
- Ecovative (2016). *Myco Foam*. <http://www.ecovatedesign.com/myco-foam>.
- Frost, Sullivan (2004). *Frost & Sullivan Award Underscores Novamont's Profile as Product Innovator*. <http://www.frost.com/prod/servlet/press-release.pag?docid=10896428>.
- Goel S. K. and Beckman E. J. (1995). Nucleation and growth in microcellular materials: Supercritical CO<sub>2</sub> as foaming agent. *AIChE Journal*, vol. 41, no. 2, p. 357–367.
- Ingredion (2015). *Welcome to a world of innovation*.  
<http://www.nationalstarch.com/Pages/home1.aspx>.
- Jeong H. and Toledo R. (2004). Twin-screw extrusion at low temperature with carbon dioxide injection to assist expansion: extrudate characteristics. *Journal of Food Engineering*, vol. 63, p. 425–432.
- KTM Industries (2016). *Green Cell Foam*. <http://www.greencellfoam.com>.
- Landreau E. (2008) *Matériaux issus de ressources renouvelables. Mélanges amidon plastifié/PA11 compatibles*. Thèse de doctorat, Université de Reims Champagne-Ardenne, Reims.
- Lee S. Y., Eskridge K. M., Koh W. Y. and Hanna M. A. (2009). Evaluation of ingredient effects on extruded starch-based foams using a supersaturated split-plot design. *Industrial Crops and Products*, vol. 29, p. 427–436.

- Lin Y., Huff H. E., Parsons M. H., Iannotti E., and Hsieh F. (1995). Mechanical properties of extruded high amylose starch for loose-fill packaging material. *LWT - Food Science and Technology*, vol. 28, p. 163–168.
- Martin O. (2001). *Etude de la coextrusion de systèmes biodégradable à base d'amidon de blé plastifié*. Thèse de doctorat, Université de Reims Champagne-Ardenne, Reims.
- Muljana H., Picchioni F., Heeres H. J. and Janssen L. P. B. M. (2009). Supercritical carbon dioxide (scCO<sub>2</sub>) induced gelatinization of potato starch. *Carbohydrate Polymers*, vol. 78, p. 511–519.
- Novamont (2016). <http://www.novamont.com/eng/mater-bi>.
- Planetoscope (2016). *Planetoscope - Statistiques : Production mondiale de plastique*, <http://www.planetoscope.com/petrole/989-production-mondiale-de-plastique.html>
- Propack (2014). *Bio-Fill - Biodegradable Void Fill*. <http://www.propakindustries.com.au>.
- Robin F., Engmann J., Pineau N., Chanvrier H., Bovet N. and Valle G. D. (2010). Extrusion, structure and mechanical properties of complex starchy foams. *Journal of Food Engineering*, vol. 98, p. 19–27.
- Stanojlovic-Davidovic A. (2006). *Matériaux biodégradables à base d'amidon expansé renforcé de fibres naturelles ; application à l'emballage alimentaire*. Thèse de doctorat, Université du Sud Toulon-Var, Alès.
- Tara A. (2005). *Modification chimique de l'amidon par extrusion réactive*. Université de Reims Champagne-Ardenne, Reims.