

République algérienne démocratique et populaire
Ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche scientifique
Université a. Mira de Bejaia



Faculté de Technologie
Département de Génie des procédés
Laboratoire des matériaux organiques (LMO)

Mémoire EN VUE DE L'OBTENTION DU DIPLOME DE Master

Domaine : Science et Technologie Filière : Génie des Procédés
Spécialité : Génie des Polymères

Présenté par

M. KOUZ Toufik et M. MEZHOUD Mounir

Thème

**Élaboration et caractérisation d'un biocomposite à
base de polyester biodégradable et de fibres
végétales de genêt d'Espagne**

Soutenue le 01/07/2024

Devant le jury composé de :

Nom et Prénom	Grade		
REZGUI Farouk	Pr	Université de Bejaia	Président
ZAIDI Lynda	Dr	Université de Bejaia	Examineur
BAOUZ Touffik	Dr	Université de Bejaia	Encadrant
DJERRAD Nour elhouda	Mlle	Université de Bejaia	Co-Encadrant

Année Universitaire : 2023/2024

Remerciements

Nous souhaitons avant tout exprimer notre gratitude à Dieu le Tout-Puissant, qui a guidé nos pas vers les portes du savoir, illuminé notre chemin et nous a donné le courage et la patience nécessaires pour mener à bien ce travail.

Nos sincères remerciements vont à toutes les personnes qui ont contribué, de près ou de loin à la réalisation de ce mémoire.

*Nous tenons à exprimer notre profonde reconnaissance à notre encadrant, **Dr. BAOUZ Touffik** et à notre co-encadrante, **Mlle DJERRAD Nour elhouda**, pour leur soutien inestimable et leurs conseils avisés.*

Enfin, nous remercions chaleureusement les membres du jury pour avoir accepté d'évaluer notre travail et pour leurs précieux retours.

Dédicaces

*Je dédie ce mémoire de master
A mes chers parents
A mon frère Hicham
A mes sœurs Mounira, Meriame, Kenza
A Mon ami NAIM
Et à mon camarade TOUFIK*

*Je dédie enfin ce travail à toute personne ayant contribué de
Près ou de loin à sa concrétisation*

MEZHOUD Mounir.

Dédicaces

Je dédie ce mémoire à ma chère sœur Souad, à ma famille qui m'a soutenu inconditionnellement, et à mes amis Yahya, Youba, Yacine, Omar et Nadjib pour leur amitié et leur encouragement constant.

Je tiens également à dédier ce travail à mon camarade Mounir et ma chère Sofia, dont le soutien m'ont été précieux tout au long de ce parcours.

Merci à vous tous.

KOUZ Toufik.

Sommaire

Table des matières	I
Table des figures	IV
Liste des tableaux	VI
Liste des abréviations	VII
INTRODUCTION	
Introduction	1
Références bibliographiques	3
CHAPITRE I : Les polymères biodégradables et la polycaprolactone (PCL)	
I Les polymères biodégradables et la polycaprolactone (PCL)	4
I.1 Généralités sur les polymères biodégradables	4
I.2 Classification des polymères biodégradables	5
I.3 La famille des polyesters	5
I.4 Classification des polyesters	6
I.5 Structure et synthèse des polyesters	6
I.5.1 Structure des polyesters	6
I.5.2 Synthèse des polyesters	7
I.6 La polycaprolactone (PCL)	7
I.7 Synthèse du PCL	8
I.7.1 Méthodes de synthèse couramment utilisées	8
I.7.2 Influence des conditions réactionnelles sur la structure et les propriétés	8
I.7.3 Structure moléculaire du PCL	9
I.7.4 Impact de la structure sur les propriétés du PCL	9

I.8 Les propriétés physiques et mécaniques du PCL	9
I.9 Les applications du PCL.....	10
Références bibliographiques	14
CHAPITRE II : Les fibres végétales et les matériaux biocomposites	
II Les fibres végétales et les matériaux biocomposites	14
II.1 Présentation d'une fibre végétale.....	15
II.2 Classification des fibres végétales	15
II.2.1 Selon l'organe de la plante.....	15
II.2.2 Selon la teneur en cellulose, en hémicellulose et en lignine	16
II.2.3 Selon la longueur de la fibre.....	16
II.3 Composition chimique des fibres végétales	17
II.4 Méthodes d'extraction des fibres végétales.....	19
II.5 Avantages et inconvénients des fibres végétales.....	20
II.6 Le Genêt d'Espagne (Spartium Junceum - Tertak).....	21
II.6.1 Culture.....	21
II.6.2 Caractéristiques botaniques	22
II.6.3 Utilisations potentielles	22
II.6.4 Importance économique.....	22
II.7 Les matériaux biocomposites	23
II.7.1 Définition	23
II.7.2 Composants.....	23
II.7.3 Adhésion des interfaces (matrice/fibre) d'un biocomposite	24
II.7.4 Les différents types de biocomposites	24
II.7.5 Procédés de mise en œuvre des matériaux biocomposites	25
II.7.6 Les avantages et les inconvénients des matériaux biocomposites.....	26
II.7.7 Les domaines d'applications des biocomposites.....	26
Références bibliographiques	30
CHAPITRE III : État de l'art	
III État de l'art	31
III.1 Introduction.....	31

CHAPITRE IV : Matériaux et méthodes

IV Matériaux et méthodes	40
IV.1 Matériaux utilisés	40
IV.1.1 Polycaprolactone	40
IV.1.2 La fibre	40
IV.2 Mode opératoire	41
IV.2.1 Partie A.....	41
IV.2.1.1 Récolte de l'arbuste de Genêt d'Espagne	41
IV.2.1.2 Lavage du GE	41
IV.2.1.3 Séchage et broyage du GE	41
IV.2.1.4 Tamisage des fibres de GE.....	42
IV.2.2 Partie B.....	42
IV.2.2.1 Préparation des biocomposites.....	42
IV.3 Techniques de caractérisation.....	44
IV.3.1 Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF)	44
IV.3.2 Essais de traction.....	44
IV.3.3 Test d'absorption d'eau	46
IV.3.4 Mesure de la densité.....	46

CHAPITRE V : Résultats et discussion

V Résultats et discussion	48
V.1 Caractérisation par spectroscopie IRTF.....	48
V.2 Mesure de la densité	49
V.3 Test d'absorption de l'eau	50
V.4 Test de traction	51

Conclusion

Conclusion	54
-------------------	-----------

Perspectives	55
---------------------	-----------

Liste des Figures

I.1	Classification des polymères biodégradables	5
I.2	Structure générale d'un polyester	7
I.3	Réaction de la formation d'un polyester	7
I.4	Formule semi-développée du PCL	8
I.5	Synthèse du PCL en présence d'un catalyseur	8
II.1	Photo montrant l'extraction d'une fibre végétale.....	14
II.2	Structure d'une fibre végétale	15
II.3	Classification des différentes fibres végétales en fonction de leurs origines	15
II.4	Structure chimique de la cellulose.....	17
II.5	Morphologie d'une micro-fibrille cellulosique.....	18
II.6	Structure d'un xyloglucane	18
II.7	Présentation des trois alcools composant la lignine.....	19
II.8	Image montrant les tiges (1) et les fleurs du Genêt d'Espagne (2).....	21
II.9	Exemple de composition d'un matériau biocomposite	23
IV.1	Broyage mécanique de la fibre	42
IV.2	Fibre de GE après tamisage	42
IV.3	Organigrammes de la partie A.....	42
IV.4	Obtention des granulées de biocomposites après extrusion	43
IV.5	Obtention des éprouvettes après injection	44
IV.6	Organigrammes de la partie B.....	44
IV.7	Photographie d'échantillons soumis au test d'absorption d'eau	46
V.1	Spectre infrarouge de la fibre de GE, du PCL vierge et du biocomposite (PCL/GE) à 15 %.....	48
V.2	Histogramme représentant l'évolution de la densité des biocomposites en fonction de la concentration de fibre	50
V.3	Évolution d'absorption d'eau au fil de temps à 25°C	51
V.4	Évolution d'absorption d'eau au fil de temps à 45°C	51

V.5	Courbes type de contrainte_déformation de l'essai de traction du PCL vierge, et de ces composites PCL/GE	52
V.6	Influence du taux des fibres GE sur le module de Young.....	53
V.7	Influence du taux des fibres GE sur la contrainte a la rupture.....	54

Liste des tableaux

I.1	Propriétés physiques et mécaniques du PCL	10
I.2	Principales applications du PCL.....	11
II.1	Classification des fibres selon leurs longueurs	16
II.2	Composition chimique de quelques fibres végétales.....	17
II.3	Caractéristiques générales des fibres du GE.....	22
II.4	Principaux domaines d'application des biocomposites	26
IV.1	Caractéristiques des matériaux utilisés	40
IV.2	Paramètres et consignes du travail sur l'extrudeuse.....	44
IV.3	Codes des formulations	43
V.1	Résultats de test de densité.....	50

Liste des abréviations

PCL : Polycaprolactone.

PLA : Acide polylactique.

PHA : Polyhydroxyalcanoate.

GE : Genêt d’Espagne.

IRTF : Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier.

SJ : Spartium junceum

Introduction

Introduction

La recherche et le développement de matériaux durables et écologiques sont devenus des priorités majeures dans de nombreux secteurs industriels en raison des préoccupations croissantes concernant l'environnement et la durabilité. Les polymères biodégradables, les fibres végétales et les biocomposites représentent des domaines clés de cette recherche, offrant des alternatives prometteuses aux matériaux synthétiques traditionnels [1].

Les polymères biodégradables sont des matériaux capables de se décomposer naturellement par l'action des micro-organismes, réduisant ainsi leur impact environnemental après utilisation [2]. Parmi ces polymères, le poly(e-caprolactone) (PCL) se distingue par ses propriétés mécaniques et thermiques favorables ainsi que sa biodégradabilité. Le PCL est un polyester synthétique apprécié pour sa facilité de traitement et sa compatibilité avec diverses applications biomédicales et industrielles. Les fibres végétales sont des matériaux naturels obtenus à partir de différentes parties des plantes telles que les tiges, les feuilles et les fruits. Elles sont renouvelables, biodégradables et présentent des propriétés mécaniques intéressantes, comme une bonne résistance à la traction et une faible densité. Les fibres de Genêt d'Espagne (GE) sont particulièrement attrayantes pour leur disponibilité et leurs propriétés mécaniques. Ces fibres sont légères, solides et présentent une bonne résistance à la traction, ce qui les rend idéales pour renforcer les matériaux composites [3].

Les biocomposites sont des matériaux composites où au moins une des phases, la matrice ou le renfort, est d'origine biologique. Ils combinent les avantages des polymères biodégradables et des fibres naturelles, offrant des performances mécaniques améliorées tout en étant respectueux de l'environnement [4]. Ces matériaux innovants trouvent des applications dans divers domaines tels que l'automobile, la construction, le conditionnement et les dispositifs médicaux, contribuant ainsi à réduire la dépendance aux ressources non renouvelables et à minimiser l'empreinte écologique. L'objectif de notre mémoire de fin de cycle consiste à élaborer et caractériser un nouveau matériau biocomposite à base de polycaprolactone (PCL) comme matrice renforcée par une fibre végétale locale (genet d'Espagne), en proposant des solutions novatrices pour le développement de matériaux durables et performant, Ce travail comporte deux parties :

La partie théorique du mémoire est divisé en trois chapitres :

Premier chapitre : se focalise sur des généralités sur les polymères biodégradables notamment la polycaprolactone.

Second chapitre : est consacré à la compréhension des fibres végétales et au domaine des

biocomposites.

Troisième chapitre : est dédié particulièrement aux rappelles bibliographiques polymères (PCL, PLA, PHBV ...) /fibres végétales.

Partie expérimentale quand elle se divise en deux chapitres :

Quatrième chapitre : décrit les différentes techniques expérimentales, matériaux utilisés et la préparation des biocomposites étudiés.

Cinquième chapitre : présent l'interprétation, et la discussion des résultats obtenus. Et on termine notre travail par la présentation des principales conclusions tirées et quelques perspectives.

Références bibliographiques

- [1] Baljit Singh and Nisha Sharma. Mechanistic implications of plastic degradation. *Polymer degradation and stability*, 93(3):561–584, 2008.
- [2] Lawrence T Drzal. *Natural fibers, biopolymers, and biocomposites*. CRC press, 2005.
- [3] Maya Jacob John and Sabu Thomas. Biofibres and biocomposites. *Carbohydrate polymers*, 71(3):343–364, 2008.
- [4] Amar Kumar Mohanty, Manjusri Misra, and LT Drzal. Sustainable bio-composites from renewable resources: opportunities and challenges in the green materials world. *Journal of Polymers and the Environment*, 10:19–26, 2002.

CHAPITRE I

Les polymères biodégradables et la polycaprolactone (PCL)

Les polymères biodégradables et la polycaprolactone (PCL)

Dans un contexte mondial de plus en plus axé sur la durabilité et la préservation de l'environnement, les polymères biodégradables émergent comme des alternatives cruciales aux matériaux synthétiques traditionnels. Parmi ces polymères, les polyesters se démarquent en raison de leur capacité à se dégrader naturellement, offrant ainsi des perspectives prometteuses pour atténuer l'impact environnemental des déchets plastiques persistants.

Ce premier chapitre se plonge dans l'univers des polymères biodégradables, avec un intérêt particulier porté sur les polyesters. En explorant ces matériaux innovants, nous jetterons un regard sur leur rôle potentiel dans la transition vers des pratiques plus respectueuses de l'environnement. Cette introduction vise à éveiller la conscience sur l'importance croissante des polymères biodégradables, jetant ainsi les bases d'une étude approfondie axée sur le renforcement du polycaprolactone (PCL) par la fibre naturelle de genêt d'Espagne. Cette approche novatrice ouvre la porte à une nouvelle génération de matériaux biocomposites conjuguant durabilité et performances mécaniques, marquant ainsi une avancée significative dans le domaine du génie des polymères.

I.1 Généralités sur les polymères biodégradables

Les polymères biodégradables sont une classe de polymères qui ont la capacité de se dégrader naturellement sous l'influence de microorganismes environnementaux, aboutissant à la formation de produits finaux non nuisibles à l'environnement. Ces matériaux offrent une alternative durable aux polymères traditionnels, qui peuvent contribuer de manière significative à la pollution plastique. Les polyesters, tels que le polylactide (PLA), les polyhydroxyalcanoates (PHA), et le polycaprolactone (PCL), font partie des polymères biodégradables les plus étudiés [1].

Ces polymères présentent des propriétés mécaniques variées et trouvent des applications dans des domaines tels que l'emballage, l'agriculture, et la médecine en raison de leur biodégradabilité et de

leur faible impact environnemental [2][3]. L'étude approfondie de ces polymères ouvre la voie à des solutions respectueuses de l'environnement et contribue à la recherche de matériaux plus durables dans diverses industries.

I.2 Classification des polymères biodégradables

Les polymères biodégradables peuvent être classés en plusieurs catégories en fonction de leur origine, de leur structure chimique et de leurs mécanismes de dégradation. Une classification courante inclut les polyesters, les polyhydroxyalcanoates (PHA), les polysaccharides et les protéines.

Le schéma ci-dessus illustre les différentes catégories de cette classe de polymères.

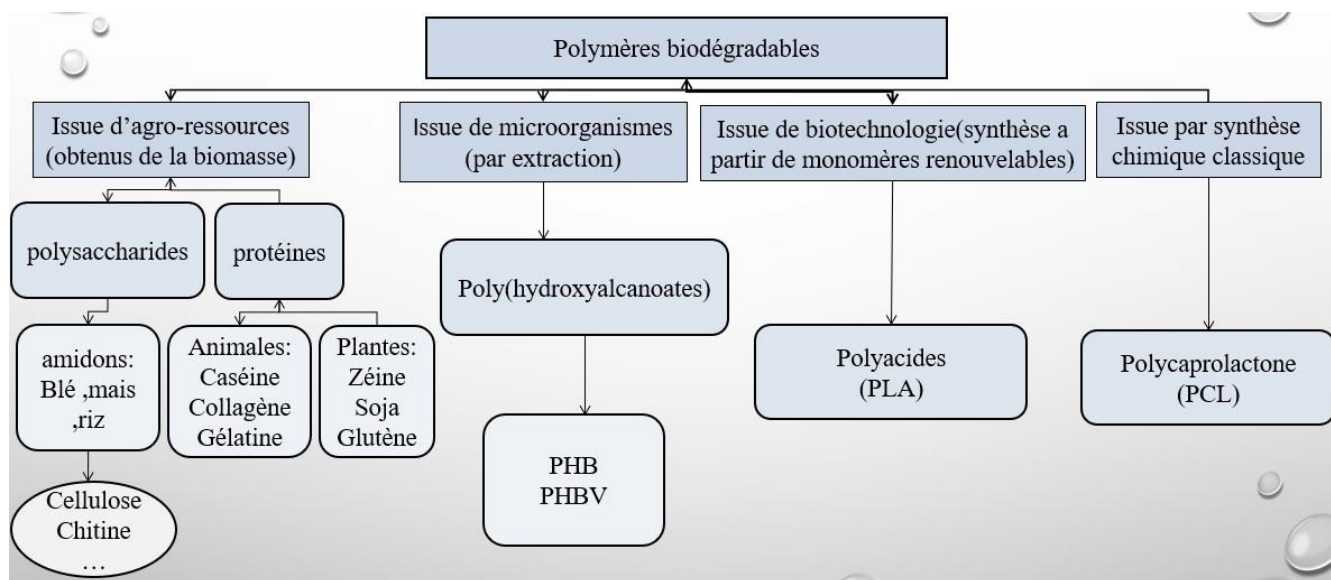


Figure I.1: Classification des polymères biodégradables [4]

I.3 La famille des polyesters

Les polyesters, du point de vue du polymériste, sont une classe fondamentale de polymères organiques présentant des motifs récurrents d'unités esters dans leur structure moléculaire. Cette configuration résulte de la polymérisation, où des acides dicarboxyliques réagissent avec des diols pour former des liaisons ester définissant ainsi la chaîne polymérique. Ces polyesters offrent une diversité de propriétés en raison de variations possibles dans la longueur de la chaîne, la nature des groupes latéraux et la symétrie de la molécule [5].

Cette diversité permet aux polyméristes de concevoir des matériaux adaptés à des applications

spécifiques. Par exemple, les polyesters peuvent être modifiés pour présenter des propriétés biocompatibles, les rendant adaptés à des applications médicales [6]. D'autres peuvent être optimisés pour des caractéristiques mécaniques, les rendant idéaux dans des applications industrielles. La compréhension approfondie des mécanismes de polymérisation, permet aux chercheurs de manipuler les propriétés des polyesters pour répondre aux exigences spécifiques de diverses industries.

I.4 Classification des polyesters

La classification des polyesters est un aspect crucial pour comprendre la diversité de cette classe de polymères. On peut catégoriser les polyesters en fonction de leurs sources, de leurs structures chimiques, de leurs propriétés physiques et de leurs applications spécifiques. Du point de vue de la source, on distingue les polyesters issus de ressources renouvelables, tels que les polyesters biodégradables dérivés de plantes, et ceux issus de sources non renouvelables, tels que les polyesters synthétiques dérivés du pétrole. Sur le plan de la structure chimique, la classification peut se baser sur les sous unités constitutives, tels que les polyesters aliphatiques, aromatiques, ou encore les copolymères. Les propriétés physiques des polyesters, tels que leur masse moléculaire et leur cristallinité, peuvent également être des critères de classification. Enfin, l'application spécifique des polyesters, que ce soit dans l'industrie textile, l'emballage ou la médecine, peut être utilisée pour les classer. Cette approche systématique de classification fournit un cadre essentiel pour la compréhension et la manipulation des polyesters en fonction des besoins spécifiques de diverses applications [6].

I.5 Structure et synthèse des polyesters

I.5.1 Structure des polyesters

La structure des polyesters est définie par des motifs esters récurrents résultant de la réaction de polycondensation entre des acides dicarboxyliques et des diols. Cette diversité structurale peut inclure des variations aliphatiques ou aromatiques, linéaires ou ramifiées en fonction des choix de monomères effectués pendant la synthèse [5].

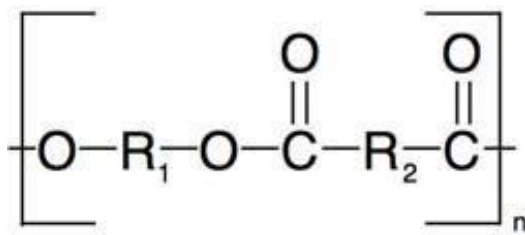


Figure I.2: Structure générale d'un polyester [5]

I.5.2 Synthèse des polyesters

La synthèse des polyesters peut être réalisée par diverses méthodes, notamment la polycondensation directe et la polymérisation par ouverture de cycle. La polycondensation directe implique la réaction directe des acides carboxyliques et des diols, tandis que la polymérisation par ouverture de cycle, telle que la polymérisation de l'anneau lactone, produit des polyesters cycliques pouvant être ouverts ultérieurement. Ces méthodes offrent un contrôle précis sur la masse moléculaire et la structure des polyesters, permettant de les adapter pour des applications spécifiques [6].

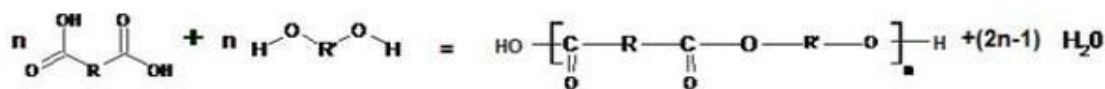


Figure I.3: Réaction de la formation d'un polyester [7]

Dans cette famille de polymères biodégradables, on distingue plusieurs polyesters, dont la polycaprolactone prend une part cruciale, car il est très utilisé dans diverses applications en raison de ses propriétés désirables.

I.6 La polycaprolactone (PCL)

La Polycaprolactone (PCL), un polyester aliphatique, occupe une place distinctive dans le panorama des polymères en raison de ses propriétés uniques et de son histoire intrigante. Ce polymère aliphatique linéaire, dérivé de la polymérisation de l'anneau lactone du caprolactone, a une histoire qui remonte aux années 1930, lorsque Wallace Carothers et ses collègues chez DuPont ont réalisé les premières expériences sur la polymérisation des lactones cycliques [8]. Toutefois, il a fallu attendre quelques années pour que le PCL fasse son entrée sur le marché commercial, et depuis lors, il a suscité un intérêt croissant en raison de sa biocompatibilité, de sa dégradabilité contrôlée et de sa flexibilité réglable [9]. Cette polyvalence a conduit à une intégration extensive du PCL dans diverses applications industrielles, notamment en biomédecine pour la fabrication d'implants, de sutures et de dispositifs de libération contrôlée, ainsi que dans des applications non biomédicales telles que les emballages

biodégradables et les revêtements [10].

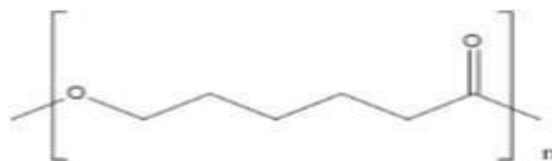


Figure I.4: Formule semi-développée du PCL [11]

La capacité du PCL à combiner des propriétés mécaniques ajustables avec une dégradation contrôlée en fait un acteur clé dans le domaine des polymères et suscite un intérêt continu pour son utilisation innovante.

I.7 Synthèse du PCL

I.7.1 Méthodes de synthèse couramment utilisées

La synthèse du PCL, un polyester aliphatique, repose sur des méthodes sophistiquées. La méthode catalytique, utilisant des catalyseurs tels que les complexes de zinc ou d'étain, offre une polymérisation contrôlée et efficace [12]. L'initiation par le métal, avec des initiateurs à base de lithium, permet de réguler la polymérisation, influençant ainsi la masse moléculaire et la distribution des masses moléculaires du PCL [13]. La polymérisation enzymatique, exploitant des lipases, se déroule dans des conditions douces, offrant une approche plus respectueuse de l'environnement.



Figure I.5: Synthèse du PCL en présence d'un catalyseur [14]

I.7.2 Influence des conditions réactionnelles sur la structure et les propriétés

Les conditions réactionnelles jouent un rôle crucial dans la synthèse du PCL, impactant la taille des chaînes polymériques, la cristallinité et la masse moléculaire. Des paramètres tels que la température, la concentration des réactifs et la nature des catalyseurs influent sur la régulation des propriétés mécaniques, thermiques et de dégradabilité du PCL [12].

I.7.3 Structure moléculaire du PCL

La structure moléculaire du PCL est caractérisée par la récurrence de motifs esters résultant de la polymérisation du caprolactone. Cette structure linéaire confère au PCL une flexibilité remarquable et une cristallinité ajustable, influencées par la méthode de synthèse et les conditions réactionnelles [12].

I.7.4 Impact de la structure sur les propriétés du PCL

L'impact de la structure sur les propriétés du Polycaprolactone (PCL) constitue un volet crucial de la compréhension de ce polyester aliphatique. La manière dont les unités monomères s'assemblent pour former la structure moléculaire du PCL influence directement ses propriétés mécaniques, thermiques, et de dégradabilité. La flexibilité remarquable du PCL, caractéristique de sa structure linéaire, est essentielle pour ses applications variées. Des travaux de recherche approfondis ont mis en évidence que la régularité de la structure moléculaire, obtenue par des méthodes de synthèse spécifiques, impacte la cristallinité du PCL, influençant ainsi ses propriétés thermiques et mécaniques [15].

La taille des chaînes polymériques, qui découle des conditions réactionnelles, contribue également à la détermination des propriétés mécaniques du PCL [12]. En outre, des modifications structurales, telles que la fonctionnalisation de surface, ont été étudiées pour ajuster les propriétés d'adhérence et de biodégradation du PCL en fonction des applications spécifiques [16]. Comprendre l'impact de la structure sur les propriétés du PCL est essentiel pour guider la conception de matériaux adaptés à des applications diversifiées.

I.8 Les propriétés physiques et mécaniques du PCL

Les propriétés physiques et mécaniques du PCL sont déterminantes pour son application dans divers domaines. Du point de vue physique, le PCL exhibe une remarquable cristallinité, qui résulte de son arrangement moléculaire régulier et de sa structure linéaire. Cette cristallinité impacte directement ses propriétés thermiques, en fournissant des points de fusion et de transition vitreuse bien définis [12]. Sur le plan mécanique, le PCL se caractérise par sa flexibilité, résultant de la mobilité des chaînes polymériques. La taille des chaînes, influencée par les conditions de synthèse, joue un rôle crucial dans la détermination de la résistance mécanique du matériau [13]. Des études approfondies ont également démontré que la modification structurale du PCL, telle que la copolymérisation avec d'autres monomères, peut ajuster ses propriétés mécaniques pour répondre à des besoins spécifiques [17]. La compréhension détaillée de ces propriétés physiques et mécaniques est essentielle pour orienter la conception de matériaux adaptés à des applications spécifiques, des dispositifs biomédicaux aux emballages durables.

Tableau I.1: Propriétés physiques et mécaniques du PCL [18]

Propriétés physiques/mécaniques	Valeurs typiques de PCL
Température de fusion (°C)	59 – 64
Température de transition vitreuse (°C)	– 60
Cristallinité (%)	40 – 60
Masse moléculaire moyenne (g/mol)	50,000 - 100,000
Densité (g/cm ³)	1.145
Module d'élasticité (MPa)	500 – 800
Résistance à la traction (MPa)	15 – 30
Allongement à la rupture (%)	500 – 800
Résistance aux UV	Faible dégradation
Biocompatibilité	Excellente
Dégradabilité	Biodégradable

I.9 Les applications du PCL

Le PCL, en raison de ses propriétés uniques, trouve une multitude d'applications dans des domaines variés, tant biomédicaux que non biomédicaux, démontrant sa polyvalence et son impact significatif.

Dans le domaine biomédical, le PCL est largement exploité pour la fabrication d'implants, de sutures et de dispositifs de libération contrôlée en raison de ses caractéristiques biomimétiques, de sa biocompatibilité et de sa dégradabilité ajustable [19]. Cette capacité à être moulé en des structures complexes en fait un matériau essentiel dans l'ingénierie tissulaire, notamment pour la régénération de tissus.

Dans des applications non biomédicales, le PCL sert à la production d'emballages biodégradables et de revêtements, contribuant ainsi à des solutions durables pour atténuer les préoccupations environnementales liées aux déchets plastiques [18]. Sa nature dégradable et ses propriétés mécaniques modulables en font un choix attractif pour des applications nécessitant une durabilité environnementale. De plus, le PCL est exploré dans le domaine de l'ingénierie des tissus pour la création de structures tridimensionnelles complexes, telles que des échafaudages pour la régénération de tissus osseux et cartilagineux [20]. Son utilisation dans des domaines tels que la médecine régénérative souligne son rôle essentiel dans la recherche de solutions thérapeutiques novatrices.

Le tableau ci-dessous résume les quelques principales applications du PCL :

Tableau I.2: Principales applications du PCL

Applications du PCL	Domaines d'Application
Biomédical	Implants Sutures Dispositifs de libération contrôlée Ingénierie tissulaire.
Non biomédical	Emballages biodégradables Revêtements environnementaux.

La souplesse intrinsèque du PCL en fait un matériau attrayant, mais pour certaines applications spécifiques, renforcer ses propriétés mécaniques devient impérative. Une approche courante pour surmonter cette souplesse consiste à intégrer des fibres naturelles au PCL.

Ces fibres naturelles agissent comme des renforts, améliorent la résistance et la rigidité du biocomposite résultant tout en conservant les avantages intrinsèques de la biocompatibilité et de la dégradabilité du PCL. L'utilisation de fibres naturelles, telles que la Genêt d'Espagne, la jute, le lin ou le chanvre, offre une solution efficace pour répondre aux exigences de diverses applications, de la fabrication de dispositifs biomédicaux à des applications structurelles dans le domaine de l'ingénierie.

Cette approche combinée exploite sur les avantages respectifs du PCL et des fibres naturelles, créant ainsi des matériaux biocomposites offrant un équilibre optimal entre flexibilité et résistance.

Références bibliographiques

- [1] Yajie Zhong, Patrick Godwin, Yongcan Jin, and Huining Xiao. Biodegradable polymers and green-based antimicrobial packaging materials: A mini-review. *Advanced Industrial and Engineering Polymer Research*, 3(1):27–35, 2020.
- [2] Majid Jamshidian, Elmira Arab Tehrany, Muhammad Imran, Muriel Jacquot, and Stéphane Desobry. Poly-lactic acid: production, applications, nanocomposites, and release studies. *Comprehensive reviews in food science and food safety*, 9(5):552–571, 2010.
- [3] Michel Vert, Yoshiharu Doi, Karl-Heinz Hellwich, Michael Hess, Philip Hodge, Przemyslaw Kubisa, Marguerite Rinaudo, and François Schué. Terminology for biorelated polymers and applications (iupac recommendations 2012). *Pure and Applied Chemistry*, 84(2):377–410, 2012.
- [4] L Averous and N Boquillon. Biocomposites based on plasticized starch: thermal and mechanical behaviours. *Carbohydrate polymers*, 56(2):111–122, 2004.
- [5] Wallace H Carothers. Studies on polymerization and ring formation. i. an introduction to the general theory of condensation polymers. *Journal of the American Chemical Society*, 51(8):2548–2559, 1929.
- [6] Tadeusz Biela, Adam Kowalski, Jan Libiszowski, Andrzej Duda, and Stanisław Penczek. Progress in polymerization of cyclic esters: mechanisms and synthetic applications. In *Macromolecular symposia*, volume 240, pages 47–55. Wiley Online Library, 2006.
- [7] A Bendak and SM El-Marsafi. Effects of chemical modifications on polyester fibres. *Journal of Islamic Academy of Sciences*, 4(4):275–284, 1991.
- [8] Sambha'A Lionel. *Contribution à l'étude de la structure et de la texture du PLA: Effet de la dégradation hydrothermale*. PhD thesis, Université de Haute Alsace-Mulhouse, 2011.
- [9] Shiro Kobayashi, Hiroshi Uyama, and Shunsaku Kimura. Enzymatic polymerization. *Chemical reviews*, 101(12):3793–3818, 2001.
- [10] Marta P Alves, Ana L Scarrone, Marcos Santos, Adriana R Pohlmann, and Sílvia S Guterres. Human skin penetration and distribution of nimesulide from hydrophilic gels containing

- nanocarriers. *International journal of pharmaceutics*, 341(1-2):215–220, 2007.
- [11] R Andini, MI Sulaiman, AH Umam, M Olivia, HJ Endres, et al. Biopolymer nanocomposites: their mechanical, thermal, and gas barrier properties for food packaging. In *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, volume 667, page 012067. IOP Publishing, 2021.
- [12] Olivier Coulembier, Philippe Degée, James L Hedrick, and Philippe Dubois. From controlled ring-opening polymerization to biodegradable aliphatic polyester: Especially poly (β -malic acid) derivatives. *Progress in Polymer Science*, 31(8):723–747, 2006.
- [13] Christine Jérôme and Philippe Lecomte. Recent advances in the synthesis of aliphatic polyesters by ring-opening polymerization. *Advanced drug delivery reviews*, 60(9):1056–1076, 2008.
- [14] RA Ilyas, MYM Zuhri, Mohd Nor Faiz Norrrahim, Muhammad Syukri Mohamad Misenan, Mohd Azwan Jenol, Sani Amril Samsudin, NM Nurazzi, MRM Asyraf, ABM Supian, Sneha Punia Bangar, et al. Natural fiber-reinforced polycaprolactone green and hybrid biocomposites for various advanced applications. *Polymers*, 14(1):182, 2022.
- [15] Yongqiang Ming, Zhiping Zhou, Shuihua Zhang, Yangyang Wei, Tongfan Hao, and Yijing Nie. Molecular simulation of crystallization of polymers confined in cylindrical nanodomain. *Polymer*, 206:122818, 2020.
- [16] Debasish Mondal, May Griffith, and Subbu S Venkatraman. Polycaprolactone-based biomaterials for tissue engineering and drug delivery: Current scenario and challenges. *International Journal of Polymeric Materials and Polymeric Biomaterials*, 65(5):255–265, 2016.
- [17] Shaodong Hu, Quan Zhao, Yapeng Niu, Canxuan Luo, Zhixuan Zhang, Bin He, and Hui Hao. Synthesis, characterization, thermal stability, and in vitro and in vivo degradation study of polycaprolactone and polyglycolide block copolymers. *Journal of Biomaterials Science, Polymer Edition*, 34(3):302–314, 2023.
- [18] Maria Ann Woodruff and Dietmar Werner Hutmacher. The return of a forgotten polymer—polycaprolactone in the 21st century. *Progress in polymer science*, 35(10):1217–1256, 2010.
- [19] Pathiraja A Gunatillake, Raju Adhikari, and N Gadegaard. Biodegradable synthetic polymers for tissue engineering. *Eur Cell Mater*, 5(1):1–16, 2003.
- [20] Nima Ghavidel Mehr. *Highly Structured and Surface Modified Poly (ϵ -Caprolactone) Scaffolds Derived from Co-Continuous Polymer Blends for Bone Tissue Engineering*. PhD thesis, École Polytechnique de Montréal, 2014.

CHAPITRE II

Les fibres végétales et les
matériaux biocomposites

Les fibres végétales et les matériaux biocomposites

Le secteur des fibres végétales est actuellement en expansion, offrant de multiples opportunités dans divers secteurs industriels.

Les fibres végétales suscitent un intérêt croissant en raison de leurs nombreux avantages environnementaux, techniques, économiques et médicaux, créant ainsi des perspectives prometteuses pour les industries. Ces fibres, issues de cultures agricoles à travers le monde, se distinguent par leur polyvalence d'utilisation. Bien que traditionnellement employées dans des secteurs tels que le textile pour la fabrication de cordes, de tapis, de sacs, et dans l'industrie papetière, elles ont étendu leur influence à de nouveaux domaines comme l'automobile, la construction et les géotextiles [1].

Dans ces nouveaux secteurs, les fibres végétales offrent aux industriels la possibilité de créer des matériaux présentant des performances techniques supérieures à celles des matériaux traditionnels, soulignant ainsi leur adaptabilité et leur capacité à répondre aux exigences spécifiques de certaines applications. Cette diversification d'utilisation témoigne de l'évolution constante du rôle des fibres végétales dans l'industrie contemporaine, où elles contribuent à la création de matériaux innovants répondant aux besoins actuels en matière de durabilité et de performances [2].



Figure II.1: Photo montrant l'extraction d'une fibre végétale

II.1 Présentation d'une fibre végétale

La fibre végétale se présente comme une structure biologique fibrillaire, constituée principalement de cellulose, d'hémicellulose et de lignine, avec une proportion relativement réduite d'éléments extractibles non azotés, de matières protéiques brutes, de lipides et de matières minérales. Le rapport de ces constituants dépend en grande partie de l'espèce, de l'âge et des organes de la plante [2]

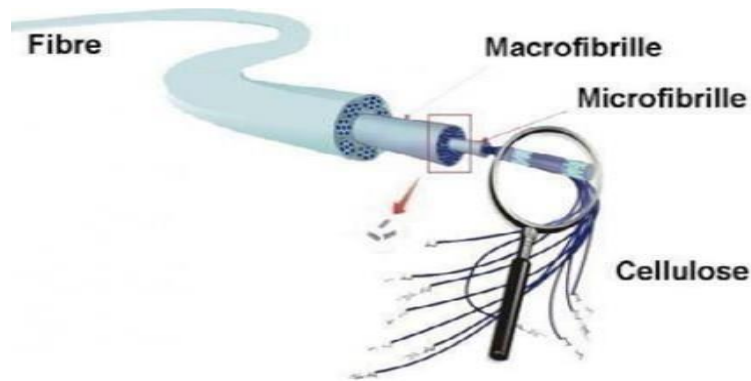


Figure II.2: Structure d'une fibre végétale

II.2 Classification des fibres végétales

Les fibres végétales sont classées en fonction de divers critères discutés dans ce qui suit.

II.2.1 Selon l'organe de la plante

Les fibres végétales produites à l'échelle mondiale sont nombreuses et diversifiées. Elles proviennent de 4 grandes origines dans les plantes, ainsi elles peuvent être classées en fibres de tiges ou troncs (Genet d'Espagne, Jute, Lin, Ramie, etc.), de feuilles (Sisal, Abaca, etc.), de fruits (Noix de Coco) et de graines (Coton, Kapok, etc) [3].

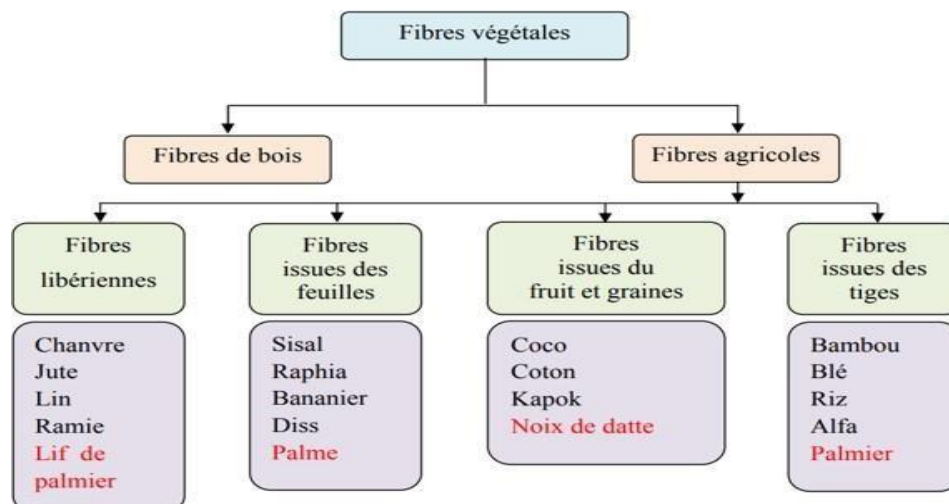


Figure II.3: Classification des différentes fibres végétales en fonction de leurs origines [4]

II.2.2 Selon la teneur en cellulose, en hémicellulose et en lignine

On peut classifier les fibres végétales en deux catégories distinctes en fonction de leur nature et de leurs propriétés intrinsèques :

-Fibre Ligneuse

Ces fibres présentent une texture dure et rigide, provenant principalement de matériels ligneux tels que le bois d'œuvre et les résidus de l'industrie du bois. Leur composition est caractérisée par une teneur élevée en lignine, conférant à ces fibres une résistance structurelle significative [5].

-Fibre non ligneuse

Ces fibres se distinguent par leur texture douce et souple, dérivant de végétaux non ligneux, souvent annuels et relativement moins riches en lignine. Parmi les exemples notables, on trouve le genêt d'Espagne, le kénaf, le chanvre, le sisal, le jute, le lin, entre autres [5]. Ces fibres non ligneuses sont caractérisées par leur flexibilité et leur adaptabilité, les rendant idéales pour diverses applications industrielles et artisanales.

Cette distinction entre fibres ligneuses et non ligneuses offre un aperçu plus détaillé des caractéristiques spécifiques de chaque type, ouvrant ainsi la voie à une compréhension approfondie de leur utilisation potentielle dans la création de composites et de matériaux innovants.

II.2.3 Selon la longueur de la fibre

Les fibres végétales se démarquent par leur morphologie, caractérisée par leur finesse et leur forme allongée par rapport à leur diamètre. Ces fibres, qui varient généralement entre 10 mm et 150 mm en longueur avec un diamètre compris entre 10 μm et 50 μm , exhibent un rapport longueur sur diamètre (L/D) situé entre 10 et 100 [5].

La diversité des fibres végétales inclut des spécimens tels que le sisal, la ramie, le bois, le bambou, le coton, le Kenaf, le chanvre, et introduit également le Genêt d'Espagne dans cette classification. La nature spécifique de chaque fibre, dictée par son origine, souligne son potentiel d'utilisation dans différents secteurs industriels.

Tableau II.1: Classification des fibres selon leurs longueurs

Catégorie	Exemples de Fibres
Fibres longues	Tiges et écorces de plantes annuelles, feuilles, troncs d'arbres, enveloppes de fruits, etc. (sisal, lin, jute, Genêt d'Espagne)
Fibres courtes	Étoupes associées aux fibres longues (coco, abaca, ramie)

II.3 Composition chimique des fibres végétales

La composition chimique des fibres végétales est principalement dominée par la cellulose, mais elle comprend également des proportions variables de lignine, d'hémicellulose, de protéines et en faibles quantités les pectines, les pigments et les extractibles.

Cette composition chimique est influencée par divers facteurs, tels que l'origine botanique de la plante, les conditions de croissance, le climat, l'âge de la plante, ainsi que la partie de la plante à partir de laquelle les fibres sont extraites (feuilles, tiges, fruits, etc.) [6].

Tableau II.2: Composition chimique de quelques fibres végétales [7][8]

Fibres	Cellulose (%)	Lignine (%)	Hémicellulose (%)	Pectine (%)
Genêt d'Espagne	44,5	18,5	16,3	13,3
Jute	70	18	14	2
Coton	93	1	3	3
Lin	71	2	19	1
Ramie	75	1	15	2
Sisal	73	17	13	1
Alfa	45	24	24	-

-La cellulose

La cellulose est largement reconnue comme le polymère renouvelable le plus abondant sur terre. Sa structure organisée se compose de microfibrilles liées ensemble pour former des fibres de cellulose. Cette macromolécule est un polysaccharide linéaire constitué d'unités de D-glucopyranose reliées par des liaisons β -(1,4)-glycosidiques.

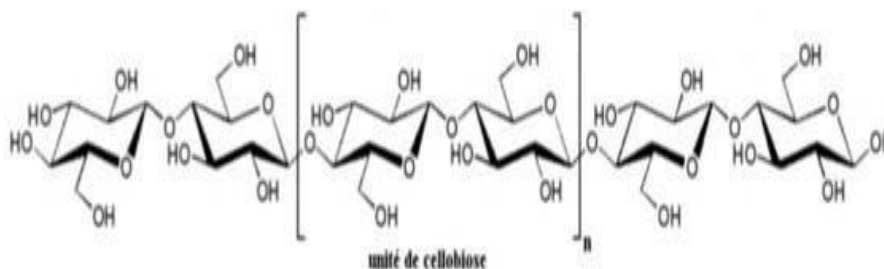


Figure II.4: Structure chimique de la cellulose [9]

Les chaînes de cellulose s'assemblent en microfibrilles, souvent décrites comme des chaînes de cristaux de cellulose associées à des domaines amorphes, par opposition à d'autres composants

des fibres qui présentent une structure amorphe.

Cette organisation confère à la cellulose une structure largement cristalline, lui attribuant ainsi le module d'élasticité le plus élevé parmi les constituants des fibres.

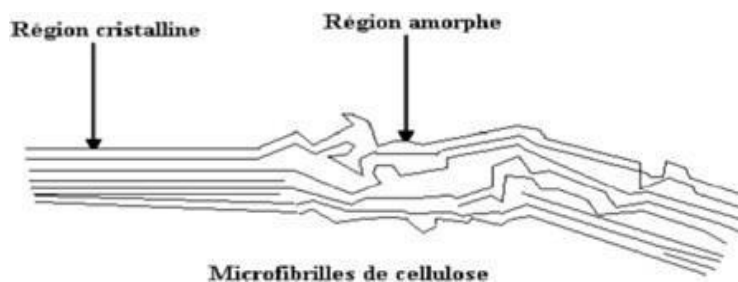


Figure II.5: Morphologie d'une micro-fibrille cellulosique [10]

-L'hémicelluloses

Les Hémicelluloses sont, par définition, les polysaccharides solubles dans l'eau et pouvant être extraits de la paroi des cellules végétales par des solutions alcalines. Ce sont des polysaccharides amorphes, de masse moléculaire plus faible que celle de la cellulose. Elles sont composées de sucres neutres : xylose, arabinose, galactose, glucose, mannose, et d'acides uroniques [11][12].

Ils sont constitués d'une chaîne principale composée d'unités de glucose liées en $\beta(1-4)$ et de courtes chaînes latérales composées de xylose, galactose et fucose [12].

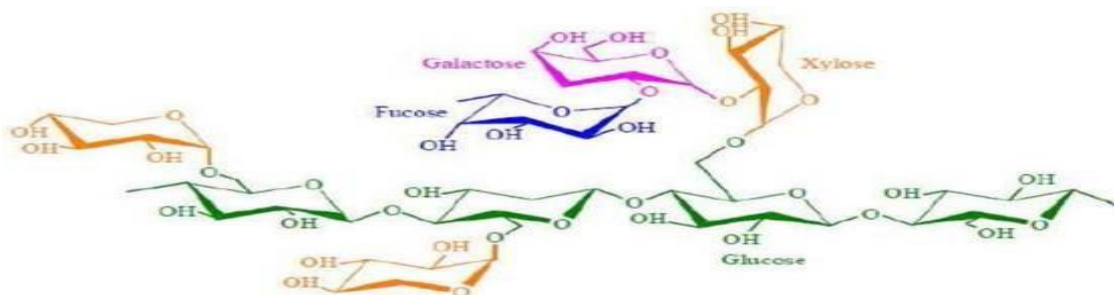


Figure II.6: Structure d'un xyloglucane [12]

-La lignine

La lignine, deuxième substance organique renouvelable la plus abondante sur Terre après la cellulose, constitue environ 15 à 30% de la composition des végétaux. Elle confère rigidité et dureté aux bois et aux plantes, et elle présente une faible susceptibilité à la dégradation biologique. En formant une barrière morphologique contre la pénétration et la propagation des agents pathogènes, la lignine contribue à la protection naturelle des végétaux contre certaines attaques parasitaires [12].

Les lignines, polymères tridimensionnels, résultent de la polymérisation radicalaire de trois alcools phénylpropénoïques : l'alcool coumarylique, l'alcool coniférylique et l'alcool sinapylique.

La structure de la lignine varie en fonction de l'espèce végétale, comme illustré dans le Schéma II.7 [12].

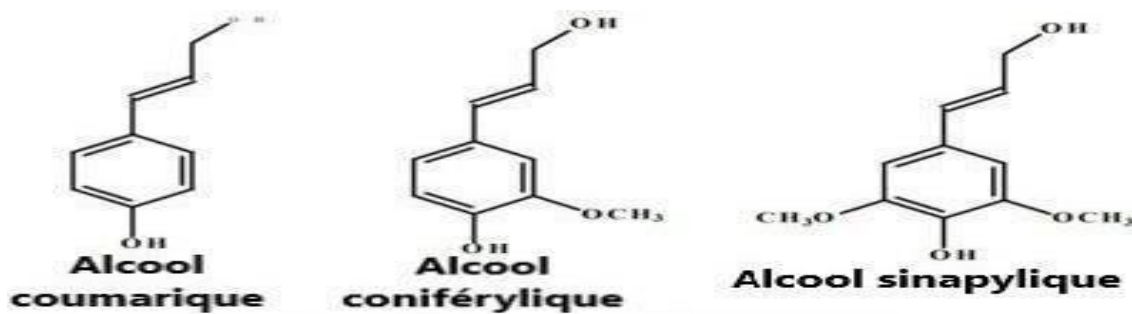


Figure II.7: Présentation des trois alcools composant la lignine [13]

II.4 Méthodes d'extraction des fibres végétales

-Méthodes d'extraction mécanique

Les méthodes d'extraction mécanique impliquent l'utilisation de forces physiques pour séparer les fibres des autres composants de la plante [14]. Elles comprennent :

- **Rouissage** : processus consistant à immerger les plantes dans l'eau pour favoriser la décomposition des tissus non fibreux, suivi de la séparation mécanique des fibres.
- **Décorticage** : utilisation de machines pour séparer les fibres des tiges ou des coques des plantes.
- **Battage** : action de frapper les plantes pour libérer les fibres des tiges.
- **Cardage** : utilisation de peignes pour démêler et aligner les fibres.

-Méthodes d'extraction chimique

Les méthodes d'extraction chimique font appel à l'utilisation de produits chimiques pour dissoudre les composants non fibreux des plantes et isoler les fibres [15]. Elles incluent :

- **Hydrolyse alcaline** : traitement des fibres avec une solution alcaline pour dissoudre les composants non fibreux.
- **Oxydation** : utilisation d'agents oxydants comme le peroxyde d'hydrogène pour éliminer les hémicelluloses et les composés non cellulaires.
- **Acidification** : utilisation d'acides pour dissoudre les composants non fibreux des plantes.

-Méthodes d'extraction enzymatique

Les méthodes d'extraction enzymatique font intervenir l'utilisation d'enzymes pour dégrader les parois cellulaires des plantes et libérer les fibres. Elles nécessitent souvent une combinaison d'enzymes pour une dégradation efficace [16].

-Méthodes d'extraction thermique

Les méthodes d'extraction thermique impliquent l'application de chaleur pour faciliter l'extraction des fibres [17]. Elles comprennent :

- **Chauffage à la vapeur** : ramollissement des tissus non fibreux pour faciliter l'extraction des fibres.
- **Pyrolyse** : exposition des plantes à des températures élevées en l'absence d'oxygène pour décomposer les composants non fibreux.
- **Torréfaction** : utilisation de chaleur modérée pour sécher et dégrader les composants non fibreux.

II.5 Avantages et inconvénients des fibres végétales

-Avantages des fibres végétales

- **Renouvelabilité** : les fibres végétales sont produites à partir de matières premières renouvelables telles que le coton, le lin, le chanvre, le jute, etc. Leur production ne dépend pas de l'épuisement des ressources naturelles non renouvelables, ce qui en fait une option durable [18].
- **Biodégradabilité** : contrairement aux fibres synthétiques comme le polyester et le nylon, les fibres végétales sont biodégradables. Elles se décomposent naturellement dans l'environnement, réduisant ainsi l'accumulation de déchets plastiques et contribuant à la protection de l'écosystème [14].
- **Faible impact environnemental** : la production de fibres végétales nécessite généralement moins d'eau, d'énergie et de produits chimiques que la production de fibres synthétiques. De plus, les cultures de fibres végétales peuvent souvent être cultivées de manière biologique, réduisant ainsi l'utilisation de pesticides et d'engrais chimiques [19].
- **Respirabilité et confort** : les textiles fabriqués à partir de fibres végétales comme le coton et le lin sont réputés pour leur respirabilité et leur confort. Ils permettent à l'air de circuler autour du corps, aidant à réguler la température corporelle et à prévenir l'accumulation de sueur [20].
- **Polyvalence** : les fibres végétales sont polyvalentes et peuvent être utilisées dans une variété d'applications, allant des vêtements et des textiles d'ameublement aux matériaux de construction et aux emballages. Leur adaptabilité les rend attrayantes pour de nombreux secteurs industriels [21].

-Inconvénients des fibres végétales

- **Résistance à l'humidité** : certaines fibres végétales, comme le coton, ont tendance à absorber l'humidité, ce qui peut entraîner un rétrécissement et un froissement des textiles dans des conditions humides. Cela peut limiter leur utilisation dans certaines applications [22].
- **Résistance à l'usure** : comparées aux fibres synthétiques, certaines fibres végétales peuvent avoir une résistance à l'usure inférieure, les rendant moins durables dans certaines conditions d'utilisation, comme dans les applications industrielles et sportives [23].
- **Dépendance aux conditions de croissance** : la qualité et les propriétés des fibres végétales peuvent être influencées par les conditions de croissance des plantes, telles que le sol, le climat et les pratiques agricoles. Des variations dans ces conditions peuvent entraîner des variations de qualité des fibres [24].
- **Traitement chimique nécessaire** : certains processus de transformation des fibres végétales, tels que le blanchiment et la teinture, nécessitent l'utilisation de produits chimiques potentiellement nocifs pour l'environnement et la santé humaine. Des pratiques de transformation respectueuses de l'environnement sont donc nécessaires pour minimiser cet impact.

II.6 Le Genêt d'Espagne (*Spartium Junceum* - Tertak)

Le genêt d'Espagne, scientifiquement connu sous le nom de *Spartium junceum*, est un arbuste appartenant à la famille des Fabaceae. Il est indigène dans les régions de l'Afrique du Nord, de l'Europe méridionale et de l'Asie du Sud-Ouest.

Cette plante se distingue par ses tiges vertes cylindriques et ses fleurs jaunes parfumées, qui fleurissent généralement au printemps et en été [25].



Figure II.8: Image montrant les tiges (1) et les fleurs du Genêt d'Espagne (2)

II.6.1 Culture

Le GE, un arbuste adaptable, prospère dans un sol léger et bien drainé, avec une faible teneur en matières organiques. Il nécessite une exposition abondante à la lumière du soleil et s'épanouit dans un

climat chaud ou tempéré. Une taille régulière après la floraison est recommandée pour encourager la régénération et maintenir sa forme compacte. Sa culture est relativement simple et peut être réalisée par semis ou bouturage [25].

Tableau II.3: Caractéristiques générales des fibres du GE [5]

Caractéristiques	Longueur de la fibre technique (mm)	Diamètre (μm)	Module De Young (GPa)	Déformation maximale (%)
Genêt d'Espagne	50-120	5-10	22	2.5-12

II.6.2 Caractéristiques botaniques

Le GE est un arbuste à feuilles caduques, ce qui signifie qu'il perd ses feuilles saisonnièrement. Ses feuilles sont réduites à de petites écailles et sa photosynthèse principale se produit dans ses tiges vertes. Les fleurs du GE sont papilionacées, jaunes et très parfumées, attirant les insectes pollinisateurs tels que les abeilles [26].

II.6.3 Utilisations

potentielles- Renfort

Les fibres sont utilisées pour des applications techniques de renforcement des composites. En effet, dernièrement, quelques études ont utilisé des fibres de GE comme renfort de polymères thermoplastiques [27][28].

Ornement

Le GE est souvent cultivé comme plante ornementale dans les jardins en raison de sa floraison spectaculaire et de son parfum enivrant. Ses fleurs jaune vif ajoutent de la couleur et de la beauté aux espaces paysagers [29].

Environnementale

En raison de sa capacité à fixer l'azote atmosphérique dans le sol, le GE est également utilisé dans la lutte contre l'érosion et la dégradation des sols. Il peut être planté pour restaurer les sols dégradés et pour améliorer la fertilité du sol [30].

II.6.4 Importance économique

Bien que le GE ne soit pas largement cultivé à des fins commerciales, son importance économique réside dans ses utilisations potentielles dans les domaines de l'ornementation paysagère et de la médecine

traditionnelle. De plus, sa contribution à l'amélioration de la qualité des sols dans les zones affectées par l'érosion peut avoir un impact économique indirect significatif.

Après avoir découvert les secrets des fibres végétales, nous entamons maintenant une nouvelle étape pleine d'idées géniales. Notre plongée dans les caractéristiques des fibres, notamment celles du GE, ouvre la porte à des applications pratiques et innovantes. En passant de la théorie à l'action, nous explorons comment ces fibres peuvent réellement transformer le monde des biocomposites.

II.7 Les matériaux biocomposites

II.7.1 Définition

Un matériau biocomposite est un matériau constitué de l'association de deux ou plusieurs composants dont au moins l'un est d'origine biologique ou biosourcée. Ces composants sont sélectionnés pour leurs propriétés complémentaires, permettant ainsi d'obtenir un matériau final dont les performances sont améliorées par rapport à celles des composants pris individuellement. Typiquement, un biocomposite est composé d'une matrice polymère biosourcée et de renforts naturels tels que des fibres végétales ou des particules de cellulose. La matrice assure la cohésion du matériau, tandis que les renforts fournissent la résistance mécanique nécessaire [31].

II.7.2 Composants

Les principaux constituants sont le renfort et la matrice. Le renfort a pour rôle d'apporter au matériau composite ses performances mécaniques élevées. La matrice, qu'on appelle aussi liant, son rôle est de transmettre aux fibres les sollicitations mécaniques extérieures et de protéger les fibres vis-à-vis des agressions extérieures [32].

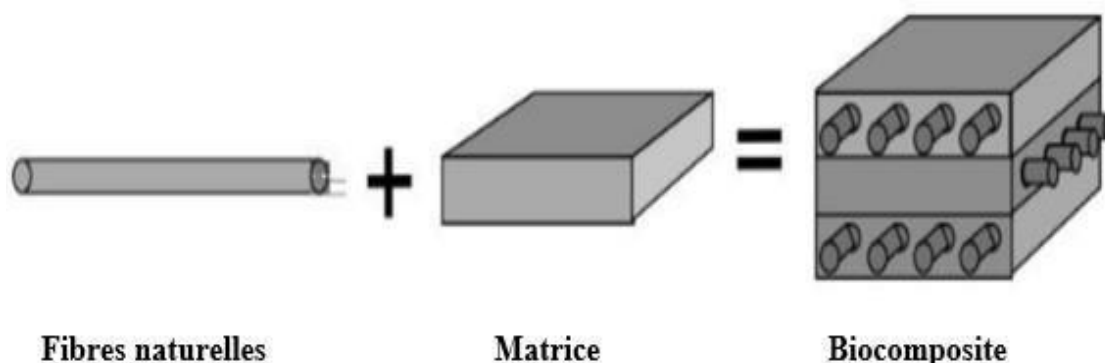


Figure II.9: Exemple de composition d'un matériau biocomposite

Matrice

Il s'agit de la phase continue du matériau, qui enveloppe et lie les renforts entre eux. La matrice est généralement un polymère biosourcé ou biodégradable, mais elle peut également être un polymère synthétique. Elle assure la cohésion et la résistance globale du matériau [33].

Renfort

Il s'agit de la phase discontinue du matériau, également appelée matériau renforçant. Les renforts sont généralement des fibres naturelles, telles que les fibres végétales (par exemple, fibres de lin, de chanvre, de jute) ou des particules naturelles (par exemple, particules de bois, de cellulose). Les renforts confèrent au matériau ses propriétés mécaniques améliorées, telles que la résistance à la traction et la rigidité [33].

II.7.3 Adhésion des interfaces (matrice/fibre) d'un composite**Interface**

L'interface dans les composites polymères renforcés de fibres désigne la région où la matrice polymérique interagit avec les fibres. Elle joue un rôle crucial dans la détermination des propriétés mécaniques et de la durabilité du matériau composite. Cette zone d'interaction peut être caractérisée par sa composition chimique, la morphologie de la surface, et les interactions intermoléculaires entre la matrice et les fibres. Des études approfondies de l'interface sont essentielles pour comprendre et améliorer les performances globales des composites [34].

L'adhésion

L'adhésion dans les composites polymères renforcés de fibres se réfère à la qualité de la liaison entre la matrice polymérique et les fibres. Elle est cruciale pour déterminer les propriétés mécaniques et la résistance globale du matériau composite. L'adhésion peut être mécanique, impliquant un engagement physique entre la matrice et les fibres, ou chimique, résultant d'interactions moléculaires spécifiques. Les mécanismes d'adhésion, les traitements de surface et les facteurs environnementaux sont des éléments clés à considérer pour optimiser cette propriété dans la conception des composites [35].

II.7.4 Les différents types de biocomposites**-Les biocomposites à base de matrice synthétique et de fibre végétale**

Les biocomposites à base de matrice synthétique et de fibre végétale sont des matériaux composites où la matrice est constituée de polymères synthétiques tels que le polypropylène et la fibre est d'origine végétale, comme la fibre de jute. Ces composites combinent les avantages

des propriétés mécaniques des fibres végétales avec la stabilité et la durabilité des matrices synthétiques [36].

-Les biocomposites à base de matrice biosourcée et de fibre synthétique

Les biocomposites à base de matrice biosourcée et de fibre synthétique intègrent des matrices dérivées de ressources renouvelables, telles que l'amidon de maïs, avec des fibres synthétiques comme le polyéthylène. Cette combinaison vise à allier les propriétés écologiques des matrices biosourcées avec les caractéristiques mécaniques des fibres synthétiques [37].

-Les biocomposites à base de matrice biosourcée et de fibre végétale

Les biocomposites à base de matrice biosourcée et de fibre végétale sont des matériaux composites qui utilisent des matrices biosourcées, telles que le PLA (acide polylactique), associées à des fibres végétales comme le lin. Ces composites visent à offrir une alternative écologique en utilisant des matières premières renouvelables pour les matrices et les fibres [38].

II.7.5 Procédés de mise en œuvre des matériaux biocomposites -

-Moulage par injection

Le moulage par injection est l'un des procédés les plus couramment utilisés pour la fabrication de pièces en matériaux biocomposites. Ce processus implique la fusion du polymère renforcé par des fibres et son injection dans un moule sous haute pression. Il permet de produire des pièces de formes complexes avec une distribution homogène des fibres. Cependant, il peut nécessiter des équipements spécifiques et des paramètres de traitement adaptés aux matériaux biocomposites [39].

-Compression et thermo-compression

La compression et la thermo-compression sont des procédés de mise en forme qui impliquent l'application de pression et de chaleur sur un matériau biocomposite préformé. Ces techniques sont souvent utilisées pour fabriquer des panneaux et des feuilles de matériaux composites. Elles offrent une bonne efficacité de production et peuvent être adaptées à une variété de matrices et de renforts [40].

-Extrusion

L'extrusion est un procédé de mise en forme continu qui consiste à faire passer un matériau biocomposite à travers une filière pour lui donner une forme spécifique. Ce processus est utilisé pour fabriquer des produits en plastique renforcé de fibres, tels que des profilés, des tubes et des films. L'extrusion offre une haute productivité et une grande flexibilité de conception pour une variété d'applications [41].

II.7.6 Les avantages et les inconvénients des matériaux

biocomposites Avantages des matériaux biocomposites [42].

- Légèreté.
- Respect de l'environnement.
- Résistance à la corrosion et aussi à la fatigue.
- Leur insensibilité aux produits comme les graisses, les liquides hydrauliques, les peintures et les solvants.
- Leur possibilité de prendre plusieurs formes.

Inconvénients des matériaux biocomposites [42].

- Coûts des matières premières et des procédés de fabrication.
- Tenue à la chaleur.

II.7.7 Les domaines d'applications des biocomposites

Tableau II.4: Principaux domaines d'application des biocomposites

Domaine d'application	Exemples d'applications
Biomédical	Implants, dispositifs de fixation, prothèses osseuses
Automobile et transports	Panneaux de porte, pare-chocs, sièges construction revêtements de façade, isolants, matériaux de structure
Emballage et produits de consommation	Emballages alimentaires, produits durables

Références bibliographiques

- [1] Pierre Bono, Camille Poutrin, and Elodie Nguyen. Matériaux à base de fibres végétales techniques: Enjeux et pratiques clés d'approvisionnement. *Pour*, 236(3):113–125, 2018.
- [2] Meriem BEDREDDINE. *Elaboration d'Agro-Composite PEHD/Farine de Genêt d'Espagne: Formulations et Caractérisations*. PhD thesis, 2015.
- [3] FRD–Troyes France. *Fibres et renforts végétaux solutions composites*. PhD thesis, 2012.
- [4] Youcef DJEBLOUN. *Contribution à la caractérisation des matériaux composites renforcés de fibres végétales*. PhD thesis, UNIVERSITE MOHAMED KHIDER BISKRA, 2018.
- [5] Amen Nenonene. *Élaboration et caractérisation mécanique de panneaux de particules de tige de kénaf et de bioadhésifs à base de colle d'os, de tannin ou de mucilage*. PhD thesis, 2009.
- [6] Mohammad Dalour Hossen Beg. *The improvement of interfacial bonding, weathering and recycling of wood fibre reinforced polypropylene composites*. PhD thesis, The University of Waikato, 2007.
- [7] Vijay Kumar Thakur. *Green composites from natural resources*. CRC Press, 2013.
- [8] Mansour Rokbi and Hocine Osmani. L'effet des traitements de surface des fibres sur les propriétés mécaniques de composites polyester-fibres alfa. In *CFM 2011-20ème Congrès Français de Mécanique*. AFM, Maison de la Mécanique, 39/41 rue Louis Blanc-92400 Courbevoie, 2011.
- [9] Rabah Ben Youcef et al. *Isolation Thermique d'Un Mortier à Base de fibres végétales*. PhD thesis, Université Mouloud Mammeri Tizi-Ouzou, 2021.
- [10] Olivier Pras. *Utilisation de cellulose pour l'élaboration de matériaux photoluminescents ou conducteurs*. PhD thesis, Université de Grenoble, 2011.
- [11] Bernard B Monties. *Les polymères végétaux: Polymères pariétaux et alimentaires non azotés*. Gauthier-Villard, 1980.
- [12] David Sedan. *Etude des interactions physico-chimiques aux interfaces fibres de chanvre/ciment: influence sur les propriétés mécaniques du composite*. PhD thesis, Limoges, 2007.

- [13] Soraya Nekkaa. *etude des proprietes d'un nouveau materiau composite à base de polypropylene renforce par une fibre vegetale locale le genêt d'espagne*. PhD thesis, 2018.
- [14] MWAIKAMBO LY. Chemical modification of hemp, sisal, jute and kapok fibers by alkalization. *J Appl Polym Sci*, 84:2222–2234, 2002.
- [15] Richard Ntenga. *Modélisation multi-échelle et caractérisation de l'anisotropie élastique de fibres végétales pour le renforcement de matériaux composites*. PhD thesis, Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II; Université de Yaoundé, 2007.
- [16] Nurfahmi, M Mofijur, Hwai Chyuan Ong, Badrul Mohamed Jan, Fitranto Kusumo, Abdi Hanra Sebayang, Hazlina Husin, Arridina Susan Silitonga, Teuku Meurah Indra Mahlia, and SM Ashrafur Rahman. Production process and optimization of solid bioethanol from empty fruit bunches of palm oil using response surface methodology. *Processes*, 7(10):715, 2019.
- [17] Tarinee Nampitch. Mechanical, thermal and morphological properties of polylactic acid/natural rubber/bagasse fiber composite foams. *Results in Materials*, 12:100225, 2021.
- [18] Lawrence T Drzal. *Natural fibers, biopolymers, and biocomposites*. CRC press, 2005.
- [19] Rachid Boughriet. Fibres végétales: de nouvelles applications prometteuses émergent. *www.Actu-Environnement.com (Octobre 2009)*, 2009.
- [20] Kim Pickering. *Properties and performance of natural-fibre composites*. Elsevier, 2008.
- [21] Omar Faruk, Jimi Tjong, and Mohini Sain. *Lightweight and sustainable materials for automotive applications*. CRC Press Boca Raton, 2017.
- [22] Victoria Gonzalez, Xingqiu Lou, and Ting Chi. Evaluating environmental impact of natural and synthetic fibers: a life cycle assessment approach. *Sustainability*, 15(9):7670, 2023.
- [23] Maya Jacob John and Sabu Thomas. Biofibres and biocomposites. *Carbohydrate polymers*, 71(3):343–364, 2008.
- [24] Kim L Pickering, MG Aruan Efendy, and Tan Minh Le. A review of recent developments in natural fibre composites and their mechanical performance. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 83:98–112, 2016.
- [25] Bedreddine Meriem. Etude et caractérisation de nouveaux bio-composites farine de genêt d'espagne-polymère biodégradables. 2020.
- [26] Oleg Polunin. *Flowers of europe. a field guide*. 1969.

- [27] Bouhank Salim and Nekkaa Sorya. Effects of chemical treatments on the structural, mechanical and morphological properties of poly (vinyl chloride)/spartium junceum fiber composites. *Cellul. Chem. Technol. Eff*, 49(3-4):375–385, 2015.
- [28] Y Nouar, S Nekkaa, Marta Fernández-García, and D López. The thermal and thermomechanical behaviors of spartium junceum flour reinforced polypropylene composites: effects of treatment and flour content. *Composite Interfaces*, 25(12):1067–1089, 2018.
- [29] Rafaël Govaerts and David G Frodin. *World checklist and bibliography of Fagales*. 1998.
- [30] Víctor Hugo Durán-Zuazo, José Ramón Francia-Martínez, Iván García-Tejero, and Simón Cuadros Tavira. Implications of land-cover types for soil erosion on semiarid mountain slopes: Towards sustainable land use in problematic landscapes. *Acta Ecologica Sinica*, 33(5):272–281, 2013.
- [31] Amar K Mohanty, Manjusri Misra, and Lawrence T Drzal. *Natural fibers, biopolymers, and biocomposites*. CRC press, 2005.
- [32] Rouam Kamila. *Elaboration, caractérisation mécanique et hygrothermique d'un stratifié renforcé par des fibres naturelles*. PhD thesis, Boumerdès, 2015.
- [33] Ronald F Gibson. *Principles of composite material mechanics*. CRC press, 2007.
- [34] V Cech, E Palesch, and J Lukes. The glass fiber–polymer matrix interface/interphase characterized by nanoscale imaging techniques. *Composites Science and Technology*, 83:22–26, 2013.
- [35] Ching Hao Lee, Abdan Khalina, and Seng Hua Lee. Importance of interfacial adhesion condition on characterization of plant-fiber-reinforced polymer composites: A review. *Polymers*, 13(3):438, 2021.
- [36] Omar Faruk, Andrzej K Bledzki, Hans-Peter Fink, and Mohini Sain. Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010. *Progress in polymer science*, 37(11):1552–1596, 2012.
- [37] Nour Mattar. *Matériaux composites biosourcés pour la construction durable*. PhD thesis, Paris 12, 2021.
- [38] Rayane CHAHBI and Yasmine KATEB. *Elaboration d'un plastique biodégradable renforcé par des fibres végétale*. PhD thesis, Université KASDI-MERBAH Ouargla, 2020.
- [39] G Rajeshkumar, S Arvinth Seshadri, GL Devnani, MR Sanjay, Suchart Siengchin, J Prakash Maran, Naif Abdullah Al-Dhabi, Ponmurugan Karuppiiah, Valan Arasu Mariadhas, N Sivarajasekar, et al. Environment friendly, renewable and sustainable poly lactic acid (pla) based natural fiber reinforced composites—a comprehensive review. *Journal of Cleaner Production*, 310:127483, 2021.

- [40] CH Park and W Il Lee. Compression molding in polymer matrix composites. In *Manufacturing techniques for polymer matrix composites (PMCs)*, pages 47–94. Elsevier, 2012.
- [41] Marko Hyvärinen, Rowshni Jabeen, and Timo Kärki. The modelling of extrusion processes for polymers—a review. *Polymers*, 12(6):1306, 2020.
- [42] LY El Hadji Babacar. Nouveaux matériaux composites thermoformables à base de fibres de cellulose. *Institut National Polytechnique de Grenoble*, 2008.

CHAPITRE III

État de l'art

État de l'art

Dans ce chapitre, nous entreprendrons une revue approfondie des travaux antérieurs consacrés à la conception et à la caractérisation de biocomposites à base de polycaprolactone (PCL) renforcée par des fibres naturelles, notre approche novatrice s'ancre dans l'utilisation du PCL. Cette orientation vise à enrichir les connaissances sur les synergies entre le PCL et diverses fibres naturelles, élargissant ainsi la compréhension des performances globales, des propriétés mécaniques, rhéologiques, etc..., spécifiquement dans le contexte du PCL. Alors que la littérature existante a exploré diverses matrices telles que le polychlorure de vinyle (PVC), le polypropylène (PP), le polyuréthane (PU), l'acide polylactique (PLA), le Polyéthylène basse densité (PEBD), nos travaux visent à apporter une contribution significative à la compréhension des synergies entre le PCL et différentes fibres naturelles. Cette transition vers le PCL offre une perspective novatrice dans le domaine des biocomposites polymériques, élargissant ainsi le spectre des matrices étudiées et ouvrant la voie à des applications plus durables et spécialisées.

Wallisson Alves da Silva et al (2021) [1], ont mené une étude sur des composites poly (acide lactique) (PLA) / poly (ϵ -caprolactone) (PCL) renforcés avec de la poudre de bois. Préparés dans une extrudeuse et moulés par injection, les composites ont été évalués pour diverses propriétés, notamment mécaniques, thermiques, et d'adhésion à l'eau. Les résultats ont montré que l'impact, la dureté Shore D, l'allongement à la rupture, et la température de déflexion à la chaleur étaient satisfaisants pour la fabrication de gobelets jetables. Bien que le module d'élasticité et la résistance à la traction aient diminué, les pertes étaient acceptables. Cette recherche démontre le potentiel d'utiliser des matériaux rejetés, réduisant les coûts et favorisant la durabilité dans la production de composites respectueux de l'environnement.

Hom Nath Dhakal et al (2020) [2], ont explorés expérimentalement des effets des rapports de forme variables (AR) des fibres de chanvre de différentes longueurs, AR_19, AR_26, AR_30 et AR_38, sur les propriétés nanomécaniques (dureté, module, élasticité et plasticité), de surface et thermiques des biocomposites fibre de chanvre/polycaprolactone (HF/PCL).

Pour ce faire, les biocomposites ont été soumis à une caractérisation approfondie impliquant la nano-indentation, l'angle de contact, l'énergie de surface, l'analyse thermogravimétrique (TGA), la conductivité thermique et la calorimétrie différentielle à balayage (DSC). Les résultats des essais de nano-indentation et de conductivité thermique mettent en lumière que l'échantillon HF/PCL avec un rapport de forme (AR₂₆) offre des performances optimales. Ces performances incluent une dureté maximale d'environ 0,107 GPa, un module élastique de 1,094 GPa, des travaux plastiques et élastiques de 1,580 et 1,210 nJ, respectivement, ainsi qu'une conductivité thermique maximale de 0,2957 W/mK, comparativement aux autres échantillons. En outre, l'échantillon optimal démontre la température de dégradation principale la plus élevée et un degré de cristallinité de 432 °C et 60,6%, respectivement. Les résultats supplémentaires concernant les énergies de surface totales et les angles de contact de ces échantillons avec du glycérol et de l'eau distillée revêtent une importance considérable pour la sélection des matériaux, la conception, la fabrication et diverses applications. Hom Nath Dhakal et son équipe ont initié cette exploration.

Siqueira D.D et al (2020) [3], ont réalisés une étude portant sur la fabrication de biocomposites en utilisant du polycaprolactone (PCL) associé à des fibres de macaíba (MF), avec une proportion de MF variant de 10% à 20%. Les fibres de MF ont été incorporées de manière naturelle ou après avoir subi un traitement chimique impliquant de l'anhydride maléique (MA), de l'hydroxyde de sodium (NaOH), et du 3-méthacryloxypropyltriméthoxysilane (Silane). Par la suite, ces biocomposites ont été soumis à une caractérisation approfondie, notamment sur les plans thermique, spectroscopique, mécanique et morphologique. Les résultats ont révélé une stabilité thermique accrue pour les biocomposites présentant une proportion plus élevée de MF. En ce qui concerne le traitement chimique, le MA a affiché les performances les plus prometteuses, tandis que le NaOH a démontré des performances plus limitées, une tendance également observée du point de vue mécanique. Les résultats des tests d'angle de contact et d'absorption d'eau ont suggéré que l'exsudation d'huile de macaíba à la surface a diminué l'interaction avec l'eau, augmentant ainsi l'angle de contact. De plus, l'ajout de MF a créé une structure plus ouverte, favorisant l'entrée d'eau. Les effets du temps et de la polarité ont facilité l'infiltration d'eau de la surface vers le cœur des biocomposites, améliorant ainsi les interactions entre la matrice PCL et les fibres de MF, conduisant à une meilleure compatibilité des biocomposites. En résumé, les biocomposites contenant 10% de fibres de macaíba, qu'elles soient naturelles ou traitées chimiquement, ont démontré le meilleur synergisme, offrant ainsi une alternative durable pour les applications de biocomposites PCL tout en contribuant aux connaissances sur les fibres de macaíba.

Zorana Kovačević et al (2019) [4], ont mené une étude approfondie sur l'utilisation des fibres de genêt d'Espagne pour renforcer la matrice de biopolymère poly(acide lactique) (PLA). Les résultats de cette recherche orientent ses futures investigations vers les applications potentielles des fibres de genêt d'Espagne et du PLA dans la fabrication de composites écologiques. L'objectif initial était de démontrer la biodégradabilité du produit développé, vérifiée par des tests de dégradation à l'aide de

l'enzyme sérine endopeptidase, montrant un effet positif avec une concentration enzymatique de 50 % en poids lors d'un traitement de 5 jours.

Parallèlement, Ils ont examiné les résidus de tiges de genêt d'Espagne, issus de la macération dans de l'eau salée et d'un traitement aux micro-ondes, pour évaluer leur potentiel en tant que matière première pour la production de biocarburants de deuxième génération. Les analyses ont révélé des propriétés énergétiques prometteuses, notamment une faible teneur en humidité (6,5 % - 7,5 %), une teneur en cendres inférieure à 5 %, ainsi que des valeurs élevées de carbone fixe et de matière volatile, respectivement de 13,2 % et 75 %. Les valeurs élevées de pouvoir calorifique mesurées (17,2 - 18,8 MJ/kg) soulignent la qualité de cette biomasse, suggérant son efficacité potentielle dans la production de biocarburants solides.

Y. Nouar et al (2018) [5], ont mené des études approfondies sur les effets de la teneur en farine de Genêt d'Espagne (GE) et du temps de traitement sur les propriétés thermiques et thermomécaniques des composites polypropylène/farine de Genêt d'Espagne (PP/GE). Afin d'améliorer l'adhérence interfaciale entre la matrice PP et la farine GE, la farine GE a été traitée au NaOH (2 % en poids) pendant 8, 24 et 48 heures à température ambiante, respectivement, et a subi un traitement au vinyltriméthoxysilane (VTMS) (5 % en poids). Les résultats de l'analyse thermogravimétrique (TGA) de la farine GE ont révélé que le traitement améliore la stabilité thermique de la farine GE. Les mesures d'analyse DSC ont montré que l'ajout de farine GE augmente le degré de cristallinité X_c , suggérant ainsi que la farine GE joue un rôle significatif dans la nucléation hétérogène de la matrice PP. Les traitements chimiques ont également eu un impact significatif sur le module de stockage du composite, avec une augmentation de E' pour les composites avec farine traitée par rapport à ceux avec farine non traitée.

L'étude menée par **N. Haddaoui et al (2017)** [6], ont porté sur la préparation et la caractérisation de composites à base de polyéthylène basse densité renforcé par différentes proportions de farine de Genêt d'Espagne, issue des tiges de l'arbuste. La charge a été traitée avec une solution d'hydroxyde de sodium (1,25 N) à diverses durées et températures. Les composites ainsi obtenus ont fait l'objet de multiples analyses, notamment sur le plan structural (Infrarouge à Transformée de Fourier IRTF), mécanique (choc, traction, dureté), rhéologique (indice de fluidité), thermique (Calorimétrie Différentielle à Balayage DSC), de densité, ainsi que des essais environnementaux portant sur l'absorption d'eau et la biodégradation.

Bouhank Salim (2017)[7], a entrepris le développement et la caractérisation d'un nouveau matériau composite à base de polychlorure de vinyle renforcé par des fibres de Genêt d'Espagne. Pour remédier à l'incompatibilité d'interface entre les fibres végétales et la matrice polymérique, deux approches ont été employées : un traitement alcalin (NaOH) et l'utilisation d'un agent de couplage, le vinyltriméthoxysilane. La première partie de la thèse a porté sur l'impact du traitement de surface des fibres de Genêt d'Espagne sur leurs propriétés structurales, physiques et thermiques. Les analyses

par diffraction des rayons X ont révélé une augmentation de l'indice de cristallinité et de la taille des cristallites des fibres après modification. La deuxième partie a été consacrée à l'étude des effets du taux de fibres et de leurs traitements sur les propriétés structurales, mécaniques, thermiques et morphologiques des composites PVC/GE. Ces traitements ont notablement amélioré les propriétés des matériaux composites.

Henry Chinedu Obasi et al (2017) [8], ont élaboré des mélanges de polycaprolactone (PCL) avec différentes teneurs en fibres de coco (CF) (2, 2,5 et 5 % en poids) par la technique de moulage par dissolution pour obtenir un composite biodégradable. Les composites PCL/CF ainsi obtenus ont été caractérisés par diffraction des rayons X (DRX), spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR), microscopie électronique à balayage (MEB) et des essais de fatigue électrodynamique. Les résultats ont montré que l'ajout de fibres de coco influençait les propriétés mécaniques et la morphologie des composites. Les motifs de DRX ont indiqué une diminution de l'intensité du pic PCL avec l'ajout de fibres de coco. Les spectres FTIR n'ont pas révélé de nouvelles interactions chimiques entre les groupes fonctionnels des fibres de coco et du polycaprolactone. Les images MEB ont suggéré un mouillage insuffisant des fibres de coco avec l'augmentation de la teneur en charges. La résistance à la traction a augmenté jusqu'à 2,5 % de fibres, puis a diminué. L'allongement à la rupture a diminué avec l'ajout de fibres, tandis que le module de Young a augmenté jusqu'à 2,5 % de fibres. Ces résultats soulignent l'influence de la teneur en fibres sur les propriétés des composites PCL/CF, mettant en évidence l'importance du mouillage et de l'adhérence interfaciale.

Sarasini, F et al (2017) [9], ont réalisé une étude dans laquelle ils ont caractérisé mécaniquement deux fibres naturelles, extraites de fruits (borassus) et de tiges (ramie), explorant leur potentiel en tant que renforts naturels dans des biocomposites à base de polycaprolactone (PCL). Les biocomposites à base de PCL, avec des teneurs en fibres naturelles variant de 10 % à 30 % en poids, ont été élaborés par compoundage à basse température. L'étude a examiné l'impact de la teneur en fibres sur la dureté, les propriétés de traction et thermiques de la matrice pure. Les résultats ont révélé que les fibres de ramie présentaient globalement une rupture cassante avec fibrillation, tandis que les fibres de borassus montraient une plus grande allongation à la rupture et une rupture ductile. Les deux types de fibres ont considérablement amélioré le comportement en traction et la cristallinité de la matrice pure. En outre, la diversité de ductilité et de résistance entre les fibres de tige et de fruit a été exploitée dans des formulations hybrides, démontrant la possibilité d'ajuster les propriétés des composites pour des applications spécifiques.

Zorana Kovačević et al (2016) [10], ont réalisé des biocomposites en renforçant le PLA avec des fibres courtes de Genêt d'Espagne orientées de manière aléatoire, dans le but d'augmenter la résistance du matériau. L'impact de différents prétraitements des fibres de GE sur les propriétés mécaniques du matériau biocomposite final a été examiné au cours de cette étude. La ténacité des fibres a été évaluée à l'aide des dispositifs Vibroscop et Vibrodyn. La résistance à la traction

du matériau biocomposite a été mesurée à l'aide de la machine d'essai universelle électromécanique Instron 5584. Les résultats indiquent que les biocomposites renforcés par des fibres modifiées avec MMT et CA présentent des propriétés mécaniques améliorées par rapport aux matériaux composites renforcés par des fibres de référence (non traitées). Les chercheurs ont également analysé les spectres infrarouges des fibres testées et des biocomposites à l'aide de la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier avec la technique d'échantillonnage par réflexion totale atténuée (FT-IR ATR) afin d'étudier l'influence des modifications des fibres sur la liaison interfaciale fibre/polymère.

G. Chidichimo et al (2015) [11], ont développé de nouvelles mousses composites en polyuréthane (PU), intégrant des proportions significatives de fibres végétales naturelles de Genêt d'Espagne en combinaison avec des polyéthylènes glycols (PEG) biodégradables. L'étude a porté sur l'analyse de la densité et des propriétés mécaniques des mousses de PU, tandis qu'une caractérisation approfondie de la morphologie de ces matériaux a été réalisée au moyen de la microscopie électronique à balayage. Les résultats démontrent la possibilité d'ajuster aisément ces propriétés en modifiant la longueur moléculaire des PEG, le rapport pondéral entre les deux principaux monomères, et la fraction d'eau ajoutée aux mélanges réactifs.

S. Mouhoubi et al (2012) [12], a procédé à l'élaboration des mats à base de fibres végétales Alfa, qu'elles soient brutes ou soumises à un traitement chimique. Les composites ont ensuite été fabriqués sous forme de sandwich par le biais du procédé de moulage au contact, utilisant la résine polyester insaturée comme matrice. Notamment, les fibres ont été soumises à un traitement alcalin avec une concentration de 5 % de NaOH pendant une durée de 6 heures. Les résultats obtenus ont révélé que le traitement chimique exerce un impact significatif sur les propriétés physiques et mécaniques des composites, ainsi que sur la nature de l'interface entre les fibres et la matrice.

Z. Marrakchi et al (2012) [13], ont ouvert la voie à une nouvelle approche en combinant les fibres d'alfa avec le polycaprolactone (PCL) par le biais de l'imprégnation, constituant ainsi une première dans ce domaine. En élaborant des films imprégnés de solutions de PCL à partir de fibres d'alfa, il a rendu possible la production continue de composites. L'observation au microscope électronique à balayage a révélé la formation de films PCL continus et homogènes. Les analyses mécaniques dynamiques ont souligné une prolongation significative du plateau caoutchouteux de la matrice vierge. De plus, la calorimétrie différentielle à balayage a indiqué une augmentation de la capacité de cristallisation de la matrice PCL avec l'augmentation de la cellulose de renfort. En conclusion, les composites produits, évalués à travers la mesure de l'angle de contact de gouttes d'eau, ont présenté une diminution notable de leur mouillabilité.

L'étude menée par **Kwang-Jea Kim et James L. White (2009)** [14], s'est concentrée sur l'évaluation des composites de poly(ϵ -caprolactone) (PCL) remplis de fibres de cellulose régénérée (RN) et de fibres naturelles (fibres de bois de pin (PW)). Les composites PCL/RN et PCL/PW ont été examinés pour leur adhérence interfaciale, leurs propriétés rhéologiques, leur morphologie, leur

nucléation et leurs propriétés mécaniques. Les résultats ont montré une meilleure adhérence interfaciale pour les composites remplis de RN par rapport à ceux remplis de PW. Avec une augmentation de la concentration des particules de RN et de PW, la viscosité dynamique, la température de cristallisation et le module d'allongement ont augmenté, tandis que la contrainte d'allongement a diminué. En outre, la viscosité des composites remplis de RN était supérieure à celle des composites remplis de PW pour des charges équivalentes. Ces constatations suggèrent que l'adhérence interfaciale entre la surface de la RN et le PCL est meilleure que celle entre la surface de la PW et le PCL.

Wei Li et al (2008) [15], ont fabriqué des biocomposites renforcés par de la fibre de soie (SF) et du poly(ϵ -caprolactone) (PCL) avec différentes proportions de fibres, par une méthode de mélange à chaud. L'ajout de fibres a renforcé les propriétés mécaniques du PCL, avec des valeurs maximales de résistance à la traction et à la flexion observées à des teneurs en fibres de 35% et 45% respectivement. L'augmentation de la teneur en fibres a entraîné une augmentation des modules de stockage et de perte, tandis que la température de transition vitreuse du PCL a diminué. L'apparition d'un plateau dans le module de stockage a indiqué la formation de structures de réseau de renforcement dans les composites SF/PCL, améliorant ainsi l'élasticité et la viscosité des composites. L'interaction entre la fibre et la matrice de PCL était modérée.

Pengju Pan et al (2007) [16], ont étudié la fabrication de biocomposites en utilisant des fibres de kenaf d'origine végétale (KF) et du poly(ϵ -caprolactone) (PCL) par la technique de mélange à chaud. Ils ont analysé le comportement de cristallisation, la morphologie, ainsi que les propriétés mécaniques et dynamiques des composites PCL/KF à différents taux de KF. Les résultats ont montré une amélioration significative du taux de cristallisation et des propriétés mécaniques par rapport au PCL pur. Par exemple, l'ajout de 30 % de KF a entraîné une augmentation de 146 % du module de traction et de 223 % du module de stockage. L'analyse morphologique par microscopie électronique à balayage a également révélé une bonne dispersion et adhérence entre le KF et le PCL. En résumé, cette recherche suggère que les fibres de kenaf pourraient être un renfort prometteur pour les composites polymères biodégradables, améliorant ainsi leurs propriétés mécaniques et leur taux de cristallisation.

Sandeep Kumar et Indra K. Varma (2006) [17], ont conduit une étude sur des composites à base de fibres de banane renforcées par des polymères thermoplastiques. Ils ont traité les fibres de banane avec différentes substances, notamment de l'hydroxyde de sodium (NaOH) à 5% et 10% pendant 4 heures, du chlorure de sébacyle (SC) pendant 4 heures (0,5 g), et du diisocyanate de toluène (TDI) pendant 4 heures (1,5 mL). Les propriétés mécaniques des fibres traitées au TDI n'ont pas été significativement affectées, tandis que le traitement à l'hydroxyde de sodium a augmenté la résistance à la traction. Cependant, le traitement au SC a entraîné une détérioration des propriétés mécaniques. Les fibres ont montré une perte de masse initiale de 6,5% à 9,5% entre 50°C et 150°C dans les études au thermogravimètre analogue (TGA), avec une perte de poids majeure au-dessus de 200°C. Les observations au microscope électronique à balayage (MEB) ont révélé une augmentation

de la rugosité de la surface après le traitement alcalin. Les composites, fabriqués avec une matrice thermoplastique de polyéthylène haute densité (PEHD) mélangé à du poly (ϵ -caprolactone) (80:20 en poids) et des fibres de banane de 1 cm, ont montré que l'augmentation de la fraction de poids des fibres de 0,05 à 0,13 a entraîné une augmentation de la résistance à la traction et du module, ainsi qu'une diminution de l'allongement à la rupture. Des tests de dégradation ont été effectués par hydrolyse enzymatique et chimique, démontrant une perte de poids significative en présence de la lipase de *Pseudomonas cepacia* (PCL).

A. Arbelaiz et al (2006) [18], ont réalisé des composites en mélangeant du thermoplastique biodégradable poly(3-caprolactone) (PCL) avec des faisceaux courts de fibres de lin. Dans le but d'améliorer l'adhérence entre les fibres et la matrice, ils ont élaboré un compatibilisant, le copolymère poly(3-caprolactone)-g-anhydride maléique (PCL-g-MA), par une réaction de greffage de l'anhydride maléique (MA) sur le polymère PCL. Les propriétés mécaniques de ces composites ont été étudiées en variant la concentration du compatibilisant et la quantité de fibres. Les résultats ont montré que les composites avec des faisceaux de fibres de lin et une matrice PCL-g-MA présentaient une résistance à la traction et à la flexion supérieure. Les analyses par microscopie électronique à balayage ont confirmé l'amélioration de l'adhérence entre les faisceaux de fibres et la matrice PCL-g-MA. L'évaluation thermique par analyse thermogravimétrique a révélé une légère diminution de la stabilité thermique avec l'ajout de fibres. La corrélation entre les propriétés mécaniques expérimentales et les modèles empiriques a montré une bonne concordance pour les composites PCL-g-MA jusqu'à 20 % de fibres, au-delà desquels la résistance expérimentale était inférieure aux prévisions.

D'après notre revue bibliographique, il s'avère que le biocomposite PCL/Genet d'Espagne n'a jamais été étudié. Cela nous a motivé à consacrer notre projet à l'étude de ce biocomposite.

Références bibliographiques

- [1] Wallisson Alves da Silva, Carlos Bruno Barreto Luna, Joao Baptista da Costa Agra de Melo, Edcleide Maria Araujo, Edson Antônio dos Santos Filho, and Raimundo Nonato Calazans Duarte. Feasibility of manufacturing disposable cups using pla/pcl composites reinforced with wood powder. *Journal of Polymers and the Environment*, 29:2932–2951, 2021.
- [2] Hom Nath Dhakal, Sikiru Oluwarotimi Ismail, Johnny Beaugrand, Zhongyi Zhang, and Jurgita Zekonyte. Characterization of nano-mechanical, surface and thermal properties of hemp fiber-reinforced polycaprolactone (hf/pcl) biocomposites. *Applied Sciences*, 10(7):2636, 2020.
- [3] DD Siqueira, CBB Luna, ESB Ferreira, EM Araújo, and RMR Wellen. Tailored pcl/macai ba fiberto reach sustainable biocomposites. *Journal of Materials Research and Technology*, 9(5):9691–9708, 2020.
- [4] Zorana Kova evi , Vanja Juri i , Mateja Grubor, Ana Matin, Tajana Kri ka, and Sandra Bischof. Spanish broom (*spartium junceum* l.)–feedstock for bioplastic and bioenergy industry. *The holistic approach to environment*, 9(3):44–52, 2019.
- [5] Y Nouar, S Nekkaa, Marta Fern andez-Garc a, and D L pez. The thermal and thermomechanical behaviors of spartium junceum flour reinforced polypropylene composites: effects of treatment and flour content. *Composite Interfaces*, 25(12):1067–1089, 2018.
- [6] Samah Ikhlef, Sorya Nekkaa, and Nacerddine Haddaoui. Effects of silane crosslinking on thermal and morphological properties of spartium junceum flour/high density polyethylene composites. *Rev. Roum. Chim*, 64(2):133–141, 2019.
- [7] Salim Bouhank. * laboration de mat riaux composites PVC/fibres de Gen t d’Espagne*. PhD thesis, Universit  Ferhat Abbas, 2017.
- [8] Henry Chinedu Obasi, Aqif Anwar Chaudhry, Kashif Ijaz, Hafsah Akhtar, and Muhammad Hamza Malik. Development of biocomposites from coir fibre and poly (caprolactone) by solvent casting technique. *Polymer Bulletin*, 75(5):1775–1787, 2018.

- [9] Fabrizio Sarasini, Jacopo Tirillò, Debora Puglia, Franco Dominici, Carlo Santulli, Kristom Boimau, Teodoro Valente, and Luigi Torre. Biodegradable polycaprolactone-based composites reinforced with ramie and borassus fibres. *Composite Structures*, 167:20–29, 2017.
- [10] Zorana Kovačević, Sandra Bischof, Edita Vujasinović, and Mizi Fan. The influence of pre-treatment of spartium junceum l. fibres on the structure and mechanical properties of pla biocomposites. *Arabian Journal of Chemistry*, 12(4):449–463, 2019.
- [11] Giuseppe Chidichimo, Armando Aloise, Amerigo Beneduci, Anna De Rango, Giovanna Pingitore, Franco Furgiuele, and Piergiorgio Valentino. Polyurethanes reinforced with spartium junceum fibers. *Polymer Composites*, 37(10):3042–3049, 2016.
- [12] Mouhoubi, S., Osmani, H., Bali, T., & Abdeslam, S. (2012). Élaboration et étude des propriétés des composites Polyester-Alfa traitée et non traitée.
- [13] Z Marrakchi, H Oueslati, MN Belgacem, F Mhenni, and E Mauret. Biocomposites based on polycaprolactone reinforced with alfa fibre mats. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 43(4):742–747, 2012.
- [14] Kwang-Jea Kim and James L White. Effects of regenerated cellulose and natural fiber on interfacial adhesion, rheology and crystallization property in ϵ -polycaprolactone compounds. *Composite Interfaces*, 16(7-9):619–637, 2009.
- [15] Wei Li, Xiuying Qiao, Kang Sun, and Xiaodong Chen. Mechanical and viscoelastic properties of novel silk fibroin fiber/poly (ϵ -caprolactone) biocomposites. *Journal of applied polymer science*, 110(1):134–139, 2008.
- [16] Pengju Pan, Bo Zhu, Tungalag Dong, Shin Serizawa, Masatoshi Iji, and Yoshio Inoue. Kenaf fiber/poly (ϵ -caprolactone) biocomposite with enhanced crystallization rate and mechanical properties. *Journal of applied polymer science*, 107(6):3512–3519, 2008.
- [17] Sandeep Kumar and Indra K Varma. Degradation studies of polycaprolactone in banana fibers reinforced thermoplastics composites. *Journal of Macromolecular Science, Part B: Physics*, 45(1):153–164, 2006.
- [18] A Arbelaiz, B Fernández, A Valea, and I Mondragon. Mechanical properties of short flax fibre bundle/poly (ϵ -caprolactone) composites: Influence of matrix modification and fibre content. *Carbohydrate Polymers*, 64(2):224–232, 2006.

CHAPITRE IV

Matériaux et méthodes

Matériaux et méthodes

Ce chapitre est consacré à la présentation des matériaux, des méthodes d'élaborations et les techniques expérimentales utilisées pour l'étude et la caractérisation des biocomposites (PCL/fibre de genêt d'Espagne). Notre étude a été réalisée dans le laboratoire des matériaux organique de l'université de Bejaia.

IV.1 Matériaux utilisés

IV.1.1 Polycaprolactone

Le polymère utilisé est le polycaprolactone (PCL CAPA 6800) sous forme de granulés de couleur blanc, avec une densité de $1,15 \text{ g/cm}^3$ et un indice de fluidité (IF=0,3 g /10 min) ces caractéristiques sont représentées dans le tableau (IV.1).

IV.1.2 Les fibres GE

La fibre utilisée dans ce travail est une fibre végétale (genêt d'Espagne) obtenu dans la région de Sétif, plus précisément dans la commune d'Ain Roua. Cette dernière est obtenue après broyage, tamisage et étuvage. Ainsi ces caractéristiques dans le tableau (IV.1).

Tableau IV.1: *Caractéristiques des matériaux utilisés*

Polycaprolactone	Genêt d'Espagne
Structure chimique : $(C_6H_{10}O_2)_n$ Masse molaire : 70 à 80 g/mol parunité monomère Température de fusion : Environ 60-65 °C	Longueur de la Fibre technique (mm) : 50-120 Diamètre (μm) : 5-10 Module De Traction (GPa) : 22 Déformation maximale (%) : 2.5-12

IV.2 Mode opératoire

IV.2.1 Partie A

La Préparation et la caractérisation des fibres de Genêt d'Espagne, illustrer dans la (Figure IV.4) .

IV.2.1.1 Récolte de l'arbuste de Genêt d'Espagne

La cueillette des fibres est réalisée pendant la période de floraison pour garantir une qualité optimale. Cette récolte a été effectuée dans la région de Sétif, plus précisément dans la commune d'Ain Roua.

IV.2.1.2 Lavage du GE

Suite à la cueillette, les tiges de Genêt d'Espagne ont été soigneusement lavées à l'eau pour les préparer à l'étape suivante du processus.

IV.2.1.3 Séchage et broyage du GE

Les tiges préalablement lavées ont été exposées à l'air libre pendant une semaine afin de réduire leur taux d'humidité. Par la suite, elles ont été coupées en petits morceaux, puis soumises à un traitement thermique à une température de 60°C pendant 24 heures. Enfin, elles ont été mécaniquement broyées à l'aide d'un broyeur de type Brabender.



Figure IV.1: *Broyage mécanique de la fibre*

IV.2.1.4 Tamisage des fibres de GE

Les tiges broyées ont été soigneusement tamisées pour garantir une uniformité dimensionnelle, en utilisant un équipement de tamisage conforme à la norme ISO 3310, spécifiquement la tamiseuse Restesch, modèle AS 200. Ce processus permet de contrôler précisément la taille des particules, assurant ainsi une granulométrie finale idéale pour nos besoins, comprise entre 40 μm et 50 μm .



Figure IV.2: Fibre de GE après tamisage

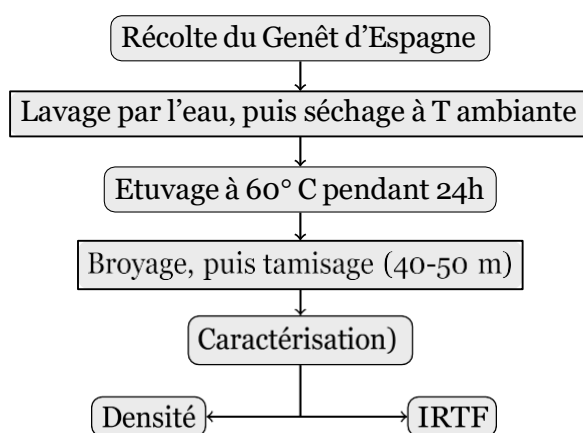


Figure IV.3: Organigrammes de la partie A

IV.2.2 Partie B

Préparation et caractérisations de PCL vierge, et ses biocomposites (PCL/GE).

Au cours de notre recherche, nous avons procédé à la fabrication de biocomposites à partir du polycaprolactone (PCL) renforcé par de la farine de genêt d'Espagne non traitée en utilisant une mini extrudeuse dont les conditions sont représentées dans le tableau (IV.2). Les différentes proportions massiques des mélanges, variant de (5% à 25 %) avec un pas de (5%), ont été soigneusement préparées

par pesée précise, puis soumises à un traitement thermique dans une étuve à 60°C pendant une heure afin de favoriser l'homogénéisation des matériaux.



Figure IV.4: *Obtention des granulées de biocomposites après extrusion*

Matière	Température	Vitesse de rotation	Temps de séjours	Force de maintien
PCL/GE	120°C	50 tr/min	5 min	33 N

Tableau IV.2: *Paramètres et consignes du travail sur l'extrudeuse.*

Ensuite, les formulations ont été transformées en utilisant une machine d'injection, toujours dans les mêmes conditions précédentes, pour produire des éprouvettes conformes à la Norme ISO 527-1 pour les essais mécaniques.



Figure IV.5: *Obtention des éprouvettes après injection*

Enfin, les extrudats biocomposites (1g) sont placés entre deux plaques d'aluminium. Un papier PTFE est intercalé entre le matériau et les plaques. A l'aide d'une presse de laboratoire des matériaux polymères avancés, composée de deux plateaux chauffants réglés à des températures légèrement supérieures à la température de fusion du matériau, des films d'épaisseurs d'environ 300 μm , pour

les plus fins, sont préparés. Ces films vont essentiellement être utilisés pour le test d'IRTF.

La (Figure IV.6) résume la partie B.

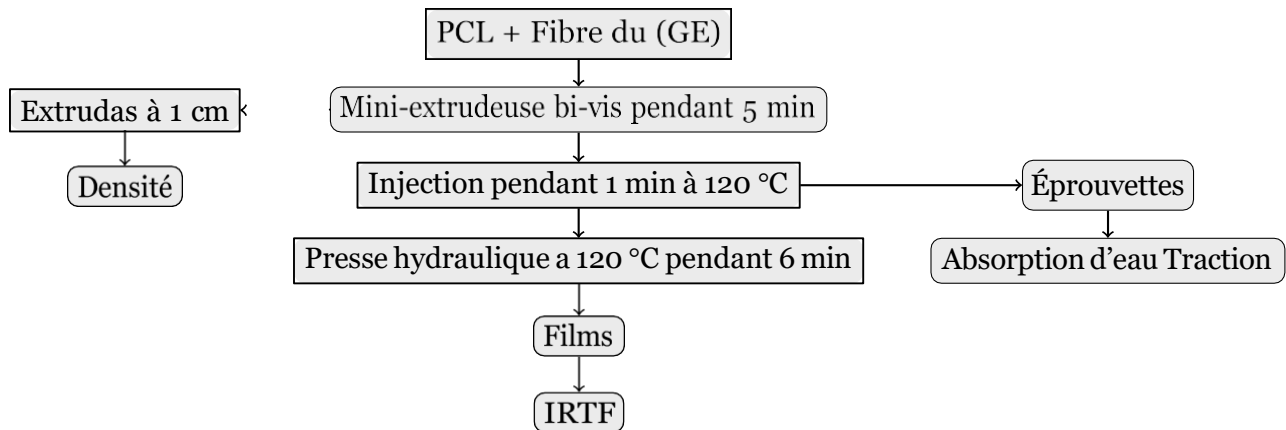


Figure IV.6: Organigrammes de la partie B

Formulation	Code	% en masse
PCL vierge	PCL	100
PCL/5% Fibre GE	F1	95/5
PCL/10% Fibre GE	F2	90/10
PCL/15% Fibre GE	F3	85/15
PCL/20% Fibre GE	F4	80/20
PCL/25% Fibre GE	F5	75/25

Tableau IV.3: Codes des formulations

IV.3 Techniques de caractérisation

Les composites ainsi élaborés ont été caractérisés comme suite :

IV.3.1 Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF)

La spectrométrie infrarouge est un outil efficace pour déterminer la composition chimique d'un produit en examinant les bandes d'absorption distinctives sur son spectre infrarouge. Chaque bande d'absorption est liée à un mode spécifique de vibration (déformation ou élongation) d'une liaison chimique interatomique, ionique ou fonctionnelle. En comparant le rayonnement incident et transmis (ou absorbé) à travers l'échantillon, il est possible de déterminer les principaux groupements chimiques présents dans l'échantillon. Les spectres infrarouges ont été obtenus à l'aide d'un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier Shimadzu IRAffinity-1, dans l'université de Bejaia.

IV.3.2 Essais de traction

La caractérisation mécanique des composites est effectuée à travers l'utilisation du test de traction,

permettant ainsi l'analyse du comportement d'un matériau soumis à une contrainte mécanique, exprimée par le module d'Young, l'allongement et la contrainte à la rupture. Ces expériences permettent d'établir une corrélation entre les contraintes appliquées et les déformations observées. Ces essais ont été réalisés au niveau de laboratoire de l'université de Sétif sur une machine de la marque « Zwick/Roell ZO50 ». Les données collectées lors du test de traction permettent de tracer la courbe contrainte-déformation du matériau. Cette courbe met en évidence le comportement mécanique du biocomposite, caractérisé par :

- Partie linéaire de la courbe, qui correspond au comportement élastique du matériau et permet de déterminer le module d'Young.
- Partie non linéaire, qui correspond au comportement plastique du matériau et permet de déterminer l'allongement à la rupture.
- Valeur maximale de la contrainte, qui correspond à la contrainte à la rupture.

Module d'Young s'exprime comme suit :

$$E = \frac{\sigma}{\epsilon} (N/m^2) \quad (IV.1)$$

Avec :

- E : Module d'élasticité.
- σ : Contrainte (N/m^2).
- ϵ : Allongement.

Contrainte à la rupture est donnée par l'expression suivante :

$$\sigma = \frac{F}{S} (N/m^2) \quad (IV.2)$$

Avec :

- F : Charge de traction supportée par l'éprouvette (N).
- S : Section initiale (m^2).

Allongement à la rupture est indiqué en pourcentage sous la forme suivante :

$$\epsilon_r = \frac{\Delta l}{l_0} (\%) \quad (IV.3)$$

Avec :

- $\Delta l = l - l_0$: Déformation à la rupture.
- l_0 : Longueur initiale de l'éprouvette.
- l : Longueur finale de l'éprouvette.

IV.3.3 Test d'absorption d'eau

Ce test consiste à évaluer la quantité d'eau que peut absorber l'échantillon pendant environ 31 jours. Des échantillons sont coupés et pesés à 0,1500 g près. Ensuite les échantillons ont été placés dans des béchers contenant (50 ml) d'eau distillée maintenue à température ambiante (25°C) et d'autres à (45°C). Après une immersion pendant un temps bien précis, les éprouvettes ont été retirées hors de l'eau et essuyées de toute eau superficielle qui les recouvre. Chaque échantillon a été pesé de nouveau. Pour déterminer la saturation en eau, les échantillons ont été immergés et pesés de nouveau au bout d'un temps défini. Le taux d'absorption d'eau est exprimé par le gain de la masse en fonction du temps. Il est déterminé à partir de l'équation (IV.4).

$$\xi = \frac{M_t - M_0}{M_0} (\%) \quad (\text{IV.4})$$

Avec :

- M_0 : : masse initiale de l'échantillon au temps t_0 avant l'immersion (g).
- M_t : masse de l'échantillon au temps t après immersion (g).
- ξ : taux d'absorption d'eau (%).



Figure IV.7: Photographie d'échantillons soumis au test d'absorption d'eau

IV.3.4 Mesure de la densité

La densité de l'échantillon a été déterminée en utilisant la méthode du pycnomètre conformément à la norme EN ISO 1675.

$$dech = \frac{m_3 - m_1}{m_2 + m_3 - m_4 - m_1} \quad (IV.5)$$

Avec :

- dech: Densité de l'échantillon.
- m_1 : Masse du pycnomètre vide.
- m_2 : Masse de pycnomètre plein de liquide (L'eau distillée).
- m_3 : Masse du pycnomètre plein de liquide avec l'échantillon immergé.
- m_4 : Masse de pycnomètre plein de liquide avec l'échantillon immergé.

CHAPITRE V

Résultats et discussion

Résultats et discussion

Dans ce dernier chapitre, nous présenterons les résultats obtenus lors de notre travail sur les fibres de Genêt d'Espagne, ainsi que sur les matériaux à base de PCL et PCL chargés à différents pourcentages (5 à 25%) avec un pas de 5% en masse de fibres de GE préparés par voie fondue. L'objectif est d'étudier l'effet de l'ajout des fibres de GE sur les propriétés physicochimiques et mécaniques du PCL. Les propriétés attendues pour un matériau biocomposite doivent surpasser celles des phases qui le composent individuellement.

V.1 Caractérisation par spectroscopie IR-TF

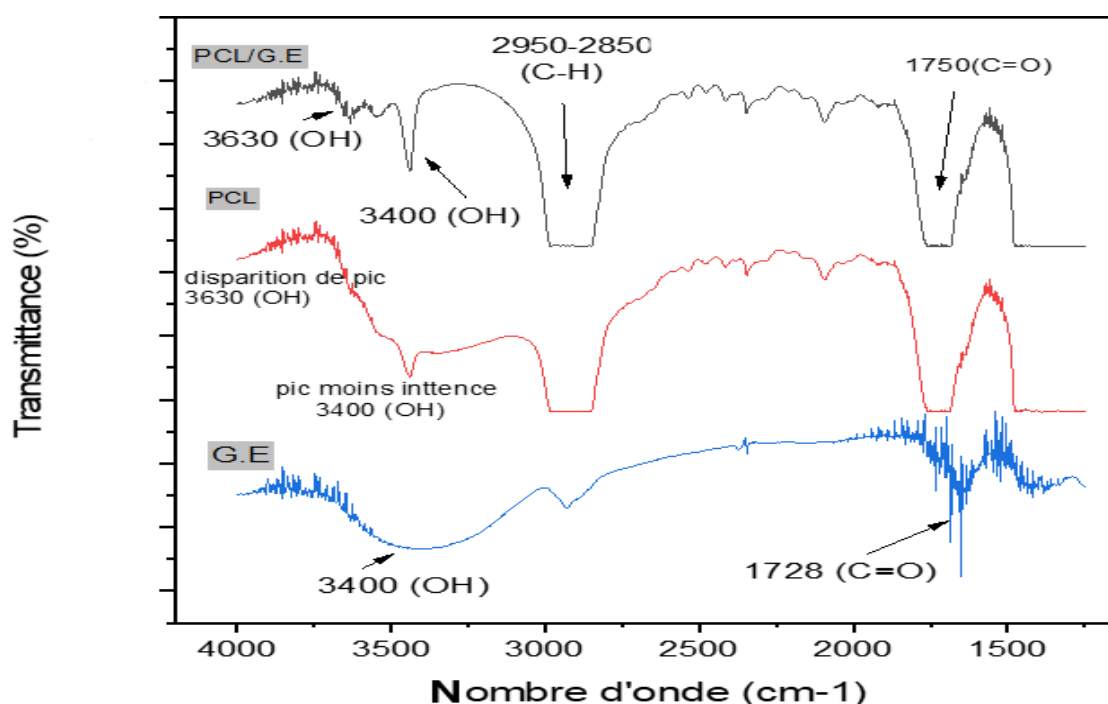


Figure V.1: Spectres infrarouge de la fibre de GE, du PCL vierge et du biocomposite (PCL/GE) à 15 %

D'après la Figure V.1 (spectre infrarouge obtenu pour la fibre de Genet d'Espagne (GE), PCL vierge et biocomposite (PCL/GE) à 15 %).

Les spectres IR-TF de la fibre de (GE) révèlent la présence de plusieurs bandes d'absorption, on cite notamment :

- * Une bande large avec un pic centré à 3450 cm^{-1} correspond aux vibrations d'élongation desgroupements hydroxyles contenus dans la cellulose de la fibre.
- * Un pic situé à 2889 cm^{-1} attribué aux vibrations d'élongation des CH et CH_2 aliphatiques contenusdans (cellulose-hémicellulose).
- * Un pic situé à 1728 cm^{-1} correspond aux vibrations de valence de la liaison C=O (groupes ester etacide carboxylique de l'hémicellulose).

Les spectres IR-TF du PCL vierge et du biocomposite (PCL/GE) à 15 % mettent en évidence plusieurs bandes d'absorption, parmi lesquelles :

- * Un pic assez étroit situé à 3440 cm^{-1} caractéristique de la vibration d'élongation de la liaison -OH.
- * Une bande large avec un pic centré à 2987 cm^{-1} attribuée à la vibration d'élongation asymétrique du groupement CH_3 .
- * Une large bande centrée à 1750 cm^{-1} , attribuée à l'absorption des groupements carbonyles (C=O) des esters présents dans le PCL.

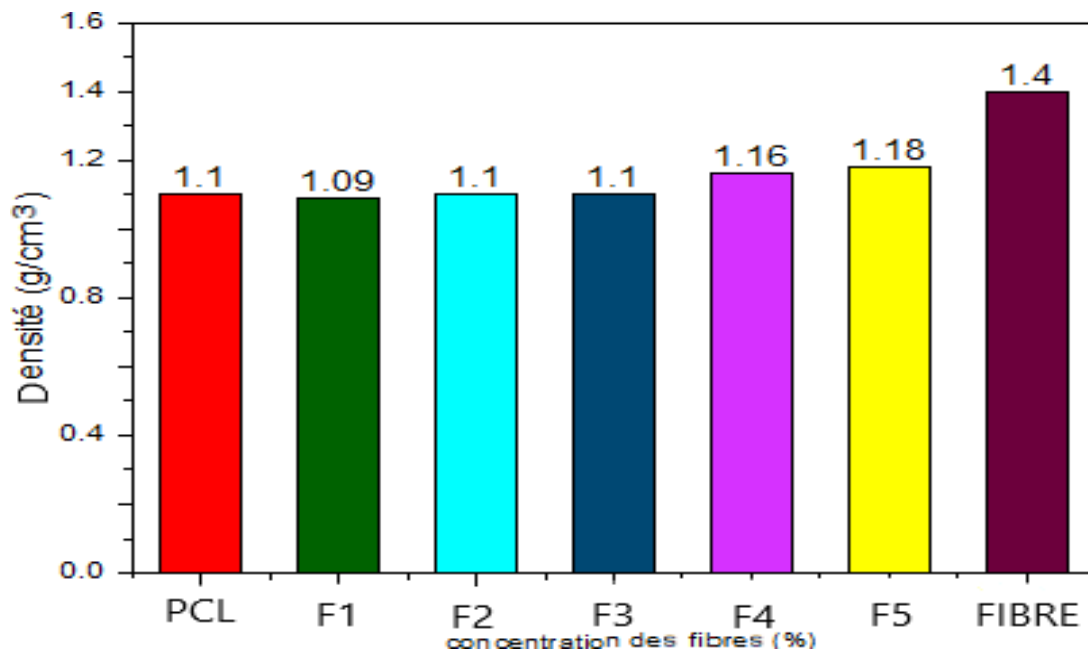
L'analyse effectuée nous permet de voir que les bandes d'absorption du PCL ne sont pas affectées par l'ajout de la fibre de GE. En effet, on retrouve les mêmes bandes, mais avec seulement des petits décalages de fréquences. Ces résultats indiquent que l'ajout des fibres deGE n'a pas d'effet significatif sur la structure chimique du PCL, et correspondent aux résultats obtenus par Henry Chinedu Obasi et ses collègues [1].

V.2 Mesure de la densité

La densité a été déterminée par la méthode pycnométrique, dont les résultats sont regroupés dans letableau V.1.

Tableau V.1: Résultats du mesure de la densité

Formulation	PCL vierge	Fibre vierge	F1	F2	F3	F4	F5
Densité	1,12	1,42	1,06	1 ,11	1,07	1,15	1,109

**Figure V.2:** Histogramme représentant l'évolution de la densité des biocomposites en fonction de la concentration des fibres

La densité des biocomposites (PCL/GE) à 5 %, 10 %, et 15 % est comparable à celle du PCL vierge, indiquant peu d'impact sur la densité à ces niveaux de fibre. Cependant, à des taux de fibres GE de 20% et 25 %, une légère augmentation de la densité est observée. Cela s'explique par la densité plus élevée des fibres de GE par rapport au PCL utilisé comme matrice, ce qui signifie que les fibres ont une masse volumique plus élevée par unité de volume. Lors de l'incorporation des fibres dans la matrice polymère, la densité globale du biocomposite dépend de la proportion relative de fibres et de polymères dans le mélange. Une proportion plus élevée de fibres peut entraîner une augmentation légère de la densité du matériau biocomposite. Les résultats montrent que la densité ne change pas d'une manière significative avec l'introduction de la fibre de GE en faible proportion dans la matrice PCL, et correspondent aux résultats obtenus par Hom Nath Dhakal et al. [2]

V.3 Test d'absorption de l'eau

L'évolution du taux d'absorption d'eau en fonction du temps par les différents biocomposites est illustré sur les Figures V.3 et V.4.

Le taux d'absorption d'eau des biocomposites est étroitement lié au temps, à la température et à la quantité de fibres présentes. Initialement, la vitesse d'absorption est élevée, puis elle diminue progressivement avec le temps jusqu'à atteindre un état de saturation.

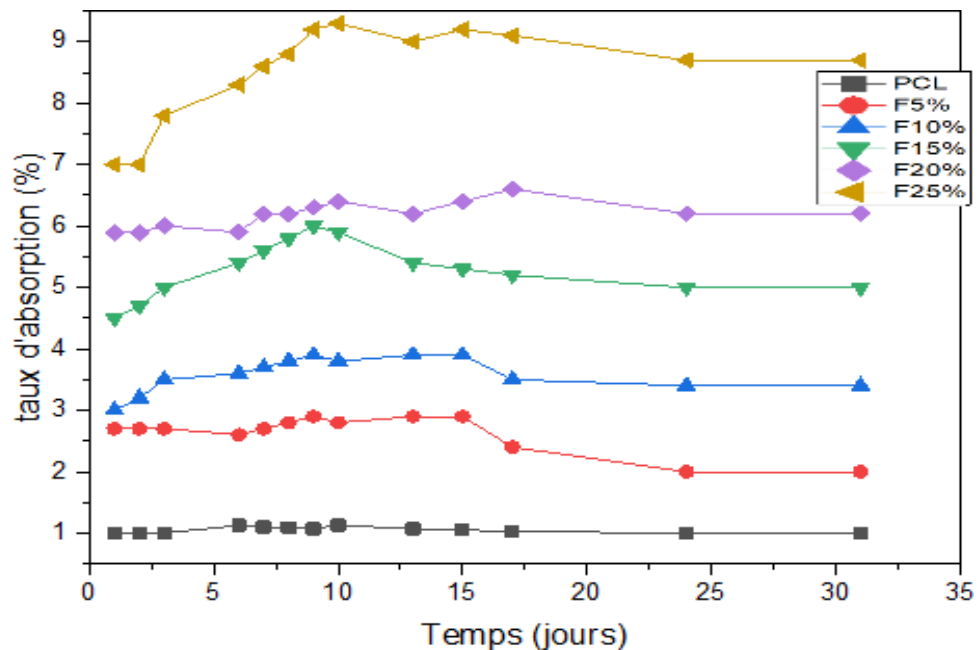


Figure V.3: Évolution de l'absorption d'eau au fil de temps à 25°C

A 25°C le taux maximal d'absorption d'eau pour le PCL vierge est de 1,13 %, puis s'accroît pour atteindre des valeurs de (2.9, 3.9, 5.9, 6.4 et 9.2 %) pour les biocomposites PCL/GE à (5, 10, 15, 20 et 25 %) de fibres, respectivement, Figure (V.3).

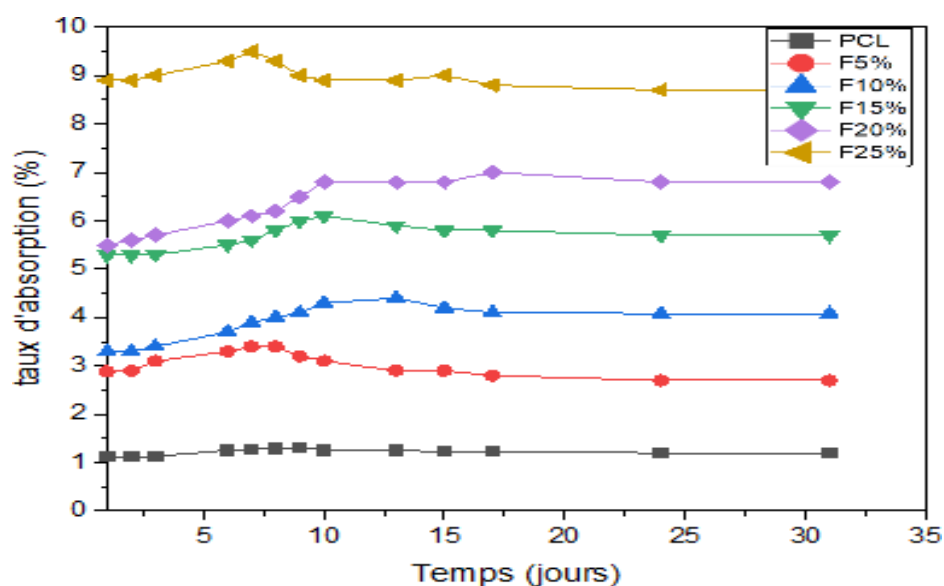


Figure V.4: Évolution d'absorption d'eau au fil de temps à 45°C

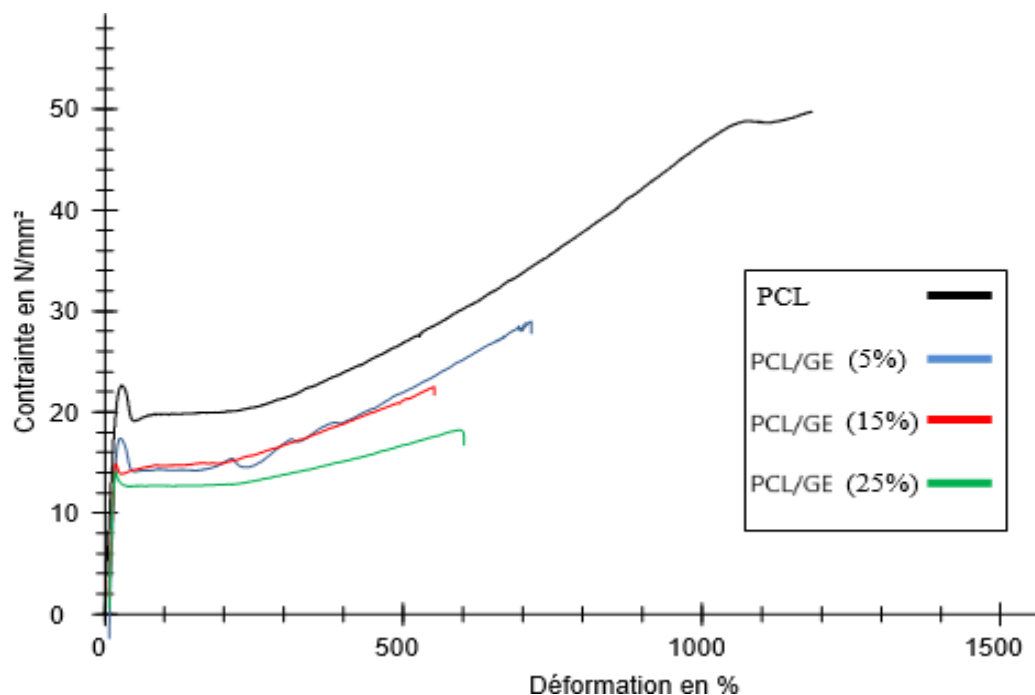
A 45°C le taux maximal d'absorption d'eau pour le PCL vierge est de 1,32 %, qui s'accroît pour atteindre des valeurs de (3, 3.9, 6, 6.5 et 9.5 %) pour les biocomposites PCL/GE à (5, 10, 15, 20 et 25 %) de fibres, respectivement, Figure (V.4).

On remarque que le taux d'absorption augmente avec l'augmentation de la température. On note également, que le taux d'absorption d'eau augmente avec le taux de fibres. En raison de la teneur élevée de la cellulose dans cette dernière semblable aux résultats trouvés par L. Luduena et al. [3]. En effet, la fibre GE est une charge lignocellulosique qui présente un caractère hydrophile prononcé attribué à la présence des groupes hydroxyles dans sa structure, ce qui lui permet de capter des molécules d'eau liées par des liaisons hydrogène à sa surface.

L'augmentation du taux de fibres conduit inévitablement à une plus grande concentration de groupements hydroxyles dans le biocomposite, provoquant à une augmentation du taux d'absorption d'eau.

V.4 Test de traction

Les résultats obtenus de l'essai de traction sur les éprouvettes (PCL vierge), (PCL / GE) sont présentés par les courbes de contrainte-déformation.

**Figure V.5:** Courbes type de contrainte-déformation de l'essai de traction du PCL vierge et de PCL/GE

Les courbes de traction des biocomposites (PCL/GE) révèlent une légère diminution de la contrainte à mesure que le taux de fibres GE augmente. De plus, la déformation diminue de manière significative par rapport au (PCL vierge 1300 % à 700 % pour les biocomposites), cette diminution est attribuée à la faible adhésion entre la fibre (GE) et la matrice (PCL) en raison d'absence d'un traitement chimique pour la fibre (GE), un résultat semblable à celui observé dans l'étude menée par Kwang-Jea Kim et James L. White [4].

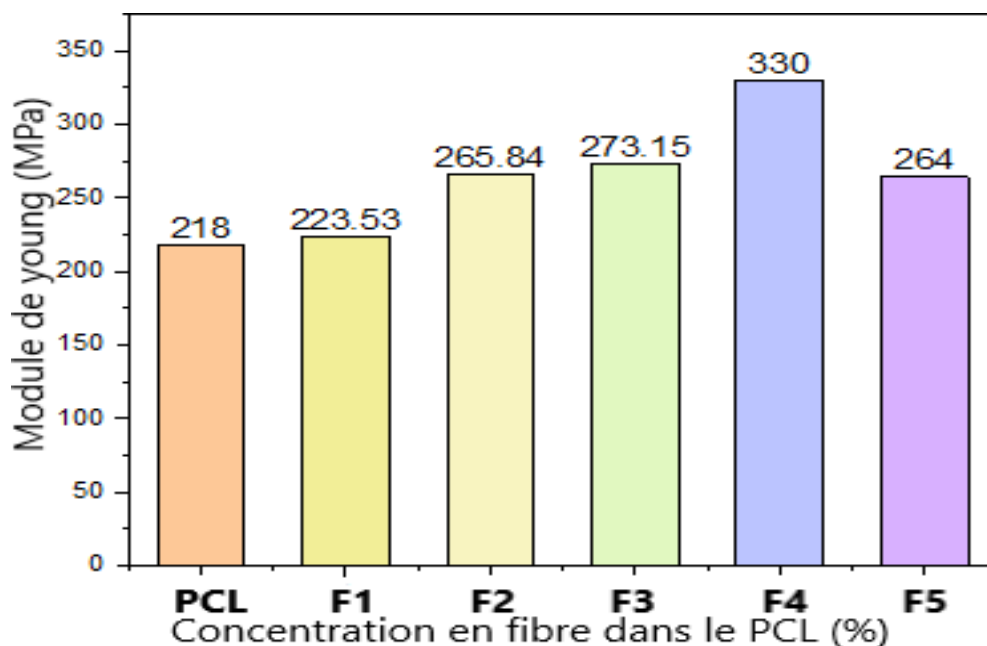


Figure V.6: Influence du taux de fibre GE sur le module de Young

D'après les résultats obtenus de la Figure V.6, nous remarquons que l'introduction de la fibre GE dans la matrice PCL augmente la rigidité du matériau. Autrement dit, le module d'élasticité E augmente de 218 (N/mm²) pour le PCL vierge pour atteindre les valeurs de 223.53, 265.84, 273.15, 330 et 264 (N/mm²) pour les composites contenant 5-10-15- 20 et 25 % de GE respectivement. Cette augmentation indique que la fibre a apporté à notre matrice un renforcement structurel, un résultat similaire à celui de Pengju Pan et al. [5] On remarque que dans le biocomposite a (20 %) de fibre le module est plus élevé par rapport aux autres et ça revient à la bonne dispersion de la fibre en comparant avec les autres.

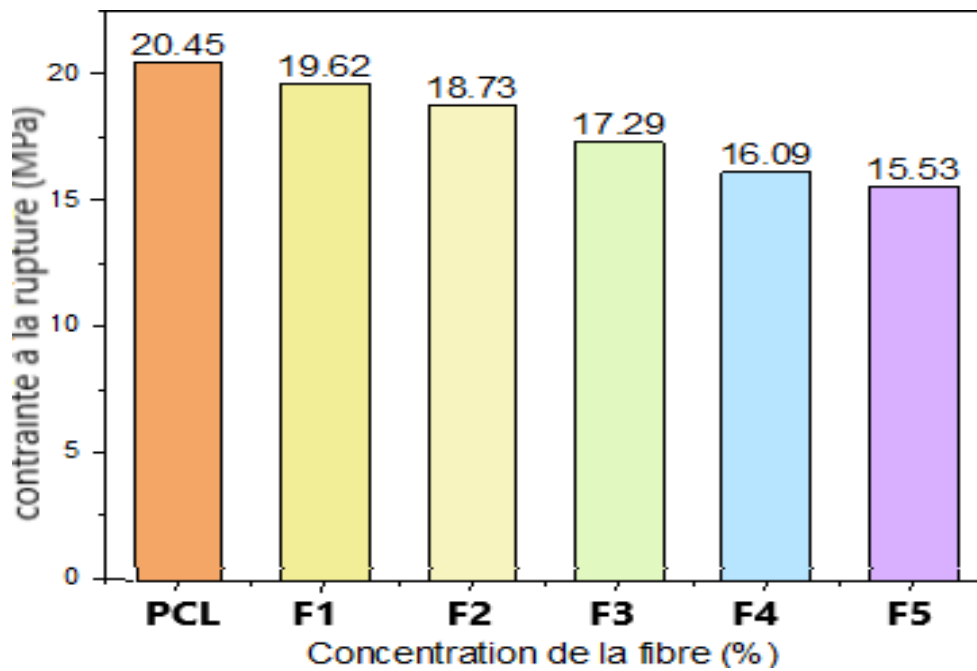


Figure V.7: Influence du taux de fibre GE sur la contrainte à la rupture

D'après les résultats obtenus de la (Figure V.7), nous remarquons que l'introduction de la fibre du GE dans la matrice PCL diminue la contrainte à la rupture des biocomposites. Ces résultats qui soulignent l'influence de la teneur en fibres sur les propriétés des composites PCL/GE. Les résultats sont cohérents avec ceux rapportés par Henry Chinedu Obasi et ses collaborateurs [1], ainsi qu'avec l'étude menée par Kwang-Jea Kim et James L. White [4].

Références bibliographiques

- [1] Henry Chinedu Obasi, Aqif Anwar Chaudhry, Kashif Ijaz, Hafsah Akhtar, and Muhammad Hamza Malik. Development of biocomposites from coir fibre and poly (caprolactone) by solvent casting technique. *Polymer Bulletin*, 75(5):1775–1787, 2018.
- [2] Dhakal, H. N., Ismail, S. O., Zhang, Z., Barber, A., Welsh, E., Maigret, J. E., & Beaugrand, J. Development of sustainable biodegradable lignocellulosic hemp fiber/polycaprolactone biocomposites for light weight applications. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 113, 350-358, 2018.
- [3] Ludueña, L., Vázquez, A., & Alvarez, V. Effect of lignocellulosic filler type and content on the behavior of polycaprolactone based eco-composites for packaging applications. *Carbohydrate polymers*, 87(1), 411-421, 2012.
- [4] Kwang-Jea Kim and James L White. Effects of regenerated cellulose and natural fiber on interfacial adhesion, rheology and crystallization property in ϵ -polycaprolactone compounds. *Composite Interfaces*, 16(7-9):619–637, 2009.
- [5] Pengju Pan, Bo Zhu, Tungalag Dong, Shin Serizawa, Masatoshi Iji, and Yoshio Inoue. Kenaf fiber/poly (ϵ -caprolactone) biocomposite with enhanced crystallization rate and mechanical properties. *Journal of applied polymer science*, 107(6):3512–3519, 2008.

Conclusions

Conclusions

Dans un souci de protection de l'environnement et de valorisation des ressources naturelles, les matériaux biocomposites intègrent de plus en plus des caractéristiques écologiques, telles que des matrices biodégradables et des renforts issus de fibres végétales. La recherche de nouveaux matériaux biocomposites est devenue une priorité pour les scientifiques et les industriels, en raison de leurs avantages technologiques, économiques et environnementaux. Leur développement représente un enjeu majeur pour la durabilité et l'innovation industrielle. Les propriétés mécaniques, structurales et physiques des biocomposites élaborés PCL/GE ont été évaluées en fonction du taux de fibres. Les résultats obtenus par spectroscopie infrarouge ont montré que l'introduction de la fibre GE à la matrice PCL n'affecte pas la structure chimique des biocomposites. En raison de l'absence de traitement chimique des fibres de GE.

L'analyse des propriétés mécaniques de nos biocomposites a indiqué que l'augmentation du pourcentage des fibres GE entraîne une réduction de la contrainte et de la déformation à la rupture, à cause d'absence de modification chimique de la fibre GE, tandis que le module d'élasticité s'améliore progressivement, l'intégration des fibres GE dans la matrice de PCL améliore la rigidité des biocomposites.

L'absorption d'eau dans les biocomposites est fortement influencée par le temps et la proportion des fibres. Au début, la vitesse d'absorption est élevée, en raison du caractère hydrophile des fibres de GE mais elle ralentit progressivement avec le temps jusqu'à ce que les biocomposites atteignent leur point de saturation.

Les résultats indiquent que l'incorporation de fibres de genêt d'Espagne dans la matrice de PCL n'entraîne pas de changement significatif de la densité.

Perspectives

En vue d'approfondir cette recherche, il est indispensable de :

1. Réaliser un traitement chimique des fibres de Genêt d'Espagne pour améliorer l'adhérence interfaciale.
2. Effectuer des analyses thermiques, analyse thermogravimétrique (ATG) et calorimétrie différentielle à balayage (DSC) afin de caractériser les propriétés thermiques des biocomposites.
3. Évaluer la dégradation des biocomposites obtenus.

Résumé

L'incorporation de fibres végétales dans la fabrication de biocomposites offre de nombreux avantages, notamment des impacts environnementaux réduits et des propriétés mécaniques remarquables. Ce mémoire a pour objectif de développer et de caractériser un nouveau biocomposite à base de polycaprolactone (PCL), renforcé par des fibres de genêt d'Espagne (GE), une ressource végétale locale. Dans la première partie de notre étude, nous avons transformé les fibres de GE en farine par divers procédés, avant de fabriquer les biocomposites PCL/GE à l'aide de la méthode d'extrusion. La seconde phase s'est concentrée sur l'analyse de l'impact du taux de fibres sur les propriétés structurales, mécaniques et physiques des biocomposites PCL/GE. Les résultats obtenus comprennent des analyses par spectroscopie infrarouge, essai mécanique de traction, mesure de densité et test d'absorption d'eau, fournissant une évaluation complète des performances de ces nouveaux matériaux.

Les résultats obtenus par spectroscopie infrarouge montrent que l'incorporation de fibres de genêt d'Espagne GE dans la matrice de polycaprolactone PCL n'affecte pas la structure chimique des biocomposites, en raison de l'absence de traitement chimique des fibres. L'analyse des propriétés mécaniques indique que l'augmentation du pourcentage de fibres GE réduit la contrainte et la déformation à la rupture, tandis que le module d'élasticité s'améliore. L'absorption d'eau dans les biocomposites est initialement rapide en raison du caractère hydrophile des fibres GE, mais ralentit progressivement jusqu'à saturation. Enfin, l'incorporation de fibres de genêt d'Espagne ne modifie pas de manière significative la densité des biocomposites.

Mots clés : biocomposite, la polycaprolactone, le genêt d'Espagne

Abstract

The incorporation of natural fibers in the fabrication of biocomposites offers numerous advantages, including reduced environmental impact and remarkable mechanical properties. This work aims to develop and characterize a new biocomposite based on polycaprolactone (PCL), reinforced with Spartium junceum fibers (SJ), a local plant resource. In the first phase of our study, we processed the Spartium junceum fibers SJ into flour through various methods, before elaborating of the biocomposites PCL/SJ using the extrusion method. The second stage focused on analyzing the impact of the fiber content on the structural, mechanical, and physical properties of the biocomposites PCL/SJ. The characterization include analyses by infrared spectroscopy, mechanical tensile testing, density measurement, and water absorption testing, providing a comprehensive evaluation of the performance of these new materials.

The obtained results from infrared spectroscopy show that the incorporation of fibers SJ into the PCL matrix does not affect the chemical structure of the biocomposites due to the absence of chemical treatment of the fibers. Analysis of the mechanical properties indicates that increasing the percentage of fibers SJ reduces stress and strain at rupture while enhancing the elasticity modulus. Water absorption in the biocomposites is initially rapid due to the hydrophilic nature of SJ fibers but slows down gradually until saturation. Finally, the incorporation of SJ fibers does not significantly alter the density of the biocomposites.

Key words : biocomposite, polycaprolactone, spartium junceum fibers