

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE



UNIVERSITE A. MIRA DE BEJAIA

FACULTE DE TECHNOLOGIE

DEPARTEMENT DE GENIE DES PROCEDES



Mémoire de fin de cycle

Pour l'obtention du diplôme de Master

Filière : Génie des Procédés

Option : Génie des polymères

Thème

Elaboration et caractérisation de biocomposites à base
d'acide polylactique renforcé de fibres d'Arundo Donax

Réalisé par :

MEBARAKOU Wissam

Soutenu le 03/07/2023 devant un jury composé de :

Dr Idris ZEMBOUAI

Président

Dr Lynda ZAIDI

Examinatrice

Dr Naima TOUATI

Examinatrice

Pr Mustapha KACI

Encadrant

Promotion 2022-2023

Remerciements

Ce travail a été effectué au sein du Laboratoire des Matériaux Polymères Avancés (LMPA) sous la direction du professeur Mustapha KACI.

Je tiens à exprimer ma vive gratitude à mon encadrant, Pr KACI, pour son encadrement de qualité, pour sa disponibilité, ses conseils avisés le soutien qu'il m'a apporté pendant la réalisation de mon travail.

Je remercie les membres du jury de m'avoir fait l'honneur de juger mon travail.

Je tiens aussi à remercier le Dr. I ZEMBOUAI pour ses précieux conseils et orientations.

Mes remerciements vont également à l'ingénieur du laboratoire Mme ALLOUI Katia pour son infinie gentillesse et sa disponibilité, ainsi qu'à tous les doctorants du laboratoire (LMPA), Celia, Sofia, Nedjma, Amel pour leur précieuse aide.

Je tiens à remercier tous les enseignants du département Génies des procédés l'université A/MIRA de Bejaia.

Un grand merci pour ma famille, surtout mes parents qui m'ont toujours encouragé, épaulés, soutenus, et suivis tout au long de ce projet.

Je remercie mes amies pour leur aide et conseils qu'elles m'ont donné tout au long de mon travail.

Que toute personne qui a contribué, de près ou de loin, à l'élaboration de ce mémoire, veuillez bien trouver ici l'expression de mes sincères remerciements.

Liste des abréviations

AD : Arundo Donax.

ATR : Attenuated total reflection.

DRX : Diffraction des Rayons X.

FADNA : Fibre d'Arundo Dunax traitée au NaOH.

FADNASI : Fibre d'Arundo Dunax traitée au NaOH + Silanes.

FADNT : Fibre d'Arundo Dunax non traitée.

I_C : Indice de cristallinité.

MEB : Microscopie électronique à balayage.

PE : Polyéthylène.

PET : Polyéthylène téréphtalate.

PHA : Polyhydroxyalkanoate.

PLA : Poly (acide lactique).

PP : Polypropylène.

PS : Polystyrène.

T_f : Température de fusion.

T_g : Température de transition vitreuse.

TMOS : Triméthoxysilane d'octadécyle (trimethoxy octadecyl) silane.

Table des matières

Introduction générale-----	1
Chapitre I : Synthèse bibliographique -----	3
I.1. Les matériaux composites-----	3
I.2. Biocomposites-----	3
I.2.1. Matrice naturelle-----	5
I.2.1.1. Le poly acide lactique (PLA)-----	6
I.2.2. Renfort naturel-----	8
I.2.2.1. Structure morphologique des fibres végétales-----	9
I.2.2.2. Composition des fibres végétales-----	10
I.3. Etude bibliographique des fibres végétales utilisée (La canne de provence)14	
I.4. Interface fibre-matrice -----	18
I.5. Domaines d'application des biocomposites-----	18
I.6. Modification de la surface des fibres végétales-----	19
I.6.1. Traitement alcalin à la soude-----	19
I.6.2. Traitement par les silanes-----	20
I.7. Techniques de mise en œuvre des biocomposites-----	21
I.7.1. Extrusion d'un mélange de fibres et d'un thermoplastique---	22
I.7.2. Resin Transfer Molding (RTM) ou Injection-----	22
I.7.3. Le plastographe Brabender-----	22
I.8. Biocomposites polymère/fibres végétale/AD-----	23
Chapitre II : Matérielles et méthodes -----	26
II.1. Matériaux utilisés -----	26
II.1.1. Le Poly (acide lactique)-----	26
II.1.2. Fibre d'Arundo Donax -----	27

II.1.3. Les produits chimiques -----	27
II.2. Organigrammes -----	28
II.3. Mise en œuvre des biocomposites -----	29
II.3.1. Préparation des fibres d'Arundo donax -----	29
II.3.2. Traitement par NaOH -----	30
II.3.3. Traitement combiné alcalin/silane -----	31
II.3.4. Préparation des biocomposites -----	31
II.3.5. Préparation des éprouvettes -----	32
II.4. Techniques de caractérisation -----	33
II.4.1. Microscopie électronique à balayage (MEB) -----	33
II.4.2. Spectroscopie IR-ATR -----	33
II.4.3. Diffraction des Rayons X (DRX) -----	33
II.4.4. La densité -----	34
II.4.5. Mesure du taux d'humidité des fibres (TH) -----	35
II.4.6. Absorption d'eau -----	35
II.4.7. Test de choc -----	35
Chapitre III : Résultats et discussion -----	37
III.1. Caractérisation des fibres d'Arundo donax -----	37
III.1.1. Analyse structurale par spectroscopie infra-rouge (IR-ATR) -----	37
III.1.2. Diffraction des rayons X : (DRX) -----	38
III.1.3. Effets des traitements sur la densité des fibres -----	39
III.1.4. Effets des traitements sur le taux d'humidité -----	40

III.2. Caractérisation des biocomposites -----	41
III.2.1. Microscopie électronique à balayage (MEB)-----	41
III.2.2. Analyse structurale par spectroscopie infra-rouge (IR-ATR)-	42
III.2.3. Analyse morphologique par DRX-----	43
III.2.4. Absorption de l'eau-----	45
III.2.5 Résistance aux chocs -----	45
Conclusion générale-----	47

Liste des figures

Figure I.1 : La classification de biocomposites-----	4
Figure I.2 : Différentes familles de biopolymères-----	5
Figure I.3 : Structure des deux isomères de l'acide lactique -----	6
Figure I.4 : (a) Structure Chimique du PLA, (b) les différentes formes isomères du lactide.-----	7
Figure I.5 : Classification des fibres naturelles en fonction de leur origine -----	9
Figure I.6 : (a) Schéma de principe de la structure d'une fibre, (b) Schéma de la microstructure d'une fibre végétale -----	10
Figure.I.7 : Structure chimique de la cellulose -----	11
Figure I.8 : Structure chimique de l'hémicellulose -----	12
Figure I.9 : Exemple de structure chimique de lignin -----	12
Figure I.10 : Arundo Donax « Giant reed »-----	14
Figure I.11 : Famille des herbes et cannes -----	15
Figure I.12 : courbe contrainte/déformation des fibres d'Arundo Donax-----	16
Figure I.13 : microphotographies MEB des surfaces des fibres d'Arundo Donax -	17
Figure I.14 : Exemples d'application des biocomposites-----	19
Figure I.15 : Mercerisage de la fibre naturelle -----	20
Figure I.16 : Principe d'interaction fibre naturelle/silane -----	21
Figure I.17 : Schématisation du procédé RTM-----	22
Figure I.18 : Module de traction des composites en fonction de la teneur en poids ADFs-----	24
Figure II.1 : Structure chimique du PLA -----	26
Figure II.2 : Préparation, traitement et caractérisation de la fibre AD -----	28

Figure II.3 : Préparation et caractérisation des biocomposites PLA/AD -----	29
Figure II.4 : Illustration des étapes d'obtention de la farine d'AD -----	30
Figure II.5 : Illustration du protocole de mercerisage -----	31
Figure II.6 : Machine Brabender à l'échelle laboratoire -----	32
Figure III.1 : Spectres IR-ATR des fibres d'Arundo Donax avant et après traitement-37	
Figure III.2 : Spectres de diffraction RX des fibres d'Arundo Donax avant et après traitement -----	38
Figure III.3 : Variations du taux d'humidité des fibres à cannes en fonction du Traitement -----	40
Figure III.4 : Micrographies des biocomposites -----	42
Figure III.5 : Schéma du mécanisme de la réaction chimique entre la d'Arundo Donax traitée au TMOS et le PLA-----	42
Figure III.6 : Spectres IR-ATR du PLA et des biocomposites-----	43
Figure III.7 : Diffractogrammes RX des biocomposites PLA/AD -----	44
Figure III.8 : Variations du taux d'absorption d'eau par le PLA et les biocomposites PLA/AD-----	45
Figure III.8 : Variations de la résilience du PLA et des biocomposites PLA/AD -----	46

Liste des tableaux

Tableau I.1 : propriétés du PLA comparés aux polymères traditionnels-----	8
Tableau I.2 : Propriétés et compositions des fibres naturelle -----	13
Tableau I.3 : Composition chimique des fibres d'Arundo donax et du bambou---	16
Tableau I.4 : propriétés de traction des composites PLA-ADF-----	25
Tableau II.1 : Propriétés physico-chimiques du PLA 7001D -----	26
Tableau II.2 : caractéristiques physico-chimiques du TMOS -----	27
Tableau II.3 : Les différentes formulations réalisées -----	32
Tableau III.1 : Intensités des raies I_{002} et I_{AM} , valeurs des indices de cristallinité de la fibre d'Arundo Donax avant et après traitement-----	39
Tableau III.2 : Valeurs de densité des fibres avant et après traitement -----	40
Tableau III.3 : Taux de cristallinité du PLA et des biocomposites PLA/AD -----	44

Introduction générale

Nous vivons à une époque où nous touchons plus souvent du plastique que nous ne touchons ceux que nous aimons. Le plastique est partout : dans l'air, dans l'eau et dans le sol. Il est utilisé dans plusieurs applications qu'il serait très difficile de s'en passer. Mais au-delà de leur nombreux atouts, il est aussi la cause de certains problèmes environnementaux actuel (l'accumulation des déchets plastiques, la pollution des océans...). [1]

Ces derniers temps, la prise de conscience des populations et des autorités vis-à-vis de ces problèmes environnementaux a fortement encouragé le développement d'un nouveau concept dit « bio » qui consiste à élaborer des matériaux à partir de ressources renouvelables dans un but de préserver l'environnement et de mieux gérer les ressources naturelles. Ainsi de nouveaux matériaux nommés biocomposites ont vu le jour. Faisant partie de ces biomatériaux, les polymères biosourcés et biodégradables peuvent apparaître comme une solution efficace à ces problématiques. Parmi lesquels on trouve des polyesters tels que le polylactide (PLA). Les performances mécaniques de ce matériau, leur processabilité, leur disponibilité ainsi que leur capacité à se biodégrader leur permettent aujourd'hui d'être considérés comme une alternative réaliste aux polymères d'origine pétrochimique et non biodégradables. [2]

Cependant, les verrous actuels qui font face à l'avancement de ces biocomposites est le manque de compatibilité entre la fibre hydrophile et la matrice hydrophobe. Cette incompatibilité affecte négativement l'adhésion interfaciale matrice/fibre. Pour modérer cet inconvénient, la modification de la matrice et/ou de la surface de la fibre est nécessaire.

C'est dans ce contexte que s'inscrit notre travail qui porte sur l'élaboration de biocomposites à base de l'acide polactique renforcée par les fibres d'Arundo Donax. Nous avons opté à l'utilisation de ces fibres pour leur faible coût, leur disponibilité et surtout pour conserver les avantages écologiques de biopolymère utilisé.

Pour mener à bien ce travail, ce manuscrit s'articule autour de trois chapitres :

- ✚ Le premier chapitre est consacré à l'étude bibliographique portant sur les biocomposites, ainsi que les fibres (leurs morphologie, leurs composition), en

Introduction générale

mettant l'accent sur la fibre D'Arundo Donax utilisée dans cette étude. Ce chapitre présente aussi les démarches à entreprendre pour la formulation des biocomposite.

- ✚ Quant au second, il traite les protocoles expérimentaux utilisés dans cette étude et qui sont relatifs à la préparation des fibres, la préparation des biocomposites ainsi que les techniques de caractérisation des fibres et/ou des biocomposites élaborés.
- ✚ Dans Le dernier chapitre, sont exposés les résultats de cette étude ainsi qu'une discussion de ces dernières.
- ✚ Et pour finir, une conclusion générale clôture ce travail

Chapitre I : Synthèse bibliographique

Depuis quelques dizaines d'années, La prise de conscience de l'importance de la protection de l'environnement a incité les chercheurs du monde entier à trouver des moyens de produire des biens qui peuvent minimiser les dommages à l'environnement. Le biocomposite est un produit qui s'est avéré utile pour atteindre cet objectif. Dans ce chapitre nous présenterons des notions théoriques relatives à cette classe de matériaux.

I.1. Les matériaux composites

Il n'y a pas de réelle définition universelle qui puisse caractériser un matériau composite mais un consensus autour d'une description que l'on doit à Lee [3] : *les matériaux composites sont des matériaux multiphasés, formés d'une combinaison de matériaux, différents par leur compositions ou leurs formes, restants liés ensemble tout en gardant leurs identités et propriétés. Les composites maintiennent une interface entre les composants et agissent de telle sorte à développer des caractéristiques spécifiques ou synergiques améliorées qu'il n'aurait pas été possible d'obtenir par chacun des composants pris séparément.*

Finalement, Les matériaux composites sont constitués d'au moins deux matériaux non miscibles : un renfort qui assure la tenue mécanique et une matrice qui assure à la fois la protection, la cohésion de la structure et la transmission des efforts vers le renfort. [4]

Il existe plusieurs systèmes de classification des composites. Nous en avons dégagé 4, les plus usités : Classification par la taille des particules de renfort (fibres ou particules), par le type de matrice (organique, céramique ou métallique), par marché (Les composites de grande diffusion ou de hautes performances) et enfin, on trouve une nouvelle classe de matériaux que l'on nomme "biocomposites" définie ci-dessous. [5]

I.2. Bio-composites

Un biocomposite est un matériau composite dont l'une des parties au moins, renfort ou matrice, est issue de ressources renouvelables. Ces biomatériaux étant une alternative écologique aux composites synthétiques qui s'inscrivent également dans les concepts émergents de chimie verte et de chimie durable. Les biocomposites sont ainsi composés dans le principe de renforts généralement en fibres naturelles et d'une matrice non

Chapitre I : Synthèse bibliographique

biodégradable dérivé du pétrole (PP, PE...) ou biodégradable (PLA, PHA...). À cet égard, trois catégories de biocomposites sont à distinguer. [2,6]

- Biocomposites à matrice synthétique et renfort naturel.
- Biocomposites à matrice naturelle et renfort synthétique.
- Biocomposites à matrice et renfort naturels.

Cette dernière catégorie appelée aussi biocomposites vert. En effet, ces biomatériaux ont attiré les universitaires, les chercheurs, et les industriels pour développer des produits verts et durables en raison de la conscience environnementale et des réglementations gouvernementales strictes. [5,6] Cette famille de biocomposites est le cœur de ce travail.

En ce qui concerne la classification des biocomposites, ces dernières peuvent être divisées en biocomposites complètement biodégradables et partiellement biodégradables sur la base de la matrice et des fibres (Figure I.1). Cette classification souligne que si les fibres et la matrice sont des matériaux 100% biodégradables, le composite se décomposera en fin de vie et retournera compétemment dans le milieu naturel. Sinon, si l'un d'entre eux n'est pas biodégradable, le composite ne présente pas des propriétés de biodégradabilité complètes. De l'autre côté, deux types de fibres ou plus en combinaison sur le renforcement avec un mélange de deux ou plusieurs polymères donnent des biocomposites « hybrides ». [7]

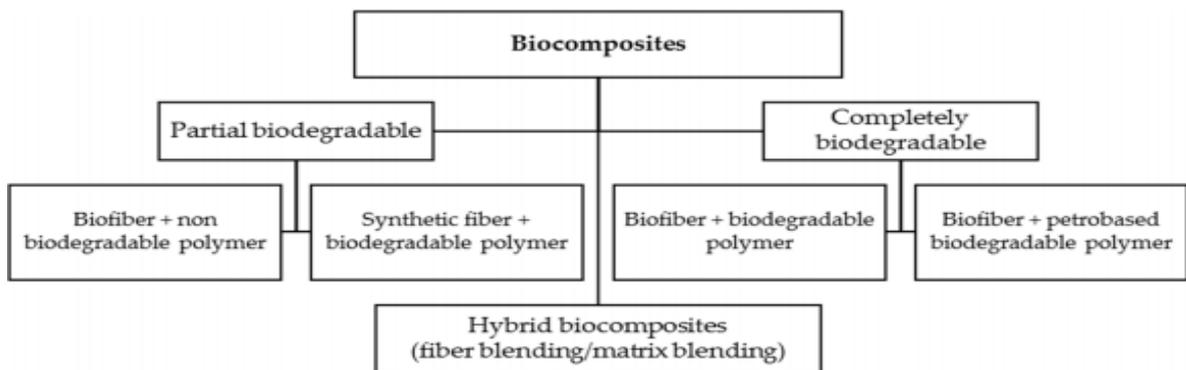


Figure I.1 : la classification de biocomposites. [7]

Le présent travail couvrira la technique de fabrication et de caractérisation des biocomposites à base de poly acide lactique renforcés de fibre d'Arundo Donax. Dans la suite, quelques données sur ce type de biocomposites seront énoncées. Notre attention s'est

Chapitre I : Synthèse bibliographique

surtout portée sur les aspects qui nous apparaissent essentiels et notamment ceux relatifs aux composants utilisés dans notre étude.

I.2.1. Matrice naturelle

La production des matériaux et produits chimiques à partir de matières premières biosourcées devrait passer de 12% en 2010 à environ 18% en 2020 et 25% en 2030. Les attentes sont que l'industrie chimique mondiale de 1,5 trillion de dollars puisse éventuellement être basée sur des énergies renouvelables. Ces matériaux se définissent alors comme tout polymère synthétisé par des micro-organismes ou dont le monomère est issu d'une source renouvelable. Les biopolymères peuvent être classés en trois familles, comme montre le schéma de la (figure I.2) [8] :

- biopolymères issus directement des ressources végétales et animales comme les polysaccharides, les protéines et les polynucléotides
 - biopolymères issus d'origine bactérienne comme les Polyhydroxyalcanoates (PHA)
 - les polymères obtenus indirectement par polymérisation de monomères eux-mêmes issus de ressources végétales comme l'acide lactique, résultant de la fermentation de sucres ou encore des composés monomères réactifs dérivés d'huiles végétales.
- [8]

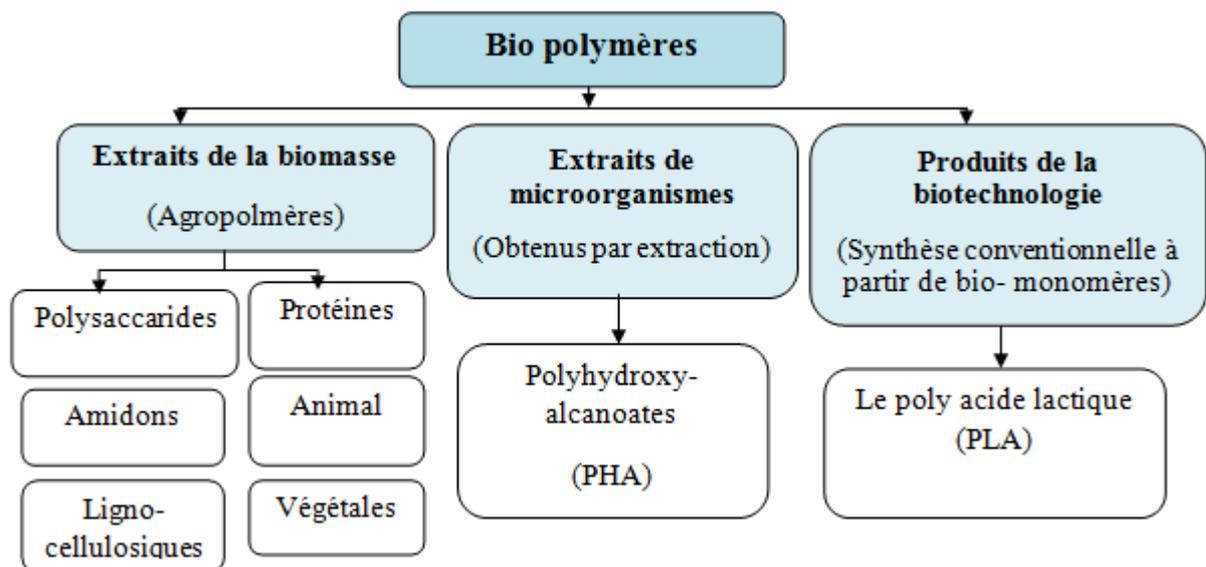


Figure I.2 : Différentes familles de biopolymères. [8]

Chapitre I : Synthèse bibliographique

Parmi les biopolymères, les plus rencontrées dans la littérature, certains, comme le poly (acide lactique), aussi dénommé polylactide (PLA) qui est un polyester biodégradable, ces matériaux se sont imposés comme des matériaux révolutionnaires dans l'industrie et sont appelés à jouer le même rôle que les polymères classiques dans la majorité de leurs applications et doivent intégrer de nouvelles fonctionnalités. C'est dans ce contexte que le PLA a vu le jour. [9]

I.2.1.1. Le poly acide lactique (PLA)

Le poly acide lactique (PLA) est le matériau thermoplastique biodégradable le plus largement exploré et utilisé au monde. Il appartient à la famille des polyesters aliphatiques, de structure linéaire. Il possède aussi des propriétés particulières de biocompatibilité. Son monomère, l'acide lactique (molécule chirale) est issu soit de la fermentation des amidons de maïs, de betterave ou de pomme de terre. Il existe sous deux formes énantiomères, l'acide-L-lactique et l'acide-D-lactique (Figure I.3). C'est l'assemblage de ces monomères qui aboutit au PLA. L'obtention de PLA peut être effectuée suivant deux schémas : par polycondensation de l'acide lactique ou plus généralement par ouverture du cycle du lactide en présence d'un catalyseur métallique à base d'étain par exemple. Ainsi, la structure chimique du PLA (Figure I.4 (a)) dépend de la configuration initiale de l'acide lactique, en combinant les formes R et S, trois formes apparaissent : le L-lactide, le D-lactide et le mésolactide, comme schématisée ci-dessous (Figure I.4 (b)) [9,10]

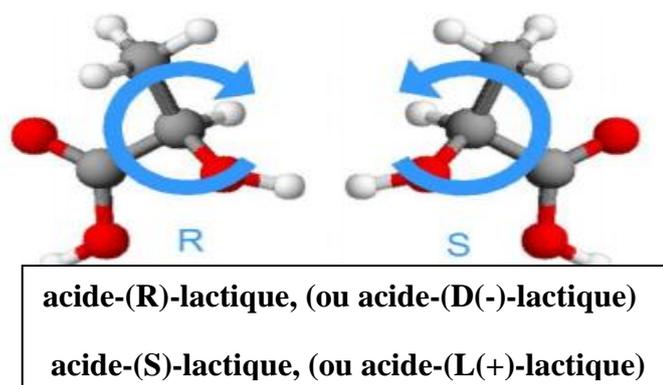


Figure I.3: Structure des deux isomères de l'acide lactique. [9]

Chapitre I : Synthèse bibliographique

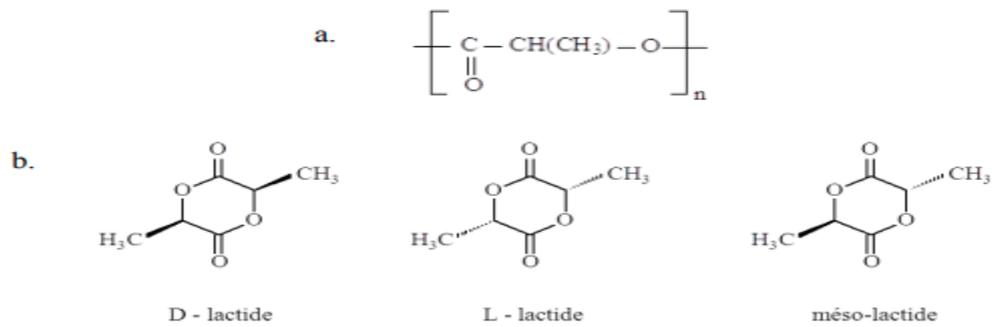


Figure I.4 : (a) Structure Chimique du PLA, (b) les différentes formes isomères du lactide. [10]

De cette structure découlent les propriétés intéressantes de PLA, en effet, la chiralité de l'acide lactique et du lactide, conditionne les propriétés du polyacide lactique, de sorte que :

- Le poly (L-lactide) (PLLA) : caractérisé par une forte résistance en traction et un module élastique et taux de cristallinité élevé comparable aux polymères traditionnels (Tableau I.1), mais par un temps de dégradation in vivo supérieur à 2 ans.
- Le poly (DL-lactide) (PDLLA) : caractérisé par une faible résistance en traction, et se dégrade plus rapidement in vivo que le PLLA entre 12 et 16 mois.

En plus de la chiralité, Les propriétés du PLA dépendant de divers paramètres, par exemple la masse moléculaire, la température de traitement, le procédé de mise en œuvre. Généralement, la masse molaire du PLA varie entre 100 et 300 Kg/ mol. Ses propriétés barrières aux arômes sont excellentes, la température de fusion varie entre 160 et 180°C, il présente aussi une bonne stabilité dimensionnelle ainsi que le caractère « non toxique ». [10, 11] Les propriétés mécaniques en traction, flexion et choc du PLA sont résumées dans le tableau ci-dessous :

Chapitre I : Synthèse bibliographique

Tableau I.1 : propriétés du PLA comparés aux polymères traditionnels. [10]

		PLA		Polymères de commodité		
		P(L)LA	P(DL)LA	PET	PS	PP
Module d'élasticité	(MPa)	3800	2500	2450	3400	1400
Contrainte à la rupture	(MPa)	59		57	45	38
Élongation à la rupture	(%)	4	8,5	300	3	400
Module en flexion	(MPa)	3600	1950	2800	3250	150
Choc Izod	(J/m)	29		59	28	80

Il est à noter que les propriétés du PLA ont néanmoins quelques limites avec une déformation à la rupture et une tenue au choc faibles.

Autre propriété remarquable du PLA est sa biodégradabilité en conditions de compost industriel à des températures supérieures à 60 °. La dégradation du PLA s'effectue alors en deux étapes. La première étape consiste une fragmentation du PLA majoritairement assurée par l'hydrolyse, les scissions de chaînes ester conduisent à une réduction de la masse molaire. Cette étape peut être accélérée par la température, le taux d'humidité et l'ajout d'acides ou des bases. La deuxième étape consiste à diffusion des oligomères à l'extérieur de la matrice de PLA, ses oligomères sont ensuite attaqués par les microorganismes. La dégradation ultime conduit à la formation du dioxyde de carbone (CO₂) et de l'eau (H₂O) qui pourront réintégrer la biomasse, A noter que la dégradation peut être affecté par plusieurs paramètres tels que la structure (cristalline ou amorphe) du PLA, sa masse et sa distribution moléculaire, la forme de l'échantillon, ces caractéristiques thermiques et mécaniques[10].

I.2.2. Renfort naturel

Comme nous l'avons déjà évoqué les contraintes environnementales et économiques orientent les marchés vers les fibres naturelles disponibles et renouvelables et à faible impact environnemental. On peut subdiviser ces fibres en trois grands groupes classés selon leur origine : Les fibres animales composées principalement de protéines, les fibres minérales telles que l'amiante et les fibres végétales [2,13]. Le schéma ci-dessous représente cette classification avec quelques exemples :

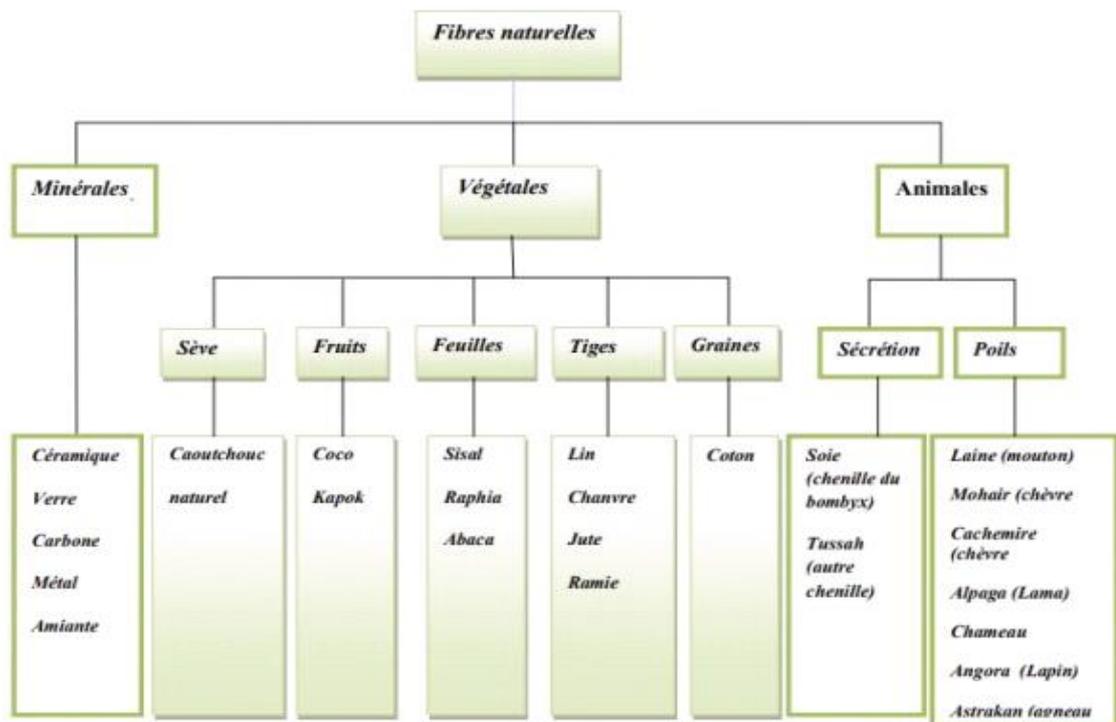


Figure I.5 : Classification des fibres naturelles en fonction de leur origine. [14]

Dans ces fibres, les fibres minérales sont nocives pour la santé et toxique, à titre d'exemple, l'amiante qui est devenue interdit progressivement à cause des risques cancérigènes qu'il présente. Les fibres animales et le coton pour les fibres végétales sont majoritaires et plus destinées au textile /habillement tandis que les autres fibres végétales ont suscité un intérêt très important, possèdent des caractéristiques, notamment de rigidité, appréciables pour la réalisation de matériaux composites, ces fibres peuvent être issues de différentes parties de la plante. Elles peuvent provenir des graines (poils séminaux), de la tige ou du tronc (fibres libériennes), des fruits (enveloppe), ou bien encore des feuilles (figure I.5). [2,14]

I.2.2.1. Structure morphologique des fibres végétale

En première approche, une fibre végétale peut être assimilée à un matériau composite renforcé par des fibrilles cellulosiques. La matrice est composée principalement d'hémicelluloses, de pectines et de lignine. Tous ces composants vont se structurer sous forme d'un matériau multicouche composé de parois cylindriques concentriques, celle-ci est composée d'une paroi primaire et d'une paroi secondaire, elle-même constituée de trois

Chapitre I : Synthèse bibliographique

couches : S1, S2 et S3. La paroi primaire est la couche la plus externe, elle est principalement constituée de pectines et de microfibrilles de cellulose orientées aléatoirement, tandis que La paroi secondaire est la plus grande partie du volume de la fibre et contient davantage de cellulose que la paroi primaire. Ces différentes couches qui forment la lamelle mitoyenne (figure I.6). [15]

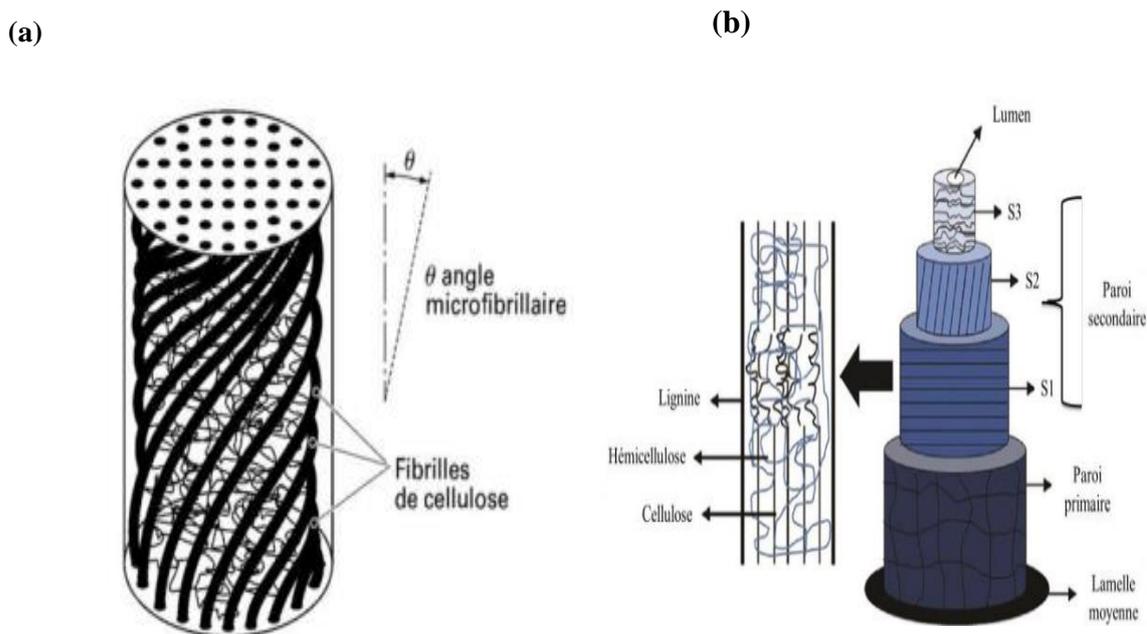


Figure I.6 : (a) Schéma de principe de la structure d'une fibre, (b) Schéma de la microstructure d'une fibre végétale. [15,16]

A propos des microfibrilles, ils décrivent par rapport à l'axe de la fibre, un angle microfibrillaire dont la valeur varie d'une espèce à l'autre. L'orientation de ces microfibrilles par rapport à l'axe de la cellule joue un grand rôle dans les propriétés mécaniques des parois des fibres, Plus l'angle microfibrillaire est faible, plus la rigidité et la résistance mécanique de la fibre sont élevées, cependant, plus l'angle microfibrillaire est élevé, plus l'allongement à la rupture est grande. [15]

I.2.2.2. Composition des fibres végétales

Ces fibres végétales contiennent des polymères naturels qui leur confèrent des propriétés mécaniques intéressantes. Ces polymères naturels sont la cellulose, les hémicelluloses, la lignine et les composés extractibles (cires, pectines) auxquels s'ajoute la matière

Chapitre I : Synthèse bibliographique

inorganique en très faible quantité. La composition de ces fibres naturelles varie selon leurs origines botaniques, les conditions climatiques, la maturité et le mode d'extraction. [16]

1. La cellulose

La cellulose considérée comme le biopolymère le plus répandu sur terre. Elle est synthétisée par voie enzymatique au sein des cellules végétales. Ce polymère est linéaire et a pour unité le β - D-Glucopyranose avec un degré de polymérisation d'environ 10000. Ses unités sont liées entre elles par des liaisons glycosidiques de type β - (1,4) (Figure. I.7). Chaque monomère possède 03 groupements hydroxyle, ce qui fait que des liaisons de type hydrogène inter et intramoléculaire sont à même de s'établir en causant un caractère fortement hydrophile. Grâce à sa grande cohésion, la cellulose est insoluble dans la plupart des solvants. Elle est résistante aux alcalins forts, mais est facilement hydrolysée par les acides. [17]

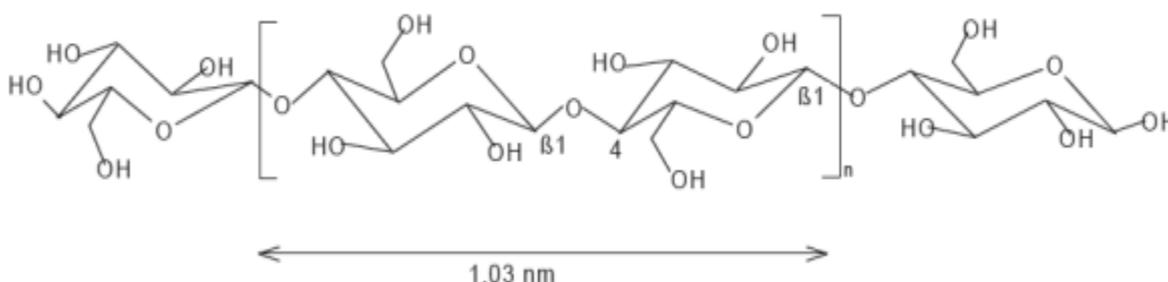


Figure I.7 : Structure chimique de la cellulose. [18]

1. L'hémicellulose

Les hémicelluloses constituent une classe de polymères amorphes présentant une grande diversité de structure. Ce sont des polysaccharides de faible poids moléculaire. Elles sont composées de sucres neutres : xylose, arabinose, galactose, glucose, mannose, et d'acides uroniques. Elles sont solubles dans l'eau et peuvent être extraites de la paroi des cellules végétales par des solutions alcalines. [19] (figure I.8)

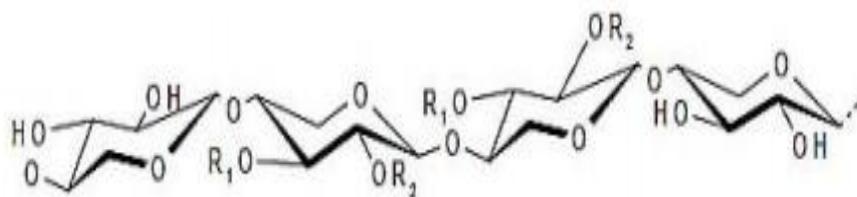


Figure I.8 : Structure chimique de l'hémicellulose. [15]

2. Les lignines

La lignine est une macromolécule extrêmement hétérogène composée de polymères aromatiques. Elle représente, après les polysaccharides, le polymère naturel le plus abondant sur terre. Elle participe à la rigidité structurale des parois cellulaires et protège les plantes contre l'attaque des organismes pathogènes. La lignine est une molécule à trois dimensions composée d'unités de phényle propane. Les unités primaires (monolignols) constituant la lignine sont l'alcool coniférylique, l'alcool sinapylique et l'alcool p-coumarylique (Figure 1.9). Au cours du processus de lignification, des phénoloxydases végétales telles que les laccases interviennent et permettent la polymérisation des différentes unités élémentaires. Une fois synthétisée, la lignine s'associe avec les différents polysaccharides pour former une matrice constitutive de la paroi végétale. [20]

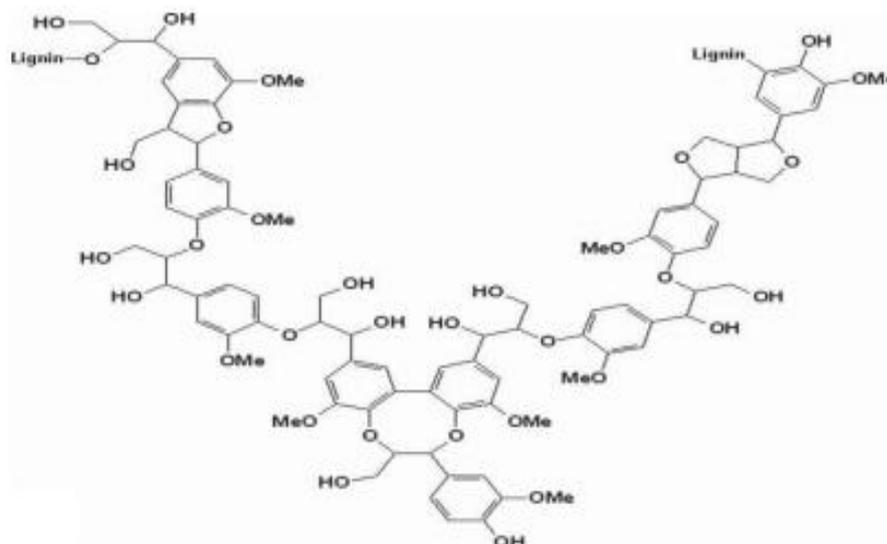


Figure I.9 : Exemple de structure chimique de lignin. [18]

Chapitre I : Synthèse bibliographique

Il est à noter que la composition chimique de fibres naturelles est cruciale dans leur performance et leur application. En générale, cette composition chimique ainsi que la structure des fibres, les démentions des cellules sont les principales variables qui conditionnent l'ensemble des propriétés des fibres. À titre d'information, le tableau suivant présente les compositions et les propriétés de quelques fibres végétales les plus courants. [11,20]

Tableau I.2 : Propriétés et compositions des fibres naturelles. [21]

Fiber	Cellulose [%wt]	Hemicellulose [%wt]	Lignin [%wt]	Ash [%wt]	T _{onset} [°C]	Density [g/cm ³]	Tensile strength [MPa]	Young's modulus [GPa]	Elongation at break [%]
artichoke	75.3	-	4.3	2.2	230	1.579	201	11.6	-
okra	60-70	15-20	5-10	-	220	-	281	16.5	-
ferula	53.3	8.5	1.4	7.0	200	1.24	475	52.7	4.2
althaea	44.6	13.5	2.7	2.3	220	1.18	415	65.4	3.9
piassava	31.6	-	48.4	-	225	1.40	77	2.93	10.45
alfa	45	-	23	2	320	0.89	250	20	-
sisal	78	10	8	-	302	1.50	511 - 635	9.4 - 22	2 -2.5
coir	43	0.3	45	-	-	1.20	175	4 - 6	30
ramie	76	15	1	-	-	1.50	560	24.5	2.5
jute	72	13	13	-	330	1.30	393 - 773	26.5	1.5 -1.8
flax	81	16.7 -20.6	3	-	282	1.50	345 - 1035	27.6	2.7 -3.2
bamboo	26-43	30	21-31	-	214	0.60- 1.10	140 - 230	11 - 17	-
cotton	85-90	5.7	-	-	-	1.50- 1.60	287 - 597	5.5 - 12.6	7-8
arundo	43.2	20.5	17.2	1.9	275	1.168	248	9.4	3.24

Une analyse succincte de ces données met en évidence la très grande disparité des propriétés des fibres naturelles. Comme cité précédemment, ces propriétés seront variables avec la contribution de chaque constituant de la fibre. Le taux de cellulose, en particulier, aura une influence importante sur les propriétés mécaniques des fibres, puisque c'est le polymère qui apporte le plus de rigidité. [20]

I.3. Etude bibliographique des fibres végétales utilisée (La Canne de provence)

a) La plante :

Arundo donax est une espèce de plante herbacée à rhizome de la famille des Poaceae. Caractéristique des lieux aquatiques des régions méditerranéennes. D'aspect proche du bambou, elle a de grandes feuilles effilées et retombantes (Figure I.10). Sa hauteur varie de 1 à 8 mètres. Suivant les conditions de culture, elle peut avoir une tendance invasive. Elle supporte facilement la sécheresse une fois installée. [22]



Figure I.10 : Arundo donax « Giant reed ». [23]

Comme toutes les plantes l'Arundo donax (AD) se divise en deux parties, les racines et les tiges (chaumes). Les Racines, se présente sous la forme d'un ensemble des rhizomes (tiges souterraines) capable de porter, à partir des nœuds, de nouvelles pousses. Ainsi, Les chaumes atteignent un diamètre de 1 à 4 centimètres, Ces chaumes sont creux, avec des murs 2 à 7 millimètres. [24] L'Arundo Donax est une espèce présente dans tous les pays et, en raison de sa capacité d'adaptation et de sa vitesse de croissance, elle peut représenter une ressource naturelle de grand intérêt économique. [25]

b) Plantes de la même famille :

• **Graminée**

Comme nous l'avons déjà évoqué, l'Arundo Donax appartient à la famille Poaceae appelée également Gramineae qui est le nom scientifique d'une importante famille botanique (11 000 espèces). Les Poacées incluent des herbes et céréales mais également des bambous (Figure I.11). On utilise généralement le terme chaume pour identifier ces graminées. [22]



Figure I.11 : Famille des herbes et cannes. [22]

Les traits caractéristiques de cette famille sont :

- Une tige cylindrique et souvent creuse par résorption de la moelle centrale.
- Des faisceaux qui permettent la circulation de la sève entrecroisés et renfermant des fibres de renfort de la tige.
- Des tiges comportant des nœuds d'où émerge une feuille. Ces nœuds servent au maintien vertical de la tige [22]

L'Arundo Donax aura donc des propriétés similaires aux autres végétaux de cette famille en plus d'avoir un aspect visuel comparable. Pour ce qui est de la composition, si l'on compare l'AD aux Bambou, Leurs composants principaux ne sont pas aussi différents. (Tableau I.3)

Chapitre I : Synthèse bibliographique

Tableau I.3 : Composition chimique des fibres d'Arundo Donax et du bambou.

	Cellulose	Hémicellulose	Lignine	cendre	Référence
Arundo dunax	43	20	17	1,9	[21]
Bambou	47.1	16.1	20.2	1.1	[20]

L'analyse chimique menée par Fiore et al [21] de l'ensemble du matériau de la tige (à l'exclusion des nœuds et inter-nœuds) a révélé les taux présentés dans le tableau I.3. Ces auteurs ont également déterminé la densité réelle ($d = 1,168$), ainsi que le module d'Young (9.4GPa).

La figure I.12, présente une courbe contrainte-déformation en traction de la fibre d'Arundo Donax. Celle-ci présente une région linéaire suivie d'une partie non linéaire (0.3% à 0.6 % de déformation) suivie également d'une limite d'élasticité et d'une chute de charge soudaine en cas de défaillance de la fibre. La courbe montre que les fibres d'AD se brisent à environ 2,8% de déformation et présentent des valeurs de résistance à la traction (248 MPa). [24]

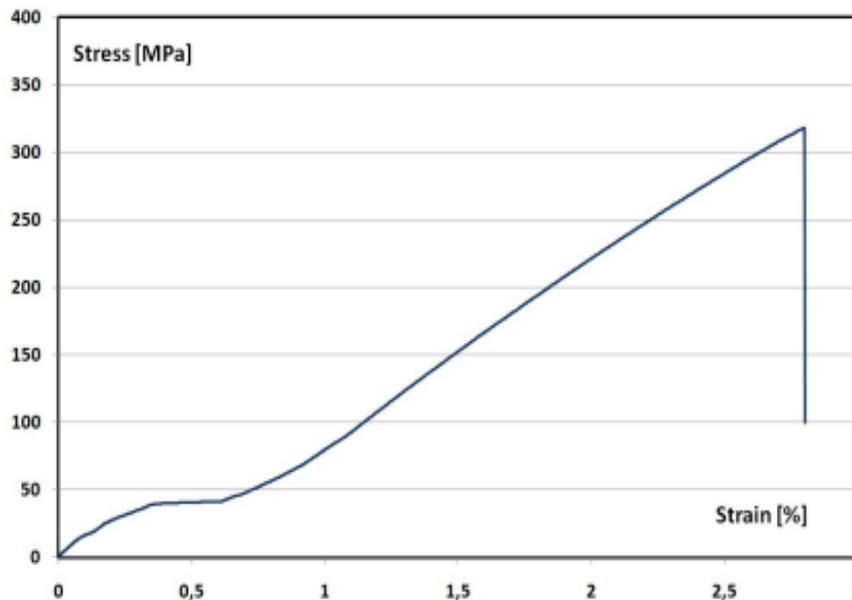


Figure I.12 : courbe contrainte/déformation des fibres d'Arundo Donax [21]

Chapitre I : Synthèse bibliographique

Les micrographies des fibres d'Arundo Donax paraissent bien différentes sous microscopie électronique. Ces microphotographies des surfaces des fibres à Cannes de provence à deux agrandissements, un faible et un autre haut (figure I.13) révèlent une surface caractéristique, mais aussi un bon signe d'une bonne prédisposition comme renfort.[24]

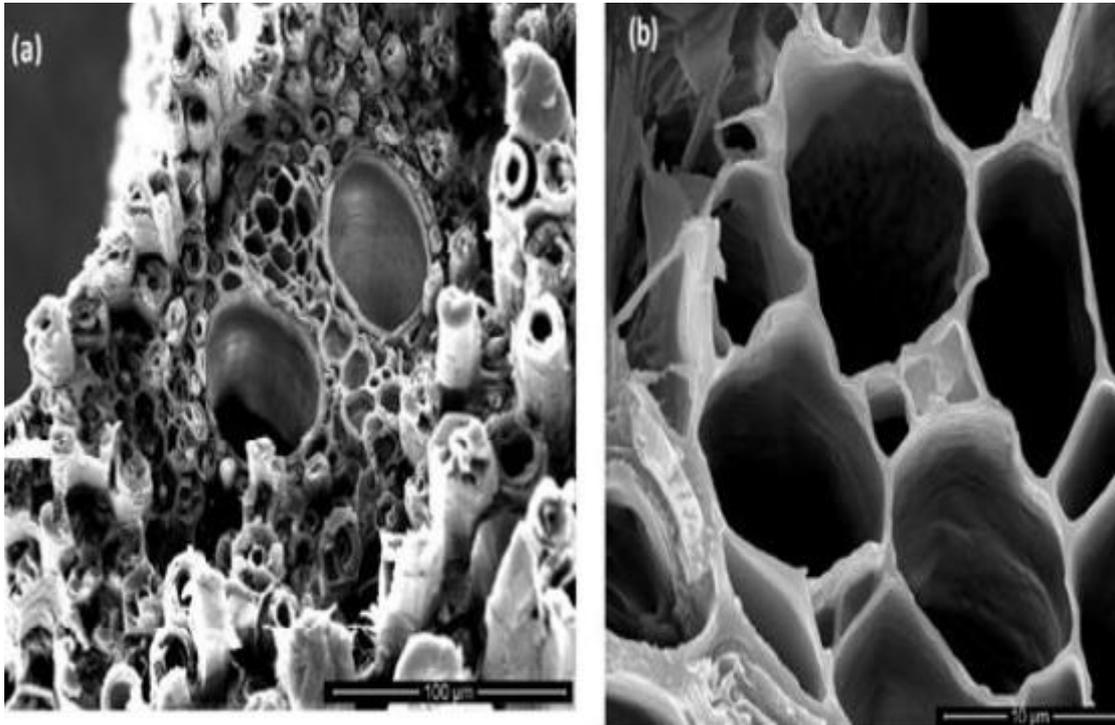


Figure I.13 : microphotographies MEB des surfaces des fibres d'Arundo donax à deux différents agrandissements : (a) faible et (b) haut. [22]

Tous ces résultats ainsi que l'ensemble des travaux antérieure [23, 26,27] ont montré que les propriétés physico-chimique, thermique et mécanique des fibres extraites des tiges d'Arundo Donax sont comparables à ceux d'autres fibres végétales courantes, confirmant que ces fibres représentent une alternative valable à celles-ci comme renfort dans les composites polymères.

c) Application d'Arundo donax :

- Fibre d'Arundo donax pour des composés, panneaux, planché, faisceaux, traverses, meubles
- Une matière première pour l'industrie de papier
- Fibre de longue, mince, haute qualité pour les textiles non-tissés.
- La fabrication des instruments musicaux

Chapitre I : Synthèse bibliographique

- Dans les interventions de stabilisation de terrains à risque hydrogéologique
- Utilisation large dans le monde artisanal. [24,28]

I.4. Interface fibre-matrice

L'interface fibre-matrice assure la transmission des efforts entre la matrice et le renfort lors d'une sollicitation, elle joue un rôle important sur le comportement mécanique du composite. Il est clair qu'une bonne adhérence est essentielle pour que ces contraintes soient correctement transférées au renfort, cela peut être réalisé avec les bonnes interactions au niveau de l'interface entre la fibre et la matrice. Pour ces raisons, l'étude de l'interface est indispensable. [29].

En plus de l'adhésion interfaciale fibre/matrice les propriétés mécaniques des matériaux composites sont très sensibles à différents paramètres notamment : la nature et la quantité des constituants, leur morphologie ainsi que leur orientation et leur état de la dispersion dans la matrice, en plus de l'humidité et de la température. [29].

I.5. Domaines d'application des biocomposites

Les matériaux composites présentent une alternative aux matériaux synthétiques nocifs permettant de contrôler les problèmes liés à la pollution. En outre, leur légèreté, biodégradabilité, faible coût ainsi que leur faible consommation d'énergie leur permettent d'être ciblés par plusieurs secteurs d'application, qui ne nécessitent pas une grande résistance mécanique, mais plutôt, une réduction des coûts d'achat et d'entretien. On peut citer [30,31]

- L'automobile (à titre d'exemple, les panneaux séparant le moteur et les compartiments passager).
- Le matériel sportif.
- Les composants électriques.
- La construction (les panneaux de portes et plafonds).
- Le matériel médical (matériel de fixation osseuse, sutures internes, microsphères pour les médicaments et le génie tissulaire)
- Les emballages, les textiles, l'horticulture.



Figure I.14 : Exemples d'application des biocomposites. [30]

I.6. Modification de la surface des fibres végétales :

Le traitement de la surface des fibres végétales a pour but d'améliorer la compatibilité entre le polymère et les fibres naturelles, et ainsi améliorer les propriétés des composites. Les différents traitements qui peuvent être appliqués sont généralement classés en deux catégories : chimique et physique. On s'intéresse dans cette partie plutôt au traitement chimique qui conduit à une meilleure stabilité dimensionnelle et réduire la tendance hydrophile de la fibre.

I.6.1. Traitement alcalin à la soude

Ce traitement consiste à immerger la fibre dans une solution alcaline : d'hydroxyde de potassium (KOH), d'hydroxyde de lithium (LiOH) ou encore de soude (NaOH). Cette dernière aussi appelée mercerisage est le traitement le plus courant. Ce traitement permet d'éliminer les composants indésirables de la fibre (l'hémicellulose, la lignine, la pectine et la cire), Le principal effet de ce traitement est la diminution des liaisons hydrogène, ce qui entraîne des modifications dimensionnelles, morphologiques et mécaniques des fibres. La

Chapitre I : Synthèse bibliographique

texturation de surface par apparition des microfibrilles provoque une rugosité. Ceci peut faciliter l'accrochage physique et générer une meilleure imprégnation par la matrice. Au cours de cette réaction, une modification de l'orientation des zones cristallines de la cellulose est aussi causée. Ce qui a pour effet la formation de plus de régions amorphes. Et donc l'augmentation de l'accessibilité des produits chimiques. [32]

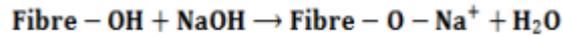


Figure I.15 : Mercerisage de la fibre naturelle.

I.6.2. Traitement par les silanes

Les groupements silanes liés à l'atome de silicium subissent une hydrolyse donnant naissance à des groupements OH hydrophiles. Ces derniers se greffent aux groupements hydrophiles présents à la surface de la fibre pour former des liaisons covalentes. L'autre segment de la molécule se lie à la matrice polymérique hydrophobe, formant ainsi un pont entre la fibre et la matrice et améliorant l'adhésion à l'interface. [33]

Le mécanisme d'action des silanes avec les fibres végétales est présenté sur la Figure I.16.

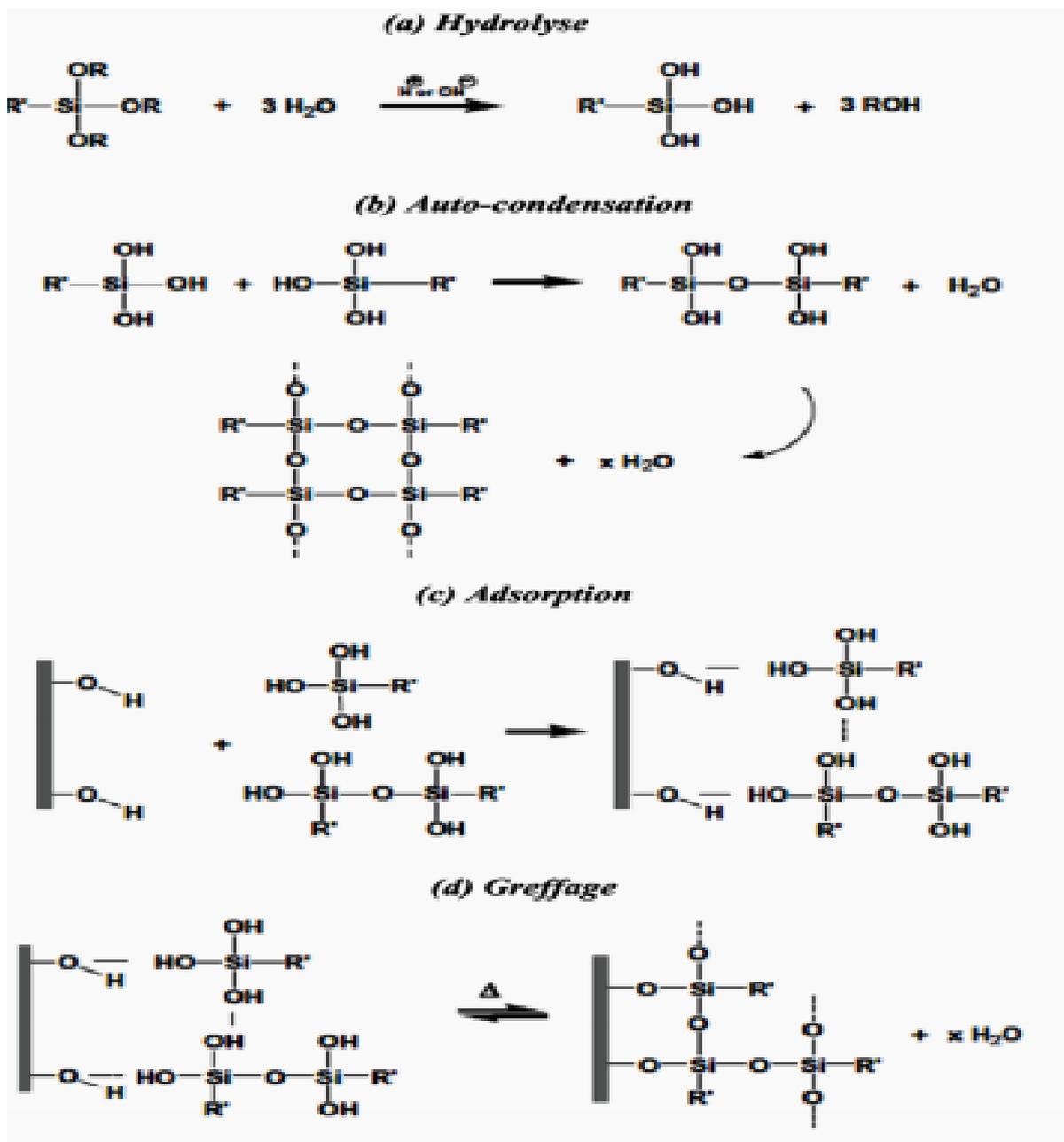


Figure I.16 : Principe d'interaction fibre naturelle/silane. [34]

I.7. Techniques de mise en œuvre des biocomposites

De même que pour les matériaux composites conventionnels, il existe plusieurs procédés de fabrication de composites renforcés par des fibres naturelle. Parmi les porcidés les plus couramment utilisées on trouve l'extrusion, l'injection et la thermocompression [35]

I.7.1. Extrusion d'un mélange de fibres et d'un thermoplastique

C'est une méthode qui permet une réalisation complète du composite. Par ailleurs, les fibres sont introduites dans la résine par le biais d'un système à vis ; celle-ci permet d'effectuer un bon mélange grâce à l'important taux de cisaillement qu'elle peut développer. [36]

I.7.2. Resin Transfer Molding (RTM) ou Injection:

Généralement, ce procédé nécessite en l'utilisation de matrices thermodurcissables et de fibres plus longues. Il consiste à placer les fibres au sein d'un moule fermé, la résine est injectée par un ou plusieurs points suivant la taille et la géométrie de la pièce à réaliser. [35] (figure I.17)

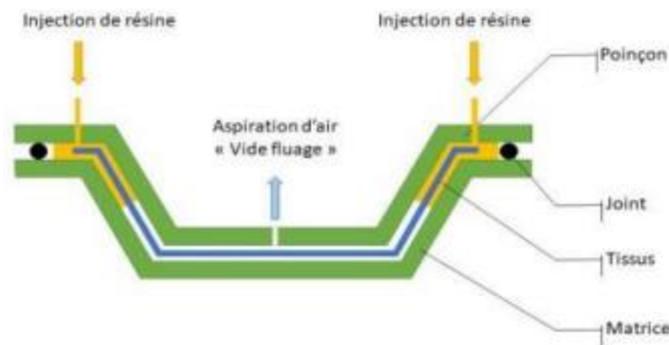


Figure I.17 : Schématisation du procédé RTM. [37]

I.7.3. Le plastographe Brabender

Le plastographe Brabender est un rhéomètre à couple de torsion, utilisé pour l'étude du comportement rhéologique des polymères.

Dans notre travail, l'appareille utilisée est un brabender® plastograph® EC qui est la version de table économique du rhéomètre à couple universel Plastograph®. Avec son moteur numérique de 3.8 KW, une plage de mesure de couple de 200 Nm et une plage de vitesse de 0,2 à 150 min⁻¹, le plastographe® EC permet de coupler des mixers et extrudeuses pour le contrôle qualité et aussi la recherche et développement. [38]

Chapitre I : Synthèse bibliographique

D'une manière générale, le procédé de fabrication joue un rôle primordial sur les performances des matériaux bio-composites : méthode d'élaboration, nature des fibres utilisées, facteur de forme des fibres, de vitesses et/ou de températures de mise en œuvre.

I.8. Biocomposites polymère/fibres végétale/AD

Cette section résume quelques travaux antérieurs sur des matériaux composites à matrice polymères renforcés par des fibres végétales. Essentiellement, les travaux ayant utilisé le Poly (acide) lactique et les fibres d'Arundo Donax.

V. Fiore T. Scalici A. Valenza, [21] Ont étudié la possibilité d'utiliser les fibres d'Arundo Donax comme renfort dans les composites polymères. La morphologie des fibres a été étudiée par microscopie électronique à balayage, la spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier (FTIR) a été réalisée pour analyser la structure chimique de leurs composants. De plus, le comportement thermique fibres a été étudié à travers courbe ATG et DTG. Les propriétés mécaniques ont été étudiées, la densité et l'angle microfibrilles ont été évalués. Les résultats expérimentaux sont comparables à ceux d'autres fibres naturelles courantes, confirmant que ces fibres représentent une alternative valable à celles-ci comme renfort dans les composites polymères.

V. Fiore T. Scailici, G. Vitale, A. valenz, [39] ont développé et caractérisé des biocomposites à base de résine époxy renforcés de fibres d'Arundo Donax. L'influence du contenu et de la taille des fibres sur les propriétés mécanique a été évaluée. Trois compositions (5% 10% 15% en poids de fibre) et quatre charges différentes de tailles (<150µm, 150 µm, 300µm, 300 µm-500 µm, 500 µm- 2mm) ont été analysées. Des traitements chimique sont effectués pour améliorer la compatibilité fibre matrice, L'analyse des surfaces fracturées a été étudiée à l'aide d'une microscopie électronique à balayage. La caractérisation mécanique montre que tous les composites présentent des modules de traction et de flexion plus élevés (40% et 15,3% respectivement) que la résine pur. Les résistances mécaniques des composites à teneur en AD égale 5% et 10% diminuent avec l'augmentation de la taille de la charge, inversement, les résistances mécaniques des composites à teneur en AD égales à 15% augmentent avec l'augmentation de la taille de charge.

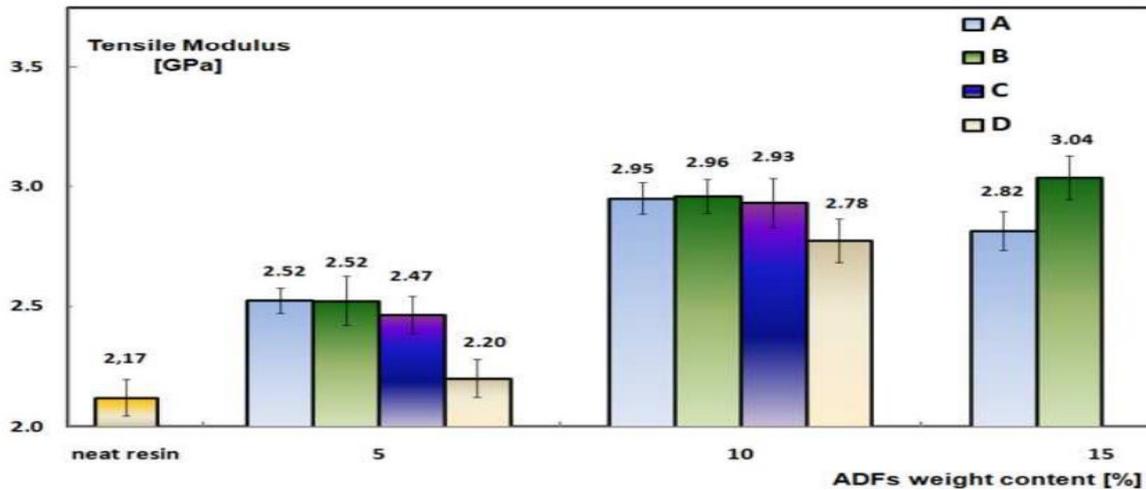


Figure I.18 : Module de traction des composites en fonction de la teneur en poids ADFs

Orue et al. [40] ont étudié l'effet des modifications de surface des fibres de sisal sur les propriétés des fibres et l'adhésion interfaciale sisal/PLA. Les fibres de sisal ont été traitées avec du NaOH, du silane et la combinaison des deux traitements. Ils ont conclu que le traitement alcalin élimine les composants non cellulose (hémicelluloses, lignine) alors que le traitement par le silane rend les fibres plus hydrophobes. En outre, il a été constaté que le traitement par la combinaison de NaOH et de silane provoque une diminution plus nette de la résistance à la traction des fibres de sisal, tandis que la résistance au cisaillement du composite sisal / PLA est améliorée d'au moins 120% après ce traitement.

V.Fiore, L.Botta, R.Scaffaro, A.Valenza, A. Pirrotta, [41] ont étudié la possibilité de renforcer le PLA par la fibre d'Arundo donax. Les biocomposites ont été préparés en mélangeant à l'état fondu avec une extrudeuse biphase de PLA avec une charge d'Arundo donax. L'influence de la teneur et la taille d'AD sur les propriétés mécanique et thermique des composites PLA-AD a été évaluée. Les résultats de cette étude montrent que les composites présentant un module de traction environ 39% supérieure à ceux du PLA pur, la résistance à la flexion des composites plus élevée d'environ 40% à ceux du PLA seul, le module de traction et de flexion augmente fortement lorsque la teneur en charge augmente. Au contraire la taille de l'AD n'influence pas significativement la rigidité du composite. Ces augmentations et résultats se sont avérées supérieures à celles obtenues avec d'autres charges naturelles telles le bois, le lin, l'amidon de maïs et sont comparables avec des composites contenant de la cellulose commerciale ou de la cellulose extrait.

Chapitre I : Synthèse bibliographique

Tableau I.4 : propriétés de traction des composites PLA pur et PLA-ADF.

Samples	Tensile modulus (GPa)	Tensile strength (MPa)	Elongation at break (%)	Toughness (kJ/m ³)
PLA	3.22 ± 0.17	48.9 ± 1.4	2.24 ± 0.26	695.3 ± 72.5
C300-10	3.69 ± 0.15	37.5 ± 1.8	1.35 ± 0.20	309.7 ± 31.6
C500-10	3.85 ± 0.09	37.3 ± 2.0	1.09 ± 0.10	231.2 ± 26.5
C300-20	4.35 ± 0.24	33.4 ± 4.5	0.86 ± 0.11	168.8 ± 19.5
C500-20	4.47 ± 0.16	31.5 ± 2.9	0.76 ± 0.07	138.1 ± 15.4

Chapitre II : Matériels et méthodes

Ce chapitre a été divisé en trois parties, La première concerne les différents matériaux utilisés au cours de ce travail. La deuxième partie est consacrée à la description des techniques de traitement et de l'élaboration des biocomposites et enfin, la troisième partie est une présentation des différentes techniques expérimentales utilisées pour évaluer les propriétés des biocomposites PLA/Arundo donax.

II.1. Matériaux utilisés

II.1.1. Le Poly (acide lactique) :

Le Polyacide lactique (PLA) utilisé lors de cette étude est produit par Nature Works LLC et commercialisé sous le nom Ingeo™ Biopolymer 7001D, sous forme de granulés transparents. Sa structure chimique est présentée dans la figure ci-dessous (Figure II.1) et ses principales propriétés sont regroupées dans le (Tableau II.1).

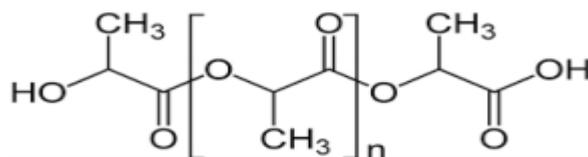


Figure II.1 : Structure chimique du PLA.

Tableau II.1 Propriétés physico-chimiques du PLA 7001D. [42]

Propriétés	Valeur	Méthode
Densité	1,24	ASTM D792
Indice de fluidité (210°C, 2,16 Kg)	6 g/10min	ASTM D1238
Température de transition vitreuse	55-60 °C	ASTM D3418
Température de fusion	145-160 °C	ASTM D3418

II.1.2. Fibre d'Arundo donax :

L'Arundo Donax a été récolté de la région de Bejaia (Algérie) au cours de la période de février 2023. Les tiges exemptes de feuilles ont été utilisées dans cette étude.

II.1.3. Les produits chimiques :

- **Hydroxyde de sodium** : la soude caustique est une base forte commercialisée par la société BIOCHEM chermopharma. De masse moléculaire de $40\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$. Elle se trouve sous forme de pastilles blanches de formes variables. Ce produit a été utilisée afin d'éliminer l'hémicellulose et des différents extractibles.
- **Acide acétique** : est un produit fourni par Biochem-Chemopharma. De masse moléculaire de $60,04\text{ g/mol}$, Il a été utilisé pour ajuster le pH lors des différents protocoles.
- Le triméthoxysilane d'octadécyle (trimethoxy (octadecyl) silane (TMOS)) est un agent de couplage fourni par Sigma-Aldrich. ses caractéristiques principales sont représentées dans le tableau II.2.

Tableau II.2 : caractéristiques physico-chimiques du TMOS. [43]

Caractéristiques	valeur
Formule chimique	$\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{16}\text{CH}_2\text{-Si}(\text{OCH}_3)_3$
Etat et couleur	Liquide transparent
Densité	0,885 à 25°C
Pureté	90%

II.2. Organigrammes

Partie A : Préparation et traitement des fibres AD et leur caractérisation

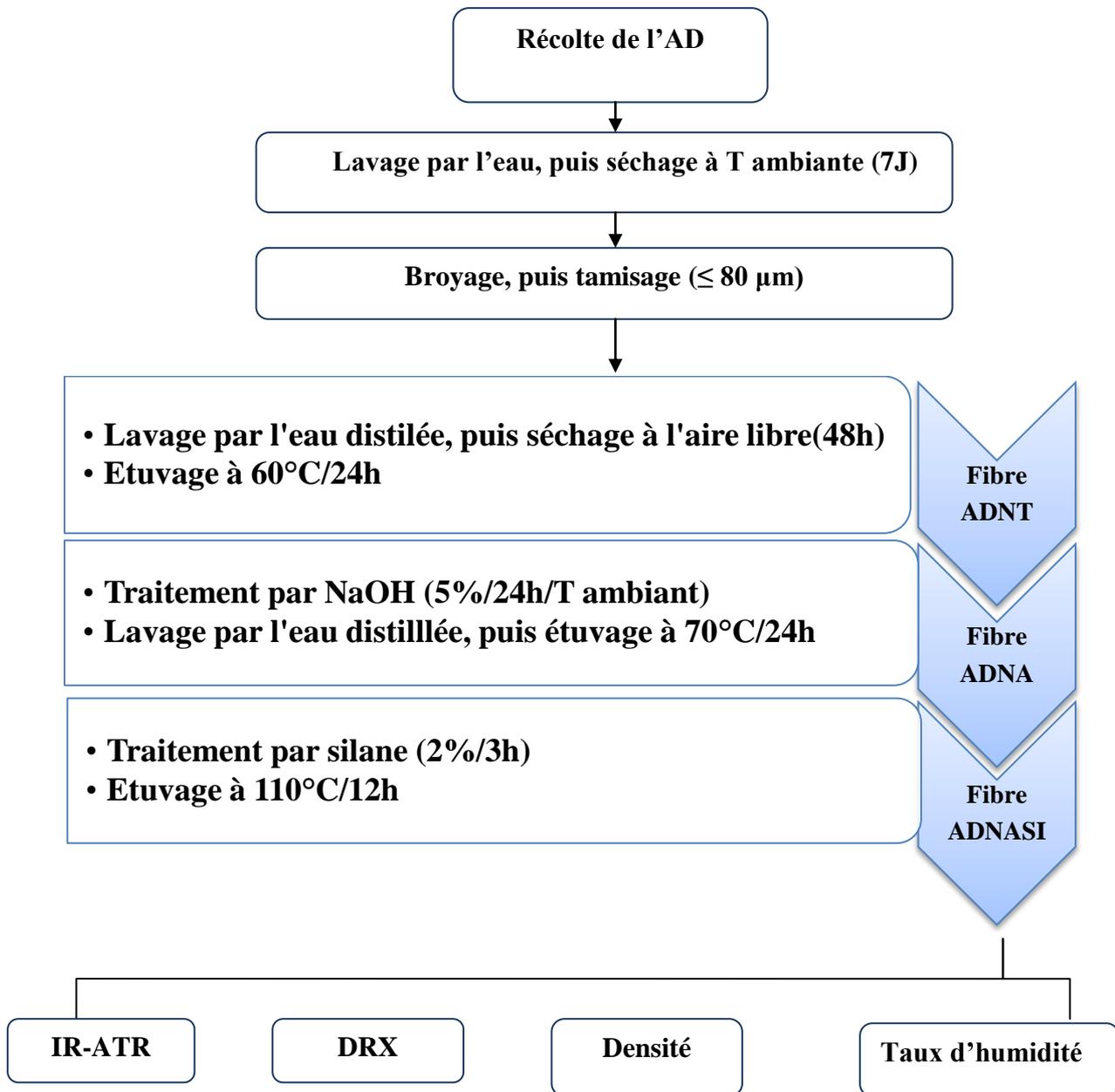


Figure II.2 : Préparation, traitement et caractérisation de la fibre AD.

Partie B : Préparation des biocomposites et leurs caractérisations

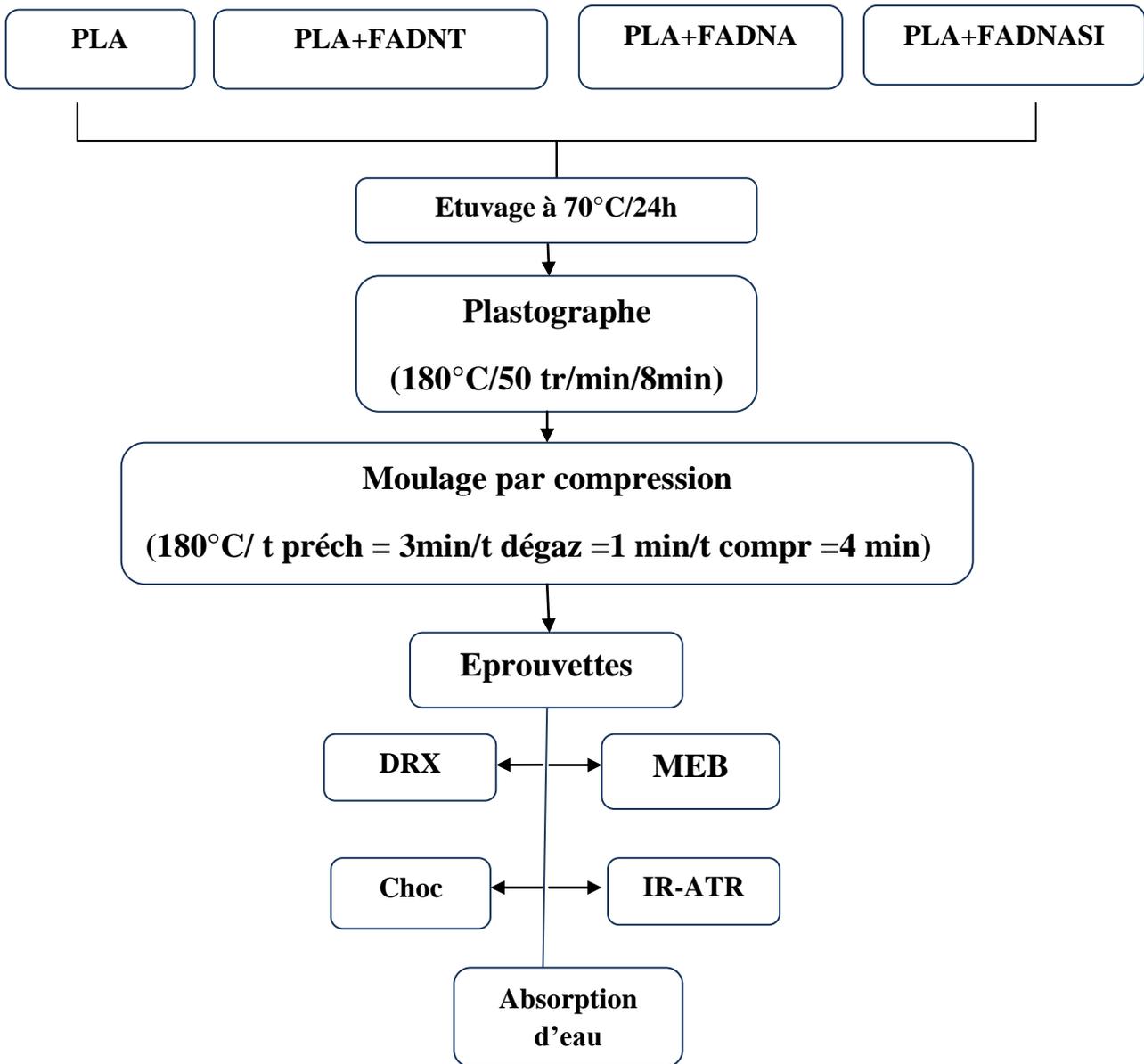


Figure II.3 : Préparation et caractérisation des biocomposites PLA/AD.

II.3. Mise en œuvre des biocomposites

II.3.1 Préparation des fibres d'Arundo donax :

La matière première a été collectée à partir des tiges d'Arundo, ces tiges ont été coupées en des petits bâtonnets de longueurs variées de 5 à 6 cm. Celles-ci ont été lavées plusieurs fois avec de l'eau non chauffé pour se débarrasser des substances étrangères collées à la surface. Ensuite ces bâtonnets ont été séchées à l'aire libre pendant une semaine afin de réduire leurs taux d'humidité puis broyées en utilisant un Moulin METAL8 de marque SEB et un broyeur

de type Retsch ZM 200. Par la suite, le produit obtenu a été passé à travers un tamis. La granulométrie finale de la fibre obtenue est inférieure à 80 μm . Avant le traitement, les fibres ont été lavées avec l'eau distillée, puis séchées dans une étuve à 60°C pendant 24h.



Figure II.4: Illustration des étapes d'obtention de la farine d'AD.

II.3.2. Traitement par NaOH :

La méthode suivie pour le traitement alcalin des fibres a été inspirée des travaux des N.F. Ismail et al. [44] Ce traitement, visant à éliminer l'hémicellulose, la pectine et une certaine quantité de lignine, le protocole est décrit comme suit:

Une partie des fibres brutes a été immergée dans une solution de NaOH à une concentration de 5 % sous agitation pendant 24 heures à la température ambiante. Après filtration, la fibre est lavée avec de l'eau de robinet plusieurs fois, puis une neutralisation, confirmée au moyen d'un pH-mètre a été effectuée et est suivie d'un lavage avec de l'eau distillée. Enfin, la fibre (ADNA) a été séchée dans une étuve à 70°C pendant 24 heures.



Figure II.5 : Illustration du protocole de mercerisage.

II.3.3. Traitement combiné alcalin/silan :

L'objectif de ce traitement est de greffer les molécules de TMOS sur la surface de la fibre afin d'améliorer son adhésion au PLA. Le protocole mis en œuvre a été établi en se référant à celui proposé par G. Panayiotis et al [45], décrit comme suit :

Une partie des fibres d'AD qui a été traitée par NaOH, a été immergée dans une solution eau/éthanol 60/40% (v/v) contenant 2 % en masse de l'agent de couplage TMOS (par rapport à la masse des fibres à traiter). Le pH de la solution est ajusté par une solution d'acide acétique (2%v) à une valeur de 4, ensuite la solution est agitée pendant 3 heures à la température ambiante, puis filtrés et étuvés à 110°C pendant 12heures.

II.3.4. Préparation des biocomposites :

Une unité à l'échelle du laboratoire LMPA est utilisée pour la préparation des biocomposites par voie fondu. Pour cette étude, les composants PLA, fibres d'AD préalablement étuvés (70°C/24h), ont été préparés sur un plastographe du type Brabender, assisté par un ordinateur qui visualise les variations du couple de malaxage en fonction du temps, Dans notre travail une masse totale de 30 g a été choisie et mise en place dans la chambre réactionnelle du plastographe, à une température 180°C, un temps de malaxage de 8 min et une vitesse de rotation de 50 tr/min.

Les étapes de mise en œuvre peuvent être présentées comme suit :

- Pesée soigneusement les composants PLA, poudre d'AD pour avoir le pourcentage visé (le taux de charge a été fixé à 20%)
- Placement de l'ensemble poudre et biopolymère dans la machine et mélangés en une seule étape dans le brabender
- Et enfin, l'ensemble est retiré et repesé.



Figure II.6 : Machine Brabender à l'échelle laboratoire.

Quatre formulations PLA/AD ont pu ainsi être produites par le Brabender, une contient uniquement du PLA. Trois autres formulations à base de PLA avec des fibres brutes et puis des fibres traitées. Le tableau suivant résume les différentes formulations réalisées.

Tableau II.3. Les différentes formulations réalisées.

Formulation	PLA (%m)	FADNT (%m)	FADNA (%m)	FADNASI (%m)
PLA	100	-	-	-
PLA/FADNT	80	20	-	-
PLA/FADNA	80	-	20	-
PLA/FADNASI	80	-	-	20

II.3.5. Préparation des éprouvettes :

Après l'étuvage des biocomposites à 70°C pendant une durée de 24 heures, des éprouvettes ont été préparés par moulage par compression à l'aide d'une presse hydraulique de marque «CARVER». Ces différents échantillons ont été réalisés sous les conditions de travail suivantes :

- ✓ Température des plateaux : 180°C ;
- ✓ Temps de préchauffage : 3 min ;

- ✓ Temps de dégazage : 1 min ;
- ✓ Temps de compression : 4 min ;
- ✓ Une pression maximale : 150 kg/cm²

II.4. Techniques de caractérisation

II.4.1. Microscopie électronique à balayage (MEB) :

La caractérisation morphologique des échantillons des biocomposites a été faite par un microscope électronique à balayage de marque «Joel NeoScope JMC-5000». Des micrographies MEB ont été prises à partir de surfaces fracturées des échantillons mises dans la position parallèle au faisceau d'électrons.

II.4.2. Spectroscopie IR-ATR :

L'analyse structurale des formulations préparées, du polymère vierge et des biocomposites ainsi que des fibres brutes et traitées ont été obtenus à l'aide d'une spectroscopie infrarouge en mode ATR. L'appareil utilisé est de marque Thermo scientific. Les spectres ont été enregistrés en mode absorbance dans le domaine 4000 cm⁻¹ à 500 cm⁻¹ par simple réflexion interne à partir de l'échantillon directement déposé et pressé sur la surface d'un cristal hémisphérique de silicium.

II.4.3. Diffraction des Rayons X (DRX) :

L'évolution de la structure cristalline (taux de cristallinité) des différents échantillons est étudiée par diffraction des rayons X. Des diagrammes de diffraction des rayons X ont été enregistrés en mode gonion à température ambiante sur un diffractomètre PanaLytical muni d'un détecteur rapide à semi-conducteurs. Le rayonnement CuK α a été employé. Les enregistrements ont été effectués pour des valeurs de 2 Θ comprises entre 5 et 80 degrés. L'indice de cristallinité (C I) des fibres cellulosiques de diffraction des rayons X, a été calculé selon la méthode empirique de la hauteur du pic (appelée couramment méthode Segal) (équation 1).

$$CI (\%) = 100. [(I_{002} - I_{am}) / I_{002}] \quad (II.1)$$

Où:

Chapitre II : Matériels et méthodes

- I_{002} est l'intensité du pic diffracté à 2θ entre 22° et 23°
- I_{am} est l'intensité du pic diffracté à 2θ entre 18° et 19°

D'autre part, l'utilisation de la DRX offre une facilité pour évaluer les indices de cristallinité (Cr) des composites en utilisant l'équation. [46]

$$C_r \% = (A_C/A_T).100 \quad (\text{II.2})$$

- A_C : est l'aire en dessous du pic de diffraction du plan (002), pic à $2\theta = 22,5^\circ$, et à partir du plan (101), pic à $(13-18^\circ)$;
- A_T : est l'aire au-dessous de toute la région dans les spectres DRX

II.4.4. Densité :

La densité des fibres a été déterminée au moyen d'un pycnomètre. Et ce de la manière suivante :

- Poser le pycnomètre sur la balance et tarer.
- Remplir le pycnomètre de liquide jusqu'au repère.
- Peser le volume de liquide (m_0).
- Vider le pycnomètre.
- Introduire le lot de matière à tester dans le pycnomètre.
- Peser le lot (m_1)
- Compléter le remplissage du pycnomètre avec le liquide.
- Peser l'ensemble eau + matière (m_2).
- Répéter l'essai sur 3 échantillons.

La densité est alors calculée via l'équation suivante

$$D_{Fibre} = \frac{m_1}{m_0 - m_3} \quad (\text{II.3})$$

II.4.5. Mesure du taux d'humidité des fibres (TH) :

Les fibres traitées et non traitées (dont la masse initiale M_i) ont été séchées à la température de 105°C dans une étuve pendant 24 heures et refroidi dans un dessiccateur, puis pesée M_F .

Le taux d'humidité qui correspond à la quantité d'eau perdu est alors calculé selon l'équation suivante :

$$TH(\%) = \frac{(M_i - M_F)}{M_F} \times 100 \quad (\text{II.4})$$

II.4.6. Test d'absorption d'eau :

La méthode utilisée consiste à suivre l'évolution de la masse des échantillons au cours du temps. Cette expérience a été réalisée selon les conditions de la norme ASTM D570-98(2018). Une balance analytique « RADWAG », modèle PS 600/C/2 dotée d'une précision de $\pm 0,0001$ g est utilisée pour ces mesures. Les différentes éprouvettes ont été séchées pendant 24h dans une étuve à 70°C et laissées refroidir jusqu'à la température ambiante dans un dessiccateur avant de les peser. Les différents échantillons ont ensuite été immergés dans des béciers contenant de l'eau distillée. Après 24h, ils ont été retirés, essuyés et pesés. Cette opération a été répétée jusqu'à la saturation en eau. Les caractéristiques liées à l'absorption d'eau des composites sont déterminées par le pourcentage en masse d'eau absorbée défini par l'équation suivant

$$\text{Taux d'absorption d'eau (\%)} = \left[\frac{m_e - m_0}{m_0} \right] \cdot 100 \quad (\text{II.5})$$

m_0 et m_e sont respectivement, la masse initiale de l'échantillon et la masse de l'échantillon après immersion

II.4.7. Test de choc :

L'essai a été réalisé à l'aide d'un appareil de marque « JINAN TESTING EQUIPEMENT » comprenant essentiellement un pendule lourd qui comporte un marteau de 7,5 Kg suspendu à son extrémité libre. L'appareil est également équipé d'un ongle incliné à 150° et d'un cadran qui permet d'indiquer l'énergie absorbées lors de l'impact. L'éprouvette sans entaille a été préparé selon les dimensions (63x12,7x2) mm³ était fermement encastrée verticalement entre deux mâchoires. Elle était percutée à son extrémité opposée. Le test a été réalisé selon la norme EN ISO 180:2000. La résistance au choc des éprouvettes est exprimée par la relation :

$$a_n = (A_n / b \cdot h) \times 100 \quad (\text{KJ} / \text{m}^2) \quad (\text{II.6})$$

Chapitre II : Matériels et méthodes

a_n : Résilience de l'éprouvette sans entaille.

A_n : Energie cinétique pour rompre l'éprouvette sans entaille en joules.

b : Largeur de l'éprouvette en millimètres.

h : Épaisseur de l'éprouvette en millimètres.

Chapitre III : Résultats et discussion

III.1. Caractérisation des fibres d'Arundo donax

III.1.1. Analyse structurale par spectroscopie infra-rouge (IR-ATR) :

Les spectres (IR-ATR) des fibres d'AD brutes (FADNT), traitées au NaOH (FADNA), et traitées au NaOH et TMOS (FADNASI) sont présentés en Figure III.1. On remarque des différences non seulement sur les spectres des fibres traitées, mais aussi par rapport au spectre de la fibre non traitée.

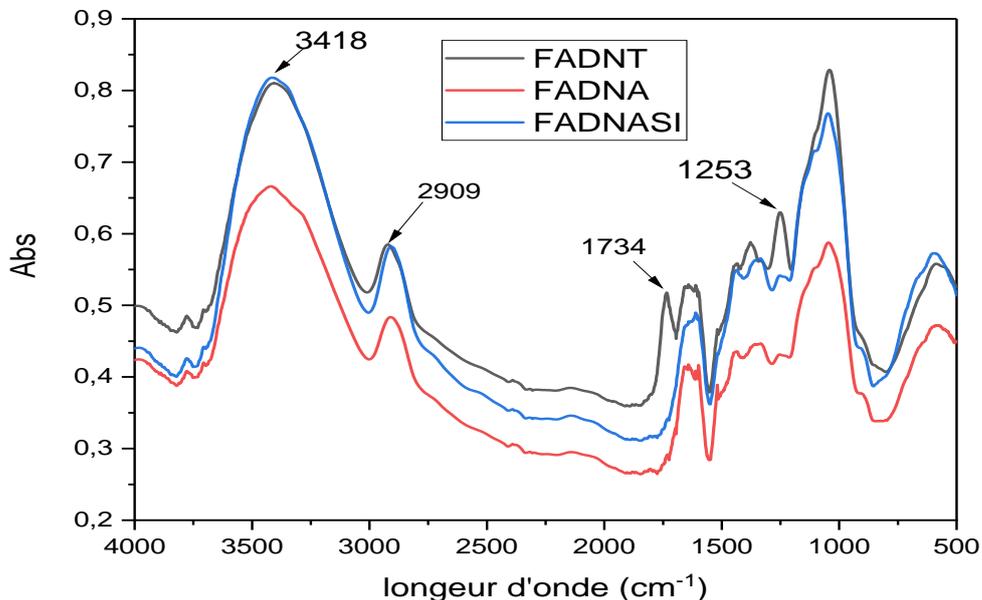


Figure III.1 : Spectres IR-ATR des fibres d'Arundo Donax avant et après traitement.

L'identification des bandes d'absorption caractéristiques de la fibre d'Arundo Donax avant et après traitement chimique se fait comme suit :

- La large bande d'absorption centrée à 3418 cm⁻¹ observée sur la FADNT correspond aux vibrations d'élongation des groupements hydroxyles contenus dans la cellulose. Celle-ci diminue d'intensité dans le cas de la FADNA, Ceci signifie que le nombre des groupements OH contenu dans la fibre a diminué après le traitement alcalin. Dans le cas de la FADNASI, La bande regagne en intensité dû à la présence de groupement silanol. [47] le mécanisme d'hydrolyse des molécules silane en silanol est décrit comme suit : [34]



- La bande d'absorption située à 2909 cm^{-1} est associée aux vibrations d'élongation des liaisons C-H des alkyles de la cellulose, la lignine et l'hémicellulose. Une comparaison des 3 spectres montre que l'intensité du pic a augmenté dans le cas de la fibre traité par NAOH-TMOS, ceci est dû à la présence de la chaîne octadecyl du TMOS.
- La bande d'absorption située à 1734 cm^{-1} est attribué aux vibrations d'élongation des groupements carbonyles C=O des esters ou des groupes acétyles des substances d'hémicellulose ou de lignine. Cette bande d'absorption a disparu sur les spectres du FADNA et FADNASI indiquant l'élimination de ces constituants.
- La bande d'absorption située à 1253 cm^{-1} caractéristique de la vibration d'étirement des liaisons C-O de hémicellulose et de lignine a disparu après traitement. Ces résultats indiquent que le traitement alcalin conduit à l'élimination de l'hémicellulose et une partie de la lignine en accord avec les résultats de la littérature. [47,48].

III.1.2. Diffraction des rayons X (DRX) :

La figure III.2 présente les spectres de diffraction RX des fibres d'Arundo Donax avant et après traitement. Les valeurs de taux de cristallinité respectives calculées d'après la relation de Segal (chapitre II, II.4.3) sont mentionnées dans le tableau III.2.

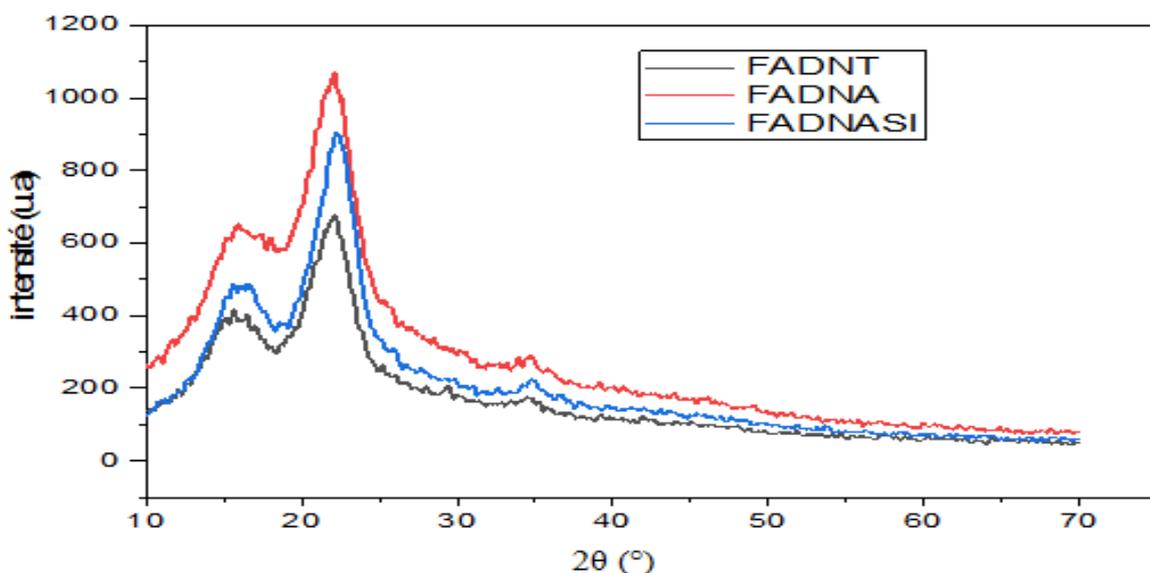


Figure III.2 : Spectres de diffraction RX des fibres d'Arundo Donax avant et après traitement.

Chapitre III : Résultats et discussion

Tous les Spectres de diffraction RX montrent deux pics qui sont particulièrement connues et bien définies pour les fibres naturelles. Ils présentent un pic majeur fort et intense à $2\theta = 22.15^\circ$, correspondant au plan cristallographique (I_{002}) de la cellulose I. Le deuxième pic à 2θ autour de 16° est moins intense que le premier mais plus large. Il est attribué à des parties amorphes de la cellulose présente dans les fibres, et correspond au plan cristallographique I_{AM} . Après le traitement par NaOH et NaOH-TMOS, on remarque une augmentation de l'intensité du pic principal (du plan cristallin I_{002}), ce qui indique une augmentation de la cristallinité de la fibre. Ceci peut être attribué à la dissolution d'une partie des matériaux amorphes recouvrant la fibre, en bon accord avec les résultats de l'analyse IR-ATR comme rapporté en littérature. [49,50]

De plus, d'après les valeurs de L'indice de cristallinité (I_C) (Tableau III.1), celui-ci augmente après traitement. Ceci est peut être expliqué par la réduction de la quantité de composants amorphes présent dans la fibre (solubilisation des hémicelluloses, graisses, cires). On note aussi, que la FADNA exhibe un indice de cristallinité légèrement supérieur à celui de la FADNASI. [51].

Tableau III.1 : Intensités des raies I_{002} et I_{AM} , valeurs des indices de cristallinité de la fibre d'Arundu Donax avant et après traitement.

Traitement	$I_{002} (2\theta = 22,15^\circ)$	$I_{AM}(2\theta=16^\circ)$	I_C (%)
FADNT	2388,64	1343,34	29,62
FADNA	2892,46	1176,57	59,32
FADNASI	2730,67	1170,54	57,76

Nos résultats sont consistants avec ceux de la littérature notamment par V.S. Sreenivasan et al. [50] ainsi que A. Hachaichiet et al. [52]

III.1.3. Effets des traitements sur la densité des fibres :

La densité des fibres traitée et non traitée a été déterminée suite à plusieurs essais au pycnomètre, dont les résultats sont regroupés dans le tableau III.2.

Tableau III.2: Valeurs de densité des fibres avant et après traitement.

Etat de fibre	FADNT	FNAOH	FNASI
Densité	1,093	1,277	1,253

On remarque que la densité des fibres traitées à la soude est supérieure à celle de la fibre non traitée. Ceci s'explique par les changements de structure morphologique qui se sont produits sur la fibre après le traitement alcalin. En effet, comme cité précédemment, le traitement chimique permet d'éliminer des constituants pariétaux tels que les lignines, les pectines et les substances cireuses qui recouvrent la surface externe de la paroi cellulaire de la charge. Par conséquence, leur élimination contribue à la diminution du volume des fibres ce qui implique une augmentation de la densité. [53]

III.1.4. Effets des traitements sur le taux d'humidité :

La Figure III. 3 illustre les variations du taux d'humidité de la fibre d'AD en fonction du traitement. On remarque une diminution du taux d'humidité de la fibre après les différents traitements, qui s'explique par une plus faible aptitude des fibres à capter les molécules d'eau. Ce comportement est clairement dû à la réduction des composants amorphes (l'hémicellulose, lignine) qui sont riches en groupements hydroxyles, ce qui diminue le caractère hygroscopique des fibres d'AD. Dans le cas du traitement par le silane, la diminution du taux d'humidité peut aussi être expliquée par la diminution des groupements hydroxyles qui réagissent avec l'agent de couplage. Ces résultats sont en accord avec ceux rapportés Park et al. [54]

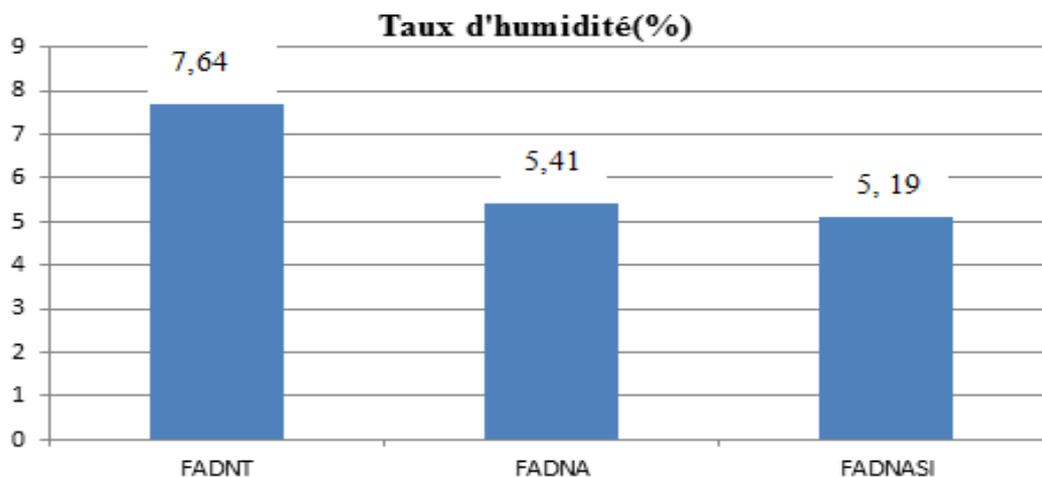
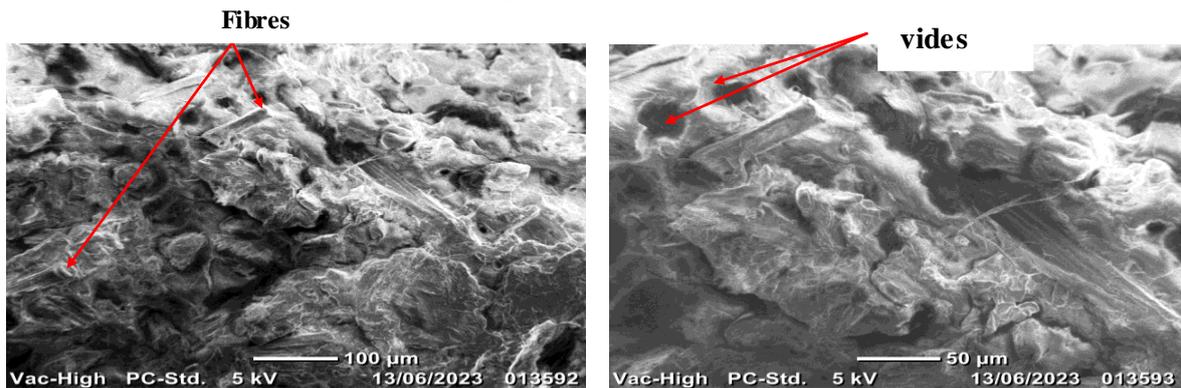


Figure III.3 : Variations du taux d'humidité des fibres d'AD en fonction du traitement.

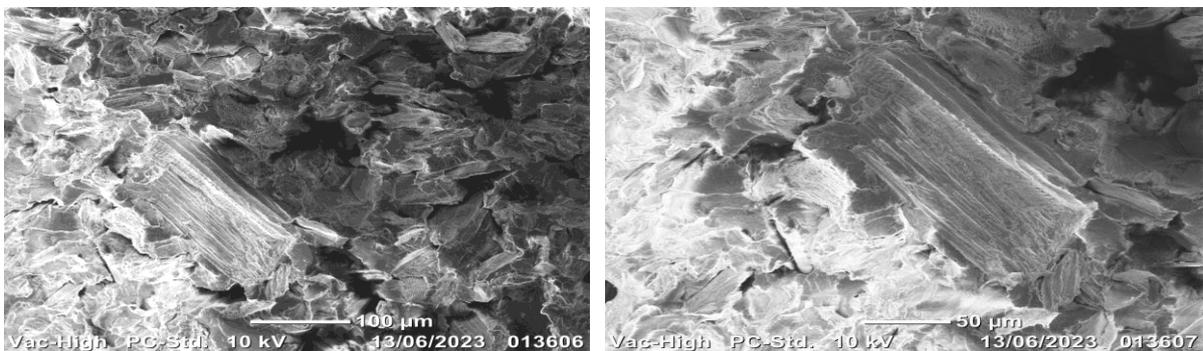
III.2. Caractérisation des biocomposites

III.2.1. Microscopie électronique à balayage (MEB) :

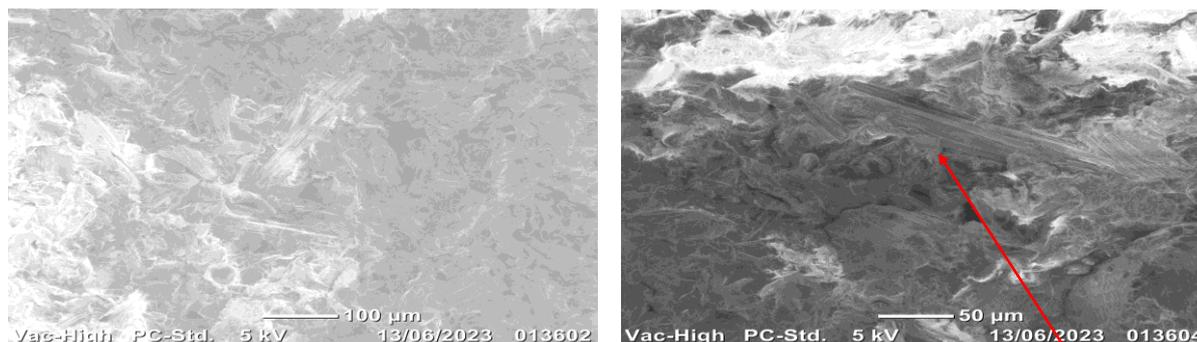
La figure III.4 montre la micrographie de la surface fracturée des biocomposites PLA/AD à différents grossissements. Pour le biocomposite à fibres non traitées et traitées par NaOH, les micrographies (a) et (b) montrent une surface hétérogène et rugueuse. Par ailleurs, on constate la présence des vides dus aux arrachements des fibres dans les biocomposites, ce qui indique une mauvaise adhérence entre la matrice et les fibres. Cependant, la micrographie (c) de biocomposite traitée par NaOH-TMOS montre que les fibres d'AD sont bien piégées par la matrice PLA, on remarque aussi moins de vides que ce observés dans les biocomposites à FADNT et FADNA et une diminution de la taille des cavités et d'agrégats, ce qui indique une meilleure adhésion fibre-matrice, Cet effet est le résultat de l'interaction entre la matrice et les groupement octadecyl du silanols greffés sur les fibres, formant ainsi des liaisons covalentes. Comme schématisée sur la figure III.5. [47]



Echantillon (a) : PLA/FADNT



Echantillon (b) : PLA/FADNA



Fibre

Echantillon (c) : PLA/FADNASI

Figure III.4 : Micrographies des biocomposites.

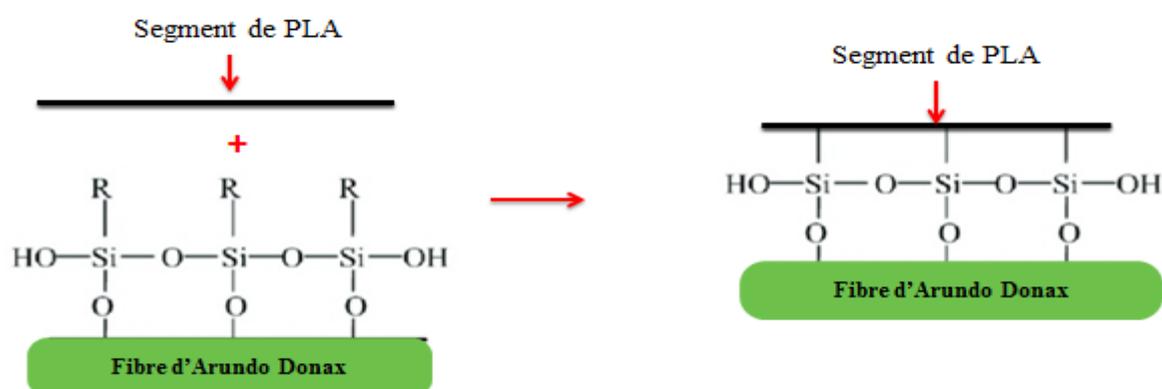


Figure III.5: Schéma du mécanisme de la réaction chimique entre la d'Arundo Donax traitée au TMOS et le PLA. [47]

III.2.2. Analyse structurale par spectroscopie infra-rouge (IR-ATR) :

La Figure II.5 Présente les spectres IR-ATR du PLA pur, des biocomposites à différents types de fibres non traitées et traitées.

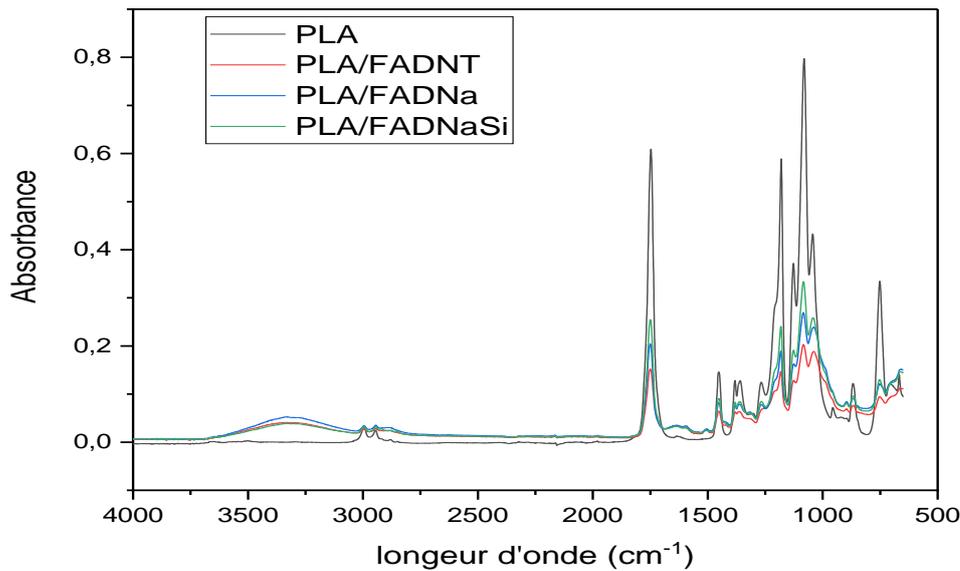


Figure III.6 : Spectres IR-ATR du PLA et des biocomposites.

Les principaux pics d'absorptions obtenus pour le PLA sont les suivants :

- La bande d'absorption observée à 1733 cm^{-1} est attribuée aux vibrations de valence du groupement carbonyle $\text{C}=\text{O}$ de l'ester présent dans le PLA.
- La série de bandes d'absorption centrées vers $1455, 1379\text{ cm}^{-1}$ est attribuée aux vibrations de déformation symétrique et asymétrique des liaisons C-H .
- La série des bandes d'absorption situées à $1260, 1180, 1082\text{ cm}^{-1}$ correspond aux vibrations d'élongation des liaisons C-O-C . [51].

En comparant le spectre des composites obtenus avec celui du PLA pur, nous remarquons qu'ils ont la même allure sauf quelques changements qui indiquent les interactions entre la matrice et les fibres d'AD : l'apparition d'une nouvelle bande large caractéristique des groupements O-H sur les spectres des biocomposites à fibres traitées et non traitées, ceci est due à l'ajout de la charge qui contient une grande proportion de la cellulose, dont la structure moléculaire contient des groupements hydroxyles.

III.2.3. Analyse morphologique par DRX :

La Figure III.6 présente les spectres de diffraction RX de la matrice PLA et des biocomposites PLA/AD. On remarque que le spectre du PLA présente une large pic avec un maximum à $2\theta = 16,8^\circ$ correspondant aux plans lamellaire (110). Il indique que le PLA étudié a un faible taux de cristallinité. De l'autre côté, les diffractogrammes des biocomposites montrent un

déplacement du pic basal vers les grandes angles $2\theta=20,5^\circ$, ce qui indique que la structure cristalline de la matrice a changé, il y a aussi une augmentation dans l'intensité de cette pic, ce qui peut être une indication de l'augmentation du taux de cristallinité. [55]

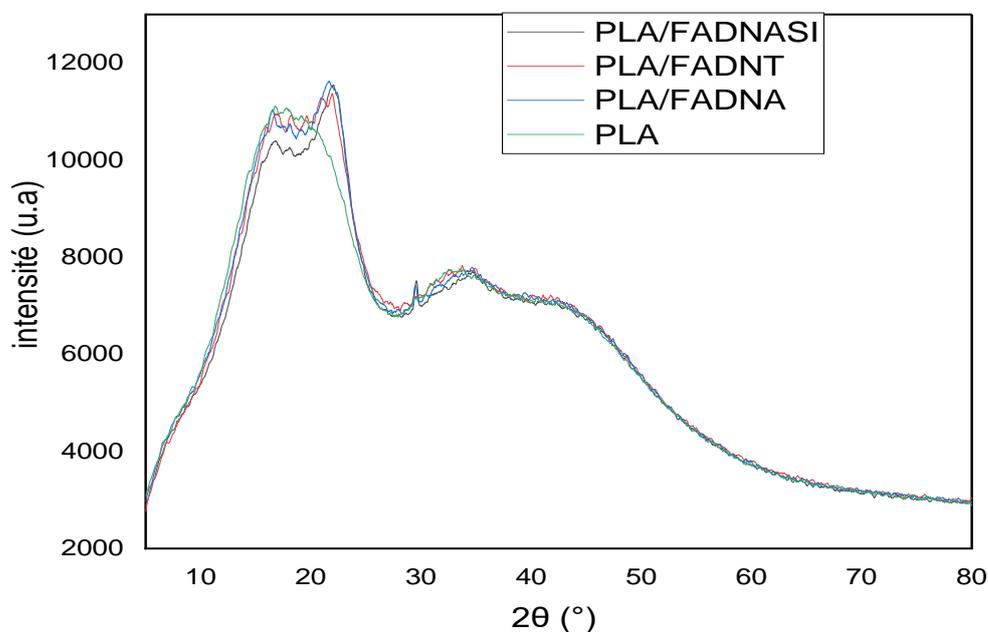


Figure III.7 : Spectres de diffraction RX des biocomposites PLA/AD.

Les résultats des taux de cristallinité obtenus par DRX sont présentés dans le tableau III.3

Tableau III.3 : Taux de cristallinité du PLA et des biocomposites PLA/AD.

Traitement	PLA Vierge	FADNT	FADNA	FADNASI
$X_C(\%)$	10,6	14,08	24,26	18,50

On constate d'après les valeurs du Tableau III. 3 une augmentation du taux de cristallinité pour les biocomposites chargés de fibres traitées. En effet, leur introduction à 20% augmente significativement le taux de cristallinité. Joseph et al. [56], expliquent que dans le cas d'une modification chimique, la présence des fibres permet d'accélérer la cinétique de cristallisation des chaînes de polymère et favorise la création d'une zone cristalline.

III.2.4. Test d'absorption de l'eau :

La figure III.8 présente les résultats des tests d'absorption d'eau en fonction du temps. On remarque que toutes les courbes ont la même allure. La vitesse d'absorption d'eau des biocomposites au début est maximale puis elle ralentit au fur et à mesure que le temps augmente jusqu'à la saturation où le taux d'absorption d'eau devient constant.

Le biocomposite à base de fibres traitées au NaOH présent le plus haut taux d'absorption. En raison de l'élimination des composants non celluloseux qui engendrent des groupements hydroxyles libres des chaînes de cellulose et présentent donc un caractère hydrophile. Pour le biocomposite traitées au NaOH suivi par le TMOS on remarque le plus faible taux d'absorption, Ceci s'explique par la réduction de nombre de groupes OH libres responsable de la formation de ponts hydrogène avec les molécules d'eau de fais de leur interaction cellulose-silane. Ces résultats s'accordent avec ceux présentés par L. Boulos et al. [57]

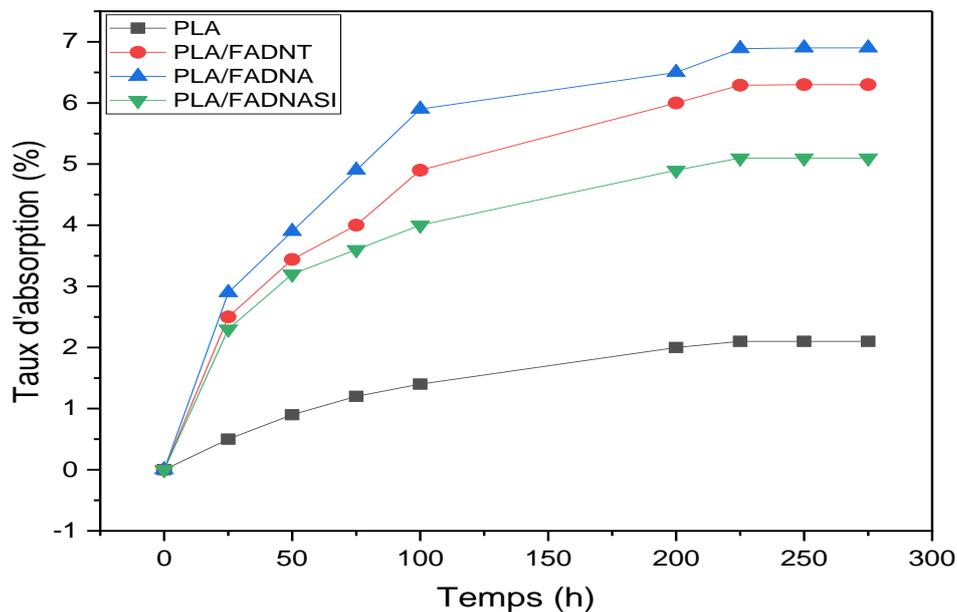


Figure III.8 : Variations du taux d'absorption d'eau par le PLA et les biocomposites PLA/AD.

III.2.5 Résistance aux chocs :

La résistance aux chocs d'un matériau composite peut fournir des informations sur l'intensité des interactions fibre-matrice à l'interface. La figure III.9 représente les variations de la résistance au choc du PLA pur et des biocomposites PLA/AD. D'après cette figure, on

constate que le PLA vierge est plus tenace que les biocomposite PLA/fibres d'AD non traitées et traitées. Cette baisse de la résistance aux chocs dans les biocomposites était prévisible en raison de l'augmentation de rigidité du système, qui facilite la formation et la propagation des fissures. De plus, On remarque une amélioration de la résilience des composites avec les fibres traitées comparée à celle des composites à fibres non traitées. Ces résultats peuvent s'expliquer par le fait que le traitement alcalin permet d'éliminer les impuretés de la surface des fibres, ce qui donne une bonne adhésion interfaciale et un bon mouillage, conduisant à propriétés mécaniques meilleures. Ce qui mène à une meilleure dispersion des particules dans la matrice polymérique. D'autre part, le traitement par NoOH-TMOS conduit à une augmentation de la résistance au choc car l'adhésion entre les fibres et la matrice est favorisée grâce à un transfert efficace de contraintes à l'interface fibre matrice en présence de l'agent de couplage TMOS. [58]

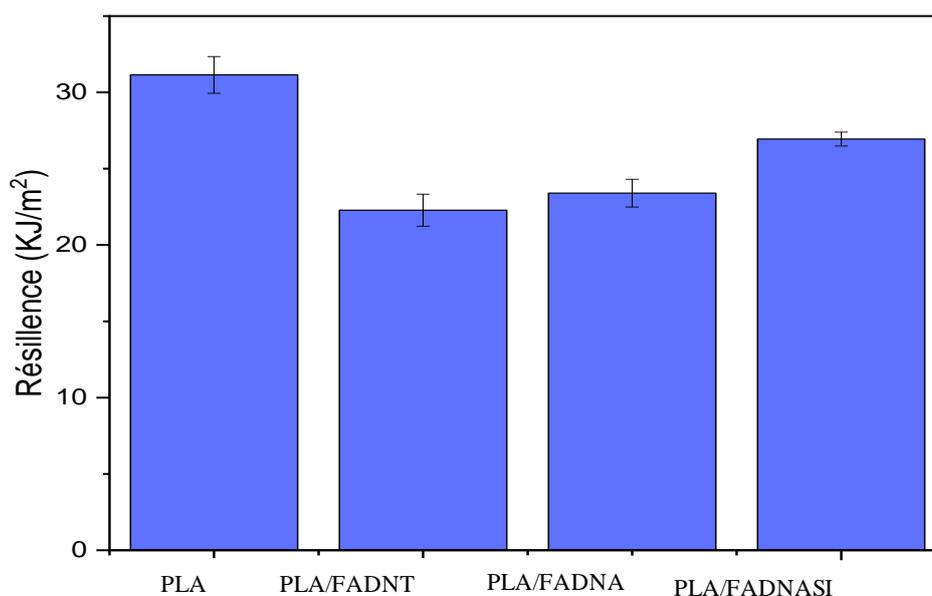


Figure III.8. Variations de la résilience du PLA et des biocomposites PLA/AD.

Conclusion générale

Conclusion générale

Le travail réalisé dans le cadre de ce mémoire a pour objectif d'élaborer un biocomposite à base de PLA renforcé de fibres d'Arundo Donax. Le problème crucial dans ce type de matériaux est le manque de compatibilité des matrices polymères pour le renfort végétal. Pour cela, nous nous sommes intéressés, en premier lieu, au problème d'adhésion à l'interface fibre/matrice et nous avons appliqué deux différents traitements de surface : le premier est un traitement alcalin par NaOH, le deuxième est combinaison de NaOH/silane. La mise en évidence des modifications a été réalisée par les analyses IR-ATR, DRX, MEB et par le test de choc. Les principaux résultats obtenus sont résumés comme suit :

- L'analyse MEB a montré un changement de rugosité de la surface fracturée des biocomposites à fibres traitées par NaOH et une diminution du nombre de pores et une meilleure homogénéité des biocomposites PLA/FADNASI.
- Les résultats de l'analyse IR-ATR des fibres ont montré certains changements notamment la disparition des pics à 1734 cm^{-1} et à 1253 cm^{-1} après traitement alcalin. Les spectres IR des biocomposites ont montré une augmentation du nombre de liaisons C-O-C créés entre la matrice PLA et la fibre.
- L'analyse par la diffraction des rayons X a montré que les traitements ont augmenté la cristallinité des fibres. De même pour les biocomposites, l'analyse a montré que l'ajout des fibres non traitées et traitées favorise la nucléation de la structure cristalline.
- Les résultats de l'essai de choc ont montré que l'incorporation de FADNASI conduit à l'amélioration de l'adhésion interfaciale entre la fibre/matrice, générée par le traitement chimique des fibres et par conséquent une amélioration des propriétés mécanique des composites

L'ensemble des résultats obtenus a montré que l'ajout des fibres d'Arundo Donax au PLA a conduit à une amélioration des différentes propriétés des biocomposites PLA/AD. Cependant, ceci permet encore d'entrevoir de nombreuses autres perspectives. Parmi celles-ci on pourrait penser à :

- Réaliser des tests d'évaluation de la stabilité et des propriétés thermiques des biocomposites.
- Réaliser d'autres tests mécaniques (traction, flexion) pour mieux investiguer les performances mécanique des biocomposites.

- Effectuer une caractérisation rhéologique des biocomposites PLA/AD par l'analyse dynamique mécanique (DMA).
- Elaborer les composites à l'aide d'autres procédés de mise en œuvre.
- Utiliser l'AD avec d'autres types de matrices biodégradables.

Bibliographie

Bibliographie

- [1] C. Arkin, D. Azoulay, A. Caterbow, C. Chemnitz, C. Duran, M. Eriksen, S. Feit, M. Fernandez, C. Flood, L. Fuhr, E. Grimberg, S. Gürtler, L. Guerrero, J. Hausmann, V. Hernandez et U. Kallee, «ATLAS DU PLASTIQUE Faits et chiffres sur le monde des polymères synthétiques,» 2020.
- [2] H. L. BOUDJEMA, Elaboration de matériaux composites biodégradables issus de ressources renouvelables, thèse de doctorat, Université d'Oran 2, 2016.
- [3] Stuart Lee: dictionary of composite materials technology (1989)
- [4] R. Kueny, Biocomposites: composites de hautes technologies en renfort de fibres naturelles et matrice de résines naturelles, PhD Thesis, Université de Lorraine, 2013.
- [5] H. Altenbach, J. Altenbach, w. Kissing, Mechanics of composite structural elements, springer-verlag Berlin Heidelberg 2004.
- [6] V. Shanmugam, R.A. Mansah, Circular economy in biocomposite development : state-of-the-art, challenges and emerging trends, composite part C :Open access 5100138, 2021
- [7] M. Bahrami, J. Abenojar, Recent Progress in Hybrid Biocomposites: Mechanical Properties, Water Absorption, and Flame Retardancy, Materials (Basel) 5145, 2020.
- [8] A. BOUCHEKRIT, S. BENBABAALI, Elaboration et caractérisation de composites renforcés par des fibres ligno-cellulosiques, mémoire de master, Ecole Nationale Polytechnique, 2020.
- [9] K. Mansouri, Etude des propriétés thermiques des mélanges polactique(PLA) et poly Méthacrylate de méthyle (PMMA), mémoire de magistère, université 8 Mai de Guelma, 2012.
- [10] Morgan Deroine. Étude du vieillissement de biopolymères en milieu marin, thèse .doctorat Matériaux. Université de Bretagne Sud, 2014.
- [11] G. Kale, R. Auras, and S. P. Singh, "Comparison of the degradability of poly(lactide) packages in composting and ambient exposure conditions," Packaging Technology and Science, 20, 1, 49–70, 2007

- [12] I.Z.Turki Valorisation des sédiments marins dans une matrice agrosourcée : caractérisation expérimentale des biocomposites et modélisation du comportement mécanique, université de Picardie Jules Verne; University of Sfax, 2016. Français,
- [13] G. Kale, R. Auras, and S. P. Singh, "Comparison of the degradability of poly(lactide) packages in composting and ambient exposure conditions," *Packaging Technology and Science*, 20, 1, 49–70, 2007
- [14] Suryawan, I. A., Suardana, N. P. G., Winaya, I. S., Suyasa, I. B., & Nindhia, T. T. (2017, May). Study of stinging nettle (*urtica dioica* L.) Fibers reinforced green composite materials: a review. In *IOP conference series: materials science and engineering* (Vol. 201, No. 1, p. 012001). IOP Publishing.
- [15] J. Page. Formulation et caractérisation d'un composite cimentaire biofibré pour des procédés de construction préfabriquée. Génie civil. Normandie Université, 2017.
- [16]. Bledzki A.K, Gassan J. Composites reinforced with cellulose-based fibres. *Prog Polym Sci*. 1999; 24:221-274
- [17] Siqueira, Gilberto, Julien Bras and Alain Dufresne. "Cellulosic bionanocomposites: a review of preparation, properties and applications." *Polymers* 2.4 (2010): 728-765
- [18] H. B. Ly, « Nouveaux matériaux composites thermoformables à base de fibres de cellulose ». Thèse de doctorat, Institut national Polytechnique de Grenoble, France, 2000
- [19] Scheller H.V, Ulvskov P. Hemicelluloses. *Annu Rev Plant Biol*. 2010 ; 61:263-289.
- [20] Vi Vi Do Thi Do Thi. Matériaux composites à fibres naturelles / polymère biodégradables ou non, thèse doctorat, Université des Sciences Naturelles d'Ho Chi Minh, 2011.
- [21] Fiore V, Scalici T, Valenza A; «Characterization of a new natural fiber from *Arundo donax* L. as potential reinforcement of polymer composites»; *Carbohydr Polym*, 106: 77–83 (2014)
- [22] A. Vissac, "Matière En Fibres," Ecole Nationale Supérieure d'Architecture de Grenoble, 2014

- [23] C. Manniello, G. Cillis, D. Statuto, A. Di Pasquale, P. Picuno, , Blocs en béton renforcés par des fibres naturelles d'Arundo donax avec différents rapports d'aspect pour une application en bioarchitecture , J. Agric. Eng. 2022, 12, 88
- [24] M. D. Ladghem Chikouche, Renforcement d'un polymère (polyester insaturé) par des fibres végétales (Arundo donax), thèse doctorat, Université FERHAT ABBAS - SETIF 1,2016
- [25] K. ALALI, Etude de l'adsorption des métaux lourds (Pb²⁺, Zn²⁺) par la canne de provence (ARUNDO DONAX), Mémoire de Magistère, Université IBN KHALDOUN-TIARET, 2004
- [26] L. Molari, F.S. Coppolino, J.J. Garcia, Arundo donax : Une plante répandue avec un grand potentiel comme matériau de structure durable.
- [27] C. Manniello, G. Cillis, D. Statuto, A. Di Pasquale, P. Picuno, Analyse expérimentale sur des blocs de béton renforcés avec des fibres d'Arundo donax. J. Agric. Eng. 2021, 12, 88.
- [28] Dudley, T. Foreign Exploration for Biological Control of Arundo donax. CalEPPC News, Volume 8, Number 4. 2000.
- [29] D. NGUYEN, « Caractérisation de l'interface fibre/matrice. Application aux composites polypropylène/chanvre », Thèse de doctorat, Université de Troyes, 2016
- [30] M. Jawaid, M.S. Salit, O.Y. Allothman, Green biocomposites: design and applications, Springer, 2017
- [31] M. Sanjay, P. Madhu, M. Jawaid, P. Sentharamaiah, S. Senthil, S. Pradeep, Characterization and properties of natural fiber polymer composites: A comprehensive review, Journal of Cleaner Production 172, 566-581, 2018
- [32] S. Kalia, B.S. Kaith, I. Kaur, Pretreatments of natural fibers and their application as reinforcing material in polymer composites—a review, Polym. Eng. Sci. 49 (2009) 1253–1272.
- [33] M. S. Huda, W. F. Schmidt, M. Misra et L. T. Drzal, «Effect of Fiber Surface Treatment of Poultry Feather Fibers on the Properties of Their Polymer Matrix Composites,» Journal of applied polymer science, 2012

- [34] Y. Xie, C. A. Hill, Z. Xiao, H. Militz et C. Mai, «Silane coupling agents used for natural fiber/polymer composites: A review,» *Composites: Part A*, p. 806–819, 2010
- [35] R. Kueny, *Biocomposites: composites de hautes technologies en renfort de fibres naturelles et matrice de résines naturelles*, Thèse de doctorat, Université de Lorraine, 2013
- [36] M. Ragoubi, *Contribution à l'amélioration de la compatibilité interfaciale fibres naturelles/matrice thermoplastique via un traitement sous décharge couronne*, Thèse de doctorat, Université Henri Poincaré Nancy 1, 2010
- [37] C.-N.A. Laboratories, *Resin Transfer Moulding Processes*, 2018
- [38] Sebai Moufida, *Étude des mélanges à base du polyacides (PLA) et du polyméthacrylate de méthyle (PMMA)*, Mémoire de Master, Université de Guelma, 2014.
- [39] V. Fiore, T. Scalici, G. Vitale, A. Valenza, Static and dynamic mechanical properties of Arundo Donax fillers-epoxy composites, *Materials and Design*, 01.025. 2014
- [40] Orue A, Jauregi A, Pena-Rodriguez C, et al. The effect of surface modifications on sisal fiber properties and sisal/poly (lactic acid) interface adhesion. *Compos Part B Eng.* 2015; 73:132-138
- [41] V. Fiore, L. Botta, R. Scaffaro, A. Valenza, A. Pirrotta, PLA based biocomposites reinforced with Arundo donax fillers, *Composites Science and Technology* 105 (2014) 110-117
- [42] Fiche technique du PLA 7001D, Nature works (U.S.A).
- [43] L. Hassaini, *Étude de la Morphologie et des Propriétés de Biocomposites Poly (3-Hydroxybutyrate-co-3-Hydroxyvalérate)(PHBV)/Farine de Grignons d'Olive*, PhD Thesis, Lorient, 2016
- [44] Ismail, N.F, Radzuan, N.A.H, Sulong, A.B, , Muhamad, N, Haron, C.H.C. The Effect of Alkali Treatment on Physical, Mechanical and Thermal Properties of Kenaf Fiber and Polymer Epoxy Composites. *Int. J. Mech. Mechatron. Eng.* 2021, 18, 86–95
- [45] A.K. Varma, P. Mondal, Physicochemical characterization and pyrolysis kinetic study of sugarcane bagasse using thermogravimetric analysis, *J. Energy Resour. Technol.* 138 (2016) 052205.

- [46] Lei Y, Qinling W, Clemons C.M, et al. Phase structure and properties of poly (ethylene terephthalate)/high-density polyethylene based on recycled materials. *J Appl Polym Sci.* 2009; 113: 1710-1719
- [47] M.S. Huda, L.T. Drzal, A.K. Mohanty, M. Misra, Effect of chemical modifications of the pineapple leaf fiber surfaces on the interfacial and mechanical properties of laminated biocomposites, *Compos. Interfaces.* 15 (2008) 169–191.
- [48] A.N. Balaji, K.J. Nagarajan, Characterization of alkali treated and untreated new cellulosic fiber from Saharan aloe vera cactus leaves, *Carbohydr. Polym.* 174 (2017) 200–208
- [49] Orue A, Jauregi A, Pena-Rodriguez C, et al. The effect of surface modifications on sisal fiber properties and sisal/poly (lactic acid) interface adhesion. *Compos Part B Eng.* 2015; 73:132–138
- [50] Sreenivasan V.S, Somasundaram S, Ravindran D, et al. Microstructural, physic chemical and mechanical characterisation of sansevieria cylindrica fibres—an exploratory investigation. *Mater Des.* 2011;32:453–461
- [51] M. BEDREDDINE, Etude et caractérisation de nouveaux biocomposites farine de Genêt d'Espagne-Polymère biodégradables, thèse doctorat, UNIVERSITÉ FERHAT ABBAS - SETIF1, 2020.
- [52] A. HACHAICHI, S. NEKKA, Caractérisation par DRX des matériaux composites à matrice thermoplastique (PEHD) renforcée par de fibres de palier dattier (FD), *ELOUED* 2018:2:5-6.
- [53] L. BOOPATHI, P.S. SAMPATH, K. MYLSAMY, Investigation of physical, chemical and mechanical properties of raw and alkali treated Borassus fruit fiber. *Compos Part B-Eng*, vol.43, n°8, p 3044-3052,2012.
- [54] J.M. PARK, P.G. KIM, J.H. JAN, et al. Interfacial evaluation and durability of modified Jute fibers/polypropylene (PP) composites using micromechanical test and acoustic emission. *Compos Part B Eng*, 39:1042–1061,2008
- [55] F. ZOUAOUI, ETUDE DU MELANGE POLYACIDE LACTIQUE / ETHYLENE VINYLE ACETATE (PLA/EVA), MAGISTER, UNIVERSITÉ FERHAT ABBAS - SÉTIF-1, 2015

- [56] P.V.JOSEPH, K. JOSEPH, S.THOMAS, et al, The thermal and crystallisation studies of short sisal fibre reinforced polypropylene composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 34, n° 3, p. 253-266, 2003
- [57] L. Boulos, M.R. Foruzanmehr, A. Tagnit-Hamou, S. Elkoun, M. Robert, Wetting analysis and surface characterization of flax fibers modified with zirconia by sol-gel method, *Surf. Coat. Technol.* 313 (2017) 407–416.
- [58] R. NARENDAR et K.P. DASAN, « Chemical treatments of coir pith : morphology, chemical composition, thermal and water retention behavior », *Composites Part B: Engineering*, (2014), vol. 56, pp 770-779.

Résumé :

Le travail exposé dans ce mémoire porte sur l'élaboration d'un biocomposite à base de Ploy (acide lactique) (PLA) renforcé par des fibres d'Arundo Donax par Voie fondue. Des échantillons de biocomposites à (80/20) (PLA/fibre) en proportion massique ont été préparés pour caractérisation par IR-ATR, DRX, MEB, le taux d'absorption de l'eau et le test de choc. Le problème d'incompatibilité à l'interface des fibres /PLA a été remédié par un traitement alcalin (NaOH) et un traitement combiné alcalin-silane. Les diverses technique utilisées pour la caractérisation des fibres ont révélé une réduction des partie amorphes et de caractère hydrophile et une augmentation de l'indice de cristallinité après les traitements. C'est le traitement combiné alcalin-silan qui a donné les meilleurs résultats qui se sont traduit par une amélioration de la morphologie et des propriétés mécanique des biocomposites PLA/FADNASI.

Mots clé : biocomposite, PLA, fibres D'Arundo Donax.