

**RÉPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE**  
**MINISTÈRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA**  
**RECHERCHE SCIENTIFIQUE**

**UNIVERSITÉ FERHAT ABBAS - SETIF**  
**FACULTÉ DE TECHNOLOGIE**  
**DÉPARTEMENT DE GÉNIE DES PROCÉDÉS**

**MEMOIRE**

En vue de l'obtention du diplôme de

**MAGISTER**

**Option : Génie des Polymères**

Présenté par:

**IKHLEF Samah**

***ETUDE DU COMPORTEMENT DE COMPOSITES  
PEBD/FARINE DE GENÊT D'ESPAGNE AVANT  
ET APRÈS TRAITEMENT***

**Soutenue le: 06 / 04 / 2011**

**Devant le jury**

**Président: Pr. HADDAOUI Nacerddine, Université Ferhat ABBAS, Sétif**  
**Rapporteur: Dr. ZEBAR-NEKKAA Soraya, Université Ferhat ABBAS, Sétif**  
**Examineurs: Dr. DOUBI A/Malek, Université Ferhat ABBAS, Sétif**  
**Dr. GUESSOUM Melia, Université Ferhat ABBAS, Sétif**

# Remerciements

Les recherches qui font l'objet de ce mémoire ont été menées au Laboratoire de Physico-Chimie des Hauts Polymères, Département de Génie des Procédés, Faculté de technologie, Université Ferhat Abbas de Sétif, dirigées par Madame le Docteur **Soraya NEKKAA**.

Tout d'abord, j'adresse mes vifs remerciements à mon encadreur Madame le Docteur **Soraya NEKKAA**, pour avoir accepté de me diriger patiemment et sans qui ce mémoire n'aurait pu avoir lieu. Je tiens à souligner sa disponibilité, le soutien qu'elle m'a apporté dans les moments les plus difficiles de ce mémoire, ses idées, ses expériences et la confiance qu'elle m'a accordé pour toutes les dispositions nécessaires qu'elle m'a procuré et pour tous ses précieux conseils afin de mener à bien ce travail.

Ma reconnaissance va également à Monsieur le Professeur **Nacerddine HADDAOUI**, d'avoir accepté d'examiner mon travail et de présider le jury de la soutenance. Je lui adresse mes plus vifs remerciements pour être toujours présent pour les étudiants.

Je tiens à remercier mon enseignant Monsieur le Docteur **A. Malek DOUIBI**, pour ses précieux conseils, pour sa générosité. Aussi, je tiens à le remercier vivement pour avoir accepté d'examiner ce travail et de faire partie du jury de soutenance.

Je remercie chaleureusement Madame le Docteur **Melia GUESSOUM**, d'avoir accepté d'examiner mon travail et de faire partie du jury de soutenance. Et aussi de m'avoir fait part de ses remarques et conseils avisés et pour sa gentillesse.

J'aimerais faire un remerciement particulier à Monsieur **Farouk BOUDJADJA** et à Monsieur **Ali MAREF** qui m'ont fait confiance et m'ont offert une grande liberté au cours de ces années. Leur confiance et leur soutien m'ont aidé à surmonter bien des obstacles. Ils m'ont toujours aidé et encouragé. Je les remercie pour leur réconfort dans les moments de doute. Ces quelques mots ne suffiront jamais à exprimer tout ce que je leur dois.

Un grand merci à Monsieur le Docteur **Said BOUHLEAL** pour son soutien et son aide. Mes remerciements vont également à Monsieur **A. Hakim BENMKICHECHE**.

Je voudrais aussi remercier les membres du laboratoire de l'unité CalPlast de m'avoir accueillie au sein de leur laboratoire en particulier mon collègue Monsieur **Hacene BOULHAIA**.

Toute ma gratitude va à Mademoiselle **Aicha BEN DRIS** m'avoir bien accueillie au sein de son laboratoire à KPLAST, de m'avoir permis de réaliser les tests de DSC.

J'adresse mes remerciements à Mademoiselle **Fatima TALHI** m'avoir bien accueillie au sein de son laboratoire à MAPROGAZ, de m'avoir permis de réaliser les tests de traction.

Enfin le plus grand merci à tous mes amis en particulier **Zahir, Ahlem, Hanane** et **Anouar**. Et pour terminer une pensée à toute ma famille en particulier **ma mère** pour son soutien constant.

# *Dédicaces*

*Sans votre savoir faire, votre disponibilité sans égale, votre amour, votre engagement à mes cotés sans faille, votre sacrifice tout au long de votre vie, je n'aurais pu avancer dans ce travail. Mes très chers parents : **mama** et **papa** pour votre courage, votre gentillesse j'ai pu m'inspirer pour la réalisation de ce travail.*

*A mon adorable frère **Issam**.*

*A mes très chères sœurs **Kaouther** et **Achouak**,*

*A mon cher beau-frère **Kamel** et je te remercie pour ton aide.*

*A ma très tante **Salha** qui était avec moi aux moments difficiles. Merci pour ton écoute, sans oublier ma très chère grande mère défunte **Soltana**.*

*A mes très chers neveux : **Ibtihal** et surtout le petit filou **Adam**, Que dieu vous garde.*

*A mon cher oncle **Ali** et toute sa famille.*

*A monsieur **Farouk B** et à monsieur **Ali M***

*A tous mes amis en particulier **Zahir, Rachid, Meriem, Wided, Farida Touri, Farida Bouzidi, Sofiane, Anouar, Houda, Lamia, Hacène, Boussaha** et **A.Salem**.*

# **SOMMAIRE**

# *Sommaire*

# *Pages*

Liste des abréviations utilisées.....	i
Liste des tableaux.....	ii
Liste des figures.....	iii
Liste des schémas.....	vii
<b>INTRODUCTION GENARALE.....</b>	<b>1</b>
<b>ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE</b>	
<b>I. Les charges organiques naturelles.....</b>	<b>4</b>
I.1. Généralités.....	4
I.2. Présentation de quelques fibres végétales .....	4
I.2.1. Le Genêt d'Espagne.....	4
I.2.2. Le bois.....	5
I.2.3. Le lin.....	6
I.2.4. Le coco.....	6
I.2.5. L'alfa.....	7
I.2.6. Le Coton.....	7
I.2.7. Le Sisal.....	7
I.2.8. Le Ramie.....	8
I.2.9. Le chanvre.....	9
I.3. Composition chimique des charges végétales.....	9
I.3.1. La Cellulose.....	9
I.3.2. Les hémicelluloses.....	10
I.3.3. La lignine.....	11
I.3.4. Les pectines.....	11
I.3.5. La cire.....	12
I.4. Avantages et inconvénients des charges végétales.....	13
I.5. Les principaux applications des composites à base des charges végétales.....	14
I.5.1. Secteur automobile.....	14
I.5.2. Quelques applications en diffusion dans le secteur automobile.....	15
I.5.3. Autres applications des charges végétales.....	15

<b>II. Les agromatériaux à matrice polymérique.....</b>	<b>16</b>
II.1. Généralités sur les matériaux composites.....	16
II.2. Définitions.....	16
II.3. Différents facteurs influant sur les propriétés des matériaux composites.....	17
II.3.1. La dispersion de la fibre.....	17
II.3.2. L'adhésion fibre/matrice.....	18
II.3.3. Facteur de forme du renfort longueur /diamètre (L/D).....	20
II.3.4. L'effet de l'orientation des fibres.....	22
II.3.5. L'effet de l'humidité.....	22
II.4. Les procédés de mise en œuvre des agro-composites à matrice polymérique.....	23
<b>III. Les différentes méthodes de modification des charges végétales.....</b>	<b>25</b>
III.1. Introduction.....	25
III.2. Prétraitement des fibres.....	25
III.3. Les différentes méthodes de modification de la surface des charges végétales...	26
III.3.1. Les modifications physiques.....	26
III.3.2. Les modifications physico-chimiques.....	27
III.3.2.1. Le traitement corona.....	27
III.3.2.2. Le plasma à froid.....	28
III.3.2.3. Le traitement laser.....	29
III.3.2.4. Traitement au rayonnement Ultraviolet (UV) vide et traitement aux rayons $\gamma$ .....	29
III.3.3. Les modifications chimiques.....	30
III.3.3.1. Oxydation.....	30
III.3.3.2. Estérification.....	30
III.3.3.3. Ethérification.....	31
III.3.3.4. Greffage chimique.....	34
<b>PROTOCOLE EXPERIMENTALE</b>	
<b>IV. Matériaux utilisés et techniques expérimentales.....</b>	<b>36</b>
IV.1. Matériaux utilisés.....	36
IV.1.1. Polyéthylène base densité.....	36
IV.1.2. Le Genêt d'Espagne.....	36
IV.1.3. Les produits chimiques utilisés.....	36
IV.1.3.1. Le toluène.....	36

IV.1.3.2.	L'éthanol.....	36
IV.1.3.3.	L'hydroxyde de sodium.....	37
IV.1.3.4.	L'acide acétique.....	37
IV.2.	La mise en œuvre des matériaux.....	40
IV.2.1.	Préparation de la farine de Genêt d'Espagne.....	40
IV.2.1.1.	La récolte de l'arbuste Genêt d'Espagne.....	40
IV.2.1.2.	Lavage de GE.....	40
IV.2.1.3.	Séchage et broyage.....	40
IV.2.1.4.	Tamissage.....	40
IV.2.1.5.	Prétraitement de la farine de GE par lavage.....	40
IV.2.2.	La modification de la farine de Genêt d'Espagne.....	40
IV.2.3.	La préparation des composites.....	40
IV.2.4.	Préparation des éprouvettes.....	41
IV.3.	Techniques expérimentales.....	41
IV.3.1.	L'essai spectrométrique (Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier IRTF).....	41
IV.3.2.	Les essais mécaniques.....	42
IV.3.2.1.	L'essai de traction.....	42
IV.3.2.2.	La résistance au choc (Izod).....	43
IV.3.2.3.	La dureté (Shore D).....	44
IV.3.3.	L'essai rhéologique: l'indice de fluidité.....	45
IV.3.4.	Caractérisation thermique par l'Analyse Calorimétrique Différentielle (DSC).....	46
IV.3.5.	Test de densité.....	47
IV.3.6.	Les essais d'environnement.....	47
IV.3.6.1.	L'absorption d'eau.....	47
IV.3.6.2.	La biodégradation.....	48
<b>V.</b>	<b>Résultats et discussions</b> .....	49
V.1.	Analyse spectroscopique par Infrarouge à Transformée de Fourier.....	49
V.2.	La perte de masse.....	50
V.2.1.	Effet du temps de traitement.....	50
V.3.	Propriétés mécaniques.....	51
V.3.1.	Test de traction.....	51

V.3.1.1.	Effet du taux de farine.....	51
V.3.1.2.	Effet du temps de traitement.....	54
V.3.1.3.	Effet de la température.....	56
V.3.2.	Test de choc.....	57
V.3.2.1.	Effet du taux de farine.....	57
V.3.2.2.	Effet du temps de traitement.....	59
V.3.2.3.	Effet de la température.....	61
V.3.3.	Test de dureté.....	62
V.3.3.1.	Effet du taux de farine.....	62
V.3.3.2.	Effet du temps de traitement.....	63
V.3.3.3.	Effet de la température.....	64
V.4.	Propriétés rhéologiques (Indice de fluidité).....	65
V.4.1.	Effet du taux de farine.....	65
V.4.2.	Effet du temps de traitement.....	65
V.4.3.	Effet de la température.....	66
V.5.	Propriétés thermiques (DSC).....	67
V.5.1.	Effet du taux de farine.....	67
V.5.2.	Effet du temps de traitement.....	68
V.5.3.	Effet de la température.....	71
V.6.	Test de densité.....	74
V.6.1.	Effet du taux de farine.....	74
V.6.2.	Effet du temps de traitement.....	74
V.6.3.	Effet de la température.....	75
V.7.	Etude du caractère hydrophilique des composites PEBD/GE par le test d'absorption d'eau.....	76
V.7.1.	Etude du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE.....	76
V.7.1.1.	Effet du taux de farine.....	76
V.7.1.2.	Effet du temps de traitement.....	77
V.7.1.3.	Effet de la température.....	79
V.7.2.	Effet d'absorption d'eau sur les propriétés des composites PEBD/GE...	81
V.7.2.1.	Effet d'absorption d'eau sur les propriétés en traction des composites PEBD/GE.....	81

V.7.2.2. Effet d'absorption d'eau sur la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE.....	85
V.7.2.3. Effet d'absorption d'eau sur la dureté des composites PEBD/GE	87
V.8. Etude de la biodégradation des composites PEBD/GE.....	89
V.8.1. Effet de la biodégradation sur les propriétés en traction des composites PEBD/GE.....	89
V.8.2. Effet de la biodégradation sur la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE.....	93
V.8.3. Effet de la biodégradation sur la dureté des composites PEBD/GE.....	95
CONCLUSIONS.....	97
PERSPECTIVES.....	99
Références bibliographiques.....	100
Annexe A	
Annexe B	

## ***Liste des abréviations utilisées***

<b>AM:</b>	Anhydride maléique
<b>ATG:</b>	Analyse thermogravimétrique
<b>DCDMS:</b>	Dichlorodiméthylesilane
<b>DMA:</b>	Analyse dynamique mécanique
<b>DP:</b>	Degré de polymérisation
<b>DRX:</b>	Diffraction des rayons x
<b>DSC:</b>	Calorimétrie différentielle à balayage
<b>EDTA:</b>	Acide éthylène diamine tetra acétique
<b>FGO:</b>	Farine de grignons d'olive
<b>GE:</b>	Genêt d'Espagne
<b>HDS:</b>	Hexadecyltriméthoxy-silanes
<b>IGC:</b>	Chromatographie gazeuse inverse
<b>MEB:</b>	Microscopie électronique à balayage
<b>MPS:</b>	Méthacryloxypropyltriméthoxy
<b>MRPS:</b>	Mércaptoproyltriméthoxy
<b>PE:</b>	Polyéthylène
<b>PEBD-g-AM:</b>	Polyéthylène greffé par l'anhydride maléique
<b>PEI:</b>	Poly(éthylène imine)
<b>PP:</b>	Polypropylène
<b>PP-g-AM:</b>	Polypropylène greffé par l'anhydride maléique
<b>PS:</b>	Polystyrène
<b>PVC:</b>	Poly(chlorure de vinyle)
<b>PVDF:</b>	Poly(fluorure de vinylidène)
<b>UV:</b>	Ultraviolet
<b>VTMO:</b>	Vinyltriméthoxysilane
<b>XPS:</b>	Spectroscopie de photoélectron x

**Liste des tableaux**

**Pages**

**Tableau V.1.** Effet de la température sur la contrainte à la rupture, le module d'élasticité et la déformation à la rupture des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différent temps..... 57

**Tableau V.2.** Valeurs de la résistance au choc (Izod) des éprouvettes non entaillées et entaillées du PEBD et des composites PEBD/GE à farine non traitée..... 58

**Tableau V.3.** Valeurs de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C à différents temps (avec et sans entaille)..... 61

**Tableau V.4.** Valeurs de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures (avec et sans entaille)..... 62

**Tableau V.5.** Valeurs de la dureté (Shore D) des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures..... 64

**Tableau V.6.** Valeurs de l'indice de fluidité des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différent temps et à différentes températures..... 66

**Tableau V.7.** Comparaison de la température de fusion à différents passages et du taux de cristallinité du PEBD et des composites PEBD/GE à farine non traitée..... 68

**Tableau V.8.** Comparaison de la température de fusion à différents passages et du taux de cristallinité des composites PEBD/GE à farine traitée par NaOH à 25°C à différents temps..... 71

**Tableau V.9.** Comparaison de la température de fusion à différents passages et du taux de cristallinité des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures..... 73

**Tableau V.10.** Valeurs de la densité des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures..... 75

**Tableau V.11.** Valeurs de la contrainte à la rupture, du module d'élasticité et de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures après absorption d'eau..... 85

**Tableau V.12.** Valeurs de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures après absorption d'eau..... 87

<i>Liste des figures</i>	<i>Pages</i>
<b>Figure I.1.</b> Image de l'arbuste du Genêt d'Espagne.....	5
<b>Figure I.2.</b> Image de lin.....	6
<b>Figure I.3.</b> Image de coco.....	6
<b>Figure I.4.</b> Image de la fleur de coton.....	7
<b>Figure I.5.</b> Image de la plante sisal.....	8
<b>Figure I.6.</b> Image de la plante ramie.....	8
<b>Figure I.7.</b> Image de la plante chanvre.....	9
<b>Figure II.1.</b> Angle de contact à l'équilibre sur une surface solide.....	19
<b>Figure II.2.</b> Modèle d'adhésion interfibres dans le cas des liaisons hydrogène en phase humide et sèche.....	23
<b>Figure IV.1.a.</b> Plan de travail expérimental, partie A.....	38
<b>Figure IV.1.b.</b> Plan de travail expérimental, partie B.....	39
<b>Figure IV.2.</b> Éprouvette de traction selon la norme ISO 527-3.....	42
<b>Figure IV.3.</b> Schéma de désignations décrivant la direction de percussion.....	43
<b>Figure IV.4.</b> Type d'entaille.....	44
<b>Figure IV.5.</b> Pénétreur pour le duromètre.....	45
<b>Figure IV.6.</b> Appareil type pour la détermination de l'indice de fluidité.....	46
<b>Figure V.1.</b> Spectres IRTF de farine de Genêt d' Espagne (GE) non traitée et traitée par NaOH pendant 24h, 48h, et 72h à 25°C et à 40°C.....	49
<b>Figure V.2.</b> Influence de la durée de traitement sur le pourcentage de la masse réduite de la farine de GE traitée par NaOH à 25°C.....	51
<b>Figure V.3.</b> Variation de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.....	52
<b>Figure V.4.</b> Variation du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.....	53
<b>Figure V.5.</b> Variation de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.....	53
<b>Figure V.6.</b> Variations de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C .....	55
<b>Figure V.7.</b> Variations du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C .....	55

<b>Figure V.8.</b> Variations de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C .....	56
<b>Figure V.9.</b> Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée (avec et sans entaille).....	58
<b>Figure V.10.</b> Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C (sans entaille).....	60
<b>Figure V.11.</b> Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C (avec entaille).....	60
<b>Figure V.12.</b> Variation de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.....	63
<b>Figure V.13.</b> Variations de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C.....	64
<b>Figure V.14.</b> Variations de l'indice de fluidité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.....	65
<b>Figure V.15.</b> Variations de l'indice de fluidité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C.....	66
<b>Figure V.16.</b> Thermogrammes DSC du PEBD et des composites PEBD/GE à farine non traitée.....	67
<b>Figure V.17.</b> Thermogrammes DSC des composites PEBD/GE (90/10) à traitée par NaOH à 25°C.....	69
<b>Figure V.18.</b> Thermogrammes DSC des composites PEBD/GE (80/20) à farine traitée par NaOH à 25°C.....	70
<b>Figure V.19.</b> Thermogrammes DSC des composites PEBD/ GE (70/30) à farine traitée par NaOH à 25°C.....	70
<b>Figure V.20.</b> Thermogrammes DSC des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH pendant 24h.....	72
<b>Figure V.21.</b> Thermogrammes DSC des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH pendant 48h.....	72
<b>Figure V.22.</b> Thermogrammes DSC des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH pendant 72h.....	73
<b>Figure V.23.</b> Variations de la densité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.....	74

<b>Figure V.24.</b> Variations de la densité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C à différents temps.....	76
<b>Figure V.25.</b> Variations du taux d'absorption d'eau du PEBD et des composites PEBD/GE non traitée en fonction du temps.....	77
<b>Figure V.26.</b> Variations du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE (90/10) à farine traitée à 25°C en fonction du temps.....	78
<b>Figure V.27.</b> Variations du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE (80/20) à farine traitée à 25°C en fonction du temps.....	78
<b>Figure V.28.</b> Variations du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE (70/30) traitée à 25°C à en fonction du temps.....	79
<b>Figure V.29.</b> Effet de la température de traitement sur le taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH pendant 48h.....	80
<b>Figure V.30.</b> Effet de la température de traitement sur le taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH pendant 72h.....	80
<b>Figure V.31.</b> Variations de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après absorption d'eau.....	82
<b>Figure V.32.</b> Variations du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après absorption d'eau.....	82
<b>Figure V.33.</b> Variations de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après absorption d'eau.....	83
<b>Figure V.34.</b> Variations de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après absorption d'eau.....	83
<b>Figure V.35.</b> Variations du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après absorption d'eau.....	84
<b>Figure V.36.</b> Variations de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après absorption d'eau.....	84
<b>Figure V.37.</b> Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après absorption d'eau (sans entaille).....	86
<b>Figure V.38.</b> Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C après absorption d'eau (sans entaille).....	86

<b>Figure V.39.</b> Variations de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après absorption d'eau.....	88
<b>Figure V.40.</b> Variations de la dureté des composites PEBD/ GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après absorption d'eau.....	88
<b>Figure V.41.</b> Variations de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après biodégradation.....	90
<b>Figure V.42.</b> Variations du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après biodégradation.....	90
<b>Figure V.43.</b> Variations de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après biodégradation.....	91
<b>Figure V.44.</b> Variations de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après biodégradation	92
<b>Figure V.45.</b> Variations du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après biodégradation.....	92
<b>Figure V.46.</b> Variations de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après biodégradation	93
<b>Figure V.47.</b> Variations de la résistance au choc des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après biodégradation .....	94
<b>Figure V.48.</b> Variations de la résistance au choc des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après biodégradation .....	94
<b>Figure V.49.</b> Variations de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après biodégradation.....	95
<b>Figure V.50.</b> Variations de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après biodégradation.....	96

***Liste des schémas***

***Pages***

<b>Schéma I.1.</b> La structure de la cellulose.....	10
<b>Schéma I.2.</b> Structure d'un type de xyloglucane.....	11
<b>Schéma I.3.</b> Formule chimique de l'alcool coumarylique, coniferylique et Sinapylique	11
<b>Schéma I.4.</b> Structure d'une chaîne d'acide polygalacturonique.....	12
<b>Schéma I.5.</b> Représentation schématique de l'agencement des différents composants des fibres végétale à l'échelle micrométrique.....	13
<b>Schéma V.1</b> Réaction entre le NaOH et la charge de GE.....	54

# **INTRODUCTION GÉNÉRALE**

## **INTRODUCTION GENERALE**

Les polymères sont de plus en plus présents dans la vie quotidienne. De tout temps l'homme a cherché à les exploiter pour se nourrir, pour produire de l'énergie, pour construire, améliorer et agrémenter son habitat, pour se protéger, pour se déplacer et transporter. Cependant, on les utilise rarement seuls, mais combinés à d'autres matériaux, permettant ainsi d'associer les propriétés de chacun. L'utilisation de matériaux composites, préférentiellement aux matériaux traditionnels se justifie par de meilleures propriétés spécifiques.

Les charges les plus couramment utilisées sont des charges minérales qui sont bien connues pour améliorer les propriétés mécaniques des polymères. Actuellement, les prix des polymères issus du pétrole augmentent fortement. En outre, les matériaux composites constitués de tels produits génèrent en fin de vie des tonnes de déchets non dégradables qu'il est difficile à recycler [1].

Cependant, dans un souci de protection de l'environnement et de la santé publique, les matériaux composites à base des fibres végétales tendent à intégrer un caractère écologique (ex: matières recyclables ou biodégradables). L'utilisation de fibres végétales comme le bois, le chanvre, le jute et le lin, en remplaçant les renforts synthétiques (fibres de verre, carbone...) dans les composites à matrices polymériques apparaît aujourd'hui comme une alternative forte intéressante [2].

Ainsi, le nombre d'études concernant ces nouveaux matériaux est en continuelle augmentation et leur développement représente un enjeu important. Des travaux antérieurs ont pu mettre en évidence les avantages et les limitations intrinsèques à ces nouveaux matériaux. Parmi les avantages on cite [3]:

- un maximum de légèreté lié à la faible densité de la fibre végétale;
- un coût minimum (abondance des fibres);
- une bonne compatibilité avec les exigences liées à l'environnement

Cependant, les limitations peuvent se résumer en [4]:

- la mauvaise dispersion des fibres dans la matrice et la formation d'un matériau hétérogène. Les fonctions hydroxyles de la cellulose forment des liaisons hydrogènes entre les chaînes de cellulose;
- la capacité des fibres naturelles à retenir l'eau;

- la faible stabilité thermique des fibres naturelles d'origine végétale. Celles-ci commencent à se dégrader à 200°C. Les bio-composites doivent alors impérativement être mis en œuvre aux températures les plus faibles possibles, ce qui limite les applications avec certains polymères techniques [3].

Afin de réduire ces problèmes liés à la nature propre de la fibre, différents traitements peuvent améliorer l'adhésion, la dispersion des fibres et la stabilité thermique. Il s'agit de traitements physiques (modification des propriétés structurelles ou surfaciques) ou chimiques (décristallisation de la cellulose puis plastification de la fibre par greffage, traitements alcalins ou peroxydes, divers greffages...).

L'une de ces fibres végétales est le Genêt d'Espagne. Cette plante est intéressante du point de vue économique, car son abondance permet d'envisager sa possible utilisation pour la production de matériaux composites à base de matrice polymérique et de charge végétale. Aussi, l'arbrisseau est facile à récolter, ne nécessite pas beaucoup d'eau et supporte la chaleur. Ces deux conditions sont généralement réunies dans plusieurs régions du pays.

Dans un contexte de valorisation et du développement des bio-composites, notre travail a été réalisé afin d'élaborer et de caractériser un nouveau matériau composite à base de polyéthylène basse densité renforcé par différents taux de farine de Genêt d'Espagne obtenue à partir des tiges de l'arbuste. La charge a été traitée avec une solution d'hydroxyde de sodium (1,25 N) à différents temps et à différentes températures. Les composites obtenus ont été soumis à plusieurs techniques de caractérisations à savoir le test structural (Infrarouge à Transformée de Fourier IRTF), les essais mécaniques (choc, traction et dureté), l'essai rhéologique (l'indice de fluidité), l'essai thermique (Calorimétrie Différentielle à Balayage DSC), test de densité et les essais d'environnement (absorption d'eau et la biodégradation).

Ce mémoire s'articule sur deux grandes parties: une étude bibliographique et un protocole expérimental.

L'étude bibliographique se répartie en trois chapitres:

Le premier chapitre est consacré à une analyse bibliographique sur les charges organiques naturelles comportant des généralités sur les charges végétales, leurs compositions chimiques et leurs avantages et inconvénients avec quelques applications des composites à base des charges végétales.

Dans le deuxième chapitre nous présentons les matériaux composites, les procédés de mise en œuvre des agro-composites à matrices polymérique et les paramètres qui affectent les propriétés des matériaux composites.

La modification de la surface des charges végétales peut se faire par des méthodes physiques, physico-chimiques ou chimiques, ceci est détaillé dans le troisième chapitre.

Le protocole expérimental est constitué de deux chapitres:

Le quatrième chapitre décrit les matériaux utilisés ainsi que les techniques expérimentales utilisées.

Le cinquième chapitre est consacré à la discussion de l'ensemble des résultats obtenus à partir des différents tests effectués.

Enfin, dans la conclusion, nous évoquerons les principaux résultats trouvés et nous décrirons les perspectives ouvertes par ce travail.

# **PARTIE I:**

## **ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE**

**CHAPITRE UN**  
**LES CHARGES ORGANIQUES**  
**NATURELLES**

## I. Les charges organiques naturelles

### I.1. Généralités

Les charges naturelles peuvent être définies comme des charges renouvelables d'origine végétale ou animale. La plupart des charges d'origine animale sont fournies par des mammifères (mouton, chèvre et le lapin), mais aussi par le cocon du ver à soie. Quant aux charges d'origine végétale, elles sont issues de la tige, de la feuille ou de la graine de plantes diverses [3]. Près de 30 millions de tonnes de charges naturelles sont produites chaque année dans le monde, la principale étant le coton (20 millions de tonnes), suivie de la laine et du jute (2 à 3 millions environ chacun) [4].

La connaissance des propriétés et les caractéristiques des charges naturelles d'origine végétale (densité, taux de cellulose, angle microfibrillaire, taux d'adsorption d'humidité...) est indispensable à fin de relier la structure de ces charges à leurs propriétés dans les matériaux [5].

Les charges végétales ont des applications dans de nombreux domaines, comme l'industrie du textile et du papier. Elles font aussi leur apparition dans les matériaux composites du secteur du bâtiment ou de l'industrie automobile où elles se substituent aux charges minérales [6].

### I.2. Présentation de quelques fibres végétales

#### I.2.1. Le Genêt d'Espagne

Le genêt d'Espagne, en anglais, «Spanish broom» arbuste aux fleurs jaune-vif, ses tiges, souvent sans feuilles, restent vertes une bonne partie de l'année. C'est une plante qui peut atteindre 2 m, et qui supporte autant les grandes sécheresses que les froids torrides. On le trouve le plus souvent en plaine et dans les maquis [7].

Originaire d'Europe, d'Afrique du Nord et d'Asie occidentale, On le trouve en Espagne ainsi qu'en France, dans les régions méditerranéennes. Il fleurit du printemps à l'automne. Ses fruits contiennent des graines toxiques.

L'un des deux genres, qui comporte environ cinquante espèces, est caractérisé par des feuilles à trois folioles, et par l'absence d'épines. L'espèce la plus connue de ce genre est le genêt à balais qui atteint 3 m de haut. L'autre genre compte environ quatre-vingt-dix espèces à feuilles simples, habituellement armées d'épines. Le genêt des teinturiers a des fleurs jaunes bien voyantes qui produisent une teinture jaune. Il peut atteindre 1 m de haut.

Le genêt d'Espagne est un arbrisseau très décoratif, qui appartient à la famille des Fabacées (ou Papilionacées). Ses rameaux cylindriques sont creux, avec très peu de feuilles. Les fleurs sont disposées en grappes. Autrefois, le genêt était cultivé pour la fibre qui servait à confectionner de la toile [8]. Les tiges de genêt d'Espagne sont utilisées en vannerie et produisent des fibres pour la fabrication des cordages et toiles grossières [9].



**Figure I.1.** Image de l'arbuste de Genêt d'Espagne [7,9].

### **I.2.2. Le bois**

Le bois est la plante fibreuse la plus utilisée de manière non-alimentaire, que ce soit pour la construction, le chauffage ou pour la fabrication de papier. Notons également que la viscose est réalisée à partir de pulpe de bois [10].

Toutes les propriétés du bois dépendent dans une certaine mesure de la quantité d'eau qu'il recèle. Le bois vert peut contenir jusqu'à 50% d'eau. Par séchage à l'air (entre 2 et 10 ans) ou par étuvage (quelques jours), cette quantité d'eau diminue aux environs de 14%. Le bois subit alors un retrait; son module et sa résistance augmentent [11].

### I.2.3. Le lin

Plante herbacée, textile et oléagineuse, aux fleurs bleues, cultivée dans les régions tempérées et qu'on rencontre en France surtout dans le Nord. Les fibres textiles sont isolées de la tige par rouissage. La graine fournit une farine dont on fait des cataplasmes émoullients, une huile siccativ employée notamment en peinture, et des tourteaux utilisés pour l'alimentation du bétail. Tissu fait avec les fibres de cette plante [12].



**Figure I.2.** Image de lin [6].

### I.2.4. Le coco

Dans la noix de coco, fruit du cocotier (palmier tropical), on utilise les faisceaux fibreux de mésocarpe. Ces fibres sont soumises à un rouissage, un battage, un cardage, un lavage et un séchage. La fibre de coco est grossière et raide. Une fois les fibres filées et tissées, on fabrique des cardages, paillassons, tapis brosse, tapis de cirque robustes et imputrescibles [13].



**Figure I.3.** Image de coco [12].

### I.2.5. L'alfa

L'alfa est une plante herbacée (graminées) d'Afrique du nord et d'Espagne, utilisée pour la fabrication de cordages, d'espadrilles, de tissus grossières, de papier, tapis, paniers [14].

### I.2.6. Le Coton

Fibre textile naturelle qui recouvre les graines des cotonnières. Elle est utilisée largement dans la fabrication de fils, étoffes, papiers solides.

Ces fibres sont arbustives, vivaces, mais qui sont généralement cultivées comme cultures annuelles, en partie afin de se prémunir contre les insectes ravageuses.

La fibre de coton peut être utilisée telle qu'elle est (coton hydrophile) mais c'est surtout après filature et tissage que ses utilisations sont les plus importantes.

Le coton est une fibre textile pratique et peu coûteuse; doux et confortable, il est facile à laver. Il subit divers traitements: blanchissage, mercerisation (traitement à base de soude caustique qui débarrasse les fibres de leur cuticule), teinture, impression, empesage d'où découlent des qualités précises [15].



**Figure I.4.** Image de la fleur de coton [14].

### I.2.7. Le Sisal

Le sisal ou le chanvre de sisal est un agave qui produit une fibre raide utilisée en cordage. Le terme sisal définit aussi la plante que la fibre, selon le contexte. Ce n'est pas vraiment une variété de chanvre, mais elle est parfois appelée ainsi parce que le chanvre était pendant des siècles une source importante de fibre. Parmi les Monocotylédones, sont également utilisés par l'homme, le sisal et l'abaca. Du sisal qui pousse au Mexique, sont

extraits et isolés par broyage les faisceaux de fibres des feuilles qui seront filées, tissées, manufacturées en sacs, hamacs, stores, cordages, nattes d'aspect brillant. D'autres espèces d'Agave sont aussi utilisées pour leurs fibres. Les Aztèques savaient déjà utiliser le sisal pour en faire du papier, du fil à coudre, des cordes, des nattes et des chaussures. Ces fibres sont résistantes et faciles à teindre [16].



**Figure I.5.** Image de la plante sisal [14].

### **I.2.8. Le Ramie**

Plante de la famille des urticacées, dont on tire en extrême orient une fibre textile. C'est une plante pérenne de 1 à 2,50 m. Ces feuilles sont cordiformes et mesure entre 7-15 cm de long, pour 6-12 cm de côté. Elles sont blanches sur leur face inférieure avec de nombreux poils blancs qui lui donnent un aspect argenté. Le ramie est principalement employé pour la production de tissu.

Les fibres des tiges du ramie sont constituées de cellulose quasi pure de très bonne qualité, et utilisées pour le tissage et la fabrication de papiers résistants. Les fibres sont longues (50 à 250 mm), très solides (un fil ne peut être cassé à la main), imputrescibles, brillantes de sorte que les étoffes rappellent la soie et ont été qualifiées de "soie végétale" [17].



**Figure I.6.** Image de la plante ramie [6].

### I.2.9. Le chanvre

Le chanvre est une plante herbacée annuelle de la famille des cannabacées cultivée pour ses fibres souples et robustes. La taille de la plante peut varier de 90 cm à 5 m de haut selon le climat et le type de sol. La plante possède une racine pivotante et un système racinaire très développé. Sa tige, droite et cannelée, est garnie de feuilles composées de 5 à 7 lobes lancéolés et dentelés [18].



**Figure I.7.** Image de la plante chanvre [18].

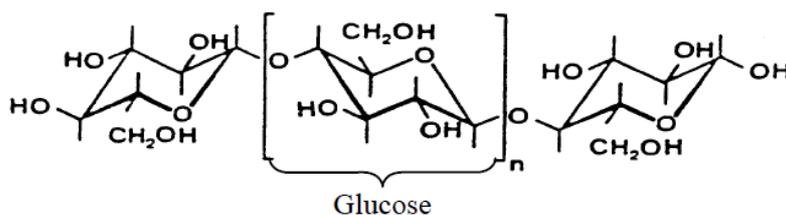
## I.3. Composition chimique des charges végétales

La biomasse végétale est constituée de plusieurs macromolécules étroitement liées entre elles au sein de la paroi végétale. Dans le cas de la tige de genêt, au sein de sa paroi, quatre composés majoritaires se distinguent: la cellulose, les hémicelluloses, les pectines et la lignine.

### I.3.1. La Cellulose

La cellulose est un polymère qui existe à l'état naturel et qui est particulièrement important puisqu'il est le constituant principal de la masse végétale. L'extraction de la cellulose est préférentiellement appelée « enrichissement en cellulose » car la matière obtenue est enrichie en cellulose plutôt que d'être constituée de cellulose pure [19].

D'un point de vue chimique, la cellulose est une molécule formée de longues chaînes dont le motif de base est le glucose (Schéma I-1). Les molécules cycliques de glucose adoptent la conformation « chaise », qui est plus stable que la conformation « bateau » [20].



**Schéma I.1.** La structure de la cellulose [21].

Le nombre de monomères de glucose, ou degré de polymérisation (DP), varie selon l'espèce végétale. Il est par exemple de 10000 pour le coton, de 9000 pour le chanvre, le lin et le ramie, ou encore de 8000 pour l'épicéa [22]. La cellulose cristalline est l'un des polymères ayant le module d'élasticité le plus élevé, soit environ 136 GPa à comparer à la fibre de verre. Cette rigidité provient de la structure cristalline qui suit un agencement supramoléculaire hélicoïdal très ordonné [23, 24].

### I.3.2. Les hémicelluloses

A l'état natif, la cellulose est mélangée à des hémicelluloses qui sont également des polysaccharides, mais ramifiés et contenant des unités saccharidiques de structures moléculaires diverses. Les hémicelluloses sont par définition les polysaccharides solubles dans l'eau et pouvant être extraites 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 [25].

Dans leur état naturel, elles ont un degré de polymérisation (DP) compris entre 200 et 300 et leur structure dépend de l'espèce végétale. Ces hémicelluloses ont en effet une structure chimique très différente selon l'origine végétale, le type cellulaire, la localisation dans la paroi ou bien encore l'âge des tissus [25, 26]. Parmi les hémicelluloses les plus communes dans la paroi des cellules des fibres végétales, se trouvent les familles des xylanes, des mannanes et des galactanes. Ce sont des polysaccharides dont la chaîne principale est constituée respectivement de xylose, de mannose et de galactose. Ces chaînes peuvent être soit ramifiées par le greffage d'autres unités de sucres ou des groupements acétyles, soit entrecoupées par l'incorporation de sucres dans la chaîne linéaire [25].

La classe d'hémicelluloses la mieux étudiée correspond aux xyloglucanes (Schéma I.2). Ils sont constitués d'une chaîne de glucose et de courtes chaînes latérales de xylose, galactose et fucose [17].

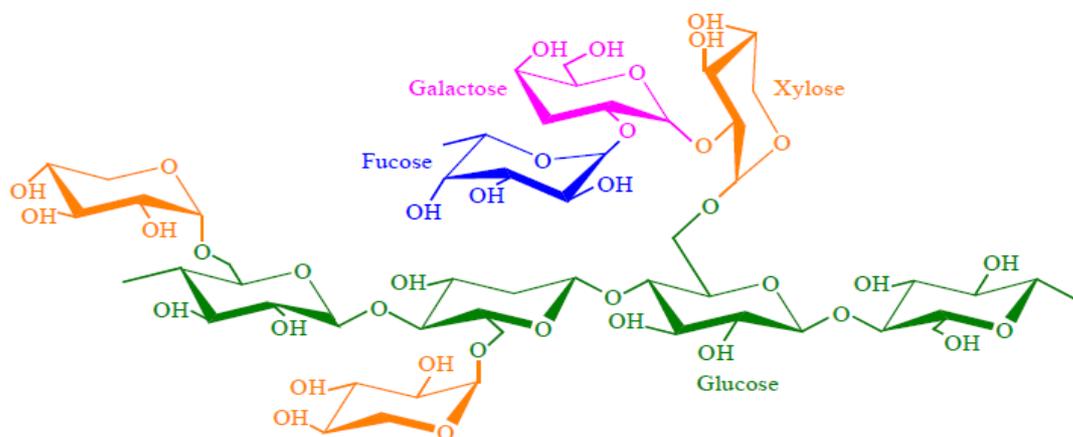


Schéma I.2. Structure d'un type de xyloglucane [25].

### I.3.3. La lignine

Les lignines sont des polymères tridimensionnels provenant de la polymérisation radicalaire de trois alcools phenylpropénoïques, dont la structure dépend de l'espèce végétale (Schéma I.3), l'alcool coumarylique, l'alcool coniférylique et l'alcool sinapylique [25].

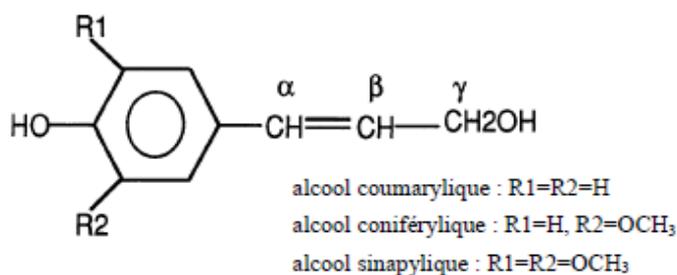


Schéma I.3. Formule chimique de l'alcool coumarylique, coniférylique et sinapylique [25].

### I.3.4. Les pectines

Les pectines sont des macromolécules glucidiques composées essentiellement de l'acide galacturonique. Cependant, d'autres sucres sont également présents tels que le  $\beta$ -D – galactose, le  $\beta$ -D–glucose, le  $\alpha$ -L–arabinose, le  $\beta$ -D–xylose, le  $\alpha$ -D–fucose et le  $\beta$ -L–rhamnose (Schéma I.4) [27].

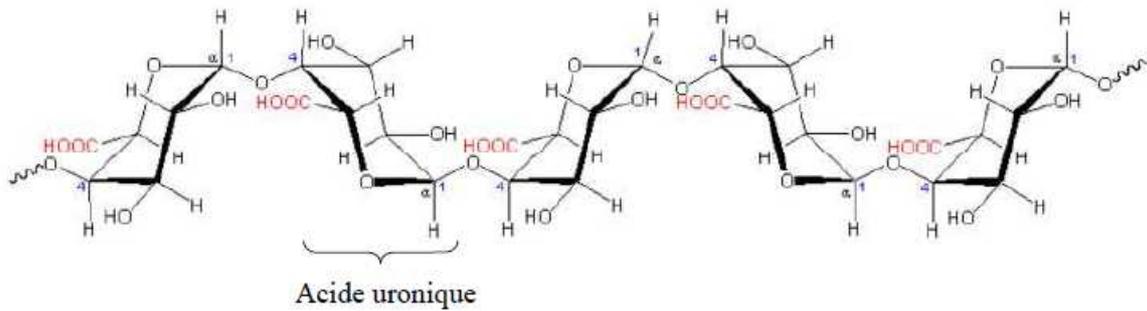
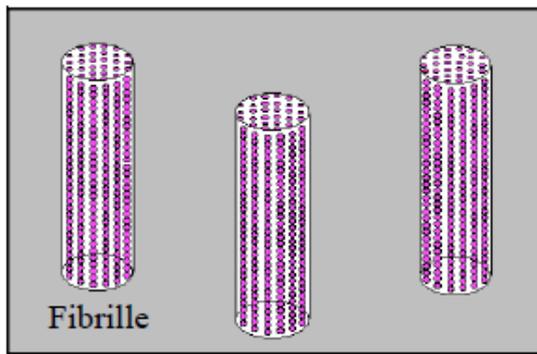


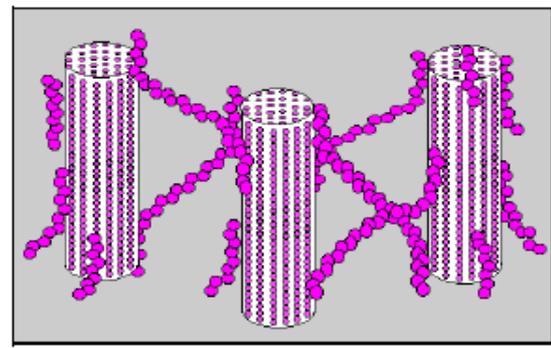
Schéma I.4. Structure d'une chaîne d'acide polygalacturonique [25].

### I.3.5. La cire

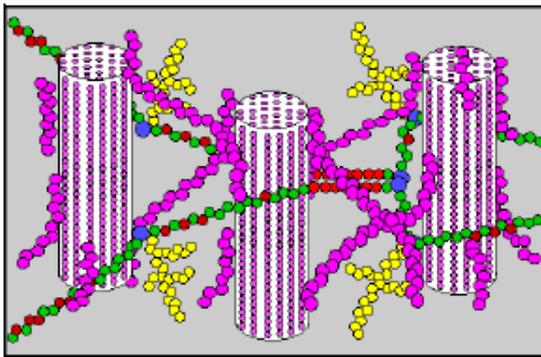
La cire est une partie des fibres qui peut être extraite avec une solution organique. Elle est constituée de différents types d'alcools, qui sont insolubles dans l'eau et se gonflent dans plusieurs acides [17].



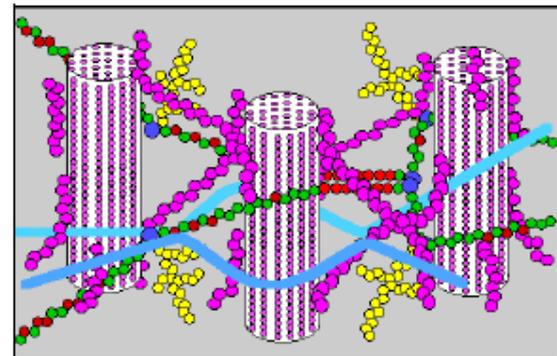
a) Cellulose Seule



b) Cellulose et hémicelluloses



c) Cellulose, hémicelluloses et pectines



d) Cellulose, hémicellulose, pectines et réseau de protéines

**Schéma I.5.** Représentation schématique de l'agencement des différents composants des fibres végétales à l'échelle micrométrique [20].

#### I.4. Avantages et inconvénients des charges végétales

Les principaux avantages des fibres végétales sont les suivants [28]:

- faible densité;
- faible coût ou coût modéré;
- fibres renouvelables par culture;
- faible consommation d'énergie pour leur production;
- fibres biodégradables;

- stock disponible important;
- découpage et usinage faciles.

Grâce à un compromis idéal rigidité/résistance/légèreté, les composites renforcés par des fibres végétales concurrencent efficacement les matériaux traditionnels incorporant des charges minérales.

Par contre, à ces avantages sont associés les inconvénients suivants [28] :

- fibres hydrophiles;
- stabilité thermique limitée;
- gonflement de charges;
- propriétés non constantes des charges, elles dépendent des conditions climatiques.

## **I.5. Les principaux applications des composites à base des charges végétales**

### **I.5.1. Secteur automobile**

L'automobile représente un secteur de plus en plus important en terme de débouché pour les fibres végétales.

Les principales applications sont les suivantes [29]:

- garnissage des coffres;
- revêtements pour plancher;
- revêtements pour paroi intérieur (habillage des toits d'habitacle par la technique de contre collage/compression);
- revêtement pour avant et arrière;
- revêtement pour passage de roue;
- revêtements de garnissage pour plage arrière;
- habillage de sièges;
- garnitures;
- housses;
- rembourrages en mousse;
- filtre à huile;
- moquette de garnissage des panneaux de portières;
- capitonnage des panneaux de portières routières et ferrovières;
- tableaux de bord;

### I.5.2. Quelques applications en diffusion dans le secteur automobile

**Volkswagen:** Couvercle de coffre pour roue de secours dans les modèles de Volvo: C70, V70, panneaux de portières, dossiers de siège, panneau de finition du couvercle du coffre, garnitures de coffre dans les modèles suivants: Golf, Passat, Bora.

**Daimler Chrisler:** Panneaux de portes arrières, pare-brise et tableau de bord, tablette, panneau de revêtement des montants dans les modèles suivants: Classe A, Classe C, Class E, Class S.

**Audi:** Dossier de siège, panneaux des portières latérales et arrières, garnitures de coffre, revêtement de roue de secours dans les modèles suivants: A3, A4, A6, A8.

**BMW:** Panneaux de portière, garnitures de pavillon, garnitures de coffre, dossiers de siège dans les modèles suivants: séries 3, 5 et 7.

**Opel GM:** Panneaux de pavillon, panneaux de portières, panneau de revêtement des montants, groupe d'instruments, dans les modèles suivants : Vectra, Astra.

**Ford:** Panneaux de portières, montant central, garnitures de coffre dans les modèles suivants : Mondeo, Focus, Zafira.

**Peugeot:** nouvelle 406.

**Renault:** Clio [29].

### I.5.3. Autres applications des charges végétales

Le secteur automobile n'est pas le seul intéressé par ces bioplastiques. Suivant les mêmes techniques, d'autres secteurs ont utilisé les charges végétales pour la fabrication des composites, en citant par exemple [30]:

- le bâtiment : planchés, clôtures, palissades, portes et fenêtres, bardage;
- les infrastructures : voies ferrées, murs anti-bruits;
- l'emballage : palettes, boîtes.

# **CHAPITRE DEUX**

## **LES AGROMATÉRIAUX Á MATRICE POLYMÉRIQUE**

## II. Les agromatériaux à matrice polymérique

### II.1. Généralité sur les matériaux composites

Dans les matériaux composites on combine des composants ayant des propriétés physiques et mécaniques complémentaires. L'insertion des renforts de bonne résistance à la traction, de modules très élevés dans une matrice polymérique, permet d'améliorer les qualités mécaniques et thermiques.

L'avantage des composites à matrice polymère, par rapport aux métaux, est le procédé de fabrication qui permet la réalisation de pièces de forme complexe et leur densité plus faible, d'où une consommation moindre de carburant (pour l'aviation et l'automobile), une vitesse supérieure dans le sport de compétition ou une portée plus longue pour les missiles et une charge utile plus élevée (dans les transports) [31].

L'utilisation de fibres naturelles comme renfort de matériaux composites fait l'objet de nombreux travaux de recherche. Les fibres naturelles sont mises en avant pour des raisons environnementales et économiques; elles sont issues de ressources renouvelables, elles sont biodégradables, elles réduisent l'abrasion des outillages (en comparaison des fibres minérales), elles sont moins irritantes pour la peau et le système respiratoire des personnes qui les manipulent. Par ailleurs, les fibres naturelles ont une densité plus faible que les fibres minérales. Pour l'industrie de l'automobile cela représente un gain de poids et par conséquent une réduction de la consommation de carburant [32].

Les matrices communément utilisées dans l'élaboration de composites à fibres naturelles vont des thermoplastiques, tels le polypropylène (PP) et le polyéthylène (PE), aux thermodurcissables tel le polyester.

### II.2. Définitions

Les biomatériaux sont des matériaux composés à majorité de matières premières d'origine agricole dont les produits générés au cours de la dégradation, de la combustion ou du recyclage ne provoquent pas de dommages à l'environnement. On distingue trois grands types de biomatériaux :

- Les agromatériaux qui sont obtenus par transformation ou mise en forme physique ou thermique d'un coproduit d'origine végétale.

- Les bio-polymères qui sont obtenus par des procédés plus complexes et souvent issus de la transformation d'une ou plusieurs molécules plus ou moins purifiées provenant de la biomasse.
- Les matériaux composites dont il convient de distinguer, à nouveau, deux catégories :
  - ✓ Les composites plastiques non biodégradables qui ne contiennent pas que des composés d'origine végétale.
  - ✓ Les composites biodégradables (matrice biodégradable + fibre par exemple)[33].

## II.3. Différents facteurs influant sur les propriétés des matériaux composites

### II.3.1. La dispersion de la fibre

L'association de fibres hydrophiles et d'une matrice de nature hydrophobe entraîne une difficulté de dispersion des fibres dans la matrice. En effet, même si le procédé de mise en œuvre favorise la dispersion (extrusion, mélangeur cinétique,...), les fibres restent agglomérées ou se regroupent par affinité. La formation d'agrégats est à éviter pour mettre en forme des composites avec des propriétés adaptées. En effet, la qualité d'un composite dépend du transfert de contrainte de la matrice vers les fibres, ce transfert est restreint si les fibres sont agglomérées [34].

Dans le travail de **Berlioz** et ses collaborateurs [35], des microfibrilles estérifiées ont été utilisées pour renforcer une matrice de polyéthylène (PE). L'ensemble des caractérisations réalisées (Calorimétrie Différentielle à Balayage DSC, Analyse Dynamique Mécanique DMA, Microscopie Electronique à Balayage MEB et essais de traction) donne des résultats qui permettent de mettre en évidence le rôle de la modification de surface des microfibrilles. En premier lieu, l'estérification des microfibrilles de cellulose apporte une amélioration significative de la qualité de la dispersion. Alors que les échantillons renforcés avec des microfibrilles non estérifiées présentent des agrégats. L'homogénéité du matériau se traduit par des ténacités élevées et de faibles valeurs d'écart-type sur les propriétés mécaniques mesurées.

L'incorporation de microfibrilles estérifiées permet une amélioration très nette des caractéristiques mécaniques du PE. L'étude a révélé un taux de greffage optimum. En dessous de cet optimum, la dispersion des microfibrilles n'est pas assurée et les matériaux présentent un comportement fragile. En revanche, une augmentation excessive de la quantité de greffons va entraîner une plastification importante du matériau se traduisant par une diminution de

l'effet de renfort. Dans les conditions optimums, les augmentations du module d'élasticité et du seuil d'écoulement peuvent atteindre 40% tout en conservant un allongement à la rupture et une ténacité tout à fait acceptables. Au regard de ces résultats, l'estérification des microfibrilles, semble ouvrir d'intéressantes perspectives dans le domaine des nanocomposites. L'amélioration de la rigidité mécanique du matériau se fait tout en conservant de bonnes propriétés en termes de résistance aux chocs et d'allongement à la rupture [35].

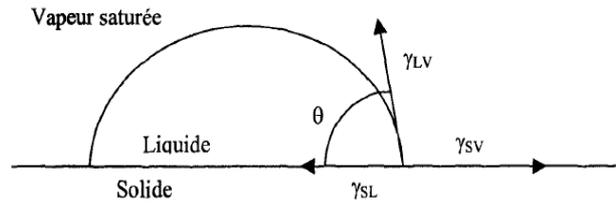
### II.3.2. L'adhésion fibre/matrice

L'adhésion fibre/matrice joue un rôle très important pour le renforcement des composites à fibres cellulosiques. La matrice joue le rôle de liant. Elle permet de répartir les efforts et de transférer les contraintes mécaniques au renfort et joue sur sa plasticité pour éviter la propagation des fissures. Pour que le transfert des contraintes mécaniques soit optimal, il faut assurer une bonne interaction et adhésion entre les fibres et la matrice [32].

La théorie thermodynamique de l'adhésion est attribuée à Sharpe et Schonhorn (1963). Elle est fondée sur le principe que l'adhésion est essentiellement le résultat des forces interatomiques et intermoléculaires existant à l'interface. Les forces interfaciales les plus communes proviennent des interactions de Van der Waals et des interactions acide-base de Lewis. L'amplitude de ces forces est reliée à des grandeurs thermodynamiques telle que l'énergie libre de surface des substrats. Dans le cas des matériaux composites, il est donc nécessaire de caractériser l'état de surface de la charge et celui de la matrice pour optimiser l'interface et les propriétés des composites. L'énergie de surface peut être calculée par des mesures de mouillabilité [36].

Le terme mouillage recouvre tous les phénomènes apparaissant quand un liquide est mis en contact avec un liquide immiscible ou un solide. Le mouillage de la surface est le pouvoir qu'aura une surface à former un film homogène lorsqu'elle est en contact avec un liquide. Un film homogène de liquide sur une surface est obtenu quand l'énergie de surface du liquide est inférieure ou égale à celle du solide [36].

Pour un système solide - liquide, l'équilibre de mouillage peut être défini par le profil d'une goutte de liquide déposée sur une surface solide plane, présenté sur la figure II.4.



**Figure II.1.** Angle de contact à l'équilibre sur une surface solide [36].

avec  $\gamma_{LV}$ ,  $\gamma_{SV}$  et  $\gamma_{SL}$  les tensions interfaciales liquide-vapeur, solide-vapeur, et solide-liquide respectivement. L'équation de Young (1805) reliant l'énergie de surface du solide au point triple (solide, liquide, vapeur) à l'angle de contact à l'équilibre  $\theta$  s'écrit suivant l'équation (II .1) [5].

$$\gamma_{SV} = \gamma_{SL} + \gamma_{LV} \cos \theta \dots\dots\dots (II.1)$$

**Rozman** et ses collaborateurs [37] ont travaillé sur l'effet de la modification chimique de la surface de charge d'huile de palme sur la résistance en flexion et aux chocs des composites de PP/huile de palme. La charge a été modifiée chimiquement par l'anhydride maléique. Les composites avec la charge traitée ont montré une résistance en flexion et aux chocs élevée comparé aux composites avec la charge non traitée. Les résultats du microscope électronique ont montré une bonne adhésion et une bonne compatibilité entre la charge et la matrice du polypropylène.

**Mohanty** et ses collaborateurs [38] se sont intéressés à l'influence de la modification chimique de la surface des fibres de jute sur les propriétés des composites polyester/fibres de jute. Les composites à fibres modifiées ont montré de bonnes propriétés comparativement aux composites à fibres non traitées, plus de 40% d'amélioration de la résistance à la traction pour les composites à fibres traitées. Le taux de fibres a une influence sur les propriétés du composite. Un taux de fibres de (30% m) présente des propriétés mécaniques optimales.

**Habibi** et ses collaborateurs [39] ont utilisé diverses fibres lignocellulosiques: coton, bagasse et banane. Les matériaux composites ont été préparés avec l'utilisation du polyéthylène comme matrice et l'acide stéarique ou le polyéthylène greffé par l'anhydride maléique (PEBD-g-AM) comme compatibilisant. Les propriétés thermiques, mécaniques et

morphologiques ont été étudiées par l'analyse calorimétrique différentielle, les tests de traction et par le microscope électronique respectivement. Les résultats ont montré une bonne compatibilité et une amélioration des propriétés mécaniques avec l'utilisation du PEBD-g-AM. Les propriétés thermiques ont montré que la température de fusion n'a pas changé avec l'addition de fibres lignocellulosiques. Une amélioration significative du degré de cristallinité a été observée pour les composites à base de fibres de coton.

**Freire** et ses collaborateurs [40] ont étudié les propriétés mécaniques, morphologiques et l'absorption d'eau des composites polyéthylène basse densité chargé de fibres cellulosiques non modifiées et modifiées par estérification avec des acides hexanoïque, dodecanoïque, octadecanoïque et docasanoïque. La modification de la surface des fibres améliore l'adhésion interfaciale avec la matrice polymérique, augmente les propriétés mécaniques et diminue le taux d'absorption d'eau.

L'étude de **Bengtsson** et ses collaborateurs [41] a porté sur la possibilité d'utilisation du silane pour le greffage de la farine de bois et le polyéthylène. Les composites de polyéthylène haute densité/farine de bois/vinyltriméthoxysilane ont été préparés dans une extrudeuse double vis. Les propriétés mécaniques des composites greffés ont montré une augmentation de la résistance à la traction avec l'augmentation du taux de farine de bois. Ceci confirme une amélioration de l'adhésion entre la matrice polymérique et la farine de bois. La rigidité des composites a aussi augmenté avec le taux de farine de bois avec une diminution de la déformation à la rupture. L'observation au microscope électronique a montré une bonne compatibilité et adhésion entre le polymère et la farine de bois pour les composites greffés.

### II.3.3. Facteur de forme du renfort longueur /diamètre (L/D)

Le rapport longueur/diamètre des fibres (L/D) est un paramètre critique pour les matériaux composites. Un moyen d'obtenir un facteur de forme élevé, consiste à varier les dimensions du diamètre et/ou sur la longueur de la fibre. Plus la taille est petite, plus le facteur de forme est élevé, conduisant à un meilleur transfert de contraintes si l'adhésion à l'interface est forte. Par ailleurs, un taux de fibres élevé pose des problèmes d'adhésion et de dispersion.

Si le rapport L/D est inférieur à sa valeur critique, il y a insuffisance de transfert de contrainte et le renforcement par les fibres est alors inefficace, les fibres ne sont pas soumises à leurs contraintes maximales. Si L/D est très élevé, les fibres peuvent être enchevêtrées durant le malaxage causant ainsi un problème de dispersion [28].

**Abdelmouleh** et ses collaborateurs [42] ont étudié les propriétés des composites préparés avec différents types de fibres et avec différentes longueurs. Deux thermoplastiques ont été utilisés: le polyéthylène basse densité et le caoutchouc naturel. Pour l'amélioration de l'adhésion interfaciale trois agents de couplage de type silane qui ont été utilisés:

$\gamma$ -méthacryloxypropyltriméthoxy (MPS),  $\gamma$ -mércaptoproyltriméthoxy (MRPS) et hexadécyltriméthoxy-silanes (HDS). Les résultats trouvés ont montré que les propriétés mécaniques de ces composites augmentent avec l'augmentation de la longueur des fibres et avec l'utilisation des fibres traitées avec MPS et MRPS.

Les travaux de **Poquillon** et ses collaborateurs [43] consistent à soumettre un lot de fibres de longueur 50 mm et de diamètre 0,5 mm (rapport L/D =100) à différentes compressions depuis une disposition initiale aléatoire 3D. Entre chaque compression, les fibres sont sorties du dispositif, cardées puis remises en place. Les résultats ont montré une excellente reproductibilité de la charge dans la partie commune. Plus le niveau de compression est important, plus la déformation résiduelle est forte (densité relative finale plus importante). Pour les fibres de Nylon 250 et 500  $\mu\text{m}$  de diamètre, différentes longueurs ont été utilisées (15, 30, 50, 100 mm). Tant que la longueur des fibres reste inférieure au diamètre du dispositif, il n'y a pas d'effet de celle-ci sur les courbes obtenues. Un très léger effet du diamètre de fibres est noté mais difficile à séparer de la dispersion expérimentale pour les fibres de nylon. Cet effet est plus marqué pour les fibres métalliques (125 $\mu\text{m}$  et 500 $\mu\text{m}$ ). Les fibres les plus fines sont plus compressibles: pour une même pression de compaction, la densité relative atteinte est plus forte.

Selon **Bentur** et ses collaborateurs [44], la taille de la section des fibres influence considérablement la microstructure de l'interface fibre-matrice:

- Pour les microfibrilles, les fibres ayant un diamètre inférieur ou égal à celui des particules de ciment ( $\leq 70 \mu\text{m}$ ), la microstructure de l'interface est dense, peu différente de celle de la matrice. Ceci est dû au fait que les diamètres des fibres et des particules de ciment sont du même ordre de grandeur.
- Pour les fibres en faisceau, les particules de ciment et les hydrates formés ne pouvant pénétrer dans le faisceau, la microstructure autour du filament se différencie selon son positionnement interne ou externe.
- Pour les macrofibrilles, les fibres ayant un diamètre supérieur à celui des particules de ciment, la microstructure de l'interface ressemble à celle de l'auréole de transition des granulats dans le béton. Sa formation est due entre autre à un effet de paroi au niveau

de l'interface. Elle peut se composer d'un film, d'une couche discontinue de cristaux issus de l'hydratation du ciment et d'une zone poreuse.

D'un point de vue mécanique, à cause de sa structure l'interface peut être considérée comme un aspect important du composite.

#### **II.3.4. L'effet de l'orientation des fibres**

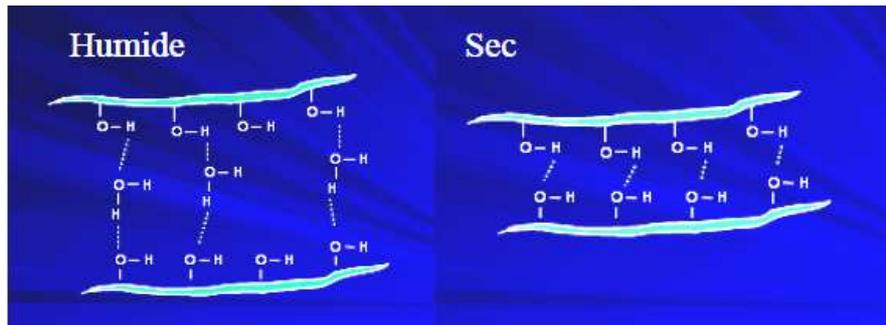
L'orientation des fibres est un autre facteur important qui influe sur le comportement des composites. Car les fibres sont rarement orientées dans les matériaux composites en une seule direction, laquelle est nécessaire pour que les fibres donnent un effet de renforcement maximal. Le degré de renforcement dans les composites à base des fibres courtes, dépend beaucoup de l'orientation individuelle de chaque fibre par rapport à l'axe d'étirement. Le changement de l'orientation des fibres se fait continuellement et progressivement durant la transformation du matériau composite à fibres courtes. Elle est reliée aux propriétés géométriques des fibres, les propriétés viscoélastiques de la matrice et la variation de la forme du matériau qui est produit par l'opération de transformation [45].

Li et ses collaborateurs [46] ont permis d'établir expérimentalement que la force nécessaire pour arracher une fibre orientée d'un angle  $\theta$  quelconque est supérieure à celle qui est suffisante pour arracher une fibre orientée perpendiculairement au plan de référence ( $\theta=0$ ).

Ils ont étudié l'effet de l'orientation et de la longueur enchâssée de fibres de nylon et de polypropylène (PP) sur la charge maximale et l'énergie de rupture, pour un angle d'inclinaison variant entre  $0^\circ$  et  $75^\circ$ . Les résultats de leur essais montrent que la force et l'énergie augmentent avec l'accroissement de l'angle d'inclinaison jusqu'à atteindre un maximum de  $45^\circ$  et elles diminuent ensuite pour les plus grands angles.

#### **II.3.5. L'effet de l'humidité**

L'humidité est un point crucial qui évolue et intervient tout au long de la vie des matériaux composites due au caractère hydrophilique de la fibre. Les fibres végétales sont à l'origine très sensibles aux conditions hygroscopiques. Cette sensibilité joue un rôle important sur l'adhésion mais aussi sur les caractéristiques mécaniques et physiques du produit final [28].



**Figure II.2.** Modèle d'adhésion interfibres dans le cas des liaisons hydrogène en phase humide et sèche [47].

**Espert** et ses collaborateurs [48] se sont intéressés à l'effet de la température sur le taux d'absorption d'eau par l'immersion des composites polypropylène/fibres de bois dans l'eau distillée à différentes températures 23° C, 50° C et 70° C. Les propriétés mécaniques ont été affectées par l'absorption d'eau. Les échantillons saturés en eau ont présenté de mauvaises propriétés mécaniques tel que le module d'Young. Les résultats ont aussi montré qu'à faible taux de fibres, l'eau agit comme un plastifiant, d'où les valeurs de déformation sont élevées. Cependant cet effet disparaît avec l'augmentation de la température ou du taux de fibres.

**Bisanda** et ses collaborateurs [49] ont étudié l'effet du traitement chimique de la surface des fibres de sisal par le silane et par la méthode de mercerisation, sur l'évolution des propriétés mécaniques et physiques des composites époxyde/fibres de sisal. Les résultats ont montré que les deux traitements montrent une amélioration de la résistance à l'absorption d'eau des composites. Un taux d'absorption d'eau élevé, réduit considérablement les propriétés mécaniques des composites.

#### II.4. Les procédés de mise en œuvre des agro-composites à matrices polymérique

L'élaboration des composites à base de fibres végétales est une étape importante qui va définir la qualité de la dispersion des charges au sein du polymère. Différentes méthodes de préparation existent dans la littérature: malaxage, évaporation de solvant, polymérisation in-situ ou mélange de suspensions colloïdales.

Pour les polymères chargés (soit par des fibres végétales ou fibres minérales), la mise en œuvre industrielle passe par l'utilisation de malaxeurs et de mélangeurs qui incorporent directement les charges avec le polymère. Bien que le cisaillement utilisé soit très important, la viscosité importante du système freine la bonne compatibilité entre les charges et le

polymère. Le cisaillement mécanique doit rester contrôlé afin d'éviter toute dégradation des charges.

Une autre manière de disperser des charges est de procéder par polymérisation in-situ. Les charges (dont la surface est modifiée ou non) sont mélangées avec le monomère avant que la polymérisation ne soit initiée.

Une troisième méthode est d'utiliser un solvant dans lequel la charge et le polymère se dispersent séparément. Ensuite, ils sont mélangés ensemble et le solvant est évaporé soit à température ambiante soit à haute température. Il a été montré que le choix du solvant et les conditions d'évaporation conditionnent la qualité de la dispersion finale des charges dans la matrice. En d'autres termes, il faut trouver un bon solvant du polymère et dans lequel les particules restent stables.

Enfin, une autre possibilité est le mélange physique de deux suspensions colloïdales couramment utilisé pour faire des composites à base de latex. Elle consiste à mélanger une suspension contenant les charges et une autre contenant le latex et de laisser évaporer l'eau pour former le film.

Ces différentes voies d'élaboration doivent garantir la bonne stabilité et dispersion des charges dans la matrice. Tout est question de compromis et choix judicieux dans les paramètres de l'élaboration. Tout d'abord, le temps de préparation doit être assez court pour éviter la floculation des charges. Ensuite, la viscosité globale du système doit être un compromis entre une valeur basse (pour permettre la dispersion) et haute (pour la maintenir).

La diversité des différents constituants (charges et matrices polymères) fait qu'il n'existe pas de mode opératoire unique, chaque constituant a ses particularités qui mènent à des voies d'élaboration différentes d'un système à l'autre [50].

# **CHAPITRE TROIS**

## **LES DIFFÉRENTES MÉTHODES DE MODIFICATION DES CHARGES VÉGÉTALES**

### III. Les différentes méthodes de modification des charges végétales

#### III.1. Introduction

L'incorporation de fibres végétales dans les thermoplastiques est devenue un sujet d'actualité car ces fibres présentent de bonnes propriétés mécaniques spécifiques et de faibles impacts environnementaux (production et gestion en fin de vie). Par exemple, 60% d'énergie peut être préservée en utilisant des fibres végétales plutôt que de verre. D'autres études mettent en évidence la biodégradabilité des fibres végétales ainsi que leur excellent rapport de performances mécaniques/prix [51,52].

Les propriétés des matériaux composites à base des fibres végétales sont intimement liées aux propriétés de ses composants mais également à l'interface. La cohésion entre les fibres végétales et la matrice de polymère demeure l'un des verrous technologiques du développement de ces matériaux. En effet, la cellulose, principal constituant des fibres végétales, est généralement pas ou peu compatible avec les matrices thermoplastiques. De nombreuses études ont donc porté sur l'amélioration de ces propriétés [53].

L'efficacité de renforcement des fibres naturelles dépend surtout de la capacité de transférer l'effort de la matrice polymère (la phase continue) aux fibres. L'adhésion entre la surface hydrophile des fibres et le polymère hydrophobe utilisé comme matrice est faible et, donc, la capacité de renforcement réduite [54].

Le traitement des fibres naturelles et certaines additives utilisés dans le composite assurent la modification de la tension à l'interface et l'augmentation des propriétés mécaniques. La plupart des études se réfèrent à la modification de l'interface dans les composites fibres naturelles-polymère [55].

Le traitement de la surface comporte deux étapes qui sont: le prétraitement qui a pour rôle de nettoyer la surface des fibres et le traitement qui a pour but de modifier la surface des fibres afin d'améliorer l'adhésion avec la matrice. Les diverses techniques essayées de ce dernier peuvent être divisées en trois catégories: les méthodes de modification physiques, physico-chimiques et les méthodes chimiques.

#### III.2. Prétraitement des fibres

Les fibres végétales présentent une surface recouverte de graisses, de ciments pectoligneux, de cires et d'autres composés organiques. En vue de les utiliser comme renfort

pour les matériaux composites, ces fibres doivent subir un prétraitement dont le rôle est de nettoyer la surface des fibres et d'améliorer la surface d'accrochage en augmentant le degré de fibrillation.

Les résultats des études de **Torres** et **Cubillas** [56] montrent que le prétraitement de la fibre de sisal par l'acide stéarique augmente la déformation à la rupture du composite polyéthylène PE/fibres de sisal de 23% par rapport au composite PE/fibres de sisal non traitées et la contrainte à la rupture est plus grande dans le cas de composite à fibre traitée.

### III.3. Les différentes méthodes de modification de la surface des charges végétales

Les modifications ont pour but de rendre compatible les composants des matériaux composites: fibres et matrice [57]. Pour qu'une compatibilisation soit effective il faut:

- ajouter un agent comptabilisant actif au cours du procédé (extrusion, étape de mise en œuvre du matériau);
- faire réticuler les composants du mélange;
- modifier chimiquement ou physiquement l'un ou les deux éléments constitutifs.

#### III.3.1. Les modifications physiques

L'étirage, le calandrage, les traitements thermiques comme tout traitement physique de surface ont la particularité de ne pas modifier la composition chimique de la fibre cellulosique. Ces modifications ne sont pas les plus utilisées pour le traitement de surface des fibres cellulosiques mais ont fait l'objet de plusieurs études. L'une d'entre elles semble attirer l'attention de plusieurs auteurs. Elle est appliquée sur des fibres lignocellulosiques et consiste simplement à les traiter par des extractions au soxhlet avec des solvants comme l'acétone, le toluène, les éthers ou même avec de l'eau chaude [54].

Ces méthodes sont utilisées surtout pour purifier les fibres lignocellulosiques c'est à dire enlever les fragments de lignine et les impuretés restantes de sa surface. Il existe une technique utilisée très récemment et qui consiste à envelopper la fibre par une couche très mince de polymère et de les mettre en suspension dans une solution d'eau et de surfactants cationiques pour générer des radicaux libres. En ajoutant un monomère, une nouvelle couche peut se former par l'intermédiaire des radicaux libres [57].

Une méthode développée par l'équipe de **Simonsen** [58], consiste à induire une couche de polystyrène (PS) sur de la fibre de sapin en poudre. Avec cela, ils ont montré qu'en

étudiant l'interface par Spectroscopie de Photoélectron x (XPS) et Chromatographie Gazeuse Inverse (IGC), la surface a été considérablement changée. Contre toute attente, la constante dispersive de l'énergie de surface augmente alors qu'elle ne devait pas changer puisque le polystyrène PS et la fibre ont des constantes dispersives similaires [59].

Les fibres cellulosiques modifiées physiquement sont toujours traitées successivement par voie chimique ce qui permet de bénéficier pleinement du résultat obtenu. On parle ainsi de modification physico-chimique.

### III.3.2. Les modifications physico-chimiques

L'intérêt de ces modifications est la purification des fibres cellulosiques, l'oxydation et l'activation des sites à leur surface. Le traitement corona, les décharges diélectriques et plasma sont parmi les plus connus. De nouvelles techniques sont utilisées de plus en plus comme les irradiations laser, Ultraviolet (UV) ou même par les rayons Gamma ( $\gamma$ ). Ces modifications physico-chimiques font l'objet de plusieurs études [59].

#### III.3.2.1. Le traitement corona

Le traitement Corona (traitement couronne) est l'un des procédés les plus utilisés dans le traitement des surfaces. Il consiste à appliquer un champ électrique très puissant (haute tension 1300 à 1500 Volts) et à haute fréquence à travers un espace d'air situé entre deux électrodes. Le support à traiter défile et ses particules en surface sont ionisées par l'accélération des électrons présents naturellement dans l'espace. Ainsi des radicaux libres sont créés sur la surface du support. En fait, ce sont des peroxydes qui se forment par ce traitement mais qui se décomposent rapidement. Il y a aussi formation au niveau de la surface d'époxydes, de carbonyles, d'hydroxyles et de carboxyles [58].

Ce traitement se traduit aussi par une augmentation de l'énergie de surface du matériau d'où sa modification physique et chimique. Plusieurs types de matériaux peuvent être traités, par exemple les papiers et cartons, les polymères, l'aluminium, ainsi que les textiles.

**Foerch** et ses collaborateurs [60] étudient l'effet d'une post-décharge  $O_2$  sur le PE. Après 1 seconde de traitement à une puissance de 45 Watts, 30% d'oxygène est greffé à la surface du PE. Des traitements plus longs ne permettent pas d'améliorer ce résultat. Dans ce cas-ci, l'identification des espèces greffées est beaucoup plus simple que dans le cas de traitement par plasma azote. En effet, seul de l'oxygène est greffé à la surface de l'échantillon. Les types de groupements greffés à la surface sont: des hydroxyles (R-OH), des éthers (R-O-R), des carbonyles (C=O) et des esters (O=C-OR). Les traitements oxygène sont

plus rapides que les traitements azote pour modifier les surfaces du poly (fluorure de vinylidène) (PVDF). Dans le cas du traitement  $N_2$ , c'est après 5 secondes de traitement que la quantité d'azote maximale a été greffée. Dans le cas des plasmas  $O_2$ , la valeur maximale d'oxygène greffé est atteinte après seulement 1 seconde.

### III.3.2.2. Le plasma à froid

L'action d'un plasma sur une surface peut avoir pour effet la modification de sa structure, le greffage de liaisons chimiques favorisant la mouillabilité et l'attraction interfaciale. La technique consiste à placer un matériau dans une enceinte vide. Une décharge de gaz ionisé est appliquée et entretenue à l'aide d'un générateur de haute fréquence, à l'intérieur de l'enceinte. Un agrégat d'ions, de radicaux, d'électrons et de photons se crée, c'est la naissance du plasma. Ces entités actives interagissent avec les surfaces mises en jeu. Il résulte à la surface des matériaux la formation de groupements chimiques fonctionnels dépendant de la nature de la phase gazeuse utilisée [60].

**Oraji** [61] a étudié l'effet de traitement plasma sur les fibres de lin, il a montré que ce traitement a exposé une capacité significative dans le changement des caractéristiques superficielles de fibres de lin. Les résultats de la microscopie électronique à balayage ont montré que le traitement plasma a modifié la surface de fibre bientôt (15 minutes) que le traitement chimique (4 heures). La modification chimique a enlevé des matières non-cellulosiques des craquements et le présent de fosses sur la surface de fibre. Tandis que, la modification plasma a affecté la surface de fibre dans une façon différente surtout comme la gravure de plasma et la séparation de couches minces de la surface de fibre. Les résultats de diffraction des rayons x (DRX) ont montré que la structure des fibres traitées par plasma a été significativement changée (en 15 minutes) (par exemple la cristallinité) en comparaison à des fibres traitées chimiquement (4 heures). Autrement dit, le processus de modification plasma semble être achevé dans environ 15 minutes tandis que dans le traitement chimique beaucoup d'étapes comme le lavage et le séchage sont impliquées après le traitement chimique consommant un grand temps et une énergie.

Les températures de dégradation de fibres traitées plasma/chimiques ont été légèrement diminuées. Dans le cas des fibres de lin chimiquement traitées, la diminution de la température de dégradation a été attribuée au déplacement de la matière non-cellulosique. Tandis que cette perte de poids dans le traitement plasma est surtout attribuée à la gravure de surface de fibres. En diminuant la température de dégradation de fibre de lin après que le traitement plasma/chimique implique que dans le procédé de fabrication biocomposite, la

température de traitement devrait être inférieure à celle de dégradation pour éviter la décoloration ainsi que la dégradation de fibres de lin.

### III.3.2.3. Le traitement laser

Les techniques lasers ont été tardivement utilisées en traitement de surface. Initialement, on les retrouvait dans la découpe des matériaux, puis dans la soudure. C'est une technique très pointue car elle permet de travailler sur des parties très spécifiques d'une surface. Les traitements au laser se retrouvent le plus souvent dans les métaux pour faire des dépôts (de diamant, de supraconducteur, etc.), pour diminuer ou augmenter la rugosité des surfaces, etc. ; mais il n'empêche qu'ils peuvent également être utilisés dans les fibres [58].

### III.3.2.4. Traitement au rayonnement Ultraviolet (UV) vide et traitement aux rayons $\gamma$

Le traitement à l'UV vide est une technique qui n'a pas été beaucoup utilisée dans la préparation des surfaces. Elle permet d'oxyder des surfaces et s'avère aussi efficace que les traitements d'oxydation avec les acides chromique et nitrique [62].

**Gassan** et **Gutowski** [63] ont étudié l'effet du traitement par décharge électrique et lumière ultraviolette (UV) sur les propriétés des composites époxyde/fibres de jute. Les résultats ont montré que les fibres traitées par corona augmentent légèrement l'énergie libre de surface des constituants polaires avec l'augmentation de l'énergie de traitement, ceci est dû à la difficulté du traitement avec corona.

Pour améliorer les propriétés mécaniques des composites époxyde/fibres de jute, un compromis doit être obtenu entre l'augmentation de la polarité de la surface des fibres et la diminution de leur rigidité causée par une oxydation excessive de la surface des fibres lors du traitement (corona, UV). Aux conditions de traitement optimales, une augmentation de 30 % est obtenue pour la contrainte en flexion des composites.

La technique de modification liée aux rayons  $\gamma$  entraîne une exposition de la surface à de fortes énergies. Ceci peut se traduire dans le cas des matériaux celluloseux par des ruptures au niveau des ponts de rattachement des monomères d'où une diminution des masses moléculaires. Par ailleurs, ce traitement peut induire une dégradation de la cellulose. Ce traitement ne semble pas être approprié ou adapté aux matériaux à structure lignocellulosique.

Au regard de toutes les techniques physico-chimiques, les modifications des propriétés de surface des matériaux sont la conséquence de celle subie sous l'effet de l'énergie apportée par les ions ou particules chargées. Des liaisons peuvent être rompues et par conséquent les chaînes de polymère ou au contraire en créant de nouvelles. Des réticulations peuvent aussi être provoquées au niveau des surfaces. Les effets possibles sont par exemple une

augmentation de la conductivité électrique rendant ainsi les polymères semi-conducteurs voir même conducteurs. Une modification de l'énergie de surface ou une amélioration des propriétés optiques, mécaniques ou chimiques [63].

### III.3.3. Les modifications chimiques

Les réactions chimiques possibles avec la fibre de cellulose sont les mêmes que celles que l'on peut obtenir avec les alcools. On retrouve principalement les réactions d'oxydation, d'estérification, d'éthérisation et des réactions de copolymérisation et/ou greffage de chaînes de polymères linéaires ou de molécules organiques simples. Malheureusement, le caractère cristallin prononcé des fibres de cellulose est un facteur limitant l'accessibilité des hydroxyles par les réactifs [58].

#### III.3.3.1. Oxydation

Les oxycelluloses sont les produits de l'oxydation de la cellulose. Cette oxydation réduit sa taille. C'est l'un des problèmes rencontrés lors du blanchiment du coton et des fibres lignocellulosiques. En milieu acide ou neutre, l'oxydation de la cellulose donne des celluloses oxydées de type réducteur. En milieu alcalin, un nombre important de groupes d'acide se forme. La réaction se fait par une attaque des hydroxyles en position C<sup>2</sup>, C<sup>3</sup> et C<sup>6</sup> et il s'en suit une formation de groupes carbonyles. L'aldéhyde en C<sup>6</sup> peut être oxydé une seconde fois pour former un groupe carboxylique. Ce processus peut se poursuivre sur les aldéhydes en C<sup>2</sup> et /ou en C<sup>3</sup> pour aboutir à la formation de cétone. Ceci conduit, si le processus se poursuit à une dépolymérisation de la cellulose et donc à une réduction des masses molaires. Par exemple la cellulose microcristalline est obtenue par oxydation acide suivie d'une dégradation alcaline [64].

#### III.3.3.2. Estérification

L'estérification de la cellulose est plus souvent réalisée dans un milieu acide avec des anhydrides correspondant à l'acide dans la plupart des cas. Elle permet d'obtenir les sulfates, phosphates, carbamates et acétates de cellulose et d'autres types de cellulose esters.

Les modifications chimiques en profondeur permettent de rendre la cellulose thermoplastique. Mais néanmoins, il existe des traitements de surface de la cellulose nécessitant soit une étape d'activation par une réaction d'estérification suivie du traitement de surface, soit une estérification (correspondant dans ce cas au traitement de surface). La réaction est limitée à la surface en choisissant les conditions de greffage appropriées (solvant non gonflant, température et pression modeste, force ionique faible, etc.) [58].

**Cantero** et ses collaborateurs [65] ont étudié l'effet de traitement de deux différentes fibres de lin naturel et les pulpes de lin sur les propriétés des composites à matrice de polypropylène (PP). La modification des fibres composites a été réalisée par différents agents de couplage: l'anhydride maléique (AM), copolymère PP greffé à l'anhydride maléique (PP-g-AM) et le vinyltriméthoxysilane (VTMO). Les résultats de la spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier (IRTF) montrent la formation d'un groupement d'ester entre le groupe hydroxyle de la cellulose et l'agent de couplage dans la zone  $1800-1600\text{ cm}^{-1}$ , d'où la surface de pic est plus importante. Un pic intense apparaît à  $1735\text{ cm}^{-1}$  relié au groupement carbonyle (C=O) d'acétyle des hémicelluloses dans le lin naturel. Aussi le traitement par l'anhydride maléique montre un pic intense environ de  $1735\text{ cm}^{-1}$  dû à la réaction d'estérification, le PP-g-AM présente aussi un nouveau groupe d'ester à  $1740\text{ cm}^{-1}$ . Concernant le traitement des pulpes de lin, il a été remarqué l'absence du pic des hémicelluloses à  $1735\text{ cm}^{-1}$ .

Ces résultats montrent que le traitement des fibres de lin naturel et les pulpes réduit la polarité des composants de composite. Les composites à base de 10% de fibre de lin traitée par PP-g-AM ont une valeur de la flexibilité et de la déformation à la rupture plus grandes que les autres composites, mais le traitement n'influe pas sur le module d'élasticité.

### III.3.3.3. Ethérification

La réaction d'éthérification de la cellulose se fait en milieu alcalin par substitution nucléophile [52, 53]. Les éthers classiques (exemple la carboxyméthyl cellulose) obtenus sont les alkyles celluloses par des chlorures d'alkyl et les hydroxy-alkyles celluloses par des époxydes. L'action des époxydes ou des chlorures d'alkyl est précédée par un traitement de la cellulose à la soude (la mercerisation) [66].

La mercerisation est une ancienne technique de modification chimique. Elle est largement utilisée dans l'industrie de textile et de coton. En effet, c'est un traitement alcalin pratiqué sur les fibres cellulosiques [15, 67].

L'étude de **Peyratout** et ses collaborateurs [68] avait pour but de comprendre les mécanismes physico-chimiques régissant les interactions entre des fibres de chanvre et une matrice minérale à base de chaux, l'impact de différents traitements chimiques des fibres sur les caractéristiques mécaniques des mortiers a été évalué.

Un traitement avec hydroxyde de sodium (NaOH) augmente l'indice de cristallinité des fibres, diminue le temps de prise et augmente la rigidité expérimentale des mortiers. Il en est de même pour le traitement avec l'acide éthylène diamine tétra acétique (EDTA), qui

augmente également la contrainte à la rupture des mortiers. Les deux autres traitements réalisés, avec du poly(éthylène imine) (PEI) et une solution saturée d'eau de chaux, ont peu d'influence sur les propriétés mécaniques. Ces résultats montrent que des traitements chimiques agissent sur la qualité des interfaces. La rigidité des matériaux composites élaborés est augmentée, le transfert de charge fibre/matrice est amélioré et la contrainte à la rupture est peu modifiée, compte tenu de la faible fraction volumique de fibres (10%).

D'après **Dominkovics** et ses collaborateurs [69], la surface de la farine de bois utilisée comme renfort dans le composite PP/farine de bois a été modifiée par une solution de NaOH avec une concentration de 20 % en poids à 105 °C. Différents temps de traitement ont été réalisés (entre 5 et 360 minutes). L'influence du traitement a été suivie par la spectroscopie infrarouge. La modification de la surface de la farine a été caractérisée par la diffraction des rayons x (DRX) d'où sa tension superficielle a été déterminée par la chromatographie à gaz inverse (IGC).

Les résultats ont montré que la majorité des groupes hydroxyl actifs à la surface de la farine de bois ont été remplacés par des groupes benzyl dans environ 2 heures dans les conditions utilisées d'où l'augmentation du temps de traitement n'a pas influencé sur les propriétés mécaniques des composites.

Une diminution considérable d'absorption d'eau due à la réduction de la tension superficielle, qui a été attribuée aux changements significatifs de toutes les interactions entre la farine de bois et la matrice polymérique.

**Tri et Villoutreix** [70] ont étudié le rôle du processus de traitement de surface sur les propriétés mécaniques du composite PP/fibres de bambou vietnamienne.

Les résultats de ces travaux montrent que la concentration en NaOH a une influence sur le pourcentage de perte en masse des fibres de bambou pendant 24 heures à la température ambiante. Ils indiquent que le pourcentage des composants extraits dépend fortement de la concentration en NaOH, plus on augmente la concentration en NaOH, plus le pourcentage des composants extraits est important. Ces derniers augmentent de 7,5% à 11,5% lorsque la concentration en NaOH passe de 0,05 M à 0,5 M avant de se stabiliser pour une concentration supérieure à 0,5 N.

Egalement, le temps de traitement d'une solution alcaline de 0,5N a un effet sur le pourcentage de perte en masse de fibres de bambou. Ils ont constaté que l'évolution du pourcentage de perte en masse est progressivement importante au cours des 12 premières heures de traitement puis elle commence à se stabiliser après une durée de traitement de 24

heures. Ces résultats indiquent que le temps de traitement de 24 heures n'est pas forcément optimisé.

Les changements de la structure à la surface des fibres de bambou sont observés par IRFT. Il a été constaté que la structure des fibres a changé après le processus de traitement. D'abord, le pic à  $3335,3 \text{ cm}^{-1}$  assigné à la vibration du groupe hydroxyle (-OH) et le pic à  $1030,3 \text{ cm}^{-1}$  assigné à la vibration du groupe C-O de l'hémicellulose sont nettement réduits de fait de l'élimination de l'hémicellulose. Ensuite, le pic à  $1621,9 \text{ cm}^{-1}$  correspondant à la vibration du cycle du benzène dans la lignine est moins marqué logiquement lorsque ce composant a été extrait. Puis, le pic à  $1254 \text{ cm}^{-1}$  correspondant à la vibration du groupe acétyle dans la lignine s'est également estompé.

Enfin, les vibrations correspondant aux liaisons C-H vers  $2915,4 \text{ cm}^{-1}$ , diminuent après le traitement. Ces résultats montrent que le traitement permet d'éliminer partiellement l'hémicellulose et la lignine.

D'après les travaux de **Stocchi** et ses collaborateurs [71], une amélioration significative de la rigidité a été réalisée par les composites vinylester lamine/fibres de jute traitées avec le NaOH pendant 4 heures. Cependant, aucune différence significative entre la rigidité des composites à base de fibres non traitées et les composites à base de fibres traitées pendant 24 heures n'a été trouvée. D'autre part, le plus long traitement a montré des valeurs de la contrainte à la rupture et l'allongement à la rupture les plus élevées.

Les résultats des analyses de diffraction des rayons x ont montré une amélioration des propriétés mécaniques des composites à base de fibres de jute traitées avec le NaOH, cette amélioration a été attribuée au changement de la surface des fibres qui influe sur les interactions matrice/fibres.

**Ray** et ses collaborateurs [72] se sont intéressés à l'étude des propriétés mécaniques des composites vinylester renforcé par les fibres de jute qui ont subi un traitement alcalin. Les fibres de jute traitées avec 5% en masse de NaOH à la température ambiante pour différents temps, montrent une amélioration des propriétés des composites. Les fibres traitées ont une faible quantité d'hémicellulose, une cristallinité élevée et une réduction des défauts. Les résultats ont montré une amélioration des propriétés des fibres à des temps de traitement de 6-8 heures; alors que les composites ont des meilleurs propriétés à un taux de fibres de 35% en masse traitées pendant 4 heures.

#### III.3.3.4. Greffage chimique

Selon **Bledzki** et **Gassan** [17], trois méthodes permettent de préparer la fibre cellulosique par modification en vue de leur utilisation dans les matériaux composites:

- Modification de la tension de surface c'est à dire hydrophobisation de la surface de la fibre. Par exemple, l'utilisation de l'acide stéarique sur la fibre rend celle-ci hydrophobe et facilite également sa dispersion dans les polyoléfines. Le même effet est observé dans les composites jute-résine polyester. Des traitements avec le polyvinyle acétate ou les silanes (époxy et uréthane) ont apportés des résultats satisfaisants.
- Imprégnation des fibres pour avoir une meilleure compatibilisation avec le polymère résine. L'exemple le plus parlant est l'imprégnation de la cellulose avec du poly(chlorure de vinyle) (PVC) plastifié, une bonne dispersion a été observée dans le polystyrène (PS).
- Couplage chimique pour augmenter l'adhésion interfaciale. La surface de la fibre est traitée par un composé qui fera la connexion entre les constituants du matériau. Cette dernière est très développée dans la préparation des fibres pour les matériaux composites notamment le greffage par copolymérisation.

Le greffage par copolymérisation consiste en une réaction chimique en deux étapes. Une initiation au niveau de la surface de la fibre par le biais d'un radical libre crée par un traitement aqueux le plus souvent car des procédés électrochimiques peuvent être utilisés pour cette étape. La seconde étape est le greffage de l'agent de couplage.

On a donc une compatibilisation de la surface suivie d'un greffage d'une molécule qui :

- si c'est un monomère, pourra polymériser dans une solution de monomère;
- si c'est une molécule bi-fonctionnelle, pourra réagir avec un polymère ou une matrice;
- si c'est un copolymère, permet d'obtenir directement le composite.

**Demir** et ses collaborateurs [73] ont étudié l'effet de traitement de surface par les agents de couplage 3-(triméthoxysilyl)-1-propanethiol et (3-aminopropyl)-triéthoxysilane sur les propriétés mécaniques, morphologiques et l'absorption d'eau de composite PP/fibres de luffa. Les résultats mécaniques ont montré que le traitement de la fibre augmente la déformation à la rupture ainsi que le module d'élasticité de composites. Le composite à base de fibre traitée par le 3-(triméthoxysilyl)-1-propanethiol exhibe des propriétés mécaniques meilleurs par rapport au composite à base de fibre de luffa traitée par le (3-aminopropyl)-

triéthoxysilane. Les résultats de la microscopie à force atomique montre que le traitement par le silane diminue les irrégularités de la fibre de luffa. Le traitement par le silane des fibres de luffa diminue la capacité de l'absorption de l'eau de composite PP/fibres de luffa.

**Nekkaa** [74] a étudié l'effet de traitement de la fibre genêt d'Espagne (GE) par le N [3-(Triméthoxysilyl) propyl]éthylènediamine (Z-6020) et par l'acide stéarique sur le comportement des composites PP/GE à différents taux de fibres. Les résultats ont montré que le traitement par le Z-6020 ou par l'acide stéarique améliore les propriétés mécaniques des composites PP/GE. Cette amélioration est liée directement à la création des liaisons entre les agents de couplage et la matrice. La chaîne longue de l'acide stéarique joue un rôle de plastifiant et d'agent glissant, permettant une bonne mouillabilité avec la matrice. Les études des propriétés rhéologiques montrent que les composites à base des fibres traitées par le Z-6020 à des concentrations élevées présentent des valeurs d'indice de fluidité supérieures à celles des composites à fibres traitées par l'acide stéarique, ce qui confirme que la modification chimique de la surface des fibres par le Z-6020 est plus efficace et améliore mieux la dispersion des fibres dans le polypropylène.

Les résultats des études thermiques montrent que le traitement de la fibre de GE n'influe pas sur la valeur de la température de fusion, mais une augmentation du taux de cristallinité du composite résulte. L'analyse thermogravimétrique montre que la température de décomposition diminue avec le traitement d'où il n'améliore pas la stabilité thermique de la cellulose. Cette évolution a été attribuée aux interactions développées entre la fibre et la matrice.

**Djilali** [75] s'est intéressée aux composites à base de PVC et la farine de grignons d'olive (PVC/FGO). Les résultats montrent que la modification chimique de la farine de grignon d'olive avec le dichlorodiméthylesilane (DCDMS) améliore les propriétés mécaniques des composites PVC/FGO. L'allongement, la résistance à la rupture et la résistance au choc sont nettement supérieurs pour les composites à base de la farine traitée. A partir de la caractérisation thermique, il est conclu que la farine de grignons d'olive joue le rôle d'inhibiteur de dégradation thermique, elle retarde la décomposition du composite.

L'effet de la modification de la farine sur l'absorption d'eau a été réalisé. Les résultats montrent que le taux d'absorption d'eau dépend du taux de la farine de grignons d'olive mais aussi du traitement de la farine qui confère un caractère plus ou moins hydrophobe aux matériaux.

**PARTIE II:**  
**PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL**

**CHAPITRE QUATRE**  
**MATÉRIAUX UTILISÉS ET**  
**TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES**

## IV. Matériaux utilisés et techniques expérimentales

Le but de cette étude est l'élaboration et la caractérisation d'un nouveau matériau composite à base de polyéthylène basse densité PEBD renforcé par une charge végétale de Genêt d'Espagne (GE) à différents taux 10, 20 et 30 (% m).

L'adhésion entre la surface hydrophile de la charge et le polymère hydrophobe utilisé comme matrice est faible, et donc, la capacité de renforcement réduite. Pour l'utiliser comme renforts dans le PEBD, la farine de GE a été soumise à un traitement chimique par l'hydroxyde de sodium NaOH (1,25N) à différentes températures 25°C et 40°C, et à différents temps de traitement 24h, 48h et 72h.

### IV.1. Matériaux utilisés

#### IV.1.1. Polyéthylène basse densité

Le polyéthylène utilisé au cours de cette étude est un produit commercialisé sous la marque PE, 'B-21', sous forme de granulés translucides. Son indice de fluidité est de 1,51 g/10min à 190°C et de densité 0,92 g/cm<sup>3</sup>.

#### IV.1.2. Le Genêt d'Espagne

C'est un arbuste atteignant environ 3 m de haut, à rameaux dressés, flexibles, cylindriques et striés, petites feuilles simples, fleurs mesurant jusqu'à 3 cm de long. Habitat: coteaux, montagnes, terrains argileux, relativement commun par endroit dans le tell.

#### IV.1.3. Les produits chimiques utilisés

##### IV.1.3.1. Le toluène

Le toluène est un produit fourni par Prolab

Les caractéristiques du toluène sont les suivantes:

Formule chimique: C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>CH<sub>3</sub>

PM = 92.14

Densité (à 20°C) : 0.86 à 0.87

Distillation : 109 à 112°C

Résidu d'évaporation à 100°C : 0.0050 % max

##### IV.1.3.2. L'éthanol

L'éthanol est un produit fourni par Biochem-Chemopharma

Les caractéristiques de l'éthanol sont les suivantes:

Formule chimique: C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>O

M<sub>w</sub> = 46.07 g/mol

Densité (à 20°C) : 0.805 à 0.811

#### **IV.1.3.3. L'hydroxyde de sodium**

La soude caustique est un produit fourni par Biochem-Chemopharma

Formule chimique: NaOH

$M_w = 40 \text{ g/mol}$

Carbonate ( $\text{Na}_2\text{CO}_3$ )% : 2.0 max

Chlore (Cl)% : 0.01 max

Phosphate ( $\text{PO}_4$ )% : 0.001 max

#### **IV.1.3.4. L'acide acétique**

L'acide acétique est un produit fourni par Biochem-Chemopharma

Formule chimique:  $\text{C}_2\text{H}_4\text{O}_2$

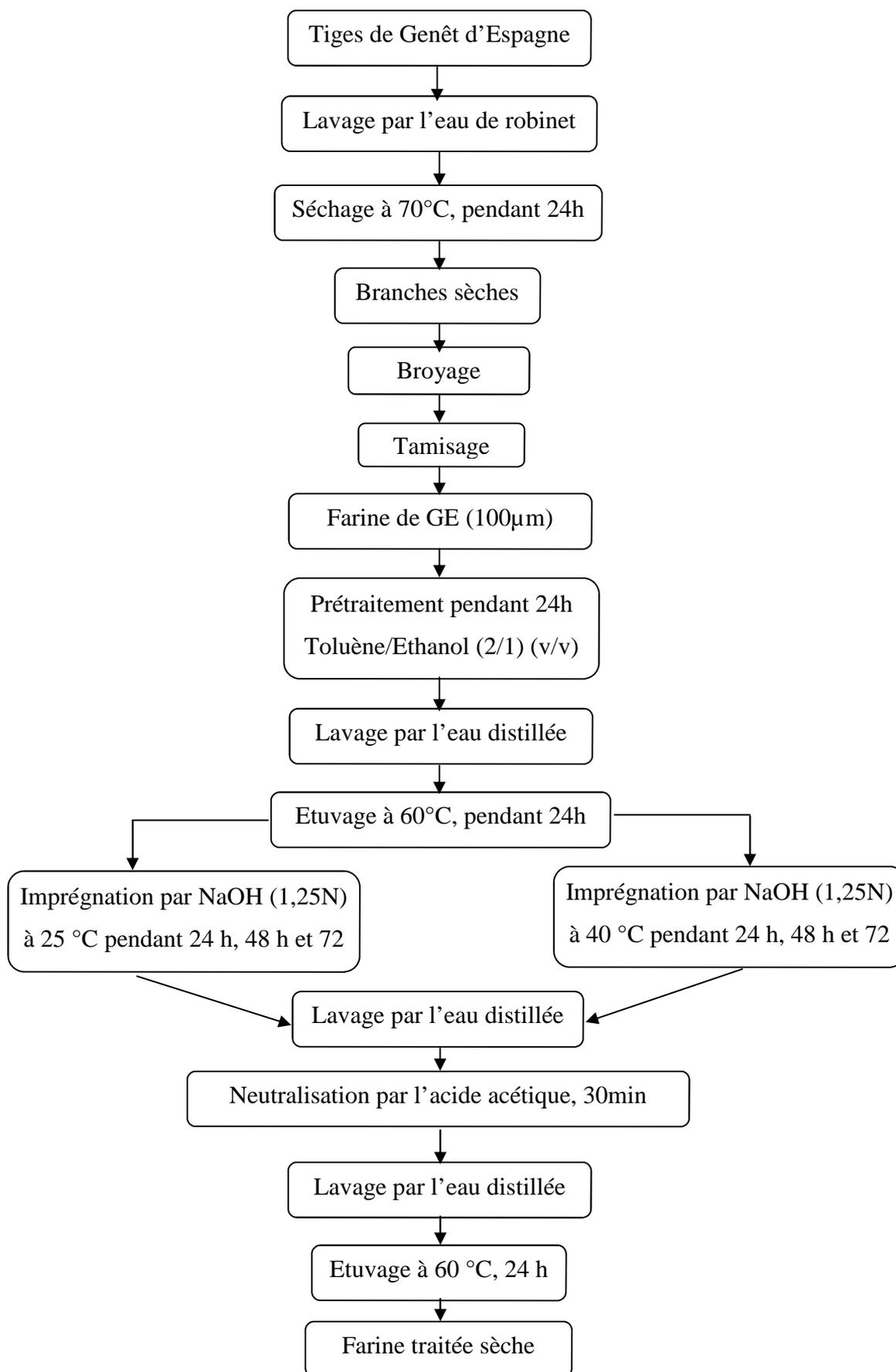
$M_w = 60.04 \text{ g/mol}$

Densité (à 20°C) : 1.0480 à 1.051

Point de cristallisation °C: 16.3 °C

Notre technique expérimentale est subdivisée en deux parties:

- 1) Partie A: Préparation et traitement de la farine
- 2) Partie B: Préparation des composites et leurs caractérisations.

**Figure IV.1.a.** Plan de travail expérimental, partie A

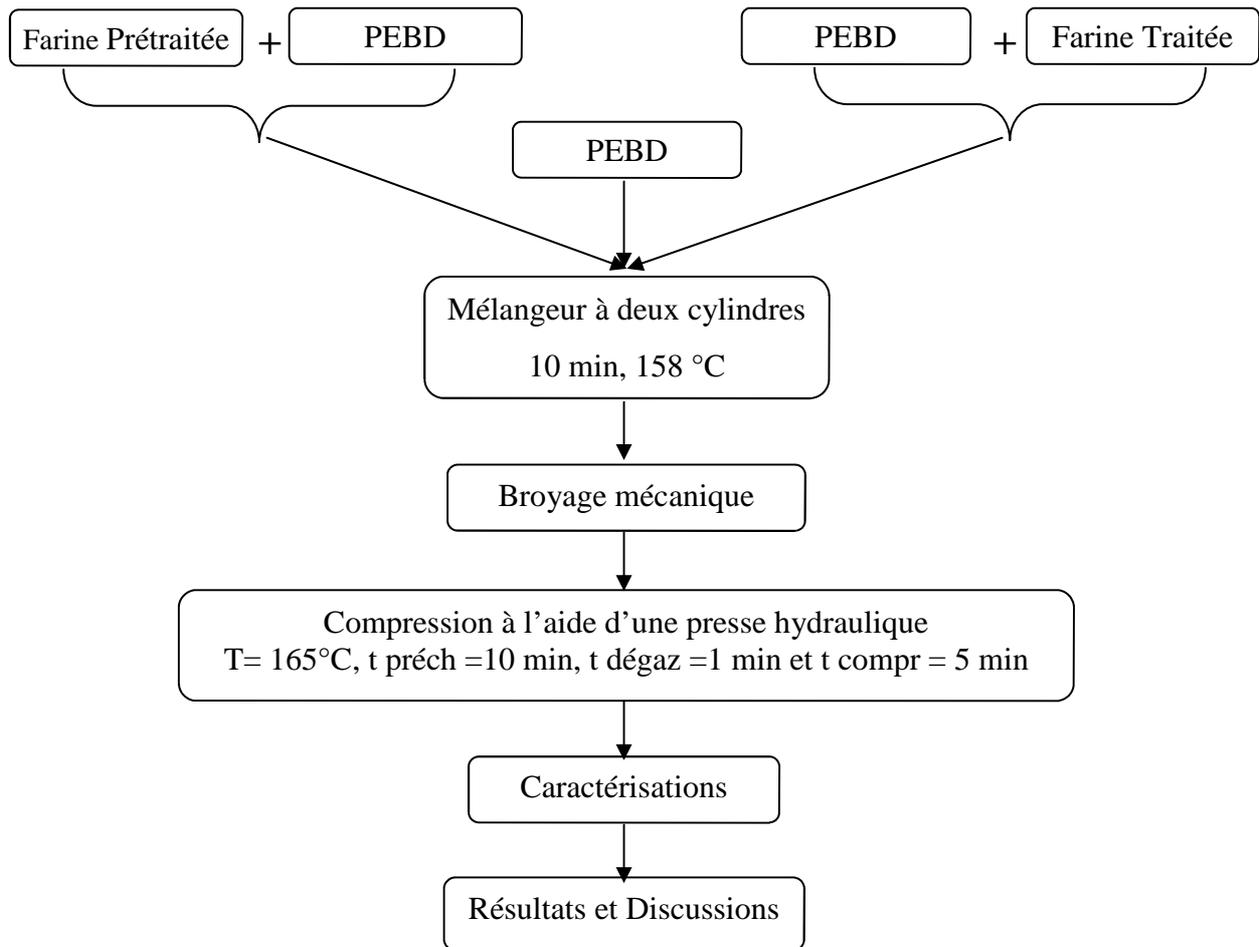


Figure IV.1.b. Plan de travail expérimental, partie B

## **IV.2. La mise en œuvre des matériaux**

### **IV.2.1. Préparation de la farine de Genêt d'Espagne**

#### **IV.2.1.1. La récolte de l'arbuste de Genêt d'Espagne**

La récolte pour la production de la farine s'effectue entre le début et la fin de fleuraison afin d'obtenir la meilleure qualité de la charge. La récolte a été faite au niveau de la région de Sétif.

#### **IV.2.1.2. Lavage de GE**

Après la récolte, les branches du Genêt d'Espagne ont été lavées par l'eau de robinet.

#### **IV.2.1.3. Séchage et broyage**

Les branches lavées ont été laissées à l'air libre pour sept jours pour réduire le taux d'humidité. Ensuite, coupées en petit morceau, étuvées à une température de 70°C pendant 24 heures dans une étuve bactériologique (pour éliminer les bactéries) de marque Mommert, model BE 600 au niveau du laboratoire GAE-UAB El Eulma, enfin elles ont subi un broyage mécanique à l'aide d'un moulin à café.

#### **IV.2.1.4. Tamisage**

Pour avoir les mêmes dimensions (100 µm), les tiges broyées ont été tamisées en utilisant un tamis selon la norme ISO 3310, la marque de la tamiseuse est Restesch, model AS 200. La granulométrie finale de la farine était 100µm.

#### **IV.2.1.5. Prétraitement de la farine de GE par lavage**

Avant le traitement, la farine a subi un prétraitement par lavage dans une solution de toluène /éthanol (2/1) (v/v), avec agitation pendant 24 heures à la température ambiante. La farine récupérée a été lavée avec l'eau distillée, puis séchée dans une étuve à 60°C pendant 18 heures.

### **IV.2.2. La modification de la farine de Genêt d'Espagne**

La farine obtenue a été immergée dans une solution de NaOH (1,25N) à différents temps de traitement (24h, 48h et 72h) et à différentes températures (25°C et 40°C). Après le traitement, un lavage de la farine avec de l'eau distillée a été effectué plusieurs fois, puis une neutralisation avec une solution d'acide acétique pendant 30 min à la température ambiante, ensuite un lavage avec de l'eau distillée. Enfin la farine a été séchée.

### **IV.2.3. La préparation des composites**

Les mélanges polyéthylène/farine ont été préparés sur mélangeur à deux cylindres de marque BUSTO ARSIZIO, au niveau du laboratoire de l'unité CAL PLAST à Sétif, avec une

vitesse de rotation de 32 tr/min à la température 158 °C et de temps de mélangeage de 10 min. Les feuilles obtenues ont été découpées en petits morceaux, puis ont subi un broyage mécanique au niveau du laboratoire de Génie des Procédés à l'université Ferhat ABBAS, à l'aide d'un broyeur de type BREHER-BRABENDER.

#### IV.2.4. Préparation des éprouvettes

A partir des différents composites à farine non traitée et traitée, préalablement étuvés, on a fabriqué des plaques et des films à l'aide d'une presse hydraulique de marque " DAVENPORT 25T ", sous une pression de 150 kg/cm<sup>2</sup> (les plaques pour la fabrication des éprouvettes pour le test de choc et dureté, les films pour la préparation des éprouvettes pour le test de traction), à une température de 165°C , un temps de préchauffage 10 min, un temps de dégazage 3 min et un temps de compression 5 min. Ces plaques et ces films ont été découpés suivant les normes prescrites des tests mécaniques.

### IV.3. Techniques expérimentales

Les différentes techniques expérimentales utilisées dans ce travail sont:

- l'essai spectroscopique: IRTF;
- les essais mécaniques: test de traction, de choc et de dureté;
- l'essai rhéologique: indice de fluidité;
- l'essai thermique: Calorimétrie Différentielle à Balayage DSC;
- la densité;
- les essais d'environnement: l'absorption d'eau et la biodégradation.

#### IV.3.1. L'essai spectrométrique (Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier IRTF)

L'appareil utilisé est un spectromètre de marque FTIR-8400S (SHIMADZU), assisté par un micro ordinateur. Nombre de scan = 40 et résolution = 2. Pour appliquer cette technique dans le cas d'échantillons solides, il est nécessaire, au préalable, de mélanger une petite quantité de farine finement broyée à un composé transparent dans le domaine spectral étudié (4500 - 500 cm<sup>-1</sup>). Pour cela, nous avons employé le bromure de potassium (KBr). Les échantillons à analyser sont préparés sous forme de pastilles en mélangeant 2,5 % en masse de farine préalablement étuvée (traitée ou non) avec 97,5% en masse de KBr. La spectroscopie IR est l'une des méthodes les plus efficaces pour l'identification des molécules organiques et inorganiques à partir de leurs propriétés vibrationnelles. En effet, le rayonnement IR, excite des modes de vibration (déformation, élongation) spécifiques de liaisons chimiques [25]. Les

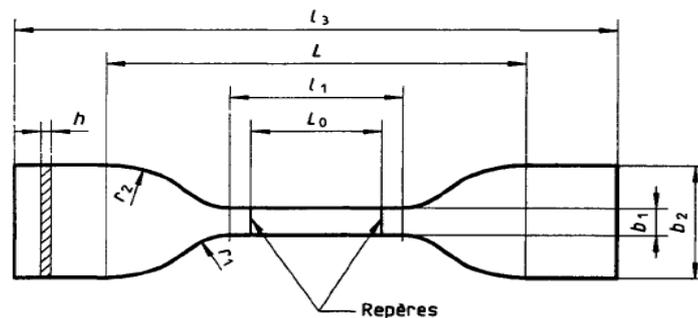
différents spectres montrant la transmittance (%) en fonction du nombre d'onde ( $\text{cm}^{-1}$ ) ont été obtenus pour la farine non traitée et traitée.

### IV.3.2. Les essais mécaniques

#### IV.3.2.1. L'essai de traction

Le principe de l'essai consiste à allonger une éprouvette le long de son axe principal à une vitesse constante (5 mm/min) à la température ambiante jusqu'à sa rupture ou jusqu'à ce que la contrainte (charge) ou la déformation (allongement) ait atteint une valeur prédéterminée. La charge supportée par l'éprouvette et son allongement sont mesurés pendant l'essai [76].

Les essais de traction ont été effectués avec des éprouvettes découpées au niveau du laboratoire de Physico-Chimie des Hauts Polymères (UFA) selon la norme ISO 527-3 (Figure IV.2) sur une machine ZWICK POSTFASH 4350, type E66920/00, au niveau du laboratoire de MAPROGAZ à El Eulma.



$b_1$  : Largeur de la partie étroite :  $6\text{mm} \pm 0,4\text{ mm}$ ;

$b_2$  : Largeur des extrémités :  $25\text{ mm} \pm 1\text{ mm}$ ;

$h$  : Épaisseur :  $\leq 1\text{ mm}$ ;

$L_0$  : Distance entre repères :  $25\text{ mm} \pm 0,25\text{ mm}$ ;

$L_1$  : Longueur de la partie étroite :  $33\text{ mm} \pm 2\text{ mm}$ ;

$L$  : Distance initiale entre mâchoires :  $80\text{ mm} \pm 5\text{ mm}$ ;

$l_3$  : Longueur totale :  $\geq 115\text{ mm}$ ;

$r_1$  : Petit rayon :  $14\text{ mm} \pm 1\text{ mm}$ ;

$r_2$  : Grand rayon :  $25\text{ mm} \pm 2\text{ mm}$ .

**Figure IV.2.** Éprouvette de traction selon la norme ISO 527-3 [76].

Les propriétés en traction (module d'élasticité  $E$ , contrainte à la rupture  $\sigma_r$ , déformation à la rupture  $\varepsilon_r$ ) sont évaluées à partir des courbes contrainte-déformation.

Le module d'élasticité s'exprime comme suit:

$$E = \sigma / \varepsilon (N / m^2) \dots\dots\dots(IV.1)$$

$E$  : Module d'élasticité;

$\sigma$  : Contrainte ( $N/m^2$ );

$\varepsilon$  : Allongement.

La contrainte à la rupture est donnée par l'expression suivante:

$$\sigma_r = F / S (N / m^2) \dots\dots\dots(IV.2)$$

$F$  : Charge de traction supportée par l'éprouvette (N);

$S$  : Section initiale ( $m^2$ ).

L'allongement à la rupture est indiqué en pourcentage sous la forme suivante:

$$\varepsilon_r = \Delta l / l_0 (\%) \dots\dots\dots(IV.3)$$

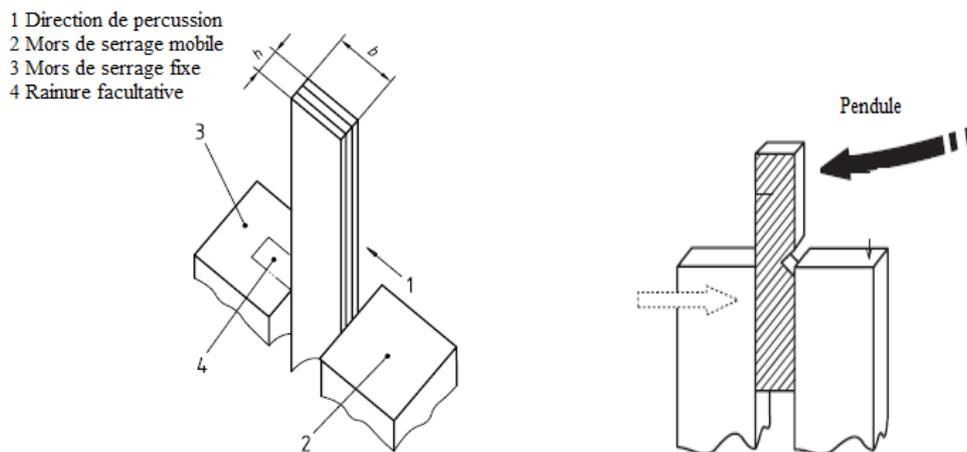
$\Delta l = l - l_0$  : Déformation à la rupture;

$l_0$  : Longueur initiale de l'éprouvette;

$l$  : Longueur finale de l'éprouvette.

**IV.3.2.2. La résistance au Choc (Izod)**

L'éprouvette, supportée comme une poutre en console verticale, est rompue par un seul choc de percuteur, la ligne de choc étant située à distance fixe du serrage de l'éprouvette, et en cas d'éprouvette entaillée, de l'axe de l'entaille (voir Figure IV.3). Le test a été réalisé à l'aide d'un appareil de marque CEAST, type RESIL IMPACTOR, avec un marteau de 7,5 Kg au niveau du laboratoire de Génie des procédés à l'université Ferhat ABBAS [77].



**Figure IV.3.** Schéma de désignations décrivant la direction de percussion [77].

Préparation de l'entaille:

Les entailles usinées doivent être préparées conformément à l'ISO 2818. Le profil de la dent de l'outil de coupe doit permettre de produire dans l'éprouvette une entaille ayant le contour et la profondeur représentés à la Figure IV.4, perpendiculairement à ses axes principaux. Le profil de l'entaille doit être contrôlé régulièrement.

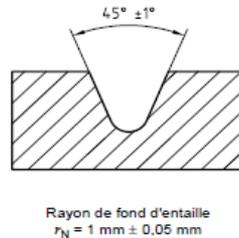


Figure IV.4. Type d'entaille [77].

Calcul de la résilience:

La résistance au choc d'éprouvettes non entaillées est exprimée par la relation:

$$a_n = \frac{A_n}{b.h} \times 10^3 \text{ (KJ / m}^2\text{)} \dots\dots\dots\text{(IV.4)}$$

- $a_n$  : 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.

La résistance au choc d'éprouvettes entaillées est exprimée par la relation:

$$a_k = \frac{A_k}{b_k.h} \times 10^3 \text{ (KJ / m}^2\text{)} \dots\dots\dots\text{(IV.5)}$$

- $a_k$  : Résilience de l'éprouvette avec entaille;
- $A_k$  : Energie cinétique pour rompre l'éprouvette avec entaille en joules;
- $b_k$  : Largeur restante de l'éprouvette en millimètres;
- $h$  : Épaisseur de l'éprouvette en millimètres.

**IV.3.2.3. La dureté (Shore D)**

Chaque éprouvette a été placée sur une surface rigide, horizontale et plane. On a tenu le duromètre en position verticale, la pointe du pénétrateur étant à au moins 12 mm du bord de l'éprouvette (Figure IV.5).

On a appliqué le pied presseur sur l'éprouvette aussi rapidement que possible, sans choc, le pied restant parallèle à la surface de l'éprouvette. Une pression juste suffisante a été

appliquée pour obtenir un contact étroit entre le pied presseur et l'éprouvette. On a enregistré deux lectures, une lecture instantanée (au bout de 1s) et une lecture au bout de  $15 \pm 1$  s.

Les mesures de dureté ont été effectuées en cinq emplacements différents de l'éprouvette, distants d'au moins 6 mm, en calculant la valeur moyenne, en utilisant le duromètre existant au laboratoire de Génie des Procédés à l'université Ferhat ABBAS, selon la norme NF EN ISO 868 [78].

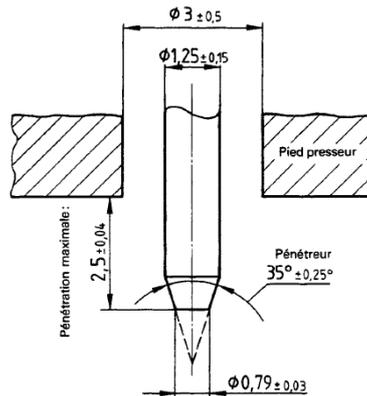


Figure IV.5. Pénétreur pour le duromètre [78].

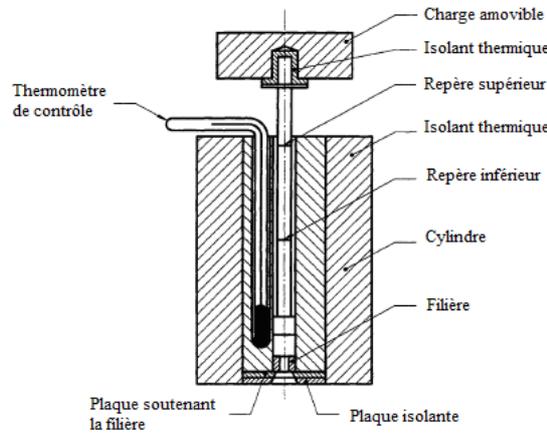
**IV.3.3. L'essai rhéologique: l'indice de fluidité**

Le test a été réalisé au moyen d'un appareil type "MELT-INDEXER" modèle 5 au niveau du laboratoire de Génie des Procédés à l'université Ferhat ABBAS, qui constitue d'un cylindre C d'axe vertical placé dans un four et se termine à son extrémité par une filière standard de longueur 8 mm et de diamètre 2,09 mm (voir Figure IV.6). Les essais ont été effectués selon la norme ASTM D-1238 sous une charge de 2,16 Kg à une température de 190°C [79].

Calcul de l'indice de fluidité par la relation:

$$IF = \frac{600.m}{t} (g / 10 \text{ min}) \dots\dots\dots(IV.6)$$

- IF : Indice de fluidité;
- m : Masse moyenne de l'extrudât en grammes;
- t : Intervalle de temps entre deux coupes d'un extrudât.



**Figure IV.6.** Appareil type pour la détermination de l'indice de fluidité [79].

**IV.3.4. Caractérisation thermique par l'Analyse Calorimétrique Différentielle (DSC)**

Cette technique est utilisée pour étudier les différentes transitions thermiques des polymères lorsqu'ils subissent une variation de température. Son principe de fonctionnement est de mesurer la différence d'énergie entre un creuset contenant l'échantillon et un creuset vide de référence, en fonction de la température. Lorsqu'une différence de température est générée entre l'échantillon et la référence, le calorimètre ajuste la puissance d'entrée de manière à réduire cette différence. Un signal proportionnel à la puissance fournie à l'échantillon (ou à la référence) est enregistré [80].

Les mesures ont été effectuées au moyen d'un calorimètre différentiel à balayage de marque "NETZSCH.DSC 200 PC" avec des échantillons de 15,5 mg dans la gamme de température allant de 20°C à 220°C, pour une vitesse de chauffage de 10°C/min niveau du laboratoire de KPLAST à Sétif. Les échantillons ont été analysés deux fois. Les enthalpies de fusion  $\Delta H_m$  ont été évaluées à partir de l'aire des pics de fusion. Le taux de cristallinité  $X_c$  est alors déterminé par la relation:

$$X_c (\%) = \frac{\Delta H_m}{\Delta H_\infty} .100 \dots\dots\dots (IV.7)$$

$X_c$  (%): Taux de cristallinité;

$\Delta H_m$ : Enthalpie de fusion expérimentale;

$\Delta H_\infty$ : Enthalpie de fusion d'un échantillon de PEBD 100% cristallin.

### IV.3.5. Test de densité

La détermination de la densité des matériaux composites préparés a été effectuée par pycnométrie en utilisant l'éthanol. Un pycnomètre est un flacon spécial surmonté d'un tube étroit muni d'un trait de repère permettant de définir très précisément le volume contenu. On a réalisé trois pesées successives: la masse du pycnomètre plein de liquide ( $m_1$ ), la masse d'échantillon seul ( $m_2$ ) et la masse du pycnomètre plein de liquide avec l'échantillon immergé ( $m_3$ ) [81].

La densité de l'échantillon est calculée par la relation:

$$d_{ech} = \frac{m_2}{m_1 + m_2 - m_3} \times d_{liq} \dots\dots\dots(IV.8)$$

Avec:

$d_{ech}$ : la densité de l'échantillon;

$d_{liq}$ : la densité du liquide utilisé (L'éthanol  $d=0.805$ ).

### IV.3.6. Les essais d'environnement

#### IV.3.6.1. L'absorption d'eau

Toutes les éprouvettes ont été séchées durant 24h dans une étuve 80°C et laissées refroidir jusqu'à la température ambiante dans un dessiccateur avant de les peser à 0,1 mg près. Cette opération a été répétée jusqu'à ce que la masse des éprouvettes soit constante (masse  $m_1$ ) à  $\pm 0,1$  mg. Ensuite les éprouvettes ont été placées dans un b cher contenant de l'eau distill e maintenue   (23  $\pm$  2,0)  C.

Apr s une immersion pendant un laps de temps, les  prouvettes ont  t  retir es hors de l'eau et enlev es de toute eau superficielle qui les recouvre,   l'aide d'un linge propre et sec. Chaque  prouvette a  t  pes e de nouveau dans la minute qui suit leur retrait de l'eau (masse  $m_2$ ). Pour d terminer la saturation en eau, les  prouvettes ont  t  immerg es et pes es de nouveau au bout de dur es d finies (la norme utilis e  tait EN 2378) [82].

Calcul du pourcentage en masse d'eau absorb e:

Pour chaque  prouvette, on a calcul  la variation relative de masse  $c$  en pourcentage en masse, par rapport   la masse initiale,   l'aide de la formule appropri e

$$c = \frac{m_2 - m_1}{m_1} \times 100 \dots\dots\dots(IV.9)$$

où:

$m_1$  : La masse, en milligrammes, de l'éprouvette après séchage initial et avant immersion;

$m_2$  : La masse, en milligrammes, de l'éprouvette après immersion.

#### **IV.3.6.2. La biodégradation**

Selon la norme NF EN ISO 846, l'essai consiste à exposer des éprouvettes des composites à l'action d'un sol microbiologiquement actif pendant une durée bien déterminée qui était 90 jours dans notre cas, dans la région de S'mara. À la fin de l'exposition, les éprouvettes font l'objet d'une estimation avant et après nettoyage, par examen visuel et en déterminant les variations des propriétés physiques (traction, choc et dureté).

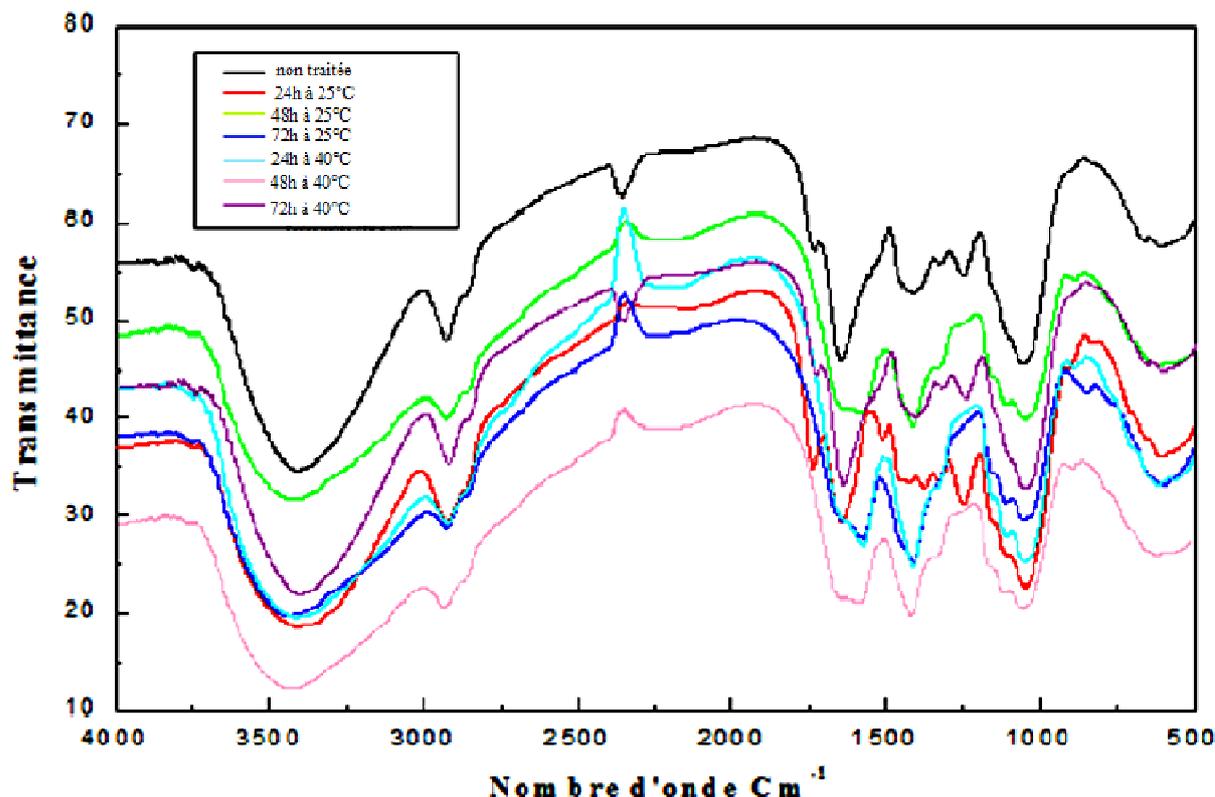
Les résultats obtenus avec les éprouvettes exposées à l'attaque biologique (lot 1) sont comparés à ceux obtenus avec des éprouvettes non traitées (lot 0) [83].

**CHAPITRE CINQ**  
**RÉSULTATS ET DISCUSSIONS**

## V. Résultats et discussions

### V.1. Analyse spectroscopique par infrarouge à transformé de Fourier

La structure de la farine de GE non traitée et traitée par le NaOH à différents temps de traitement et à différentes températures est analysée en transmission à partir des pastilles Farine/KBr. Les spectres obtenus sont représentés sur la figure V.1.



**Figure V.1.** Spectres IRTF de farine de Genêt d'Espagne (GE) non traitée et traitée par NaOH pendant 24h, 48h, et 72h à 25°C et à 40°C.

Si on observe soigneusement les spectres, on constate que la structure de farine de Genêt d'Espagne a changé après le processus de traitement. D'abord, le pic à  $3400\text{ cm}^{-1}$  assigné à la vibration du groupe hydroxyle (-OH) lié à la cellulose, et le pic à  $1052\text{ cm}^{-1}$  assigné à la vibration d'élongation du groupement (C-O) de l'hémicellulose et de la lignine sont nettement réduits de fait de l'élimination de l'hémicellulose et de la lignine.

On remarque aussi une bande à  $2358\text{ cm}^{-1}$  qui est attribuée au groupement ( $\text{H}_2\text{CO}_3$ ) de  $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2\text{O}$  dans l'atmosphère. On constate aussi la présence d'un pic à  $1737\text{ cm}^{-1}$  qui est associé à la vibration d'élongation des groupements carbonyles (C=O) des groupes acétyles des substances d'hémicelluloses (xylanes) ou de pectines dans la farine de Genêt d'Espagne.

Par ailleurs, on observe qu'avec le traitement, la disparition de cette bande dans le cas de la charge traitée à 25°C (48 et 72h), à 40°C (24 et 48h). La bande d'absorption d'eau à 1644 cm<sup>-1</sup> assigné à la déformation (H-O-H), due au caractère hydrophilique de la farine de GE. Les spectres de l'IRTF des travaux de **Boumerdassi** et ses collaborateurs [84] qui ont élaboré et caractérisé des composites biodégradables à base de polystyrène (PS), illustrent les mêmes pics.

Une faible bande entre 1423 et 1412 cm<sup>-1</sup> due à une déformation dans le plan du groupement (-CH<sub>2</sub>) de la lignine.

Ensuite, les pics à 1577 et 1507 cm<sup>-1</sup> correspondants à la vibration d'élongation symétrique des liaisons C=C du noyau aromatique dans la lignine. Le pic à 1248 cm<sup>-1</sup> correspondant à la vibration du groupe acétyle et le pic à 1154 cm<sup>-1</sup> lié à la vibration du pont asymétrique dans la cellulose et l'hémicellulose (C-O-C). Egalement, les vibrations d'élongation asymétriques correspondantes aux liaisons (C-H) des segments de la cellulose ou de la lignine vers 2926 cm<sup>-1</sup>, diminuent après le traitement. Ces résultats montrent que le traitement permet d'éliminer partiellement l'hémicellulose et la lignine. Enfin, un pic vers 615 cm<sup>-1</sup> lié à la rotation et la déformation du groupement (-OH) hors du plan. Ces résultats sont en accord avec ceux trouvés par **Madhuban** et ses collaborateurs [85] et aussi par **Corrales** et ses collaborateurs [86].

## V.2. La perte de masse

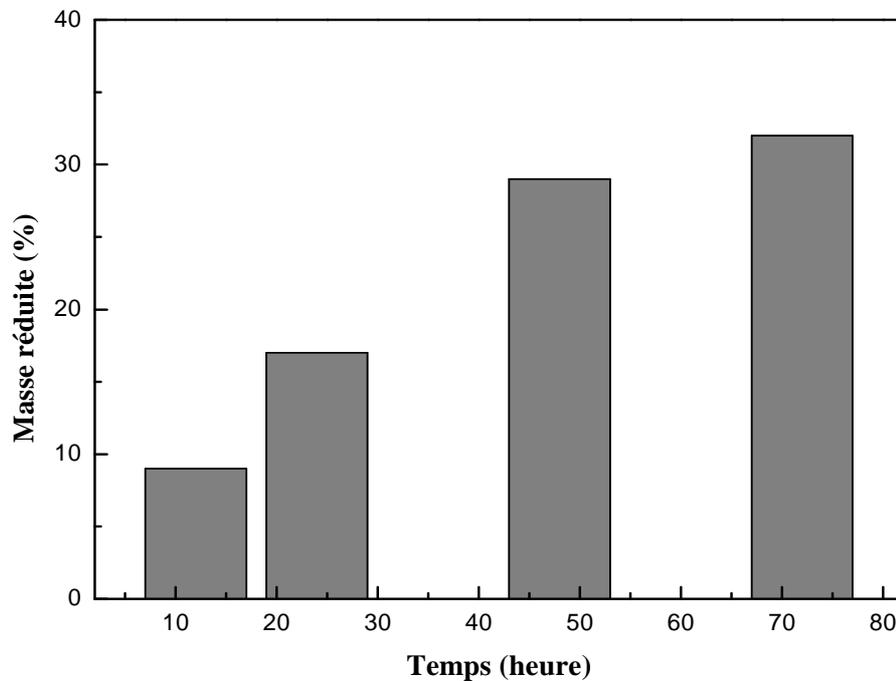
### V.2.1. Effet du temps de traitement

Les fibres naturelles contiennent principalement de la cellulose, de l'hémicellulose et de la lignine. L'hémicellulose est un composé contenant plusieurs molécules de sucre et de substances qui sont solubles dans l'eau ou dans une solution alcaline. La structure de la lignine est similaire à celle des polymères insaturés ou aromatiques. La lignine est également soluble dans une solution alcaline. Il est possible qu'une partie de l'hémicellulose et de la lignine va se dissoudre pendant le processus de traitement ce qui va provoquer une diminution de la masse de la farine de GE.

La figure V.2 présente l'influence de la durée de traitement en NaOH (1,25 N) sur le pourcentage de perte en masse de farine de GE à 25°C.

On constate que l'évolution du pourcentage de perte en masse est progressivement importante au cours des 48 premières heures du traitement puis elle commence à se stabiliser après une durée de traitement de 48 heures. Ces résultats indiquent que le temps de traitement de 48h n'est pas forcément optimisé même si la progression est faible après 48h de traitement.

Ces résultats s'accordent avec ceux présentés par **Tri et Villoutreix** [70] qui ont étudié l'effet de la concentration d'une solution alcaline, l'effet du temps de traitement et de la température de traitement sur les propriétés des composites PP/fibres de bambou.



**Figure V.2.** Influence de la durée de traitement sur le pourcentage de la masse réduite de la farine de GE traitée par NaOH à 25°C.

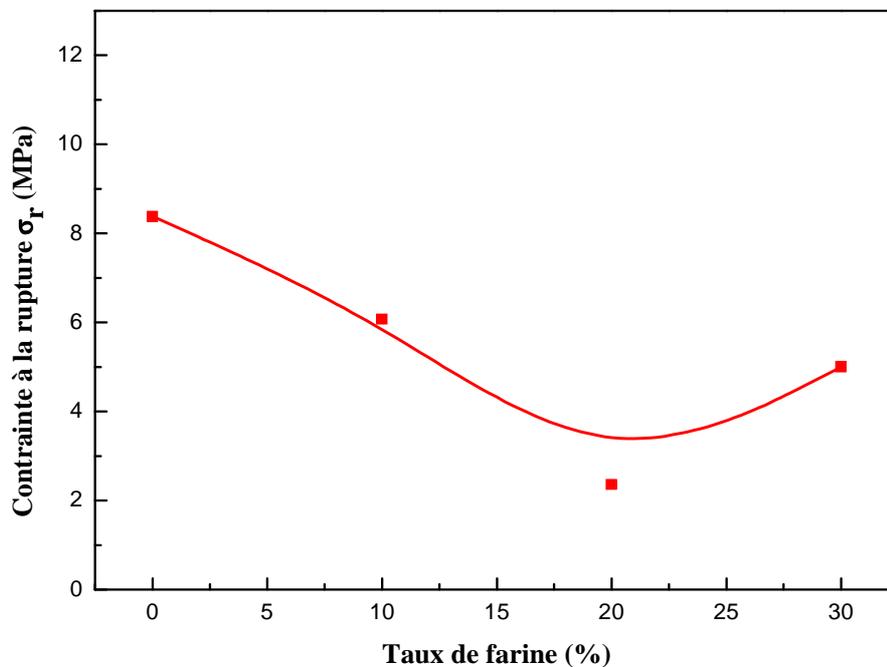
### V.3. Propriétés mécaniques

#### V.3.1. Test de traction

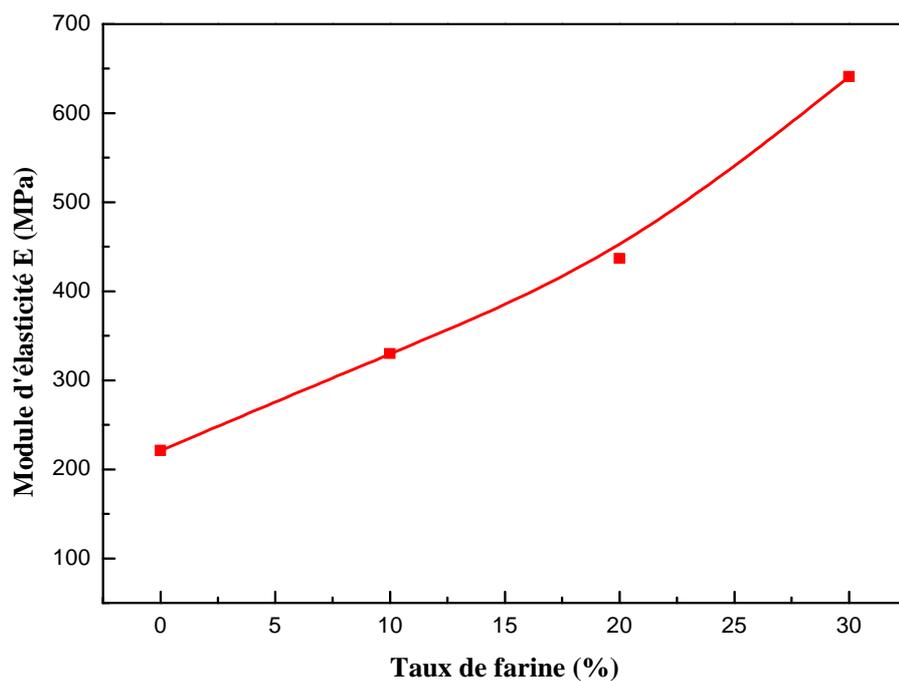
##### V.3.1.1. Effet du taux de farine

L'effet du taux de farine de GE sur la variation de la contrainte à la rupture des composites polyéthylène basse densité/farine de Genêt d' Espagne (PEBD/GE) est représenté par la figure V.3. On remarque une diminution de la contrainte à la rupture avec l'augmentation du taux de farine. Ces résultats sont en accord avec beaucoup de travaux qui expliquent par le fait que la farine crée des défauts dans la matrice du polymère et réduit les interactions interchaînes, ce qui provoque une diminution des propriétés mécaniques. Particulièrement pour les charges végétales composées essentiellement de la cellulose riche en groupements hydroxyles (-OH) qui absorbe l'humidité et provoque un gonflement dans la matrice polymérique.

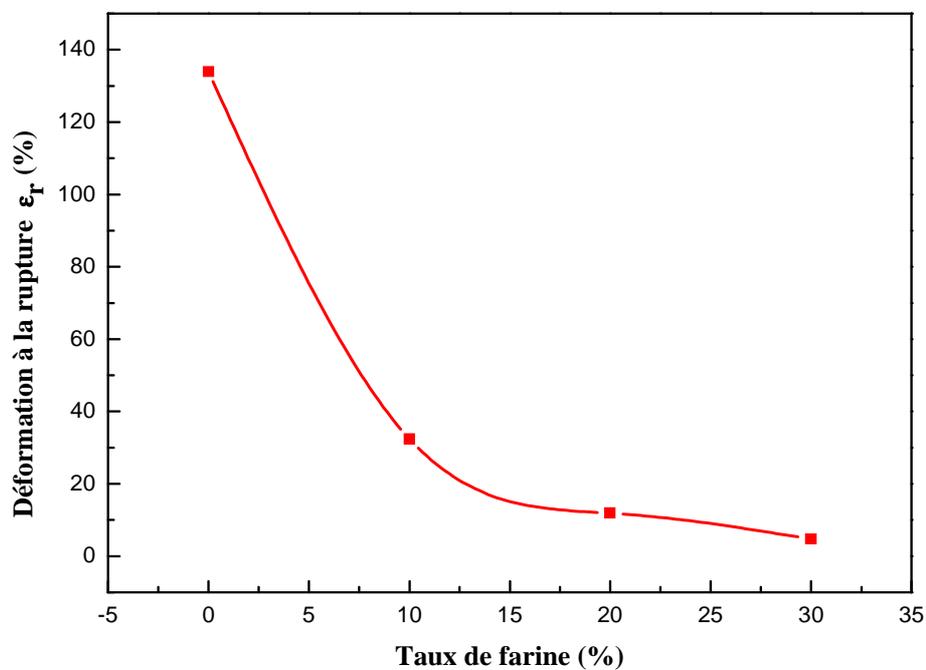
Les figures V.4 et V.5 illustrent l'évolution du module d'élasticité et la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée, respectivement. On remarque une augmentation importante du module d'élasticité avec l'accroissement du taux de farine de GE. La rigidité de la farine de GE, qui est supérieure à celle de la matrice thermoplastique PEBD, va augmenter considérablement celle du matériau composite. Au même temps, une diminution considérable de la déformation à la rupture empêche l'élasticité du matériau composite. Cette diminution est associée à un changement ductile-fragile dans le comportement du matériau composite. [87-89]. Ces résultats sont en bon accord avec ceux trouvés par **Bendahou** et ses collaborateurs [90] et ceux trouvés par **Chand** et **Dwivedi** [91].



**Figure V.3.** Variation de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.



**Figure V.4.** Variation du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.



**Figure V.5.** Variation de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.

### V.3.1.2. Effet du temps de traitement

Les figures V.6, V.7 et V.8 illustrent l'effet du temps de traitement sur la contrainte à la rupture, sur le module d'élasticité et sur la déformation à la rupture des composites PEBD/ GE, respectivement.

D'une façon générale, la modification de la surface de la farine de GE par NaOH a amélioré la contrainte à la rupture, le module d'élasticité et une faible amélioration de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE par rapport aux composites à farine non traitée. Le traitement de la farine par NaOH, augmente le degré de fibrillation et diminue le taux de lignine ce qui mène à une meilleure dispersion de la farine dans la matrice de PEBD. Ainsi, la formation d'une certaine adhésion interfaciale entre la farine végétale et la matrice polymérique et également un meilleur transfert de contrainte de la matrice à la farine.

On peut établir le mécanisme de la réaction entre le NaOH et la charge de GE comme suit (schéma V.1):

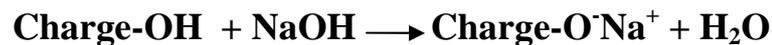
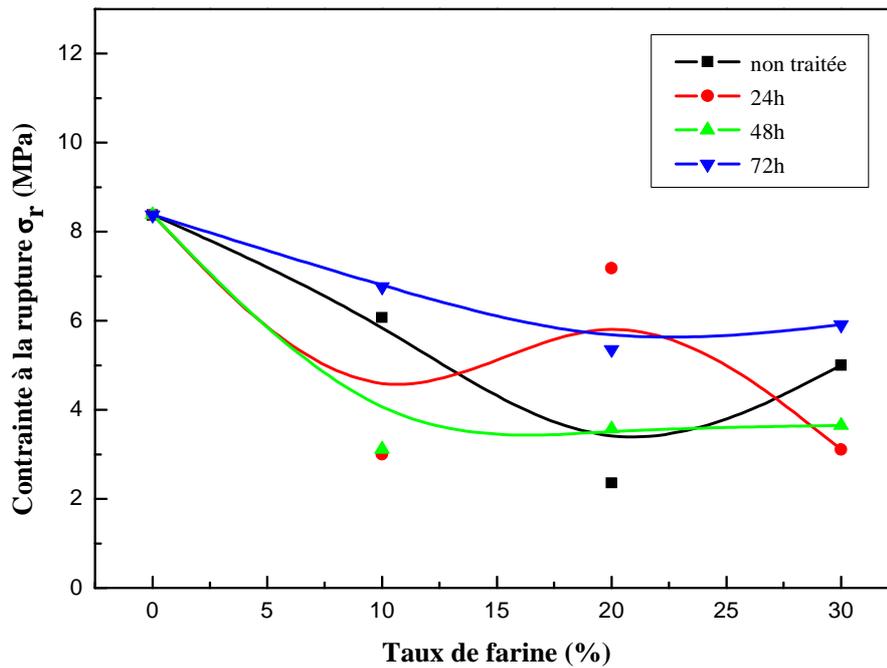
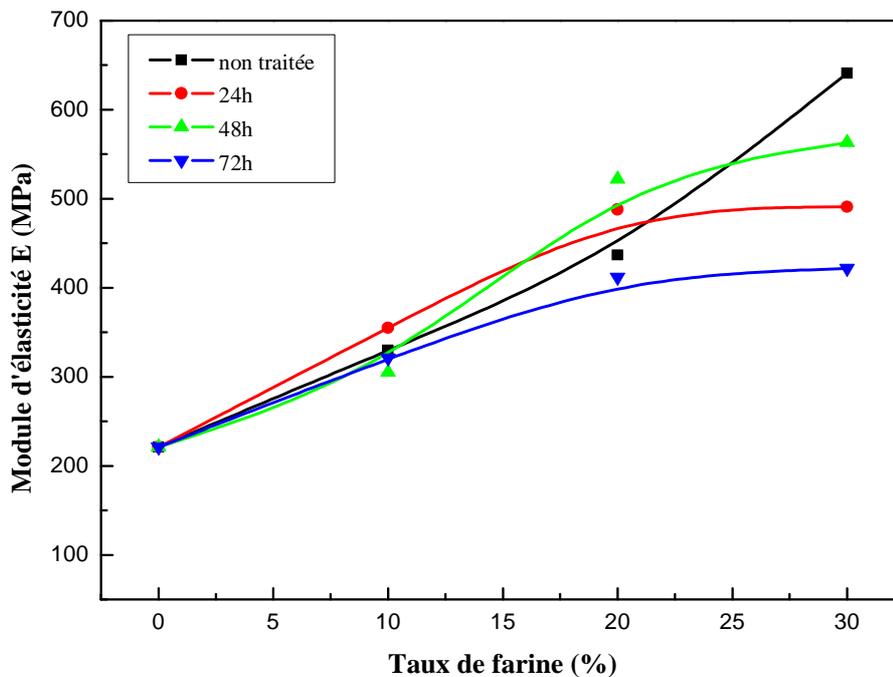


Schéma V.1. Réaction entre le NaOH et la charge de GE.

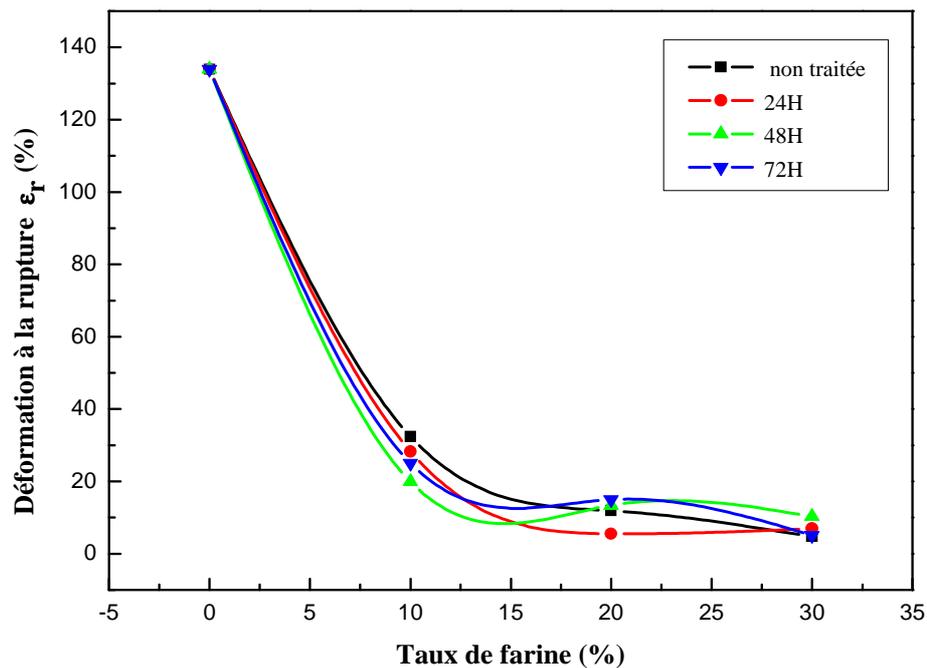
Les résultats du test de traction sont en accord avec ceux trouvés par **Habibi** et ses collaborateurs [39] et aussi par **Panaïtescu** et ses ces collaborateurs [53], et par **Chand** et **Dwivedi** [91].



**Figure V.6.** Variations de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C.



**Figure V.7.** Variations du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C.



**Figure V.8.** Variations de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C.

### V.3.1.3. Effet de la température

L'effet de la température de traitement sur la contrainte à la rupture, sur le module d'élasticité et sur la déformation à la rupture des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps est illustré sur le tableau V.1.

D'une façon générale, les valeurs de la contrainte à la rupture, du module d'élasticité ainsi que de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE à farine traitée à la température de 25°C sont supérieures à celles des composites à farine traitée à 40°C. Ceci est dû à la diminution de la fraction de cellulose dans la charge végétale avec l'augmentation de la température, ce qui entraîne une diminution du degré de dépolymérisation et donc la fragilisation de la farine, et par conséquent la réduction des propriétés mécaniques. La fragilisation de la farine peut être aussi attribuée à l'élimination de la lignine et de l'hémicellulose qui a été démontrée par les résultats de l'IRTF.

**Pasquini** et ses collaborateurs [92] ont trouvé une diminution significative du degré de polymérisation de la cellulose de fibres de bagasse avec le traitement qui affecte automatiquement les propriétés des composites étudiés (PEBD/fibres de bagasse).

**Tableau V.1.** Effet de la température sur la contrainte à la rupture, le module d'élasticité et la déformation à la rupture des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différent temps.

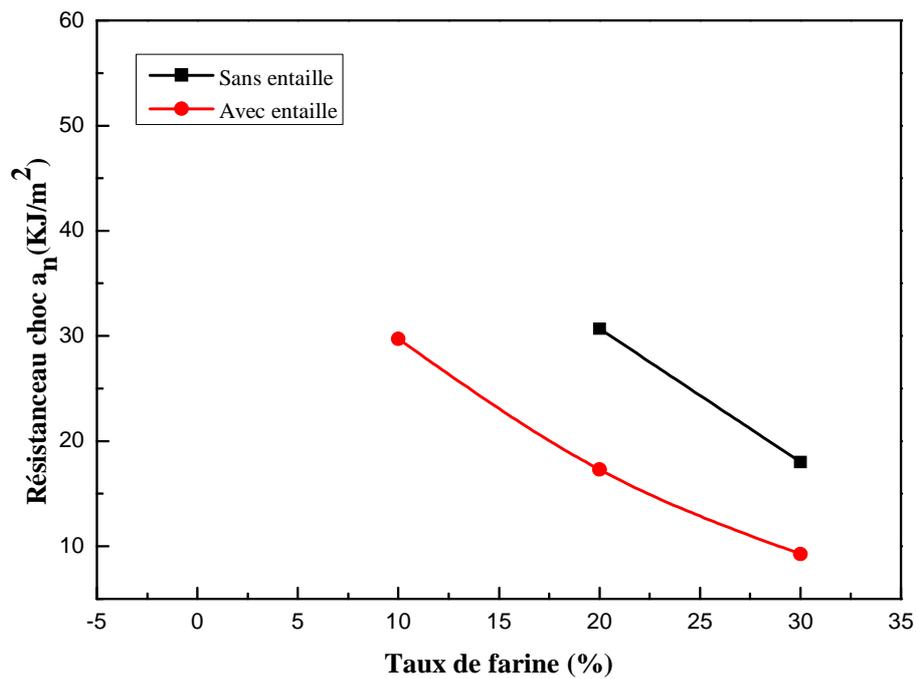
temps de traitement (h)	$\sigma_r$ (MPa)		E (MPa)		$\varepsilon_r$ (%)	
	T (25°C)	T (40°C)	T (25°C)	T (40°C)	T (25°C)	T (40°C)
24	6,50	3,75	491,00	455,00	7,02	4,69
48	8,60	4,66	563,00	310,00	10,28	3,58
72	9,43	8,90	194,00	325,00	5,12	4,09

### V.3.2. Test de choc

#### V.3.2.1. Effet du taux de farine

La figure V.9 et le tableau V.2 rassemblent les résultats du test de choc (Izod) des éprouvettes des composites PEBD/GE non entaillées et entaillées. On observe que les éprouvettes non entaillées de la matrice pure et des composites à des taux de farine non traitée (10%) n'ont pas subi de rupture.

Les résultats des propriétés au choc sont similaires à ceux de la déformation à la rupture. Les composites avec un taux de farine élevé ont des valeurs de la résistance au choc plus faibles. La charge de Genêt d'Espagne qui a une rigidité supérieure à celle du polyéthylène, augmente considérablement la rigidité du matériau composite, ce qui provoque également une diminution de la résistance au choc. Aussi on remarque que les éprouvettes entaillées ont montré une résilience inférieure que ceux non entaillées. Car l'énergie des éprouvettes entaillées présente seulement la propagation de la fissure, tandis que celle des spécimens non entaillés comprend l'initiation et la propagation de la fissure.



**Figure V.9.** Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée (avec et sans entaille).

**Tableau V.2.** Valeurs de la résistance au choc (Izod) des éprouvettes non entaillées et entaillées du PEBD et des composites PEBD/GE à farine non traitée.

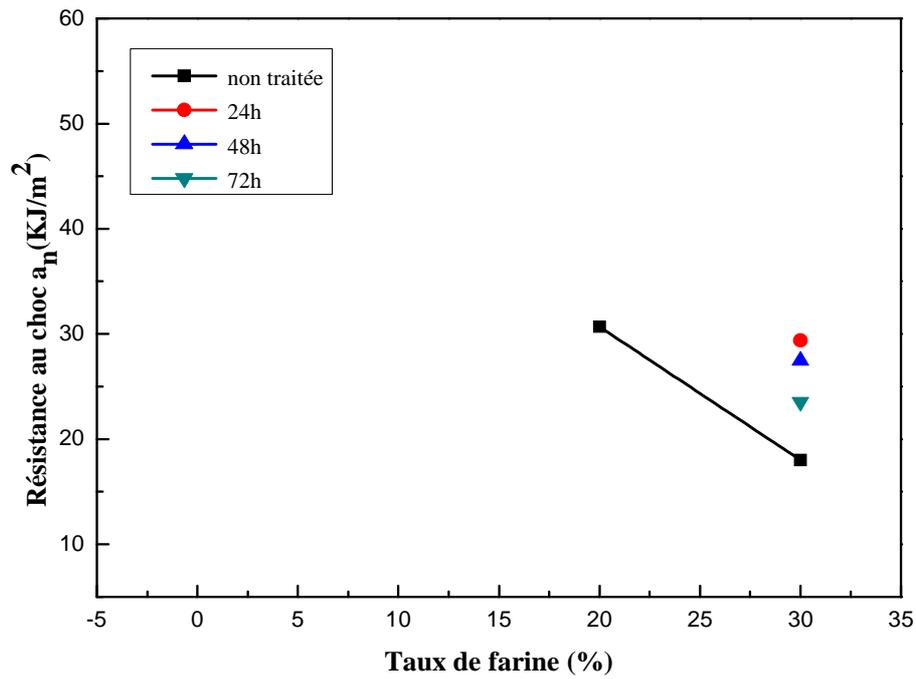
Composites	$a_n$ ( $\text{KJ/m}^2$ )	$a_k$ ( $\text{KJ/m}^2$ )
PEBD/GE (100/0)	Pas de rupture	Pas de rupture
PEBD/GE (90/10)	Pas de rupture	29,72
PEBD/GE (80/20)	30,67	17,28
PEBD/GE (70/30)	18,01	9,25

### V.3.2.2. Effet du temps de traitement

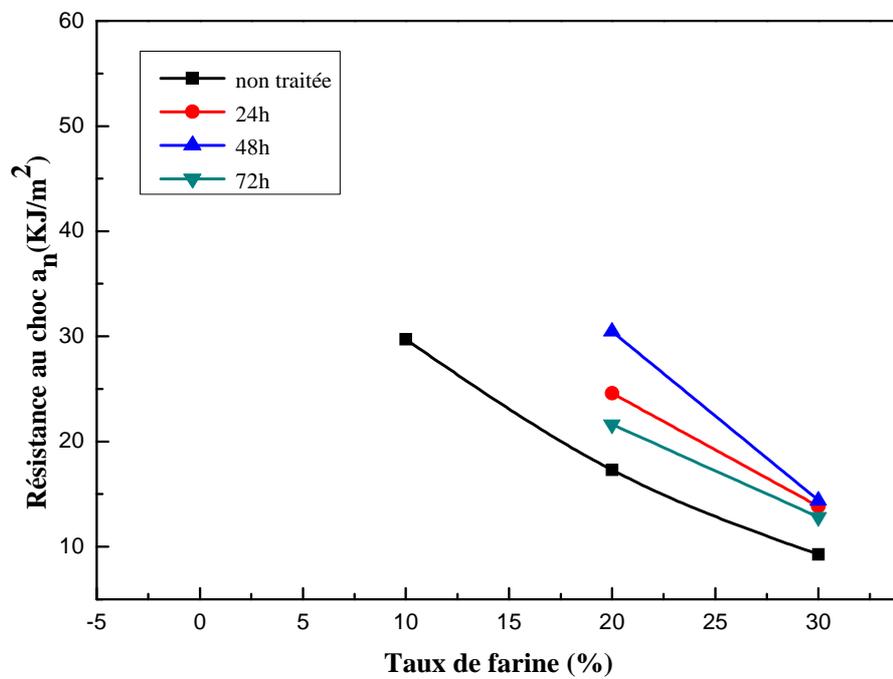
La modification de la surface de la charge végétale par le traitement alcalin, montre une amélioration de la résistance au choc des composites à farine traitée par rapport à ceux à charge non modifiée, ceci est représenté sur les figures V.10 et V.11 où les valeurs de la résistance au choc des différents composites testés sont rassemblées dans le tableau V.3. Il est clair que la résistance au choc est très influencée par l'interface entre les deux phases. Le comportement à l'interface farine-polymère absorbe une énergie au choc importante dans les composites à farine traitée. Le traitement de la farine améliore la compatibilité et favorise la capacité à dissiper l'énergie lors de la fracture.

D'autre part, nous remarquons que la résistance au choc est influencée par le temps de traitement. Un temps de traitement de 24 et de 48 heures montre des valeurs de résistance au choc les plus élevées que celles du temps de traitement 72 heures. Ceci est peut être dû à la fragilisation de la farine, un temps de traitement long provoque une diminution importante de la lignine, ce qui fragilise la charge. Ces résultats sont accord avec ceux trouvés par **Panaitescu** et ses collaborateurs [53].

**Kuan** et ses collaborateurs [93] ont modifié chimiquement la surface de fibres de bois par l'utilisation d'agent de couplage (vinyltriméthoxysilane). Les résultats de test de choc (Izod) ont montré une augmentation de la rigidité des matériaux composites PEBD/fibres de bois traitées par rapport aux composites à fibres non traitées. Aussi les travaux de **Bengtsson** et **Oksman** [94] ont montré que le traitement des fibres par le silane, améliore la résistance au choc des composites PEHD/fibres de bois.



**Figure V.10.** Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C (sans entaille).



**Figure V.11.** Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C (avec entaille).

**Tableau V.3.** Valeurs de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C à différents temps (avec et sans entaille).

Composites	$a_n$ (KJ/m <sup>2</sup> )	$a_k$ (KJ/m <sup>2</sup> )
<b>Farine de GE non traitée</b>		
PEBD/GE (90/10)	Pas de rupture	29,72
PEBD/GE (80/20)	30,67	17,28
PEBD/GE (70/30)	18,01	9,25
<b>Farine de GE traitée pendant 24h</b>		
PEBD/GE (90/10)	Pas de rupture	Pas de rupture
PEBD/GE (80/20)	Pas de rupture	24,59
PEBD/GE (70/30)	29,37	13,84
<b>Farine de GE traitée pendant 48h</b>		
PEBD/GE (90/10)	Pas de rupture	Pas de rupture
PEBD/GE (80/20)	Pas de rupture	30,46
PEBD/GE (70/30)	27,45	14,38
<b>Farine de GE traitée pendant 72h</b>		
PEBD/GE (90/10)	Pas de rupture	Pas de rupture
PEBD/GE (80/20)	Pas de rupture	21,63
PEBD/GE (70/30)	23,54	12,82

### 5.3.2.3. Effet de la température

Le tableau V.4 rassemble les résultats de l'effet de la température sur la résistance au choc des éprouvettes non entaillées et entaillées des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps.

D'après les valeurs du tableau, on constate que la résistance au choc des éprouvettes à farine traitée à 25°C soient entaillées ou non, est supérieure à celle des éprouvettes à farine traitée à 40°C, ce qui confirme les résultats trouvés par le test de traction où l'augmentation de la température de traitement de la charge végétale entraîne une diminution des propriétés mécaniques du matériau composite.

Ces résultats concordent avec ceux trouvés par **Alvarez** et **Vázquez** [95] qui ont étudié l'effet de temps et de la température de traitement des fibres de sisal sur les propriétés des composites à base de fibres de sisal.

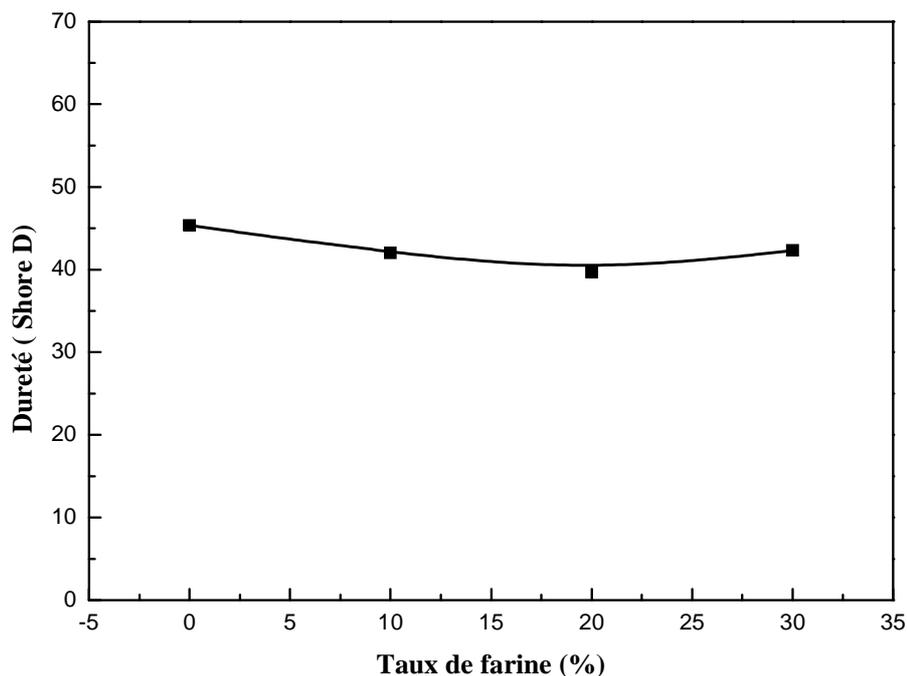
**Tableau V.4.** Valeurs de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures, (avec et sans entaille).

<b>Composites</b>	<b><math>a_n</math> (KJ/m<sup>2</sup>)</b>	<b><math>a_k</math> (KJ/m<sup>2</sup>)</b>
PEBD/GE traité 24h à 25°C	29,37	13,84
PEBD/GE traitée 24h à 40°C	18,86	9,42
PEBD/GE traitée 48h à 25°C	27,45	14,38
PEBD/GE traitée 48h à 40°C	13,28	7,58
PEBD/GE traitée 72h à 25°C	23,54	12,82
PEBD/GE traitée 72h à 40°C	18,20	7,94

### V.3.3. Test de dureté

#### V.3.3.1. Effet du taux de farine

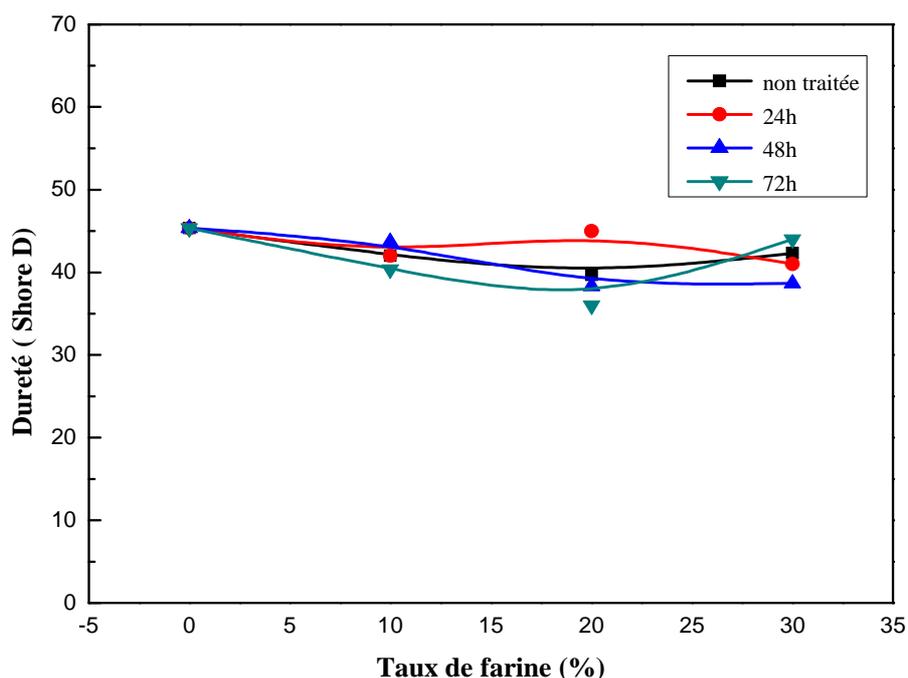
D'après la figure V.12 qui montre l'évolution de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée, on remarque qu'il n'y a pas de variation des valeurs de dureté des matériaux composites.



**Figure V.12.** Variation de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.

### V.3.3.2. Effet du temps de traitement

La figure V.13 représente les variations de la dureté des composites à farine non traitée et traitée par NaOH à différents temps à 25°C en fonction du taux de farine. D'après la figure, on peut dire que le traitement n'a pas une influence significative sur la variation de la dureté. Ce phénomène peut s'expliquer par l'hétérogénéité de composite due aux facteurs liés à la farine de GE (mouillabilité, traitement etc.).



**Figure V.13.** Variations de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C.

### V.3.3.3. Effet de la température

L'effet de la température de traitement sur la dureté des composites PEBD/ GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps, est illustré sur le tableau V.5. D'une façon générale, on remarque que l'augmentation de la température de traitement n'a pas d'influence sur la dureté.

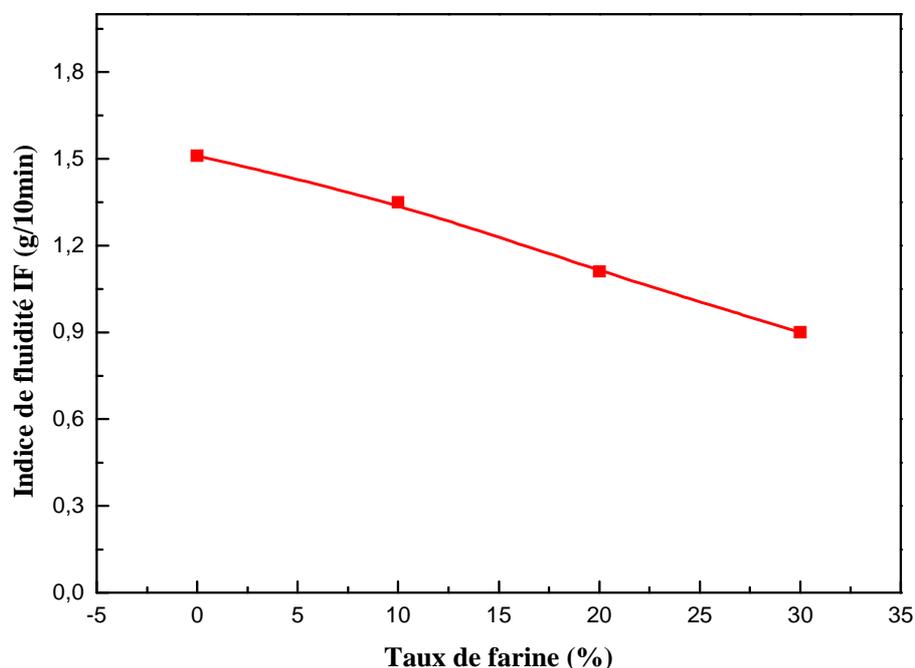
**Tableau V.5.** Valeurs de la dureté (Shore D) des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures.

temps de traitement (h)	Dureté (Shore D)	
	T (25°C)	T (40°C)
24	41,00	38,67
48	38,67	37,33
72	44,00	40,67

## V.4. Propriétés rhéologiques (Indice de fluidité)

### V.4.1. Effet du taux de farine

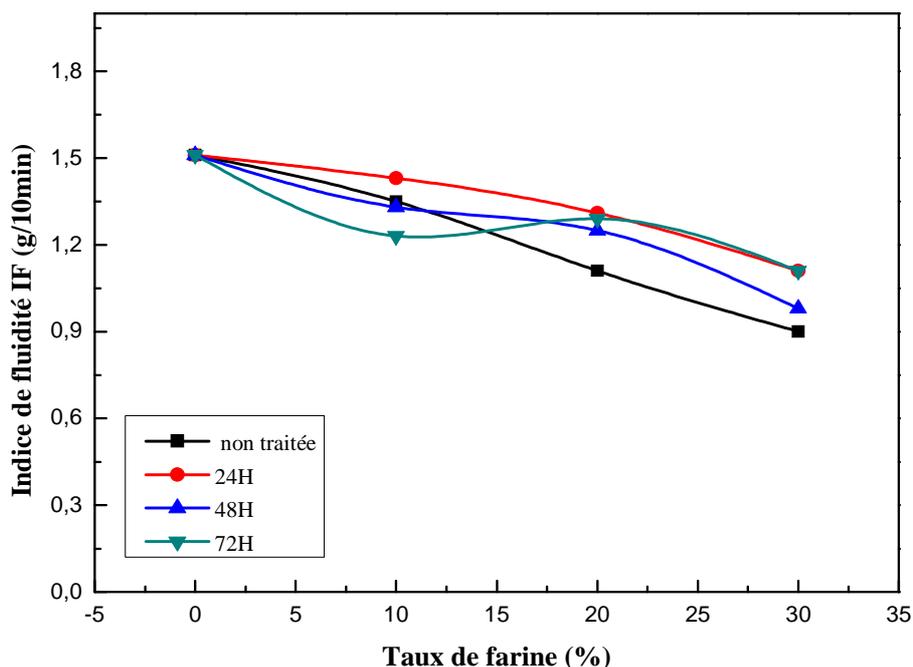
La figure V.14 illustre l'évolution de l'indice de fluidité des composites PEBD/GE, en fonction du taux de farine non traitée. On observe une diminution de l'indice de fluidité avec l'augmentation du taux de farine. Ceci est dû à l'agglomération de la farine de Genêt d'Espagne qui constitue des obstacles aux mouvements libres des chaînes polymériques en empêchant l'écoulement du matériau composite. Ces résultats sont en accord avec ceux trouvés par Nekkaa [74].



**Figure V.14.** Variations de l'indice de fluidité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.

### V.4.2. Effet du temps de traitement

La figure V.15 montre la variation de l'indice de fluidité des composites PEBD/GE à farine traitée par le NaOH à différents temps à 25°C. On constate une faible amélioration des valeurs de l'indice de fluidité des composites à farine traitée que celles des composites à farine non traitée. Ceci est peut être dû au traitement qui améliore la dispersion de la farine et une meilleure mouillabilité de cette dernière par la matrice. D'autre part, on remarque qu'il y a une légère diminution de l'indice de fluidité avec l'augmentation du temps de traitement.



**Figure V.15.** Variations de l'indice de fluidité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C.

#### V.4.3. Effet de la température de traitement

Le tableau V.6 rassemble les valeurs de l'indice de fluidité des composites PEBD/ GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différent temps de traitement et à différentes températures (25 et 40°C). D'après les valeurs du tableau, on remarque que l'augmentation de la température de traitement n'influe pas sur les valeurs de l'indice de fluidité.

**Tableau V.6.** Valeurs de l'indice de fluidité des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différent temps et à différentes températures.

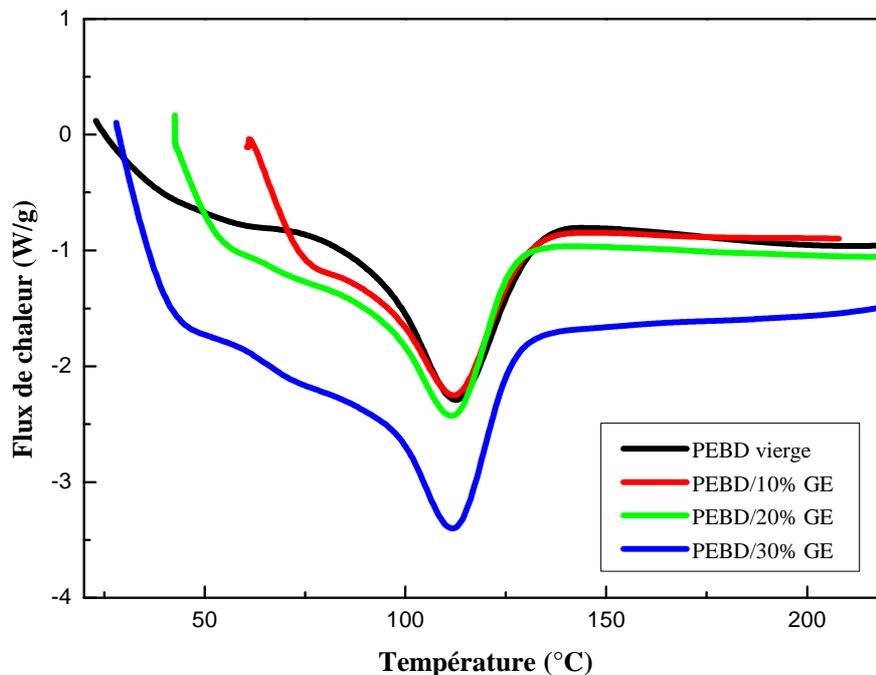
temps de traitement (h)	Indice de fluidité (g/10min)	
	T (25°C)	T (40°C)
24	1,11	1,23
48	0,98	1,45
72	1,11	1,17

## V.5. Propriétés thermiques (DSC)

### V.5.1. Effet du taux de farine

Les mesures de DSC ont été réalisées afin d'étudier l'effet de l'introduction de farine de Genêt d'Espagne sur le point de fusion et le taux de cristallinité de la matrice thermoplastique PEBD.

D'après la figure V.16, on voit clairement que l'augmentation de la teneur en farine non traitée des composites PEBD/GE n'a pas une grande influence sur l'allure du pic ou sur la valeur de la température de fusion  $T_f$ . Ces résultats s'accordent avec ceux présentés par **Bendahou** et ses collaborateurs [90], **Avérous** et ses collaborateurs [96] et **Digabel** et ses collaborateurs [97].



**Figure V.16.** Thermogrammes DSC du PEBD et des composites PEBD/GE à farine non traitée.

Le point de fusion ( $T_f$ ) à différents passages, l'enthalpie de fusion  $\Delta H_m$  et le taux de cristallinité des composites PEBD/GE à farine non traitée sont illustrés sur le tableau V.7.

D'après le tableau V.7, les valeurs de  $T_f$  obtenues lors du 2<sup>ème</sup> passage sont légèrement inférieures à celles du 1<sup>er</sup> passage. Lors du 2<sup>ème</sup> passage, on n'obtient que les changements proprement liés au matériau sans interventions des phénomènes liés à l'absorption d'eau par la farine ou autres.

Les enthalpies de fusion  $\Delta H_m$  ont été évaluées à partir de l'aire des pics de fusion. Dans cette étude, la valeur retenue pour  $\Delta H_\infty$  est celle déterminée par **Sirisinha** et **Meksawat** [98], égale à 280 J/g.

D'après les résultats, on voit clairement que le taux de cristallinité  $\chi_c$  augmente avec le taux de charge non traitée. Généralement, l'incorporation de la charge cellulosique dans la matrice polymérique se fait dans la zone amorphe du matériau et la surface de la charge agit comme des sites de nucléation qui modifie la cinétique de cristallisation du polymère semi-cristallin.

Ces résultats accordent avec ceux trouvés par **Joseph** et ses collaborateurs [99] qui ont remarqué une légère augmentation du taux de cristallinité des composites PP/fibres de sisal avec l'augmentation du taux de fibres, et ceux trouvés par **Bouafif** [100] qui n'a pas trouvé une grande influence de l'incorporation des fibres de pin gris à matrice PEHD sur le taux de cristallinité et sur la température de fusion. Aussi **Borysiak** et ses collaborateurs [101] ont montré une augmentation entre (5-9°C) de la température de fusion avec l'ajout des fibres de bois à matrice PP.

**Tableau V.7.** Comparaison de la température de fusion à différents passages et du taux de cristallinité du PEBD et des composites PEBD/GE à farine non traitée.

Echantillons	$T_f$ (°C) 1 <sup>er</sup> passage	$T_f$ (°C) 2 <sup>ème</sup> passage	$\Delta H_m$ (J/g)	$X_c$ (%)
PEBD	113,00	112,50	91,07	32,52
PEBD/GE (90/10)	113,00	112,70	104,14	37,19
PEBD/GE (80/20)	112,50	112,30	112,2	40,07
PEBD/GE (70/30)	113,50	112,30	132,14	47,19

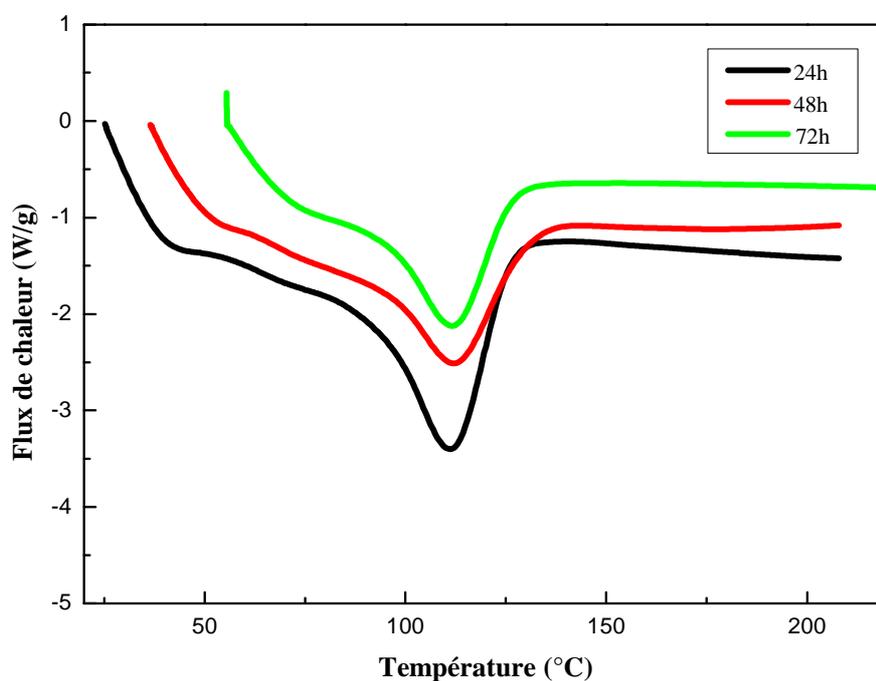
### V.5.2. Effet du temps de traitement

Les figures V.17, V.18 et V.19 montrent la comparaison des thermogrammes DSC des composites PEBD/GE à farine traitée par NaOH à 25°C et à différents temps.

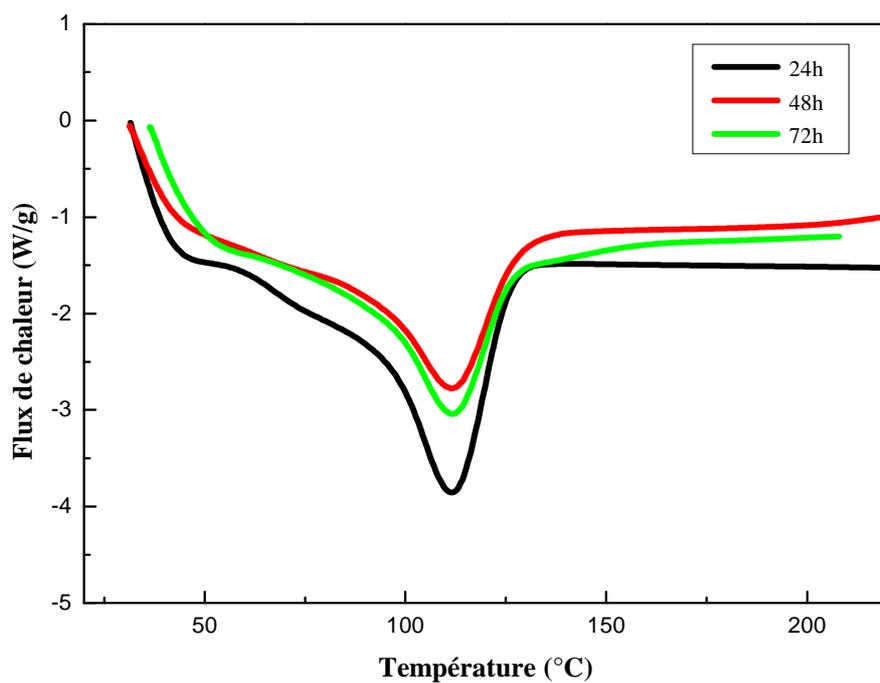
D'après ces figures, on remarque que le temps de traitement n'a pas d'effet sur la température de fusion. Le tableau V.8 illustre les valeurs de la température de fusion à différents passages, des enthalpies de fusion et du taux de cristallinité des composites PEBD/GE à farine traitée par NaOH à 25°C et à différents temps.

D'après les valeurs du tableau V.8, on constate que le traitement alcalin de la surface de la farine n'a pas une grande influence sur le taux de cristallinité. Dans la littérature, différents auteurs (**Liu** et ses collaborateurs [102], **Peyratout** et ses collaborateurs [68], **Avérous** et ses collaborateurs [96]) ont aussi observé ce comportement avec du polypropylène chargé avec des fibres cellulosiques.

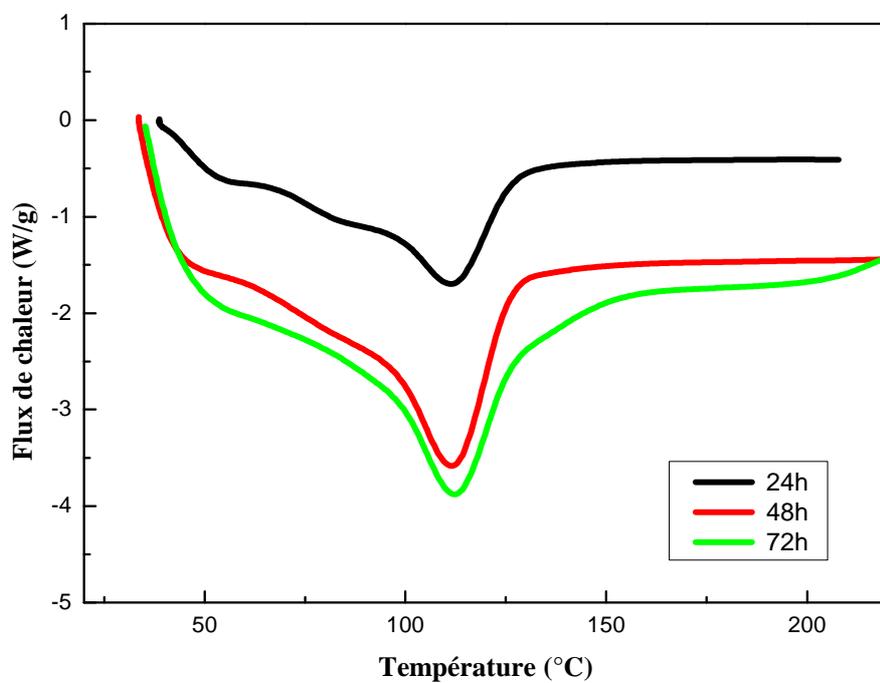
**Dányádi** et ses collaborateurs [103] ont étudié l'adhésion et la compatibilisation entre le polypropylène et les fibres de bois, ils ont remarqué le même comportement des composites PP/fibres de bois avec l'ajout d'un agent de compatibilisation.



**Figure V.17.** Thermogrammes DSC des composites PEBD/GE (90/10) à farine traitée par NaOH à 25°C.



**Figure V.18.** Thermogrammes DSC des composites PEBD/GE (80/20) à farine traitée par NaOH à 25°C.



**Figure V.19.** Thermogrammes DSC des composites PEBD/ GE (70/30) à farine traitée par NaOH à 25°C.

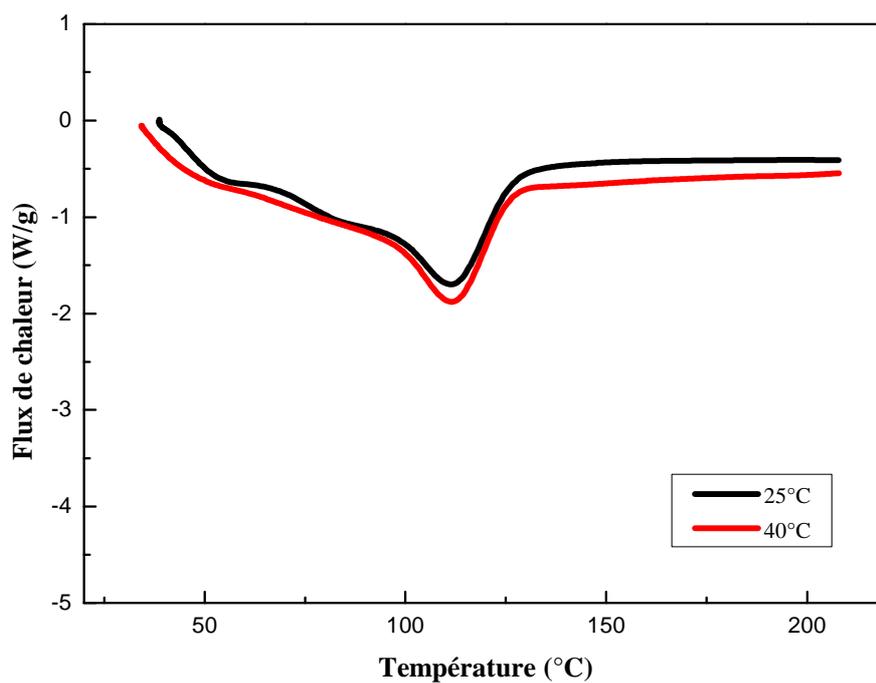
**Tableau V.8.** Comparaison de la température de fusion à différents passages et du taux de cristallinité des composites PEBD/GE à farine traitée par NaOH à 25°C à différents temps.

Echantillons	$T_f$ (°C) 1 <sup>er</sup> passage	$T_f$ (°C) 2 <sup>ème</sup> passage	$\Delta H_m$ (J/g)	$X_c$ (%)
<b>Farine de GE traitée 24h</b>				
PEBD/GE (90/10)	113,00	112,70	100,00	35,71
PEBD/GE (80/20)	112,50	112,30	113,77	40,63
PEBD/GE (70/30)	112,50	113,30	131,80	46,76
<b>Farine de GE traitée 48h</b>				
PEBD/GE (90/10)	113,00	112,70	101,40	36,21
PEBD/GE (80/20)	112,50	112,30	116,00	41,42
PEBD/GE (70/30)	112,50	113,30	135,60	48,42
<b>Farine de GE traitée 72h</b>				
PEBD/GE (90/10)	113,00	112,70	104,07	37,16
PEBD/GE (80/20)	112,50	112,30	118,65	42,37
PEBD/GE (70/30)	112,50	113,30	132,87	47,45

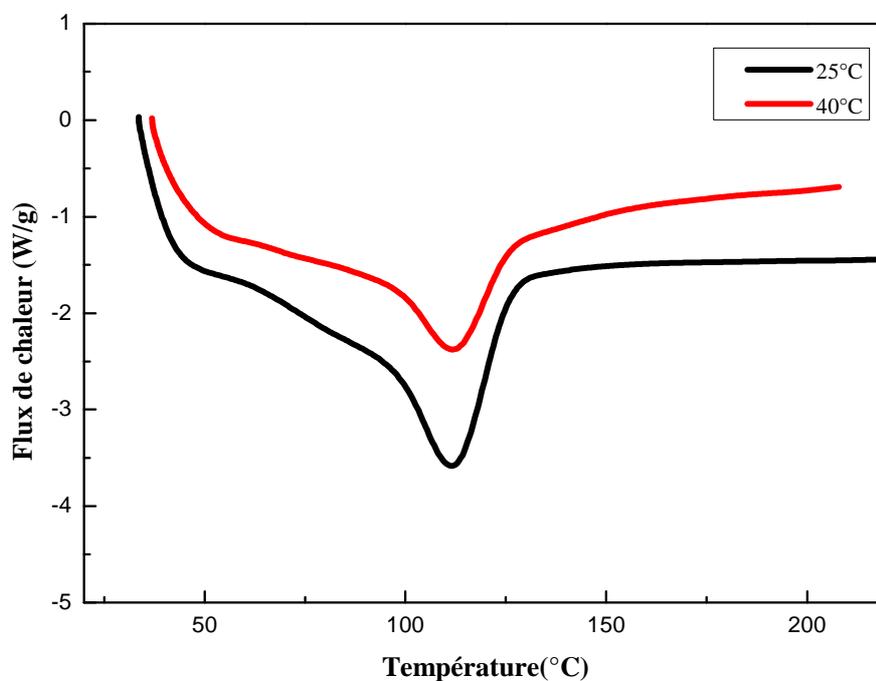
### V.5.3. Effet de la température

Les figures V.20, V.21 et V.22 représentent les thermogrammes des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures (25 et 40°C), les résultats du point de fusion ( $T_f$ ), d'enthalpie de fusion  $\Delta H_m$  et du taux de cristallinité sont illustrés sur le tableau V.9.

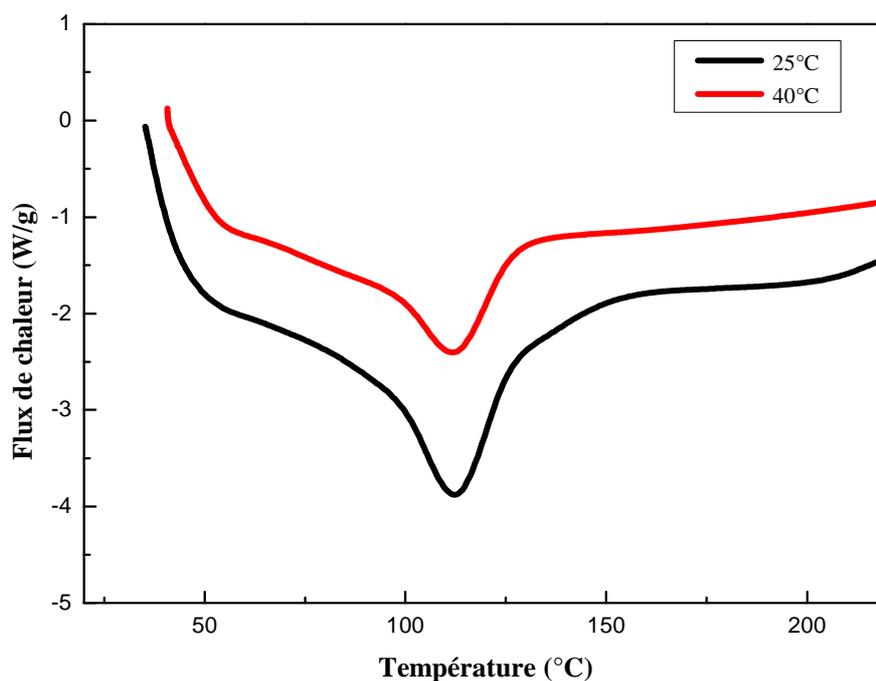
Le tableau V.9 montre que l'augmentation de la température pour un temps de traitement 24h n'a pas d'influence sur le taux de cristallinité. D'autre part, nous remarquons que l'accroissement du temps de traitement à une température de 40°C montre une diminution remarquable du taux de cristallinité.



**Figure V.20.** Thermogrammes DSC des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH pendant 24h.



**Figure V.21.** Thermogrammes DSC des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH pendant 48h.



**Figure V.22.** Thermogrammes DSC des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH pendant 72h.

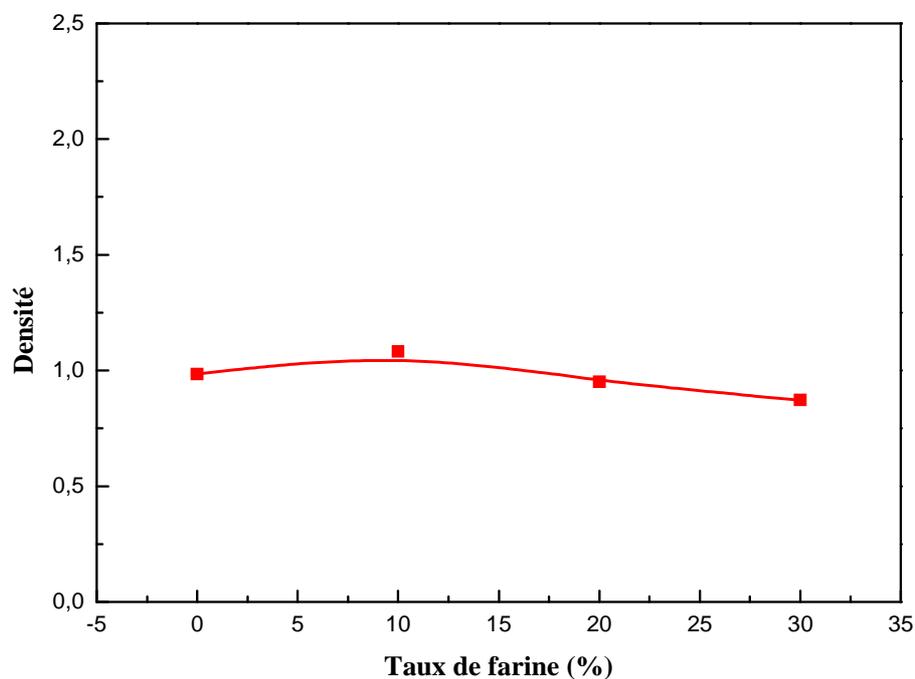
**Tableau V.9.** Comparaison de la température de fusion à différents passages et du taux de cristallinité des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures.

Echantillons PEBD/GE (70/30)	$T_f$ (°C) 1 <sup>er</sup> passage	$T_f$ (°C) 2 <sup>ème</sup> passage	$\Delta H_m$ (J/g)	$X_c$ (%)
GE traitée 24h à 25°C	112,50	113,30	131,80	46,76
GE traitée 24h à 40°C	113,00	112,70	132,05	47,16
GE traitée 48h à 25°C	112,50	113,30	135,60	48,42
GE traitée 48h à 40°C	112,50	112,30	109,27	39,02
GE traitée 72h à 25°C	112,50	113,30	132,87	47,45
GE traitée 72h à 40°C	112,50	113,30	112,54	40,19

## V.6. Test de densité

### V.6.1. Effet du taux de farine

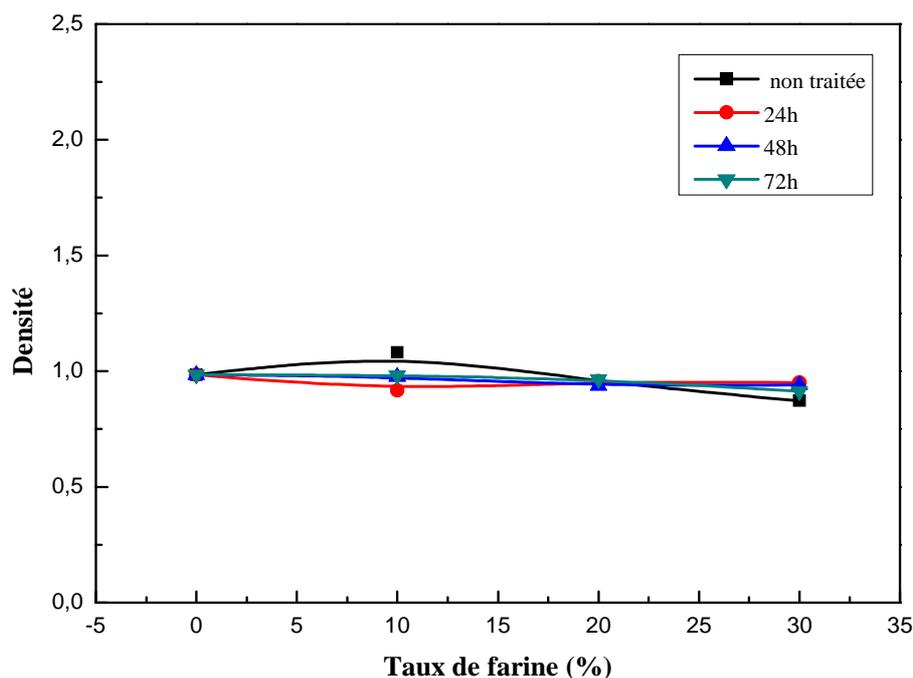
Tant que la farine de Genêt d'Espagne et le polyéthylène basse densité ont presque les mêmes valeurs de densité ( $d_{\text{PEBD}} = 0,92$ ,  $d_{\text{GE}} = 0,90$ ), l'incorporation de la farine de GE à la matrice polymérique n'a pas d'influence sur la densité du matériau composite, ceci est montré par la figure V.23, qui représente l'évolution de la densité des composites PEBD/GE en fonction de l'introduction de farine de GE non traitée.



**Figure V.23.** Variations de la densité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée.

### V.6.2. Effet du temps de traitement

La figure V.24 illustre les variations de la densité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C et à différents temps de traitement. On observe que la modification de la surface de la farine de GE par le traitement alcalin n'a pas d'effet sur la densité quelque soit le temps de traitement.



**Figure V.24.** Variations de la densité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C à différents temps.

### V.6.3. Effet de la température

D'après le tableau V.10 qui rassemble les valeurs de la densité des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps de traitement et à différentes températures, on constate qu'il n'y a pas de variation de la densité des composites PEBD/GE (70/30) en fonction de la température de traitement.

**Tableau V.10.** Valeurs de la densité des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures.

Temps de traitement (h)	Densité	
	T (25°C)	T (40°C)
24	0,95	0,90
48	0,94	1,09
72	0,91	0,88

## V.7. Etude du caractère hydrophilique des composites PEBD/GE par le test d'absorption d'eau.

### V.7.1. Etude du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE

#### V.7.1.1. Effet du taux de farine

Au sein d'un matériau composite à matrice polymérique, l'eau interagit avec la matrice, avec le renfort et les zones interfaciales.

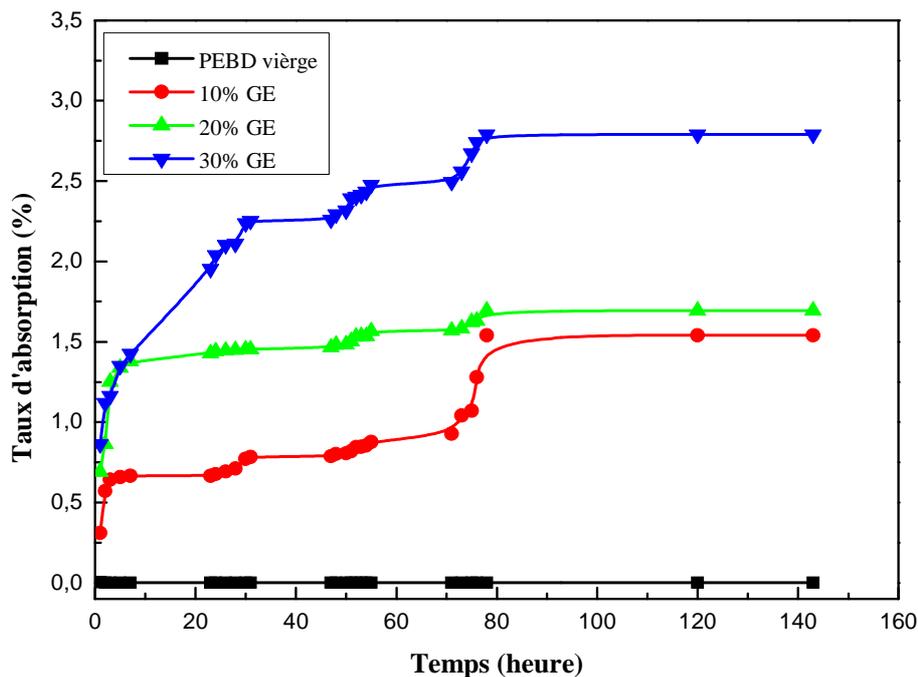
La figure V.25 qui représente la variation du taux d'absorption d'eau en fonction du temps des composites PP/GE à farine non traitée, montre que les cinétiques de diffusion de l'eau dans un polymère vierge diffèrent de celles obtenues pour le polymère renforcé.

L'absorption d'eau des polymères organiques dépend à la fois de paramètres structuraux (liés à l'existence de groupements polaires) et du volume libre. Ainsi, la forte hydrophobicité des polyoléfines, explique le faible pouvoir hygroscopique du PEBD (inférieur à  $10^{-3}\%$  [47]). La fixation des molécules d'eau sur les groupes apolaires étant impossible, la prise d'humidité s'explique uniquement par la diffusion des molécules d'eau à travers le volume libre.

L'utilisation de farine de GE contribue à augmenter la capacité de stockage en eau du matériau; après 80 h d'immersion dans l'eau à 25°C. Les tissus végétaux sont, en effet, des matériaux fortement hygroscopiques. Ils peuvent contenir de l'eau sous deux formes: l'eau libre et l'eau liée.

La structure macromoléculaire et en particulier les groupes hydroxyles des polysaccharides, fortement hydrophiles, peuvent également accueillir des molécules d'eau liées par des liaisons hydrogènes et de Van der Waals. L'insertion des molécules d'eau au sein des macromolécules hydrophiles entraîne le gonflement du matériau. Notons que les courbes d'absorption d'eau du PEBD et du composite PEBD/GE présentent une partie initiale relativement linéaire et un plateau à saturation.

Nos résultats sont conformes avec ceux trouvés par **Pasquini** et ses collaborateurs [92] qui ont caractérisé des composites cellulosiques à base de polyéthylène basse densité. Aussi les résultats trouvés par **Bessadok** et ses collaborateurs [104] sont accordent par nos résultats.



**Figure V.25.** Variations du taux d'absorption d'eau du PEBD et des composites PEBD/GE non traitée en fonction du temps.

#### V.7.1.2. Effet du temps de traitement

Les figures V.26, V.27 et V.28 illustrent les courbes d'évolution du taux d'absorption d'eau en fonction du temps des composites PEBD/GE (90/10), (80/20) et (70/30) formulés à partir de farine traitée par le NaOH à différents temps de traitement, respectivement.

Nous remarquons que le traitement et sa durée contribuent à une décroissance du taux d'absorption d'eau des composites. Ce comportement est clairement dû à la diminution des groupements hydroxyles, après la mercerisation. Ce qui provoque une augmentation considérable du caractère hydrophobe de la charge et une amélioration de l'interface charge-matrice des composites PEBD/GE.

Ces résultats sont en bon voie avec ceux trouvés par **Liu** et ses collaborateurs [102] et ceux trouvés **Dominkovics** et ses collaborateurs [69].

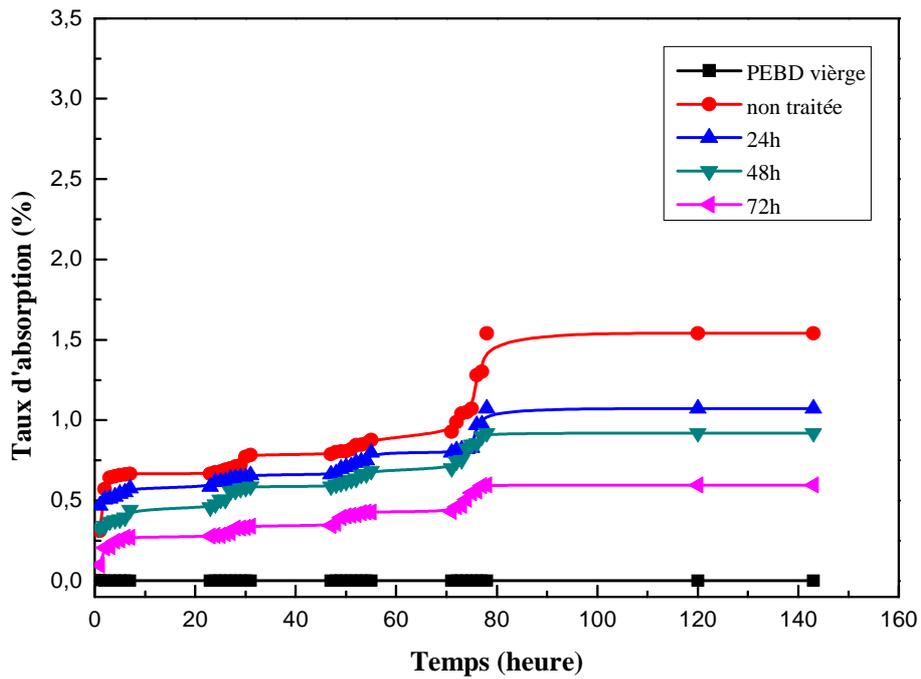


Figure V.26. Variations du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE (90/10) à farine traitée à 25°C en fonction du temps.

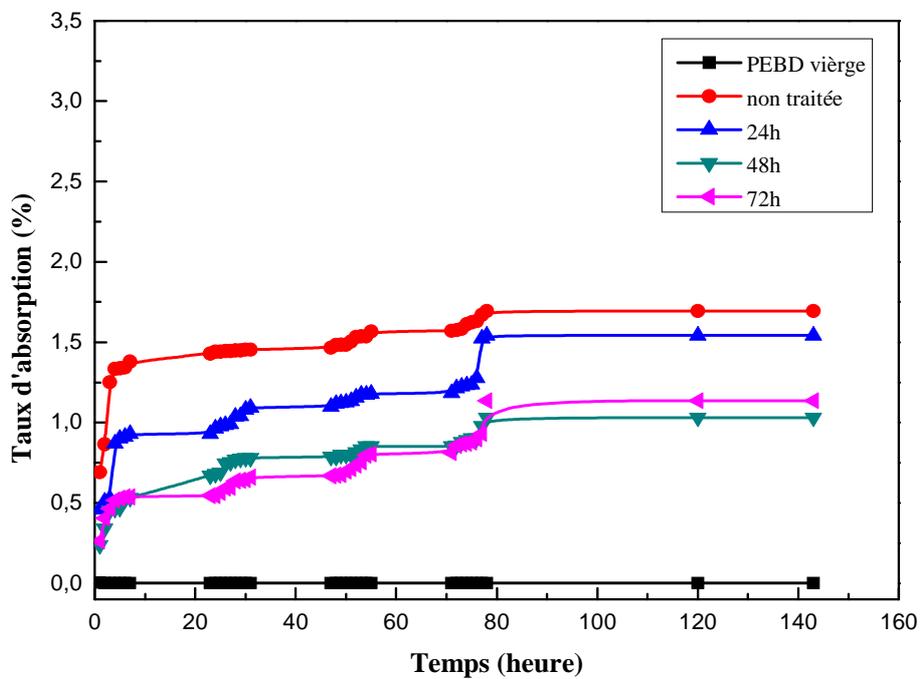
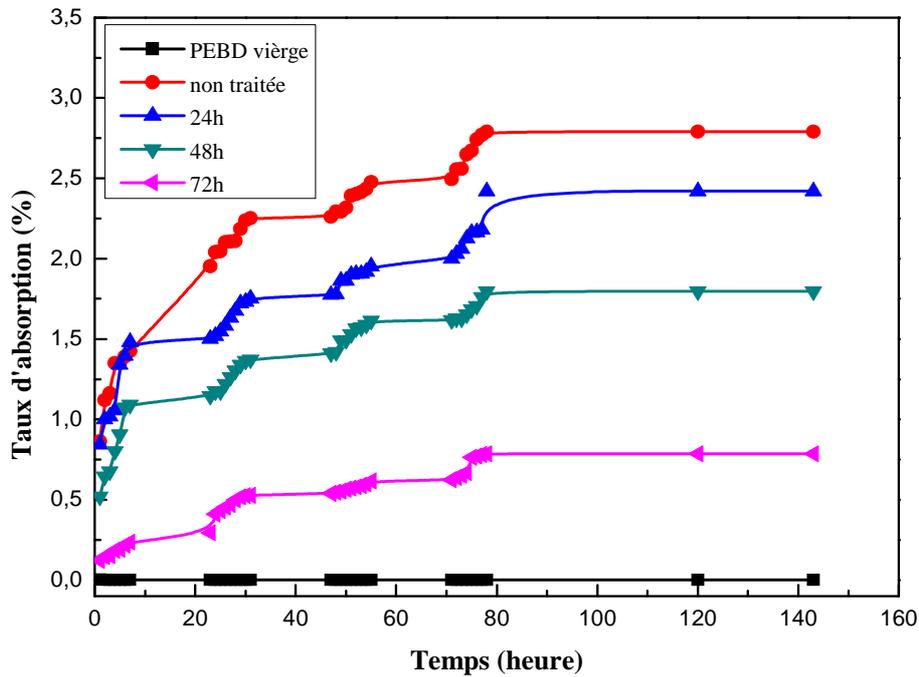


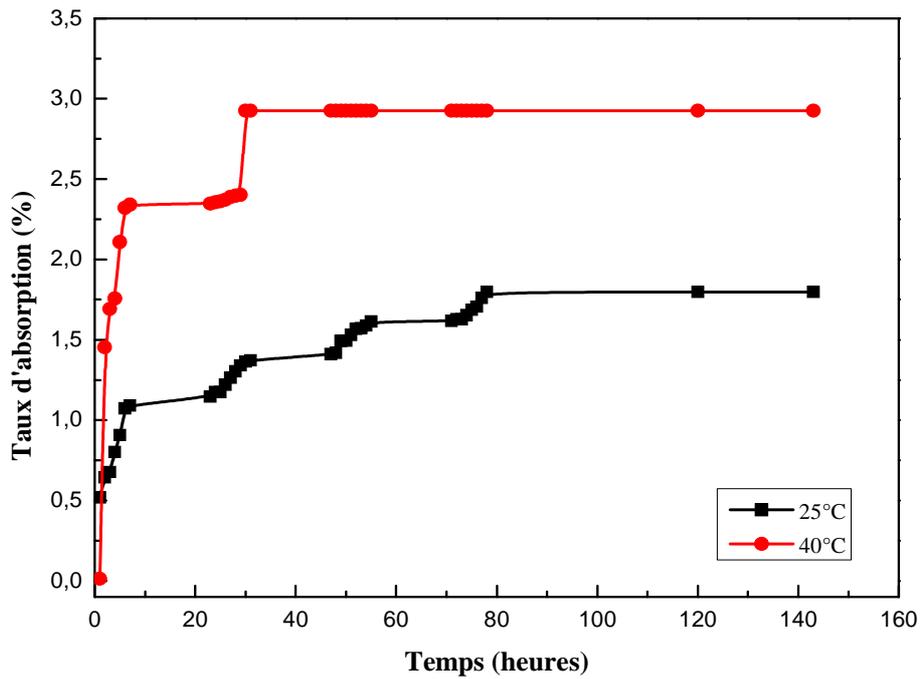
Figure V.27. Variations du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE (80/20) à farine traitée à 25°C en fonction du temps.



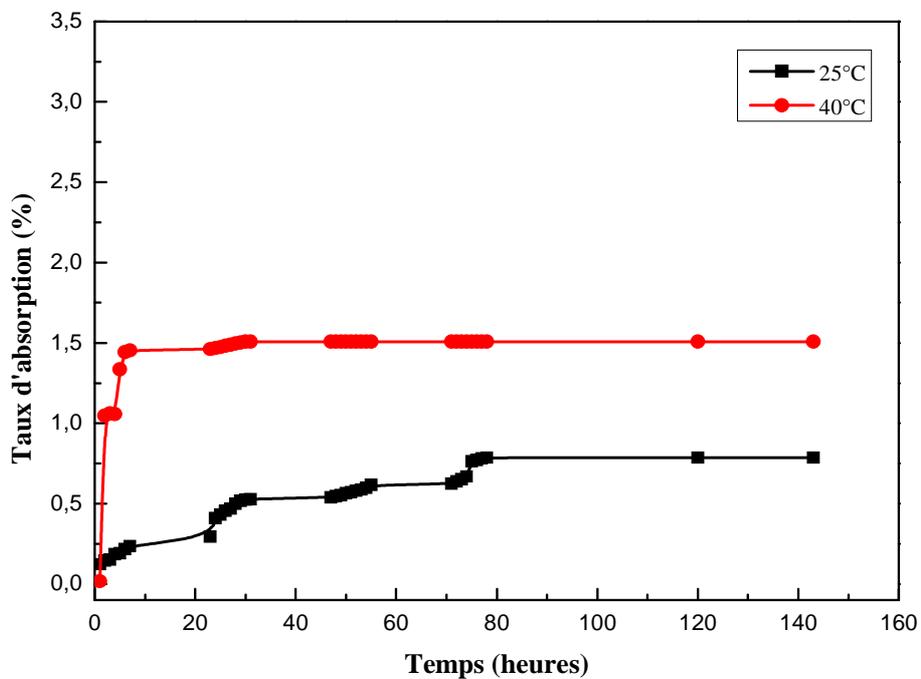
**Figure V.28.** Variations du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée à 25°C à en fonction du temps.

### V.7.1.3. Effet de la température

L'effet de la température de traitement sur l'absorption d'eau des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps est représenté sur les figures V.29 et V.30. D'après ces figures, on remarque que l'augmentation de la température conduit à une augmentation du taux d'absorption d'eau.



**Figure V.29.** Effet de la température de traitement sur le taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH pendant 48h.



**Figure V.30.** Effet de la température de traitement sur le taux d'absorption d'eau des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH pendant 72h.

## V.7.2. Effet d'absorption d'eau sur les propriétés des composites PEBD/GE

### V.7.2.1. Effet d'absorption d'eau sur les propriétés en traction des composites PEBD/GE

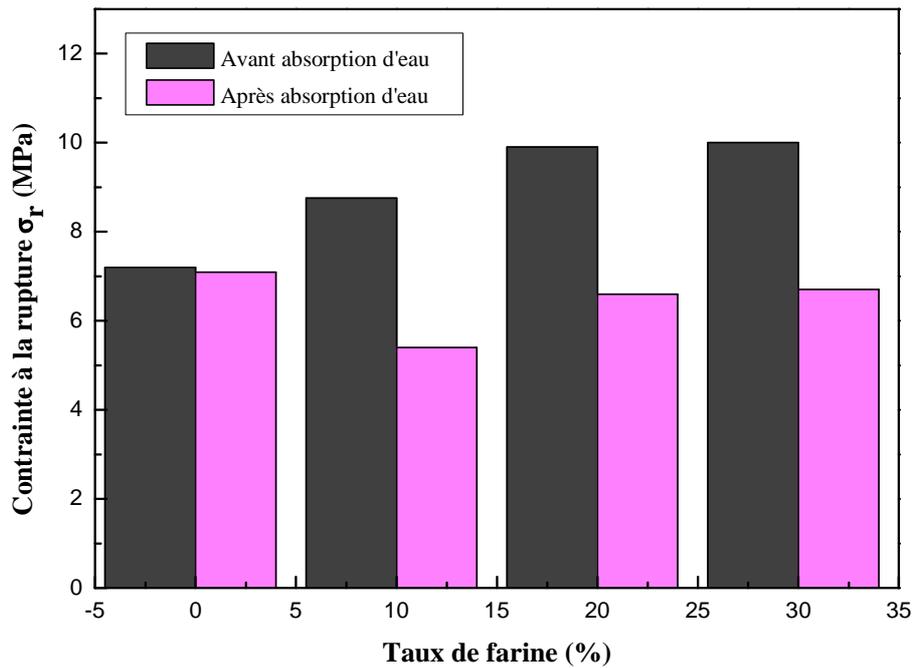
En général, les propriétés des matériaux composites à base de charges végétales sont affectées par l'humidité, due à l'effet des molécules d'eau qui modifient les propriétés et la structure de la farine, de la matrice polymérique et de l'interface polymère-charge. L'eau absorbée conduit à un gonflement de la farine et la structure de la matrice peut aussi être affectée par l'absorption d'eau telle qu'une réorientation de la chaîne et son rétrécissement.

L'humidité joue un rôle important dans l'énergie de liaison. Lorsque la farine est enrobée d'un polymère, celui-ci se lie à la paroi par des mécanismes physiques et/ou chimiques (réaction avec les groupements  $-OH$ ). L'humidité a donc peu d'effet sur l'adhésion charge/polymère, son action sur la cohésion globale dépend du nombre de sites occupés par celui-ci, ou encore de groupements hydroxyles accessibles.

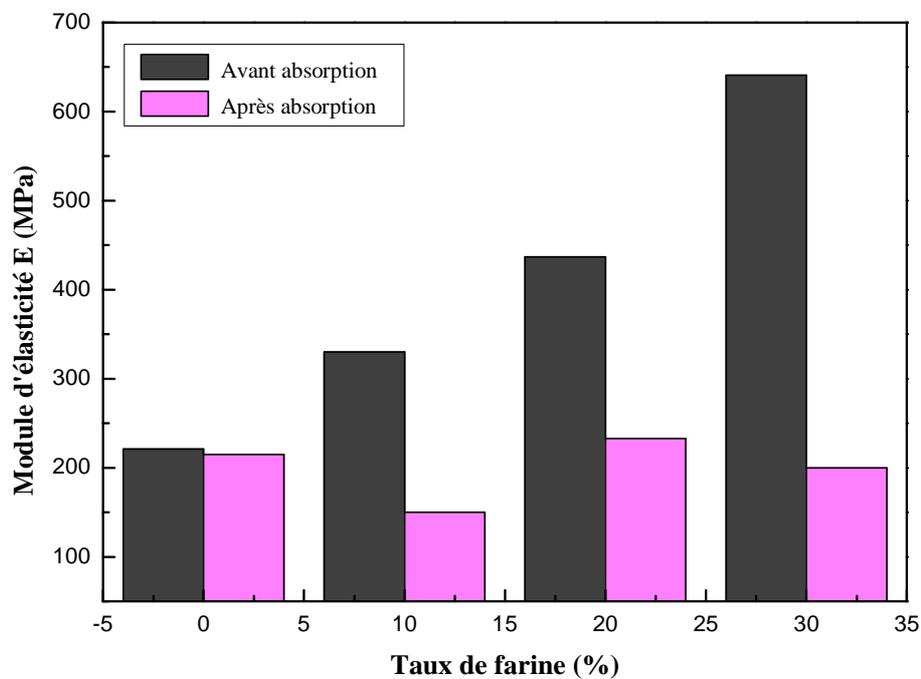
La fixation de molécules d'eau par de liaison faible entre les macromolécules autorise des mouvements de reptation entre macromolécules de plus grande ampleur expliquant les différents phénomènes observés. Il semble donc que la plastification engendre les mêmes conséquences sur le composite que sur le polymère vierge.

La mesure des propriétés en traction vient appuyer cette hypothèse. La contrainte à la rupture et le module diminuent après absorption d'eau (figure V.31 et V.32) ; alors que la déformation à la rupture montre une légère amélioration (figure V.33). La diminution de la rigidité du composite est attribué au phénomène plastifiant de l'eau peut également s'expliquer par une dégradation partielle de la charge végétale [105]. L'effet du traitement sur les propriétés en traction des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par le NaOH après absorption d'eau est représenté par les figures V.34, V.35 et V.36.

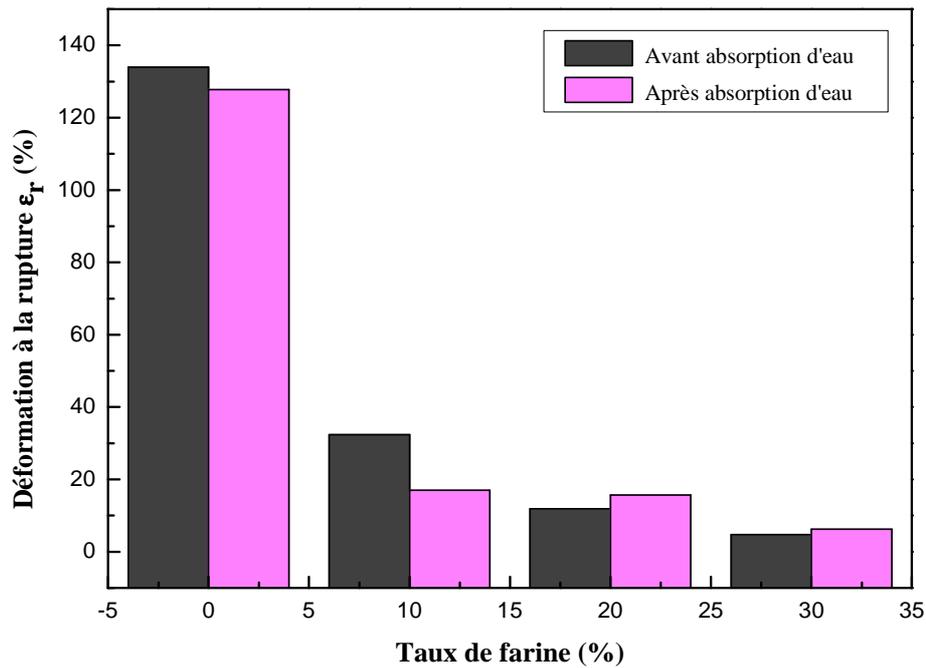
On constate d'une façon générale que les composites à farine traitée par NaOH exhibent un comportement moins hydrophile, d'où une amélioration de la compatibilité entre les deux phases. Ces résultats sont en accord avec ceux trouvés par **Nachtigall** et ses collaborateurs [106].



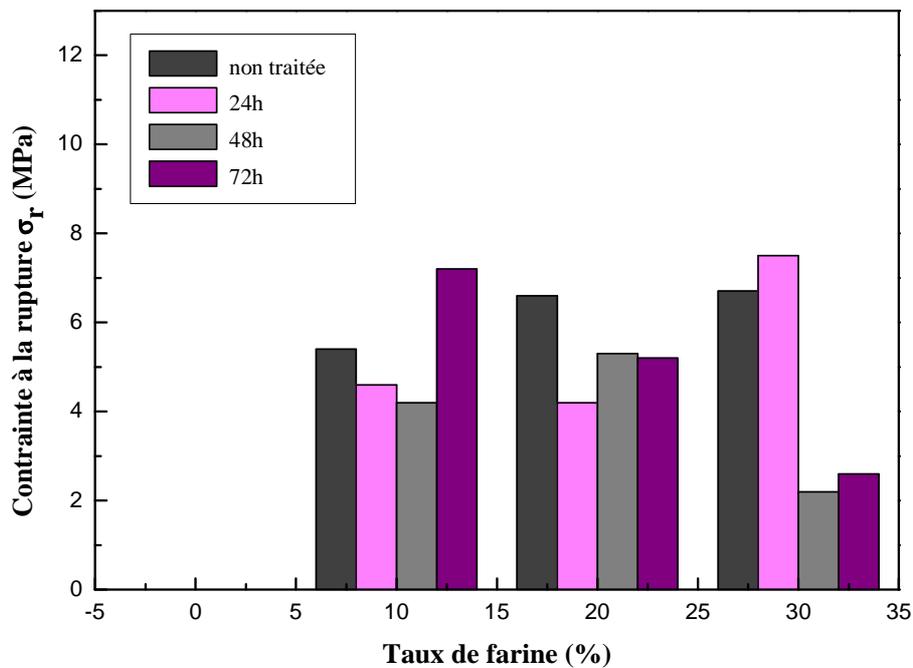
**Figure V.31.** Variations de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après absorption d'eau.



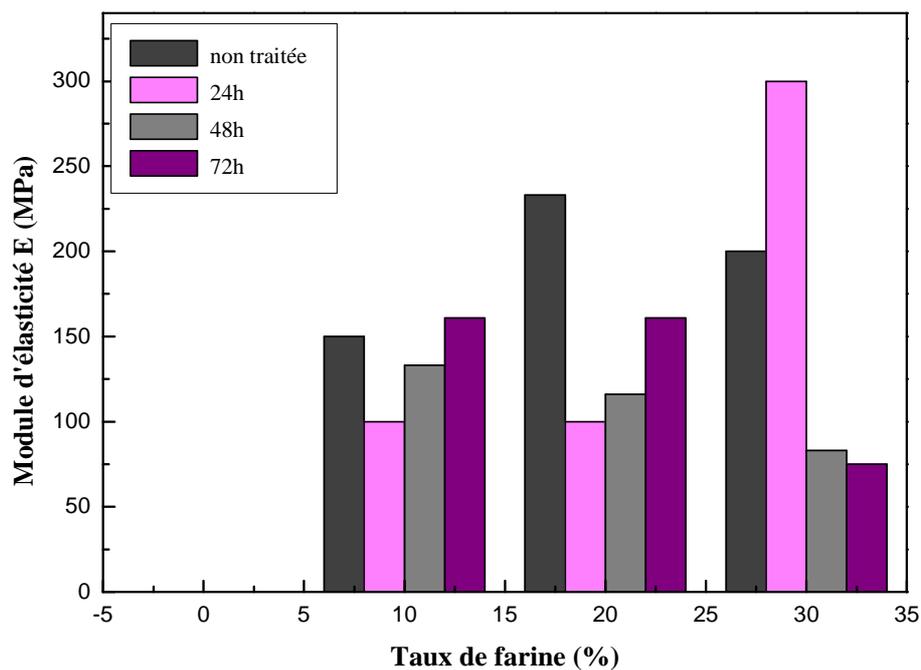
**Figure V.32.** Variations du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après absorption d'eau.



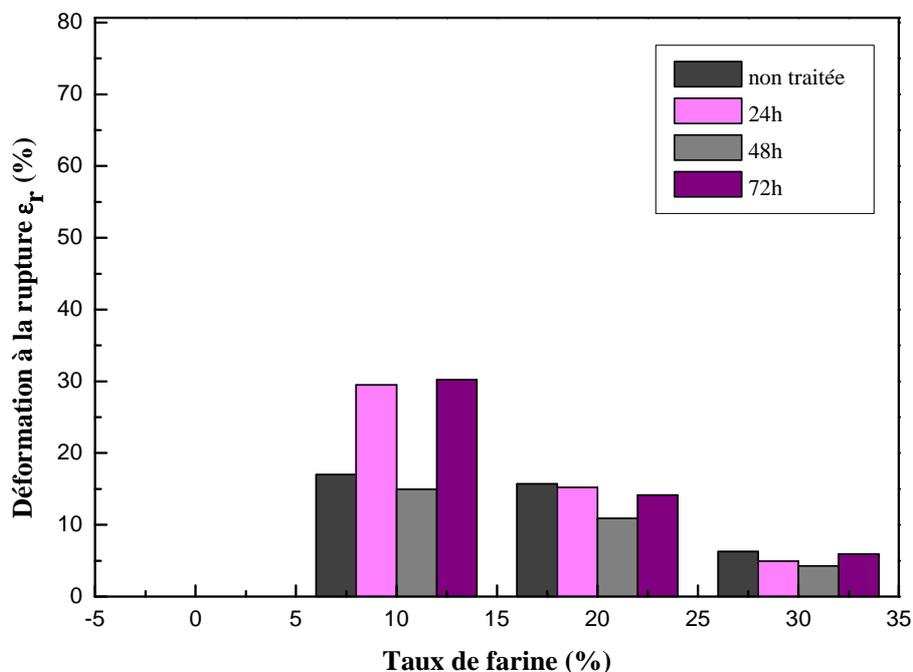
**Figure V.33.** Variations de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après absorption d'eau.



**Figure V.34.** Variations de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après absorption d'eau.



**Figure V.35.** Variations du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après absorption d'eau.



**Figure V.36.** Variations de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après absorption d'eau.

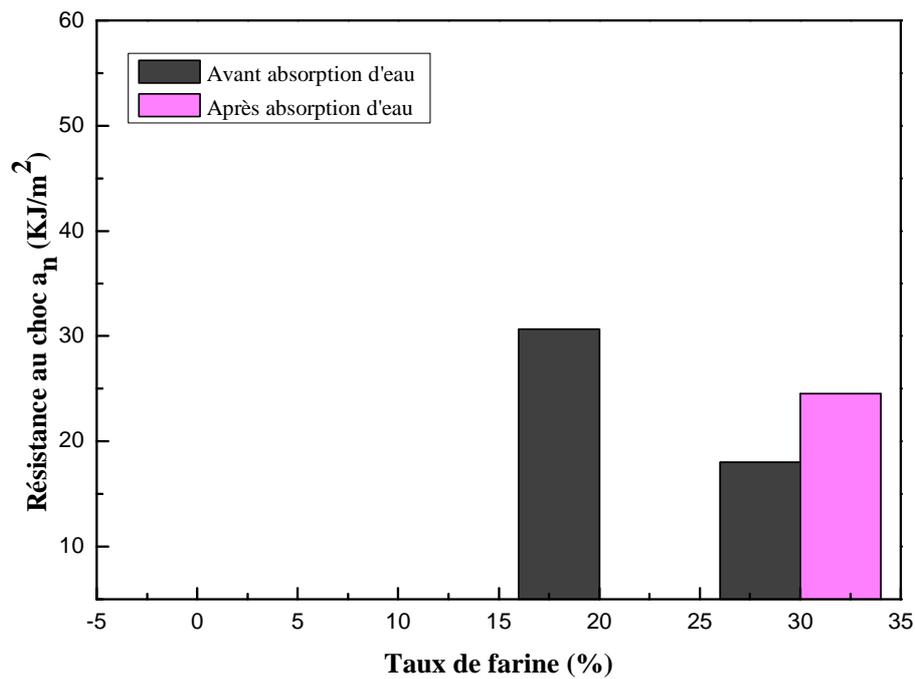
Le tableau V.11 rassemble les valeurs des propriétés à la traction après absorption d'eau des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps de traitement et à différentes températures 25°C et à 40°C. D'après les valeurs du tableau, on constate que pour un temps de traitement de 24 h à T= 40°C, il y a une diminution de la contrainte à la rupture. Alors que l'augmentation du temps de traitement à T= 40°C, améliore la contrainte à la rupture. Le module montre une faible valeur à t =24 h et T = 40°C et une augmentation de ce dernier avec l'augmentation du temps de traitement et de la température est observé. Alors que la déformation n'a pas été affectée par l'augmentation de la température.

**Tableau V.11.** Valeurs de la contrainte à la rupture, du module d'élasticité et de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps et à différentes températures après absorption d'eau.

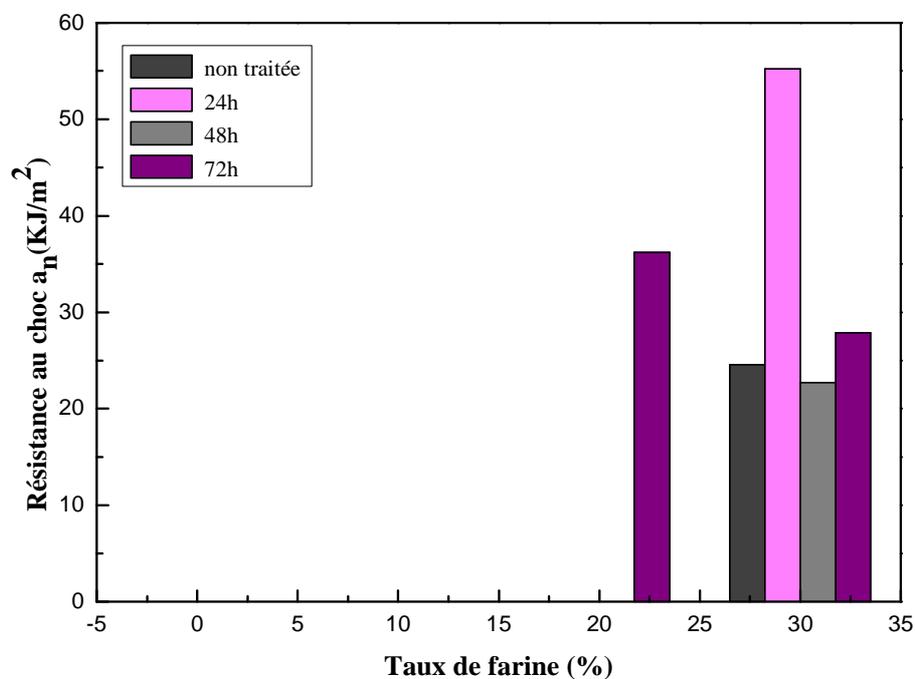
temps de traitement (h)	$\sigma_r$ (MPa)		E (MPa)		$\varepsilon_r$ (%)	
	T (25°C)	T (40°C)	T (25°C)	T (40°C)	T (25°C)	T (40°C)
24	7,50	3,90	300,00	100,00	4,94	8,13
48	2,20	3,90	83,00	200,00	4,26	4,44
72	2,60	5,10	75,00	175,00	5,94	5,16

#### V.7.2.2. Effet d'absorption d'eau sur la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE

Les figures V.37 et V.38 proposent l'évolution de la résistance au choc des éprouvettes non entaillées des composites PEBD/GE à farine non traitée et traitée à différents temps de traitement et à T =25 °C, avant et après absorption d'eau. Ces figures mettent en évidence une augmentation de la résistance au choc de ces matériaux après l'absorption d'eau. Cette augmentation est liée à l'effet plastifiant de l'eau qui facilite la mobilité des chaînes du polyéthylène par rapport à la farine de Genêt d'Espagne. D'autre part, on remarque que le traitement de la farine améliore la résistance au choc des composites. Ces résultats sont en accord avec ceux trouvés par **Dhakal** et ses collaborateurs [107].



**Figure V.37.** Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après absorption d'eau (sans entaille).



**Figure V.38.** Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, à différents temps après absorption d'eau (sans entaille).

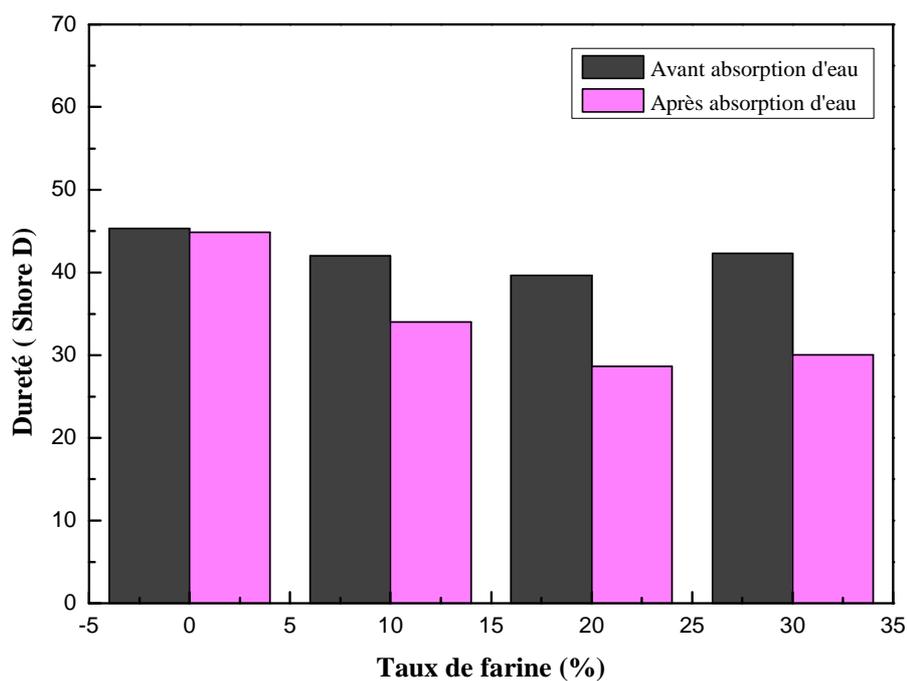
Le tableau V.12 présente les valeurs de la résistance au choc des échantillons non entaillés des composites PEBD/GE à farine traitée à différentes températures et à différents temps de traitement, après absorption d'eau. On constate qu'il y a une diminution de la résilience avec l'augmentation de la température de traitement. Ceci est dû à la diminution de la fraction de cellulose qui entraîne une fragilisation de la farine, et par conséquent la réduction des propriétés mécaniques.

**Tableau V.12.** Valeurs de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE (70/30) à farine traitée par NaOH à différents temps de traitement et à différentes températures après absorption d'eau.

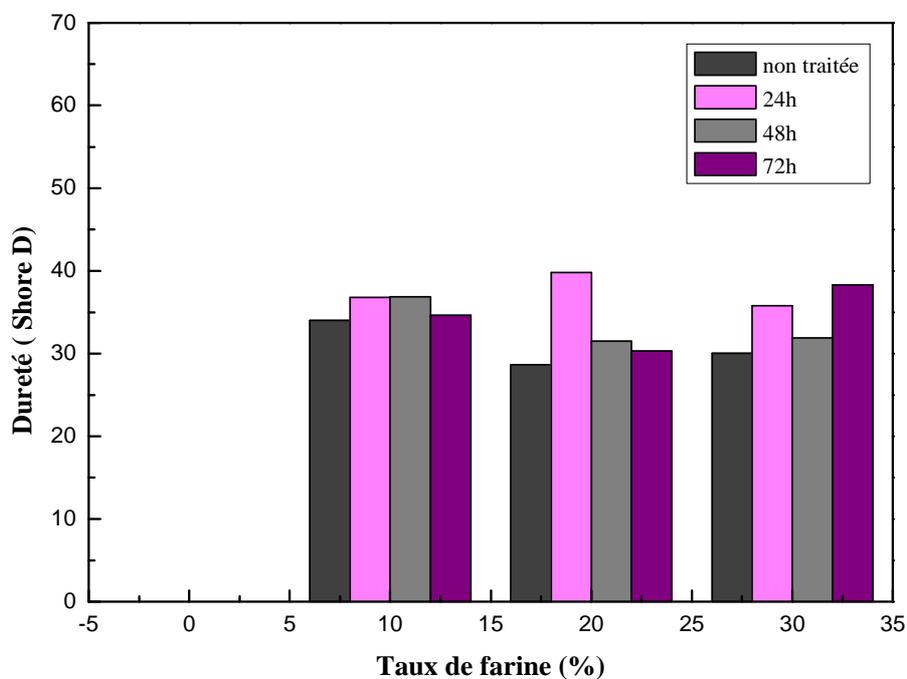
temps de traitement (h)	Résistance au choc $a_n$ (KJ/m <sup>2</sup> )	
	T (25°C)	T (40°C)
24	55,22	25,69
48	22,71	23,92
72	27,86	19,97

### V.7.2.3. Effet d'absorption d'eau sur la dureté des composites PEBD/GE

L'effet d'absorption d'eau sur la dureté est représenté par les figures V.39 et V.40. On observe que la dureté diminue après absorption d'eau. Ceci est dû à l'effet des molécules d'eau qui modifient les propriétés et la structure de la charge, de la matrice polymérique et de l'interface polymère-charge. Le traitement de la farine montre une certaine amélioration de dureté des composites.



**Figure V.39.** Variations de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après absorption d'eau.



**Figure V.40.** Variations de la dureté des composites PEBD/ GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C à, après absorption d'eau.

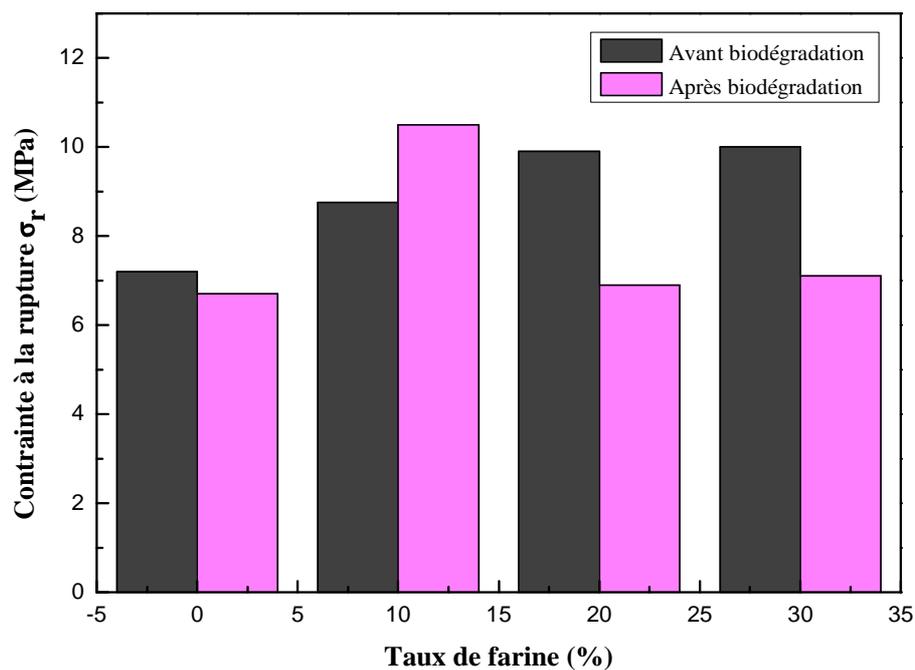
## V.8. Etude de la biodégradation des composites PEBD/GE

### V.8.1. Effet de la biodégradation sur les propriétés en traction des composites PEBD/GE

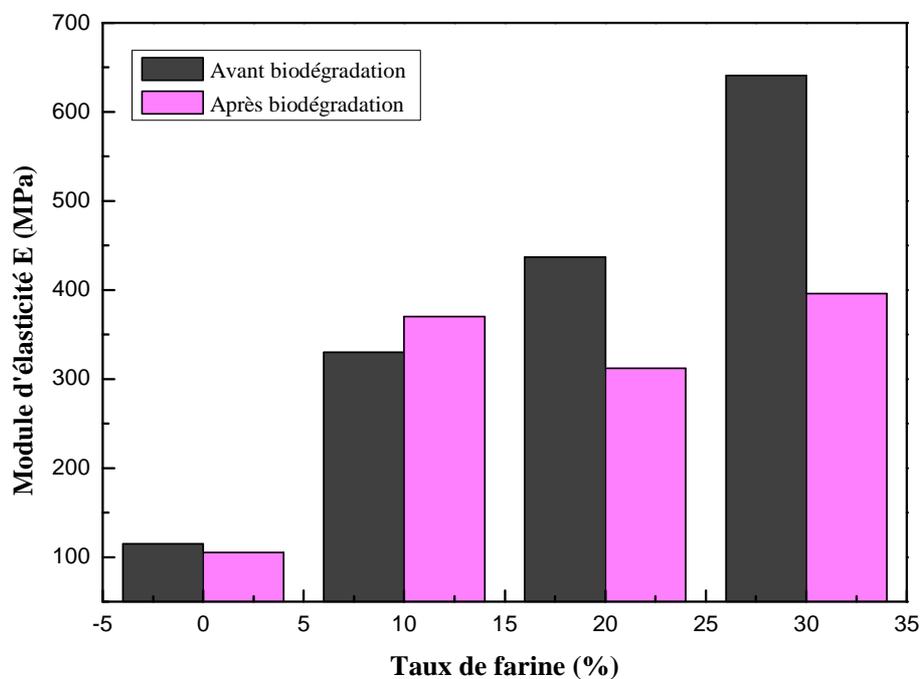
Les figures V.41 et V.42 représentent les variations de la contrainte à la rupture et du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après dégradation (3 mois sous les conditions climatiques). On observe une amélioration de la contrainte à la rupture et du module d'élasticité pour les composites à un taux de 10% de farine. On peut l'expliquer par le fait qu'à faible taux de renfort, la matrice qui est la phase dominante, peut enrober la charge d'où empêche le contact des micro-organismes avec la charge. Puis, une chute dans les valeurs de la contrainte à la rupture et du module d'élasticité est observée pour les composites à des taux de 20 et 30% en farine.

Cette chute des propriétés est due à la dégradation du matériau par les microorganismes comme les bactéries, les champignons et les algues. Autrement dit, c'est une dégradation biologique qui met en jeu l'action des microorganismes par exemple par voie enzymatique conduisant à une décomposition au niveau moléculaire et chimique. Il en résulte alors la formation de  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  en présence d'oxygène (ou la formation de  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  en anaérobiose) [108].

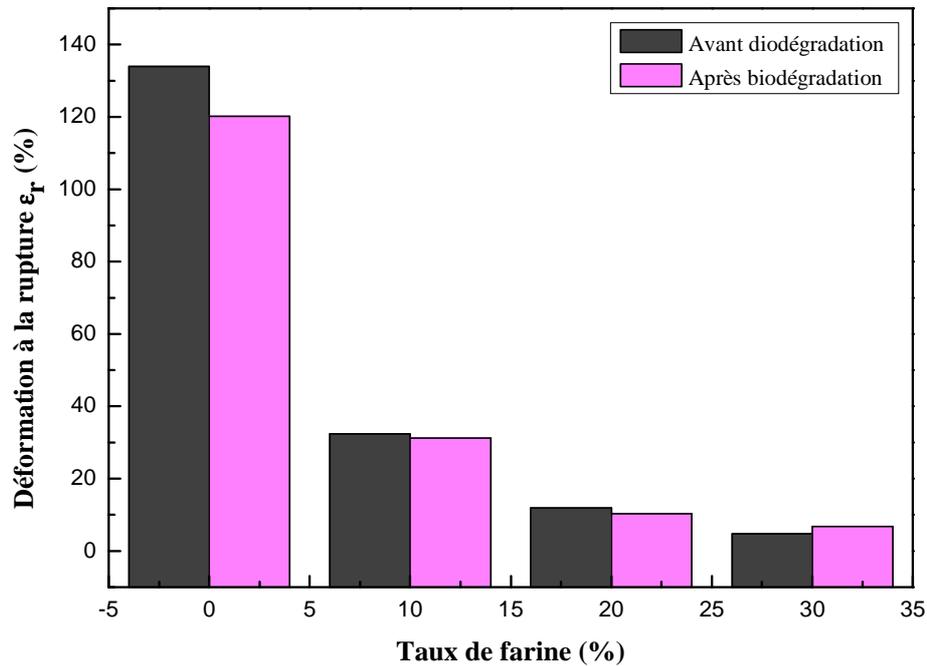
La figure V.43 montre qu'il n'y a pas de variation importante de la déformation à la rupture des composites après biodégradation.



**Figure V.41.** Variations de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après biodégradation.

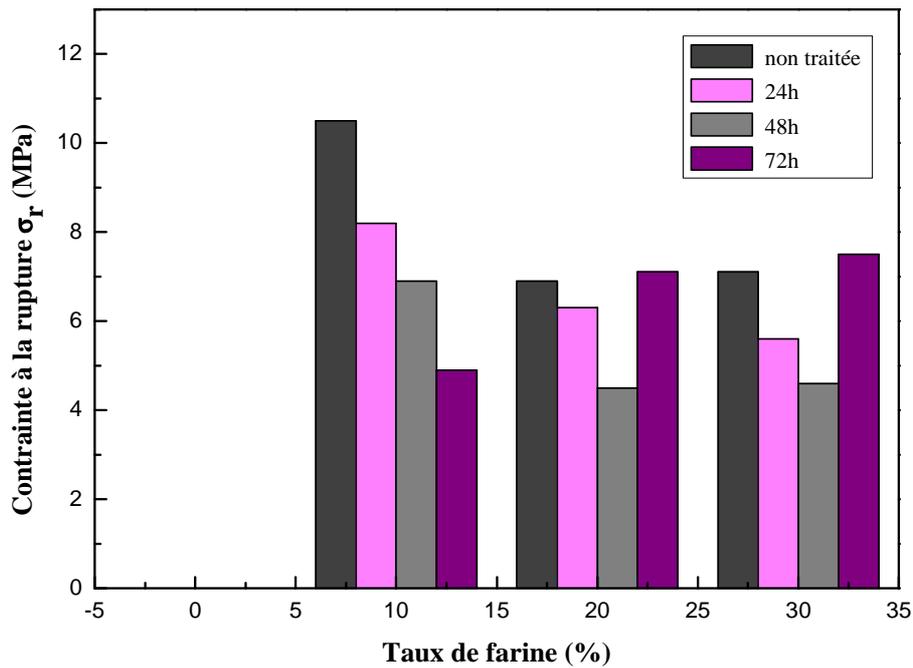


**Figure V.42.** Variations du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après biodégradation

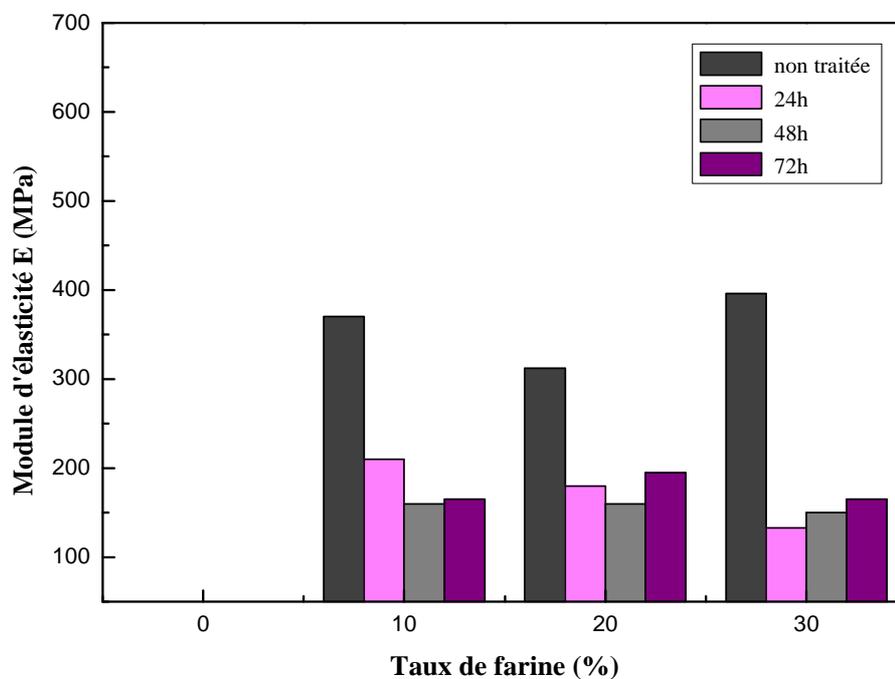


**Figure V.43.** Variations de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après biodégradation.

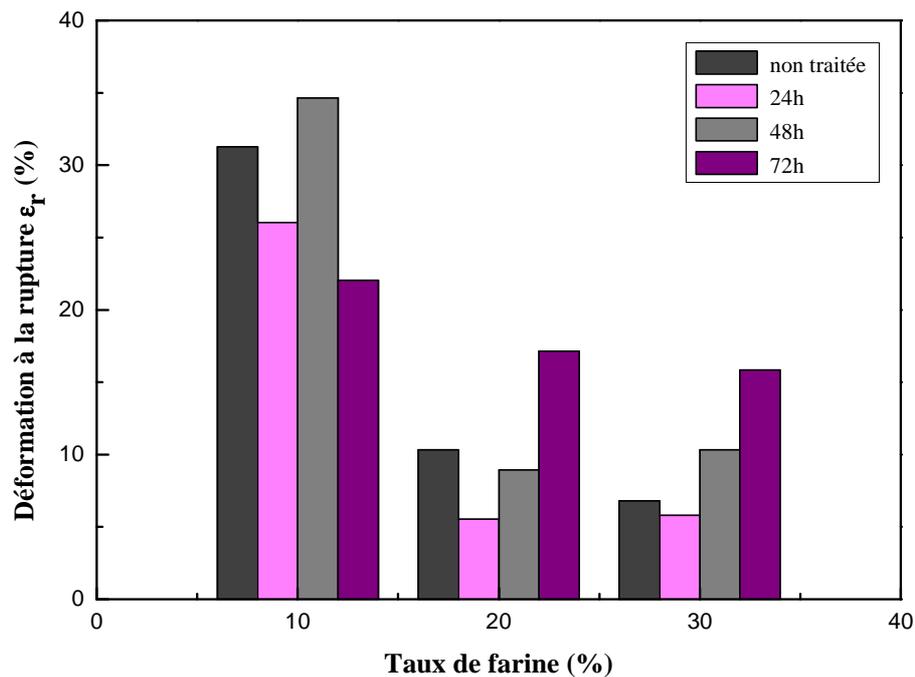
Les variations de la contrainte à la rupture, du module d'élasticité et de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par le NaOH, après biodégradation sont représentées sur les figures V.44, V.45 et V.46 respectivement. On remarque une diminution de la contrainte à la rupture et le module d'élasticité après traitement de la farine. Tandis que, la déformation à la rupture a augmenté après biodégradation.



**Figure V.44.** Variations de la contrainte à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après biodégradation.



**Figure V.45.** Variations du module d'élasticité des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après biodégradation.

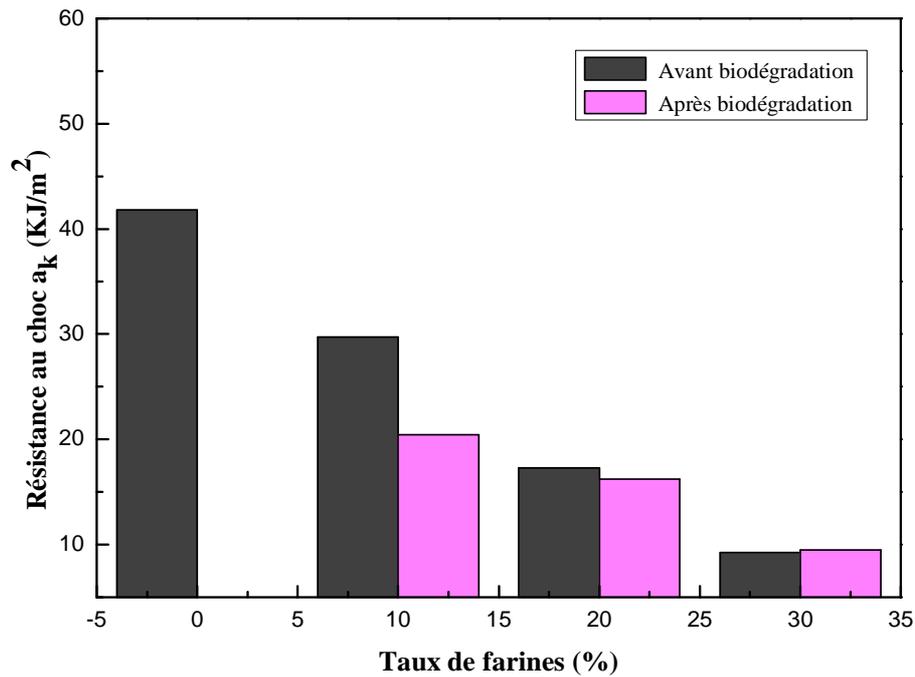


**Figure V.46.** Variations de la déformation à la rupture des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après biodégradation.

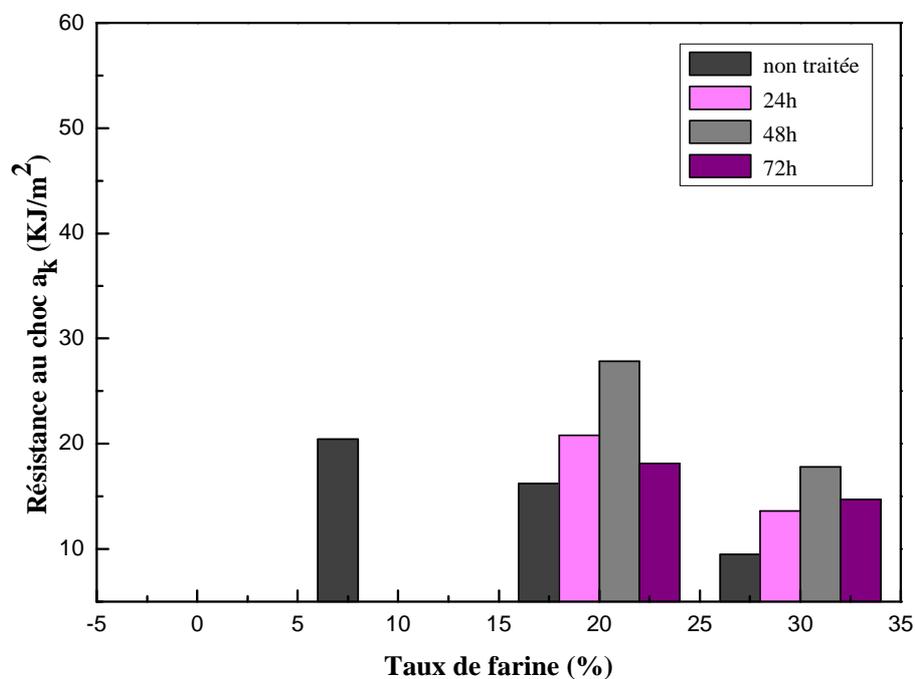
### V.8.2. Effet de la biodégradation sur la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE

D'après la figure V.47, il apparaît une diminution de la résistance au choc des composites due à l'effet de la biodégradation. Cette diminution est le résultat de la destruction de la chaîne cellulosique par les microorganismes conduisant à la formation de molécules simples et de fragments de plus petite taille.

Le traitement de la farine par le NaOH améliore sa dispersion et augmente l'interface de contact avec le polymère ce qui conduit à une augmentation de la résistance des composites par rapport aux composites à farine non traitée (figure V.48).



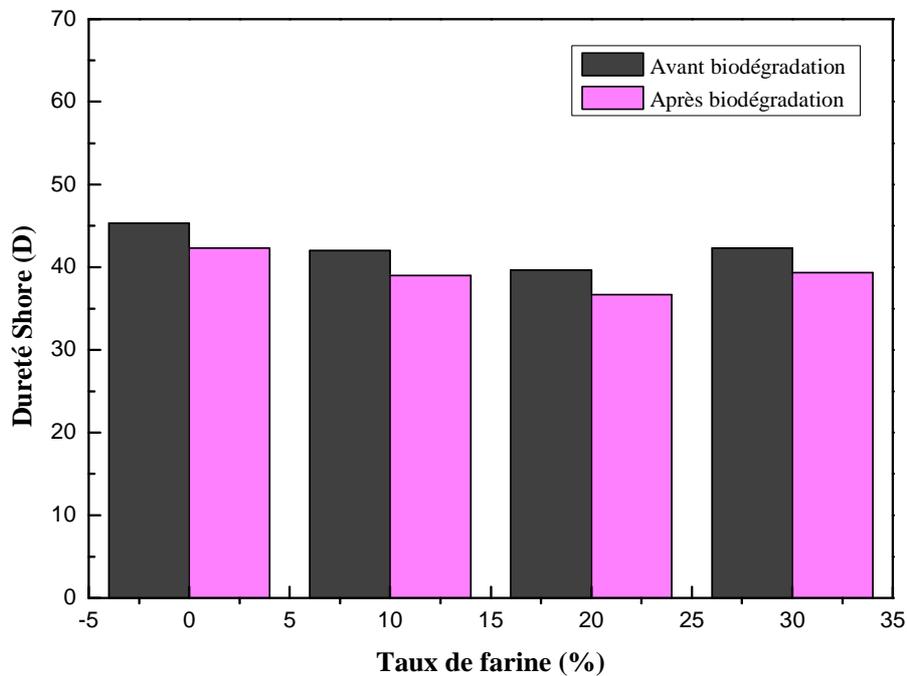
**Figure V.47.** Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après biodégradation.



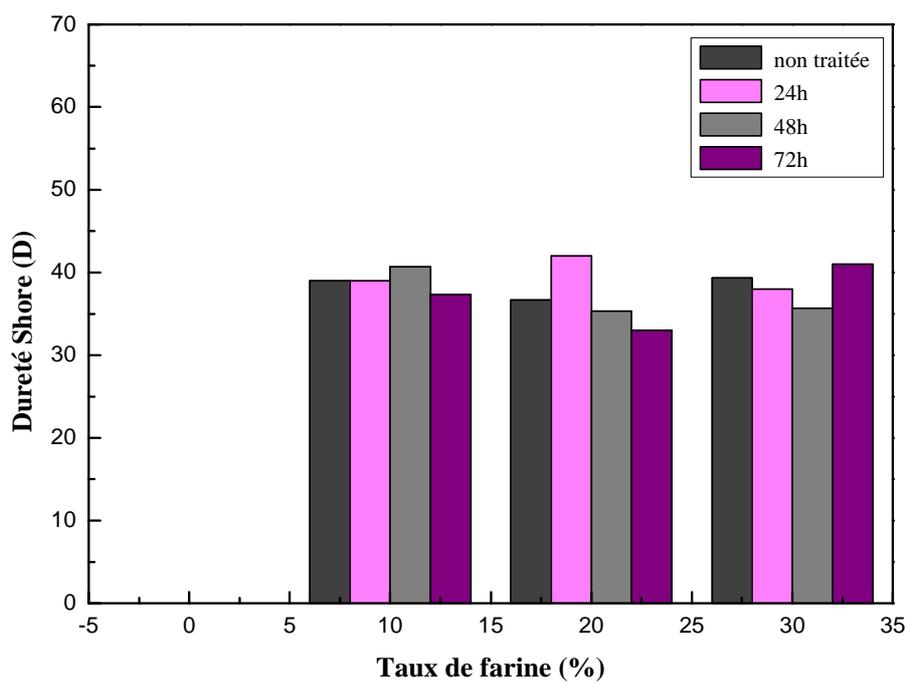
**Figure V.48.** Variations de la résistance au choc (Izod) des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à  $25^\circ\text{C}$ , après biodégradation.

### V.8.3. Effet de la biodégradation sur la dureté des composites PEBD/GE

La figure V.49 représente les variations de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée, avant et après dégradation. On observe une légère diminution de la dureté après la durée d'exposition aux conditions climatiques. Ceci, est dû à la dégradation du matériau par les microorganismes comme les bactéries, les champignons et les algues. L'effet du traitement sur dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine, après biodégradation est représenté sur la figure V.50. On observe aussi, qu'il y a une faible amélioration de cette propriété avec le traitement.



**Figure V.49.** Variations de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée avant et après biodégradation.



**Figure V.50.** Variations de la dureté des composites PEBD/GE en fonction du taux de farine non traitée et traitée par NaOH à 25°C, après biodégradation.

# **CONCLUSIONS**

## CONCLUSIONS

Le présent travail avait pour objectif d'établir des corrélations entre les propriétés des composites à farine végétale et la présence d'un traitement par mercerisation de la surface de farine de Genêt d'Espagne.

L'investigation a porté sur des composites à base de polyéthylène basse densité et la farine de Genêt d'Espagne traitée par le NaOH à différent temps et à différentes températures.

Les résultats obtenus en infrarouge ont montré que la structure de farine de Genêt d'Espagne a changé après le processus de traitement. Le pic à  $3400\text{ cm}^{-1}$  assigné à la vibration du groupe hydroxyle (-OH) et le pic à  $1052\text{ cm}^{-1}$  assigné à la vibration du groupe (C-O) de l'hémicellulose et de la lignine sont nettement réduits de fait de l'élimination partielle de l'hémicellulose et de la lignine. La bande d'absorption à  $1644\text{ cm}^{-1}$  qui correspond à l'absorption d'eau, due au caractère hydrophilique de la farine de Genêt d'Espagne disparaît après le traitement. Aussi, la présence d'un pic à  $1248\text{ cm}^{-1}$  caractéristique de l'élongation des liaisons C-O-C du groupement d'éther de la lignine qui a également disparu après le traitement.

L'évolution du pourcentage de perte en masse est progressivement importante au cours des 48 premières heures de traitement, puis elle commence à se stabiliser après une durée de traitement de 48 heures.

L'étude des propriétés mécaniques (traction) a montré que la contrainte et l'allongement à la rupture des composites diminuent avec l'augmentation du taux de farine. Mais il y a une certaine amélioration de ces derniers par le traitement. Le module d'élasticité croît progressivement. L'augmentation de la température de traitement ( $40^{\circ}\text{C}$ ) a provoqué une diminution des propriétés en traction.

Les résultats des propriétés au choc sont similaires à ceux de la déformation à la rupture. Les composites avec un taux de charges élevé ont des valeurs de la résistance au choc plus faible. Le traitement de la charge végétale, montre une amélioration de la résistance au choc des composites à farine traitée par rapport à ceux à charge non modifiée. L'augmentation de la température de traitement de la charge végétale a diminué la résilience des matériaux composites.

Les résultats de la dureté ont montré que cette dernière n'a pas été affectée par le taux de charge ou par le traitement.

La caractérisation rhéologique de différentes formulations des composites a montré une diminution de l'indice de fluidité avec l'augmentation du taux de farine non traitée. Le traitement montre une faible amélioration des valeurs de l'indice de fluidité des composites à farine traitée par le NaOH que celles des composites à farine non modifiée.

L'augmentation de la température de traitement favorise le mouvement libre des chaînes macromoléculaires qui améliore les valeurs de l'indice de fluidité des composites.

D'après les études thermiques par DSC, l'incorporation de la charge de Genêt d'Espagne non traitée ou traitée à la matrice du polyéthylène n'a pas d'influence sur la valeur de la température de fusion, mais une augmentation du taux de cristallinité est observée. La surface de la farine agit comme des sites de nucléation qui modifient la cinétique de cristallisation du polyéthylène.

L'incorporation de la farine de GE non traitée ou traitée à différents temps et à différentes températures n'a pas d'influence sur la densité du matériau composite.

Le taux d'absorption d'eau dépend du temps et du taux de farine de Genêt d'Espagne dans le matériau composite. Le traitement de la farine contribue à une diminution du taux d'absorption d'eau.

La contrainte à la rupture et le module diminuent après absorption d'eau. Les composites à farine traitée par NaOH exhibent un comportement moins hydrophile.

Les études menées sur l'évolution de la résistance au choc et de la dureté après absorption d'eau ont montré une augmentation des valeurs de la résilience et une diminution de la dureté. Le traitement de la charge a montré une amélioration de la résilience et de la dureté.

L'étude de la biodégradabilité des composites PEBD/GE a montré une chute dans les propriétés mécaniques pour tous les composites à farine non traitée. Le traitement de la farine montre une certaine amélioration de ces propriétés.

# **PERSPECTIVES**

## **PERSPECTIVES**

Pour une poursuite de ce travail, nous avons formulé les perspectives suivantes:

- Effectuer une caractérisation thermique des composites PEBD/Farine de Genêt d'Espagne par l'analyse thermogravimétrique (ATG).
- Faire une étude morphologique par microscopie électronique à balayage (MEB).
- L'utilisation d'autres traitements chimiques économiques pour la modification de la surface de la farine de Genêt d'Espagne.

**RÉFÉRENCES**  
**BIBLIOGRAPHIQUES**

## Références Bibliographiques

- [1] R. Djelouah. « **Comportement Mécanique Résiduel de Polymères Après Vieillesse Chimique en Présence de l'Acide Sulfurique** ». Thèse de magister, Département Génie des Procédés Industriels, Université M'hamed Bougara Boumerdes, Algérie, (2009), pp. 1-2.
- [2] A. Seyni. « **Propriétés Physico-Chimiques et d'Usage de Matériaux Composites à Charge Degradable Produits par Co-Broyage** ». Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, France, (2008), pages multiples.
- [3] H. Bewa. « **Journée Technique: Les Applications Industrielles des Fibres Végétales** » [en ligne], (2009). Disponible sur : <[www.ademe-fibresvegetales.fr](http://www.ademe-fibresvegetales.fr)>. (Consulté le 02.01.2010).
- [4] Eco-Sapiens. « **Année Internationale des Fibres Naturelles** » [en ligne], (2009). Disponible sur : <[www.eco-sapiens.com/actualite-260-2009--Annee-internationale-des-fibres-naturelles.html](http://www.eco-sapiens.com/actualite-260-2009--Annee-internationale-des-fibres-naturelles.html)>. (Consulté le 03.01.2010).
- [5] C. Pouteau. « **Matériaux Composites à Renforts Fibres Naturelles d'Origine Végétale** » [en ligne]. Disponible sur : <[www.poleplasturgie.net/site/download/.../VISIONSFiche7.pdf](http://www.poleplasturgie.net/site/download/.../VISIONSFiche7.pdf)>. (Consulté le 07.01.2010).
- [6] Goum.Info. « **Plantes à Fibres** » [en ligne], (2007). Disponible sur : <[plantes-a-fibres.goum.info/](http://plantes-a-fibres.goum.info/)>. (Consulté le 08.01.2010).
- [7] P. Julve. « **Spartier à Tiges de Jonc** » [en ligne], (2004). Disponible sur : <<http://fr.wikipedia.org/wiki/Spartier>>. (Consulté le 12.12.2009).
- [8] F. Fabre. « **Catalogue des Plantes de l'Hérault** » [en ligne], (2005). Disponible sur : <[www.ambhhc.org/presentation.html](http://www.ambhhc.org/presentation.html)>. (Consulté le 15.01.2010).
- [9] P. Ozenda. « **Flore du Sahara** ». 2<sup>ème</sup> Edition, France: Centre National de la Recherche Scientifique, (1983), pp. 622.

- [10] M. Franck. « **Rhéologie de Panneaux Composites Bois/Thermoplastiques Sous Chargement Thermomécanique: Aptitude au Postformage** ». Thèse de doctorat, Département Mécanique, Aéronautique et Ingénieries, Université Bordeaux1, France, (2003), pp. 2-3.
- [11] H. Djidjelli. « **Etude des Propriétés Thermiques, Mécaniques et Diélectriques de Nouvelles Formulations à Base de Polychlorure de Vinyle (PVC)** ». Thèse de doctorat, Faculté des Sciences de l'Ingénieur, Université Ferhat Abbas Sétif, Algérie, (2002), pp. 9-10.
- [12] Carma. « **Glossaire des Matériaux Composites Renforcés de Fibres d'Origine Renouvelable** » [en ligne], (2006). Disponible sur : < [www.cleanshaper.com/3.0/xoops/modules/.../visit.php?...](http://www.cleanshaper.com/3.0/xoops/modules/.../visit.php?...) > (Consulté le 06.01.2010).
- [13] Cnr-Ismaç. « **L'Année Internationale des Fibres Naturelles 2009** » [en ligne], (2009). Disponible sur : <[www.naturalfibres2009.org/fr/index.html](http://www.naturalfibres2009.org/fr/index.html)>. (Consulté le 16.01.2010).
- [14] M. Mosiniak et R. Part. « **Les Textiles d'Origine Végétale** » [en ligne], Université Pierre et Marie Curie, France, (2005). Disponible sur :< [www.Snv.jussieur.fr/bmedia/textiles/index.html](http://www.Snv.jussieur.fr/bmedia/textiles/index.html)>. (Consulté le 19.01.2010).
- [15] L. Mwaikambo and E. Bisanda. « **The Performance of Cotton/Kapok Fabric-Polyester Composites** ». Polymer Testing, Vol. 18, n° 3, (1999), pp. 181-198.
- [16] B.C. Barkakaty. « **Some Structural Aspects of Sisal Fibers** ». Journal of Applied Polymer Science, Vol. 20, n° 2931, (1976), pp. 2921-2940.
- [17] A.K. Bledzki and J. Gassan. « **Composites Reinforced With Cellulose Based Fibres** ». Progress in Polymer Science, Vol. 24, n° 2, (1999), pp. 221-274.
- [18] C.G. Jaldon. « **Caractérisation Morphologique et Chimique du Chanvre (Cannabis Sativa)/ Prétraitement à la Vapeur et Valorisation** ». Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, France, (1992), pp. 12.

[19] C. Satge. « **Etude de Nouvelles Stratégies de Valorisation de Mono et Poly-Saccharides** ». Thèse de doctorat, Faculté des Sciences et Techniques, Université de Limoges, France, (2002), pages multiples.

[20] R. Prat, M. Mosiniak et J.C. Roland. « **La Paroi Primaire de la Cellule Végétale** ». Cours de Biochimie de l'Université Pierre et Marie Curie de Paris, (2002). **Référence tirée de:** D. Sedan. « **Etude des Interactions Physico-Chimiques aux Interfaces Fibres de Chanvre/Ciment. Influence sur les Propriétés Mécaniques du Composite** ». Thèse de doctorat, Faculté des Sciences et Techniques, Université de Limoges, France, (2007), pp. 10-26.

[21] J.P. Joseleau et M. Renaudo. « **La Biomasse Végétale Substitut du Pétrole** » [en ligne], (2009). Disponible sur : <media.lcpc.fr/ext/pdf/sem/2009\_jc/Session1/1\_Joseleau.pdf>. (Consulté le 20.01.2010).

[22] N. Joly. « **Synthèse et Caractérisation de Nouveaux Films Plastiques Obtenus par Acylation et Réticulation de la Cellulose** ». Thèse de doctorat, Chimie des Substances Naturelles, Université de Limoges, France, (2003), pp. 12.

[23] S. Pavithran, P.S. Mukherjee, M. Brahmakumer and A.D. Domadarn. « **Impact Performance of Sisal/Polyester Composites** ». Journal of the Materials Science Letters, Vol. 7, n° 8, (1988), pp. 825-826.

[24] P.S. Mukherse and K.G. Satyanarayana. « **An Empirical Evaluation of Structure-Property Relationships in Natural Fibres and their Fracture Behavior** ». Journal of the Materials Science, Vol. 21, n° 12, (1986), pp. 4162-4165.

[25] D. Sedan. « **Etude des Interactions Physico-Chimiques aux Interfaces Fibres de Chanvre/Ciment. Influence sur les Propriétés Mécaniques du Composite** ». Thèse de doctorat, Faculté des Sciences et Techniques, Université de Limoges, France, (2007), pp. 10-26.

[26] A.K. Mazumdar. « **A Note on the Hemicelluloses of Some Bast Fibers** ». Journal of Scientific and Industrial Research, Vol. 14, n° B, (1955), pp. 542-544.

- [27] B. Monties. « **Les Polymères Végétaux, Polymères Pariétaux et Alimentaires non Azoté** ». France: Gauthier-Villards, (1980), pp. 345.
- [28] S. A. Paul, A. Boudenne, L. Ibos, Y. Candau, K. Joseph and S. Thomas. « **Effect of Fiber Loading and Chemical Treatments on Thermophysical Properties of Banana Fiber/Polypropylene Commingled Composite Materials** ». *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 39, n° 9, (2008), pp. 1582-1588.
- [29] N. Quelenis. « **Les Matériaux Composites à Base de Fibres Végétales** » [en ligne], (2005). Disponible sur :< [veillestrategique.champagne-ardenne.cci.fr/.../index.php?...12matériaux-composites...](http://veillestrategique.champagne-ardenne.cci.fr/.../index.php?...12matériaux-composites...)>. (Consulté le 22.01.2010).
- [30] C. Pouteau. « **Les Fibres Naturelles Végétales Comme Élément de Différentiation** » [en ligne], (2007). Disponible sur :< [www.go-plast.com/.../Les\\_fibres\\_naturelles\\_comme\\_outil\\_de\\_différenciation.pdf](http://www.go-plast.com/.../Les_fibres_naturelles_comme_outil_de_différenciation.pdf) ->. (Consulté le 20.01.2010).
- [31] B. Kechaou. « **Corrélation entre Propriétés Diélectriques et Mécaniques de Composites à Matrices Epoxyde Renforcée par des Fibres de Verres E** ». Thèse de doctorat, Ecole Centrale de Lyon et de la Faculté des Sciences de Sfax, France, (2003), pp. 25.
- [32] C. Zapata. « **Synthèse de Matériaux Composites par Co-Broyage en Voie Sèche. Caractérisation des Propriétés Physico-Chimiques et d'Usages des Matériaux** ». Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique, Université Toulouse, France, (2004), pp. 20-21.
- [33] T. Payot. « **Les Agro-Matériaux** » [en ligne], (2007). Disponible sur :< [www.cg28.fr/.../Conférence%20agrodynamique%20091007%20\\_%20Les%20agromatériaux.pdf](http://www.cg28.fr/.../Conférence%20agrodynamique%20091007%20_%20Les%20agromatériaux.pdf)>. (Consulté le 02.03.2010).
- [34] F.L. Houllier. « **Incorporation de Co-Produits de Paille de Blé dans des Matrices Thermoplastiques: Approche de la Compatibilité Charge-Matrice et Propriétés des Composites** ». Thèse de doctorat, Ecole Doctorale Sciences-Santé, Université de Reims Champagne-Ardenne, France, (2004), pp. 59.

[35] S. Berlioz, S. Boisseau and L. Heux. « **Reinforcement of Polyethylene With Esterified Cellulose Microfibrils** ». Congrès GFP (Groupe Français des Polymères), France, (2008), pp. 1.

[36] L. Kheloufi. « **Adhésifs et Techniques de Collage: Caractérisation de l'Adhérence** ». Thèse de magister, Faculté des Sciences de l'Ingénieur, Université M'hamed Bougara Boumerdes, Algérie, (2007), pp. 4.

[37] H.D. Rozman, M.J. Saad and Z.A. M. Ishak. « **Flexural and Impact Properties of Oil Palm Empty Fruit Bunch (EFB)-Polypropylene Composites-The Effect of Maleic Anhydride Chemical Modification of EFB** ». Polymer Testing, Vol. 22, n° 3, (2003), pp. 335-341.

[38] A.K. Mohanty, M.A. Khan and G. Hinrichsen. « **Influence of Chemical Surface Modification on the Properties of Biodegradable Jute Fabrics-Polyester Amide Composite** ». Composites Part A: Applied Science Manufacturing, Vol. 31, n° 2, (2000), pp. 143-150.

[39] Y. Habibi, W.K. El-Zawawy, M.M. Ibrahim and A. Dufresne, « **Processing and Characterization of Reinforced Polyethylene Composites Made With Lignocellulosic Fibers from Egyptian Agro-Industrial Residues** ». Composites Science and Technology, Vol. 68, n° 7-8, (2008), pp. 1877-1885.

[40] C.S.R. Freire, A. J. D. Silvestre, C. P. Neto, A. Gandini, L. Martin and I. Mondragon. « **Composites Based on Acylated Cellulose Fibers and Low-Density Polyethylene: Effect of the Fiber Content, Degree of Substitution and Fatty Acid Chain Length on Final Properties** ». Composites Science and Technology, Vol. 68, n° 15-16, (2008), pp. 3358-3364.

[41] M. Bengtsson, P. Gatenholm and K. Oksman. « **The Effect of Crosslinking on the Properties of Polyethylene/Wood Flour Composites** ». Composites Science and Technology, Vol. 65, n° 10, (2005), pp. 1468-1479.

- [42] M. Abdelmouleh, S. Boufi, M.N. Belgacem and A. Dufresne. « **Short Natural-Fibre Reinforced Polyethylene and Natural Rubber Composites: Effect of Silane Coupling Agents and Fibres Loading** ». *Composites Science and Technology*, Vol. 67, n° 7-8, (2007), pp. 1627-1639.
- [43] D. Poquillon, B. Viguier and E. Andrieu. « **Compression de Fibres Enchevêtrées Calibrées en Nylon et Aluminium: Expériences et Modélisations** ». 18<sup>ème</sup> Congrès Français de Mécanique, France, (2007), pp. 3-4.
- [44] A. Bentur, N. Bantia and J.D. Baggot. « **Fiber-Matrix Interfaces, Pre-Proceedings of International Workshop on High Performance Fiber Reinforced Composites** ». Vol. 2, USA: A.E. Naaman and H.W. Reinhardt, (1995), pp. 417.
- [45] C. Klason, J. Kubat and H.E. Stromvall. « **The Efficiency of Cellulosic Fillers in Common Thermoplastics. Part I. Filling Without Processing Aids or Coupling Agents** ». *International Journal of Polymeric Materials*, Vol. 10, n° 3, (1984), pp. 159-187.
- [46] V.C. Li, S. Wang and M. Backer. « **Effect of Inclining Angle, Bunding and Surface Treatment on Synthetic Fiber Pull-out From a Cement Matrix** ». *Composites*, Vol. 21, n° 2, (1990), pp. 132-140.
- [47] P. Castéra. « **Comportement Physico-Mécanique des Matériaux Fibreux Cellulosiques Considérés Comme des Milieux Aléatoires** » [en ligne], (2002). Disponible sur : <[pem.utbm.fr/materiaux\\_2002/file/pdf/CM2077.PDF](http://pem.utbm.fr/materiaux_2002/file/pdf/CM2077.PDF)>. (Consulté le 07.03.2010).
- [48] A. Espert, F. Vilaplana and S. Karlsson. « **Comparison of Water Absorption in Natural Cellulosic Fibres from Wood and One-Year Crops in Polypropylene Composites and its Influence on their Mechanical Properties** ». *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 35, n° 11, (2004), pp. 1267-1276.
- [49] E.T.N. Bisanda and M.P. Ansell. « **The Effect of Silane Treatment on the Mechanical and Physical Properties of Sisal-Epoxy Composites** ». *Composites Science and Technology*, Vol. 41, n° 2, (1991), pp. 165-178.

- [50] N. Jouault. « **Nanocomposites Silice/Polymère: Structure des Charges, Renforcement Mécanique, Conformation des Chaînes, Evolution sous Déformation** ». Thèse de doctorat, Laboratoire Léon Brillouin LLB, Université de Bretagne-Sud, France, (2009), pp. 24.
- [51] M. Pervaiz and M.M. Sain. « **Carbon Storage Potential in Natural Fiber Composites**». Resources Conservation and Recycling, Vol. 39, n° 2, (2003), pp. 325-340.
- [52] A.C. Karmaker, A. Hoffmann and G. Hinrichsen. « **Influence of Water Uptake on the Mechanical Properties of Jute Fiber-Reinforced Polypropylene** ». Journal of Applied Polymer Science, Vol. 54, n° 12, (1994), pp. 1803-1807.
- [53] D. M. Panaitescu, M. Iorga, Z. Vuluga, D. Donescu, M. Dan, S. Serban et D. Florea. « **L'Effet de l'Interface dans les Composites de Fibres Naturelles et de Matières Plastiques** ». Revue Roumaine de Chimie, Vol. 52, n° 4, (2007), pp. 409-414.
- [54] K. Oksman and H. Lindberg. « **The Influence of a SBS Compatibilizer in Polyethylene-Wood Flour** ». International Journal of the Biology, Chemistry, Physics and Technology of Wood, Vol. 52, n° 6, (1998), pp. 661-666.
- [55] L. Hua, P. Flodin and T. Rönhult. « **Cellulose Fiber-Polyester Composites With Reduced Water Sensitivity (2)-Surface Analysis** ». Polymer Composites, Vol. 8, n° 3, (1987), pp. 199-202.
- [56] F.G. Torres and M.L. Cubillas. « **Study of the Interfacial Properties of Natural Fibre Reinforced Polyethylene** ». Polymer Testing, Vol. 24, n° 6, (2005), pp. 694-698.
- [57] E. H. Babacar. « **Nouveaux Matériaux Composites Thermoformables à Base de Fibres de Cellulose** ». Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, France, (2008), pages multiples.
- [58] J. Simonsen, Z. Hong and T.G. Rials. « **The Properties of the Wood-Polystyrene Interphase Determined by Inverse Gas Chromatography** ». Wood and Fiber Science, Vol. 29, n° 1, (1997), pp. 75-84.

- [59] M.N. Belgacem and A. Gandini. « **The Surface Modification of Cellulose Fibres for Use as Reinforcing Elements in Composite Materials** ». *Composite Interfaces*, Vol. 12, n° 1, (2005), pp. 41-75.
- [60] R. Foerch, J. Izawa and G. Spears. « **A Comparative Study of the Effects of Remote Nitrogen Plasma, Remote Oxygen Plasma, and Corona Discharge Treatments on the Surface Properties of Polyethylene** ». *Journal of Adhesion Science Technology*, Vol. 5, n° 7, (1991), pp. 549-564.
- [61] R. Orazi. « **The Effect of Plasma Treatment on Flax Fibres** ». Master these, Department of Agricultural and Bioresource Engineering, University of Saskatchewan, Canada, (2008), pages multiples.
- [62] K. Kato, V.N. Vasilets, M.N. Fursa, M. Meguro, Y. Ikada and K. Nkamae. « **Surface Oxidation of Cellulose Fibers by Vacuum Ultraviolet Irradiation** ». *Journal of Polymer Science Part A: Polymer Chemistry*, Vol. 37, n° 3, (1999), pp. 357-361.
- [63] J.Gassan and V.S. Gutowski. « **Effects of Corona Discharge and UV Treatment on the Properties of Jute-Fibre Epoxy Composites**». *Composite Science and Technology*, Vol. 60, n° 15, (2000), pp. 2857-2863.
- [64] R.D. Gilbert and J.F. Kadla. « **Cellulose Structure: A Review** ». *Cellulose Chemistry and Technology*, Vol. 34, n° 3, (2000), pp. 197-216.
- [65] G. Cantero, A. Arbelaiz, R. Llano-Ponte and I. Mondragon. « **Effects of Fibre Treatment on Wettability and Mechanical Behaviour of Flax/Polypropylene Composites** ». *Composites Science and Technology*, Vol. 63, n° 9, (2003), pp. 1247-1254.
- [66] P. Jandura, B.V. Kokta and B. Riedl. « **Thermal Degradation Behavior of Cellulose Fibers Partially Esterified With Some Long Chain Organic Acids**». *Polymer Degradation and Stability*, Vol. 70, n° 3, (2000), pp. 387-394.
- [67] M.L. Hassan, R.M. Rowell, N.A. Fadl, S.F. Yakoub and A.W. Christensen. « **Thermoplasticization of Bagasse. I. Preparation and Characterization of Esterified Bagasse Fibers** ». *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 76, n° 4, (2000), pp. 561-574.

- [68] C.S. Peyratout, M.L. Troëdec, T. Chotard, J.P. Bonnet et A. Smith. « **Modification Physico-Chimique des Interactions Entre les Fibres de Chanvre et la Chaux : Impacts sur les Propriétés Mécaniques des Mortiers** ». 18<sup>ème</sup> Congrès Français de Mécanique, France, (2007), pp. 1-5.
- [69] Z. Dominkovics, L. Dányádi and B. Pukánszky. « **Surface Modification of Wood Flour and its Effect on the Properties of PP/Wood Composites** ». Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, Vol. 38, n° 8, (2007), pp. 1893-1901.
- [70] P. N. Tri et G. Villoutreix . « **Rôle du Processus de Traitement de Surface sur les Propriétés Mécaniques du Composite PP/Fibres de Bambou Vietnamienn**e ». Overseas Vietnamese Chemistry and Chemical Technology Conference, France, (2008), pp. 27.
- [71] A. Stocchi, B. Lauke, A. Vázquez and C. Bernal. « **A Novel Fiber Treatment Applied to Woven Jute Fabric/Vinylester Laminates** ». Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, Vol. 38, n° 5, (2007), pp. 1337-1343.
- [72] D. Ray, B.K. Sarkar, A.K. Rana and N.R. Bose. « **The Mechanical Properties of Vinylester Resin Matrix Composites Reinforced With Alkali-Treated Jute Fibres** ». Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, Vol. 32, n° 1, (2001), pp. 119-127.
- [73] H. Demir, U. Atikler, D. Balköse and F. Tihminlioğlu. « **The Effect of Fiber Surface Treatments on the Tensile and Water Sorption Properties of Polypropylene-Luffa Fiber Composites** ». Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, Vol. 37, n° 3, (2006), pp. 447-456.
- [74] S. Nekkaa. « **Etude des Propriétés d'un Nouveau Matériau Composite à Base de Polypropylène Renforcé par une Fibre Végétale Locale** ». Thèse de doctorat, Faculté des Sciences de l'Ingénieur, Université Ferhat Abbas Sétif, Algérie, (2007), pages multiples.
- [75] N. Djilali. « **Etude et Valorisation du Grignon d'Olive dans le Domaine des Composites** ». Thèse de magister, Faculté de Technologie, Université A/Mira Béjaia, Algérie, (2008), pp. 61-86.

[76] ISO. « **Détermination des Propriétés en Traction** ». EN ISO 527-3:1995 F, Belgique, (1995), pp. 3-4.

[77] ISO. « **Détermination de la Résistance au Choc Izod** ». EN ISO 180:2000 F, Belgique, (2000), pp. 3-4

[78] ISO. « **Détermination de la Dureté par Pénétration au Moyen d'un Duromètre (Dureté Shore)** ». EN ISO 868:1997 F, Belgique, (1999), pp. 2-3.

[79] ISO. « **Détermination de l'Indice de Fluidité à Chaud des Thermoplastiques, en Masse (MFR) et en Volume (MVR)** ». EN ISO 1133:1999 F, Belgique, (1999), pp. 2-8.

[80] ISO. « **Analyse Calorimétrique Différentielle (DSC)** ». EN ISO 11357-1:1997 F, Belgique, (1997), pp. 1.

[81] ISO. « **Détermination de la Masse Volumique par la Méthode du Pycnomètre** ». EN ISO 1675:1998 F, Belgique, (1998), pp. 1-2.

[82] ISO. « **Plastiques Renforcés de Fibres-Détermination de l'Absorption d'Eau par Immersion** ». EN ISO 2378 : 1995 F, France, (1995), pp. 5-6.

[83] ISO. « **Evaluation de l'Action des Micro-Organismes** ». EN ISO 846:1997 F, Belgique, (1997), pp. 3.

[84] K. Boumerdassi, A. Serier et M. Serier. « **Elaboration et Caractérisation de Composites Biodégradables** ». Congrès GFP (Groupe Français des Polymères), France, (2008), pp. 1-2.

[85] S.K. Madhuban, S.K. Bhaduri, S.K. Banerjee and K.P. Sao. « **Acetylation of Jute and Infrared Spectra of Acetylated Jute** ». Indian Journal of Textile Research, Vol. 10, n° 68, (1985), pp. 68-70.

[86] F. Corrales, F. Vilaseca, M. Lop, J. Gironès, J.A. Méndez and P. Mutjè. « **Chemical Modification of Jute Fibers for the Production of Green-Composites** ». Journal of Hazardous Materials, V. 144, n° 3, (2007), pp. 730-735.

[87] X. Colom, F. Carrasco, P. Pagès and J. Canavate. « **Effects of Different Treatments on the Interface of HDPE/Lignocellulosic Fiber Composites** ». *Composites Science and Technology*, Vol. 63, n° 2, (2003), pp. 161-169.

[88] P.W. Balasuriya, L.Ye and Y.W. Mai. « **Mechanical Properties of Wood Flake Polyethylene Composites. Part I: Effects of Processing Methods and Matrix Melt Flow Behaviour** ». *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 32, n° 5, (2001), pp. 619-629.

[89] K. Oksman and C. Clemons. « **Mechanical Properties of Impact Modified Polypropylene-Wood Flour Composites** ». *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 67, n° 9, (1998), pp. 1503-1513.

[90] A. Bendahou, Y. Habbibi, H. Kaddami et A. Dufresne. « **Matériaux Composites à Base des Fibres Lignocellulosiques et de Matrices Thermoplastiques (PP et PEBD)** ». *Revue Roumaine de Chimie*, Vol. 54, n° 7, (2009), pp. 557-563.

[91] N. Chand and U.K. Dwivedi. « **Effect of Coupling Agent on Abrasive Wear Behaviour of Chopped Jute Fibre-Reinforced Polypropylene Composites** ». *Wear*, Vol. 261, n° 10, (2006), pp. 1057-1063.

[92] D. Pasquini, E.M. Teixeira, A.A.S. Curvelo, M.N. Belgacem and A. Dufresne. « **Surface Esterification of Cellulose Fibres: Processing and Characterisation of Low-Density Polyethylene/Cellulose Fibres Composites** ». *Composites Science and Technology*, Vol. 68, n° 1, (2008), pp. 193-201.

[93] C.F. Kuan, H.C. Kuan, C.C.M. Ma and C.M. Huang. « **Mechanical, Thermal and Morphological Properties of Water-Crosslinked Wood Flour Reinforced Linear Low-Density Polyethylene Composites** ». *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 37, n° 10, (2006), pp. 1696-1707.

[94] M. Bengtsson and K. Oksman. « **The Use of Silane Technology in Crosslinking Polyethylene/Wood Flour Composites** ». *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 37, n° 5, (2006), pp. 752-765.

- [95] V.A. Alvarez and A. Vázquez. « **Influence of Fiber Chemical Modification Procedure on the Mechanical Properties and Water Absorption of MaterBi-Y/Sisal Fiber Composites** ». *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 37, n° 10, (2006), pp. 1672-1680.
- [96] L. Avérous, C. Fringant and L. Moro. « **Plasticized Starch-Cellulose Interactions in Polysaccharide Composites** ». *Polymer*, Vol. 42, n° 15, (2001), pp. 6565-6572.
- [97] F.L. Digabel, N. Boquillon, P. Dole, B. Monties and L. Avérous. « **Properties of Thermoplastic Composites Based on Wheat-Straw Lignocellulosic Fillers** ». *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 93, n° 1, (2004), pp. 428-436.
- [98] K. Sirisinha and D. Meksawat. « **Comparison in Processability, Mechanical and Thermal Properties of Ethylene-Octene Copolymer Crosslinked by Different Techniques** ». *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 93, n° 3, (2004), pp. 1179-1185.
- [99] P.V. Joseph, K. Joseph, S. Thomas, C.K.S. Pillai, V.S. Prasad, G. Groeninckx and M. Sarkissova. « **The Thermal and Crystallisation Studies of Short Sisal Fibre Reinforced Polypropylene Composites** ». *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, Vol. 34, n° 3, (2003), pp. 253-266.
- [100] H. Bouhafif. « **Effets des Caractéristiques Intrinsèques des Fibres de Bois et des Procédés de Mise en Forme sur la Performance des Matériaux Composites Bois/Thermoplastiques** ». Thèse de doctorat, Institut des Sciences et Industries du Vivant et de l'Environnement, Ecole Doctorale Abies de Paris, France, (2009), pp. 87-91.
- [101] S. Borysiak. « **Determination of Nucleating Ability of Wood for Non-Isothermal Crystallisation of Polypropylene** ». *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, Vol. 88, n° 2, (2007), pp. 455-462.
- [102] H. Liu, Q. Wua and Q. Zhang. « **Preparation and Properties of Banana Fiber-Reinforced Composites Based on High Density Polyethylene (HDPE)/Nylon-6 Blends** ». *Bioresource Technology*, Vol. 1, n° 23, (2009), pp. 6088-6097.

[103] L. Dányádi, T. Janecska, Z. Szabóc, G. Nagy, J. Móczó and B. Pukánszky. « **Wood Flour Filled PP Composites: Compatibilization and Adhesion** ». Composites Science and Technology, Vol. 67, n° 13, (2007), pp. 2838-2846.

[104] A. Bessadok, S. Marais, F. Gouanvé, L. Colasse, I. Zimmerlin, S. Roudesli and M. Métayer. « **Effect of Chemical Treatments of Alfa (Stipa Tenacissima) Fibres on Water-Sorption Properties** ». Composites Science and Technology, Vol. 67, n° 3-4, (2007), pp. 685-697.

[105] A. Arbelaiz, B. Fernández, J.A. Ramos, A. Retegi, R. Llano-Ponte and I. Mondragon. « **Mechanical Properties of Short Flax Fibre Bundle/Polypropylene Composites: Influence of Matrix/Fibre Modification, Fibre Content, Water Uptake and Recycling** ». Composites Science and Technology, Vol. 65, n° 10, (2005), pp. 1582-1592.

[106] S.M.B. Nachtigall, G.S. Cerveira and S.M.L. Rosa. « **New Polymeric-Coupling Agent for Polypropylene/Wood-Flour Composites** ». Polymer Testing, Vol. 26, n° 5, (2007), pp. 619-628.

[107] H.N. Dhakal H.N. Dhakal, Z.Y. Zhang and M.O.W. Richardson. « **Effect of Water Absorption on the Mechanical Properties of Hem Fibre Reinforced Unsaturated Polyester Composites** ». Composites Science and Technology, Vol. 67, n° 7-8, (2007), pp. 1674-1683.

[108] H.N. Rabetafika, M. Paqot et P. Dubois. « **Les Polymères Issus du Végétal : Matériaux à Propriétés Spécifiques pour des Applications Ciblées en Industrie Plastique** ». Biotechnology, Agronomy, Society and Environment, Vol. 10, n° 3, (2006), pp. 185-196.

# **ANNEXE A**

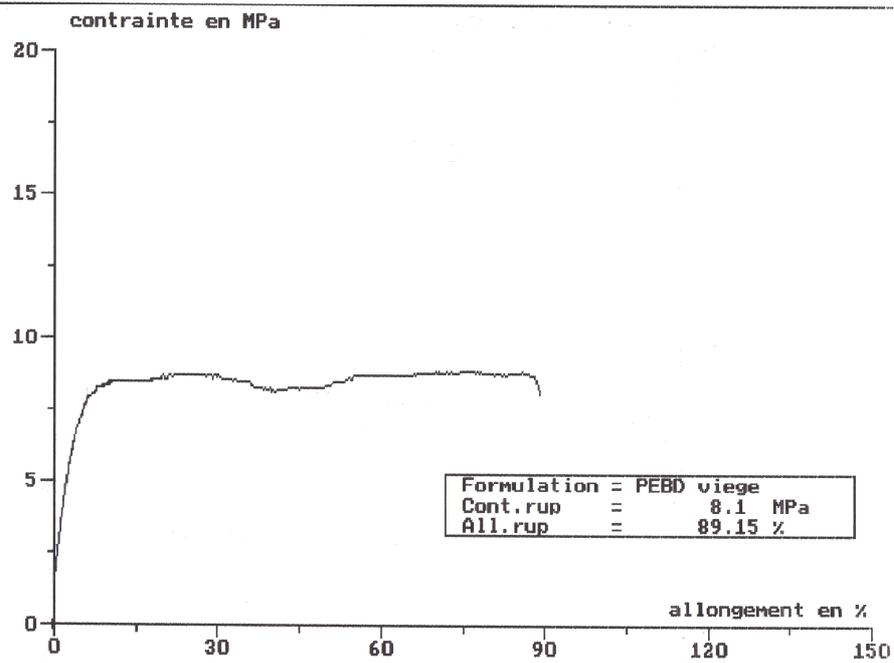


Figure 1. Courbe de traction du PEBD vierge (épreuve1).

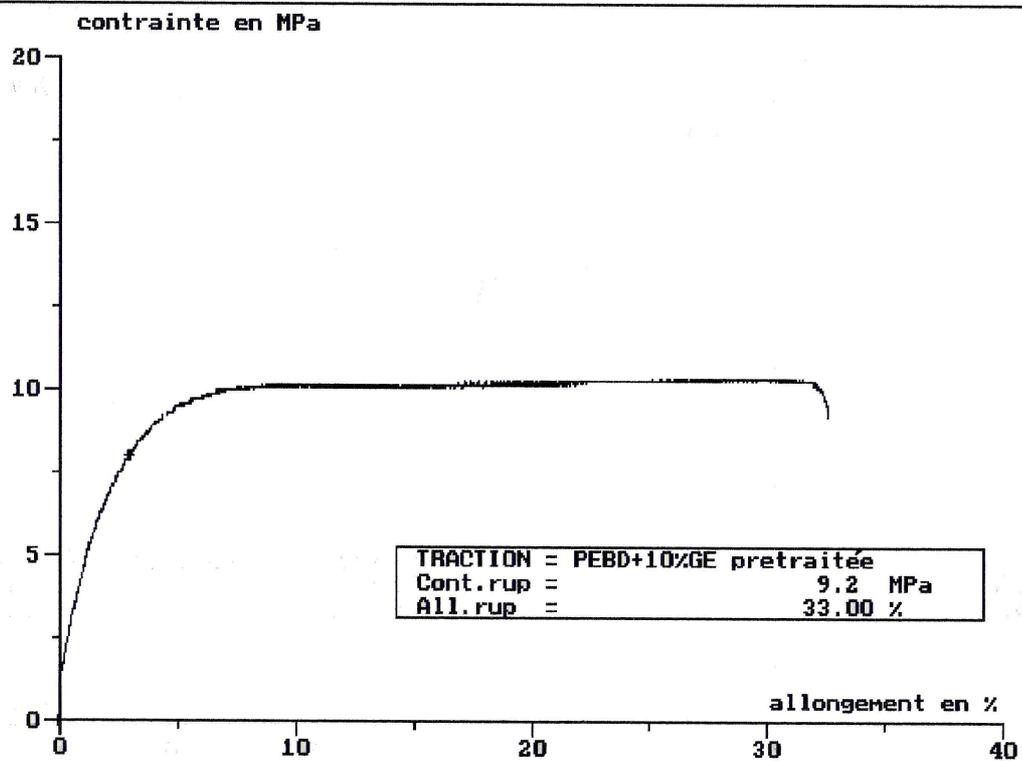


Figure 2. Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) prétraitée (épreuve1).

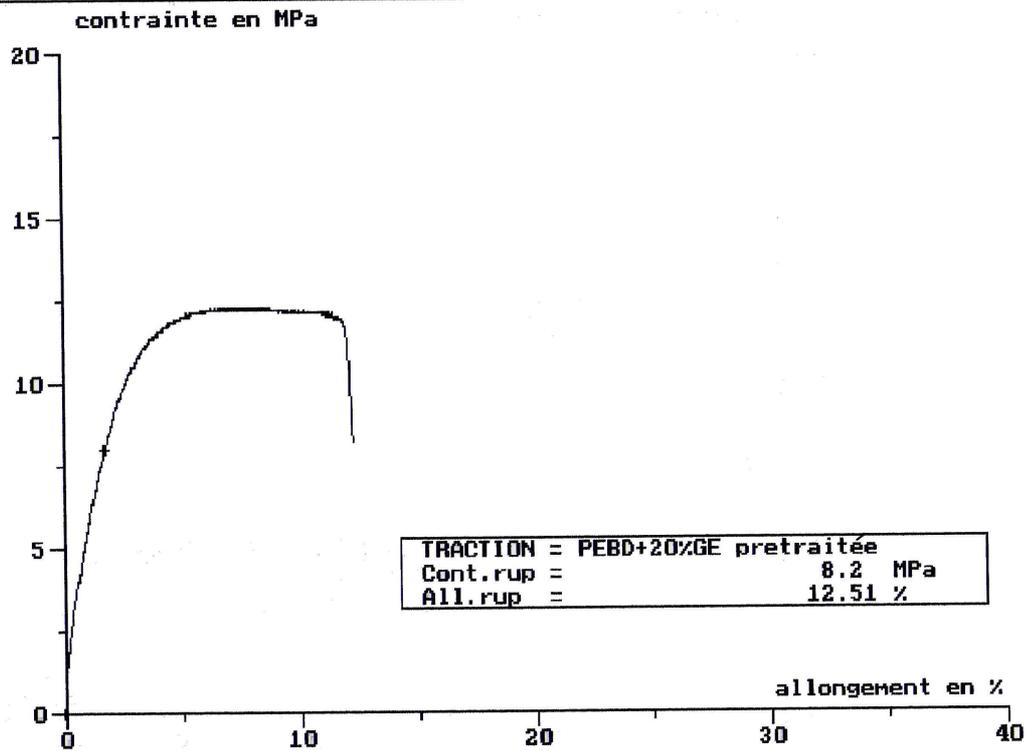


Figure 3. Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) prétraitée (éprouvette1).

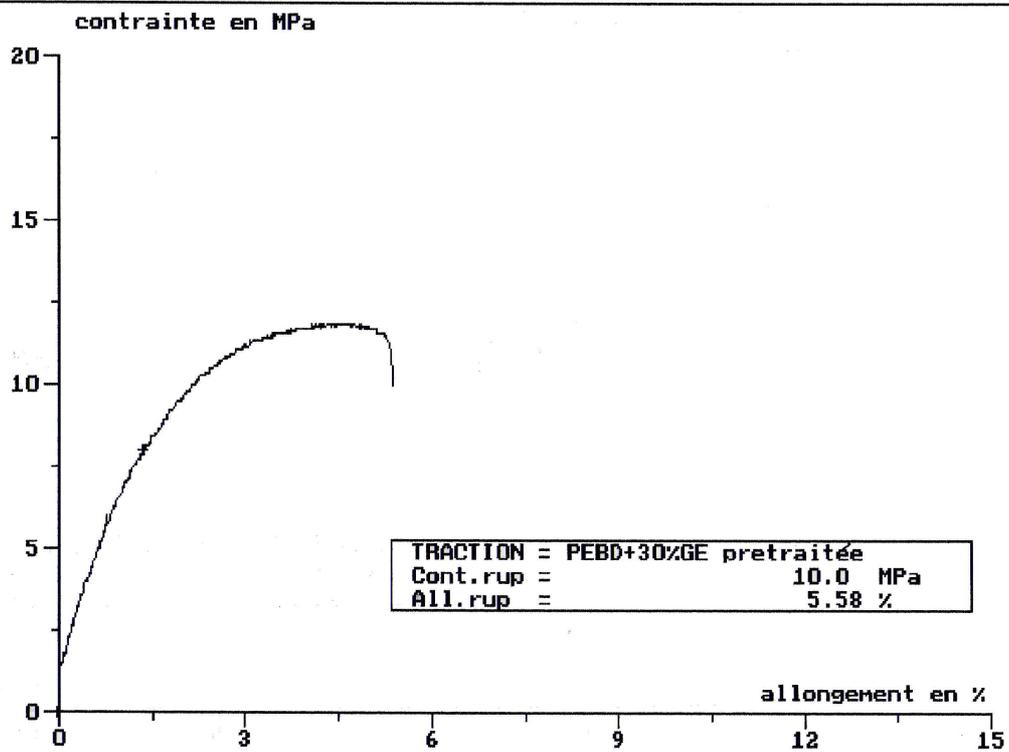


Figure 4. Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) prétraitée (éprouvette1).

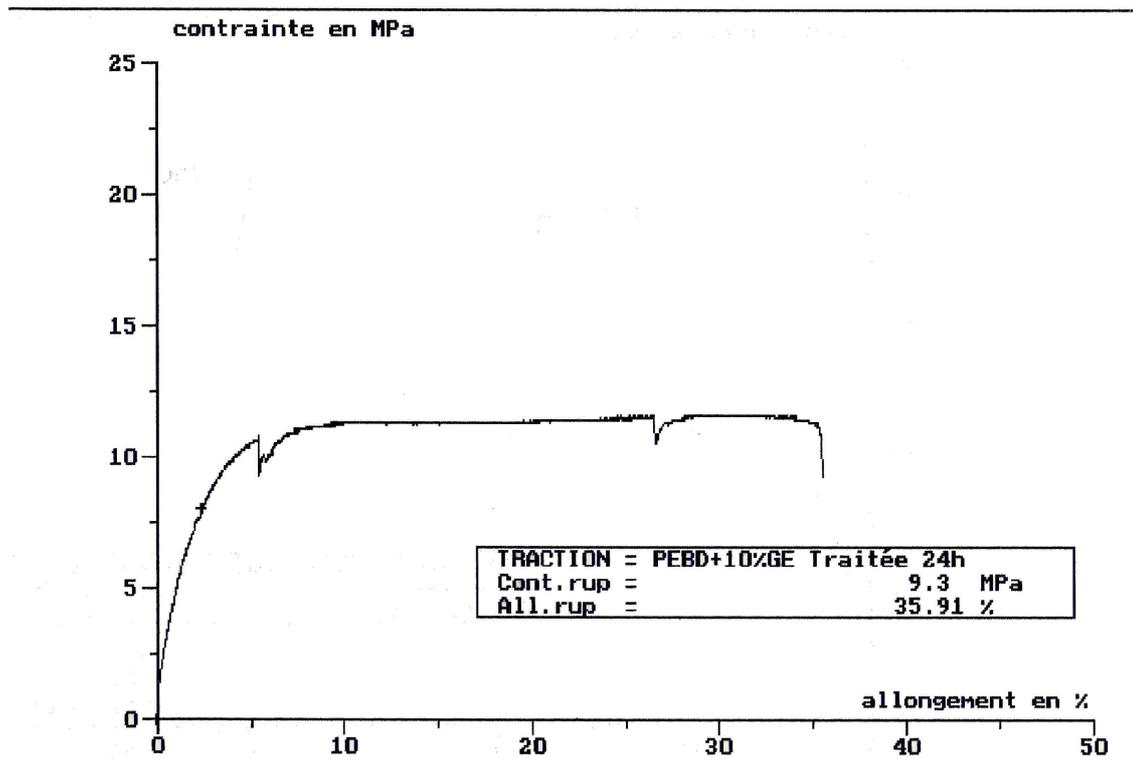


Figure 5. Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) traitée pendant 24h à 25°C (éprouvette1).

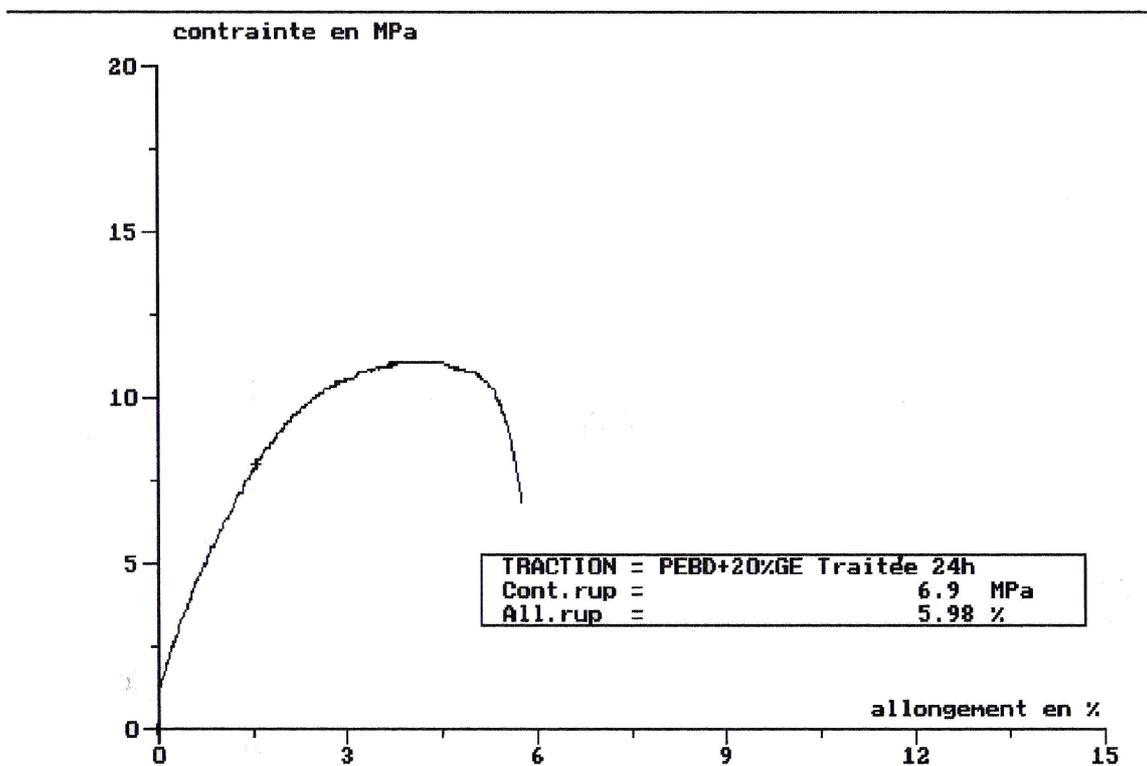


Figure 6. Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) traitée pendant 24h à 25°C (éprouvette1).

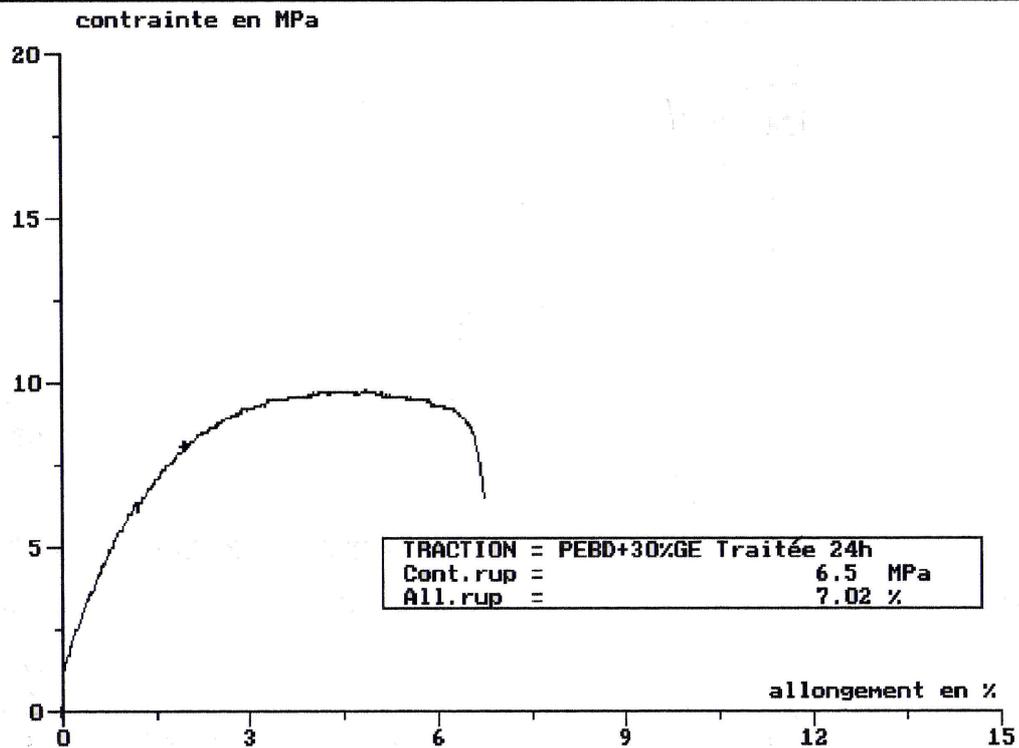


Figure 7. Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 24h à 25°C (éprouvette1).

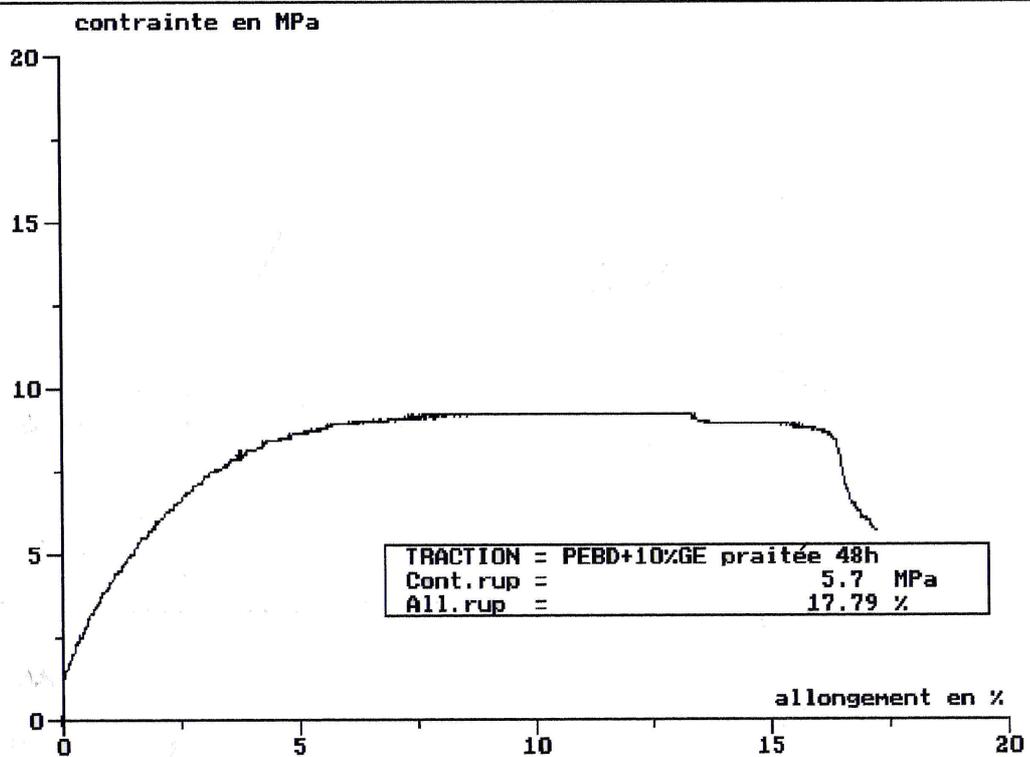
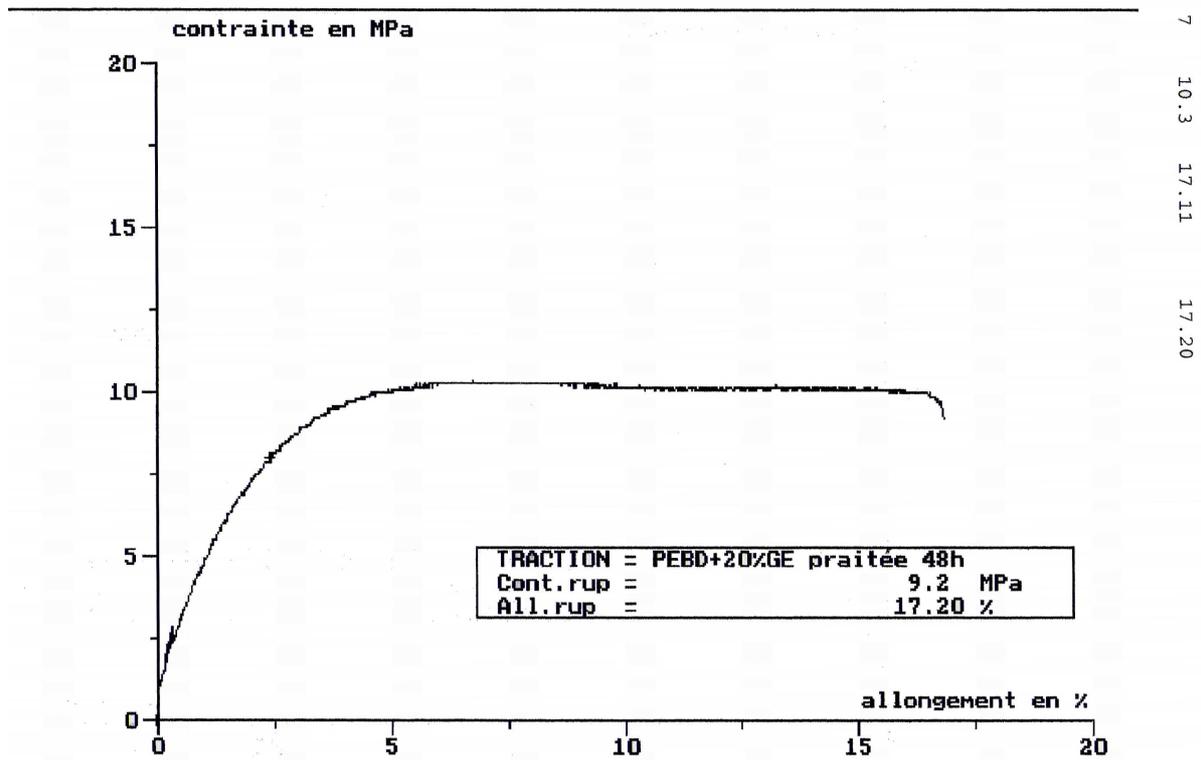
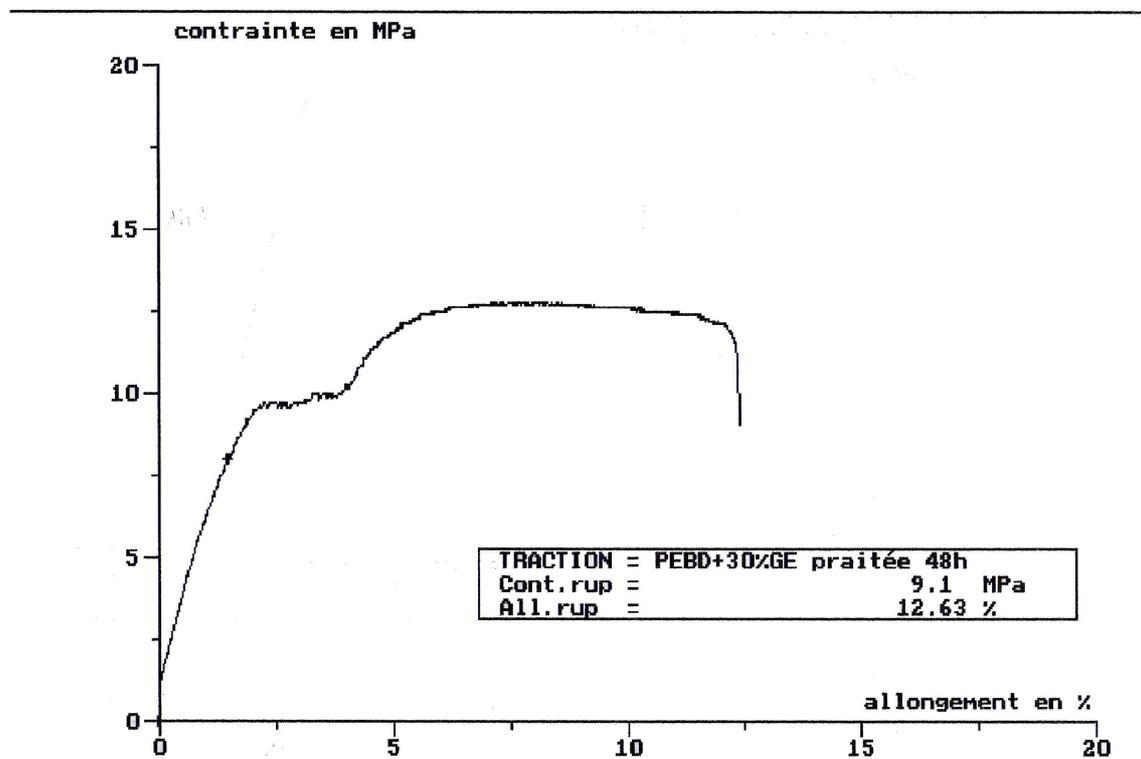


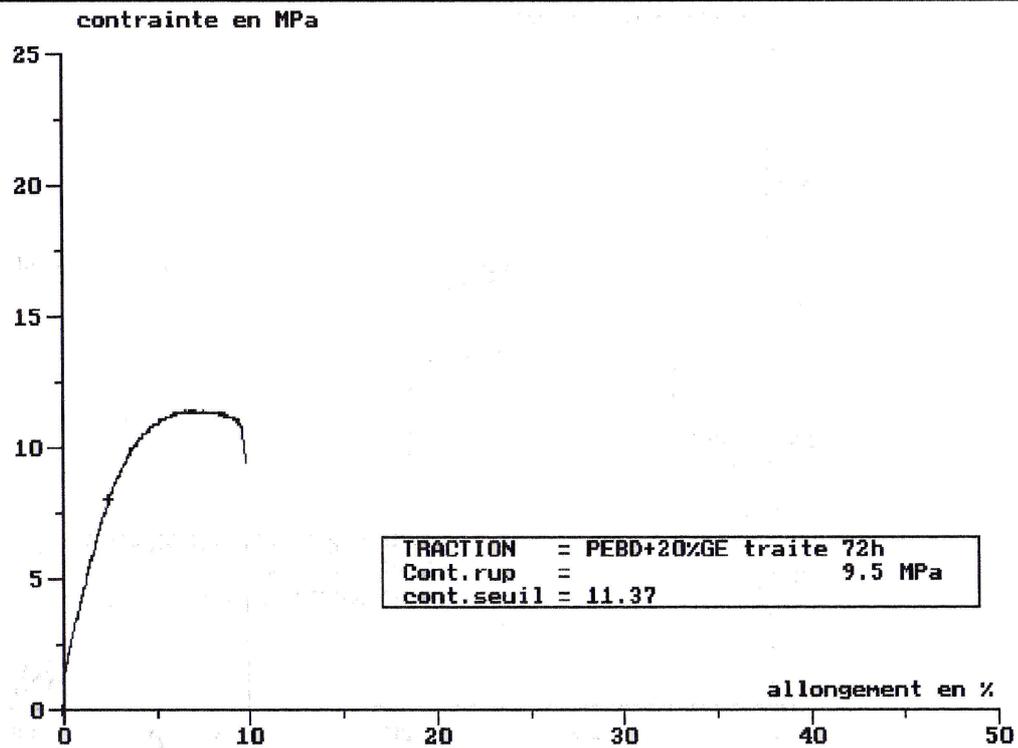
Figure 8. Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) traitée pendant 48h à 25°C (éprouvette1).



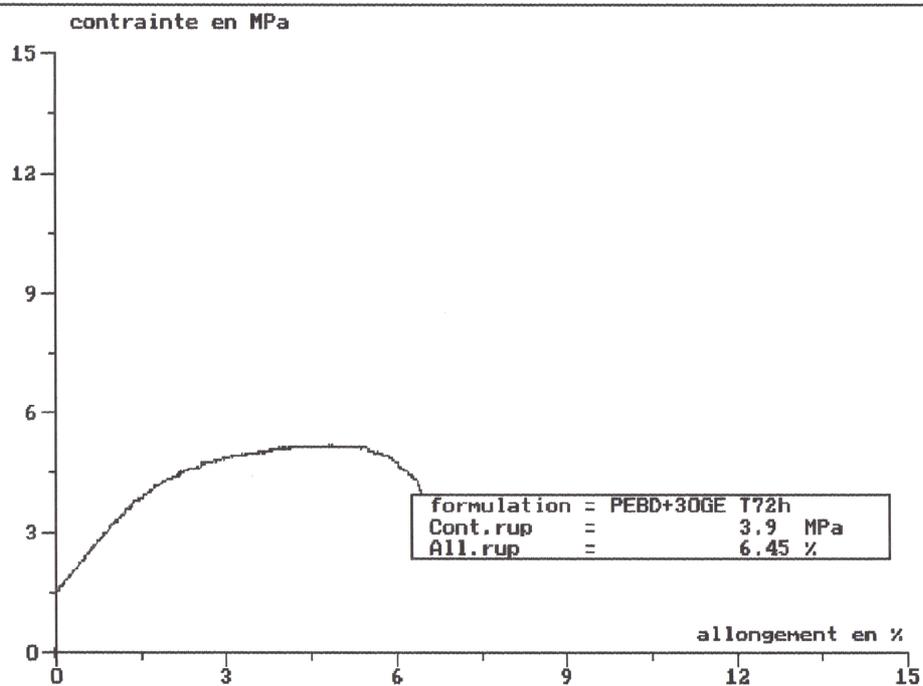
**Figure 9.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) traitée pendant 48h à 25°C (éprouvette1).



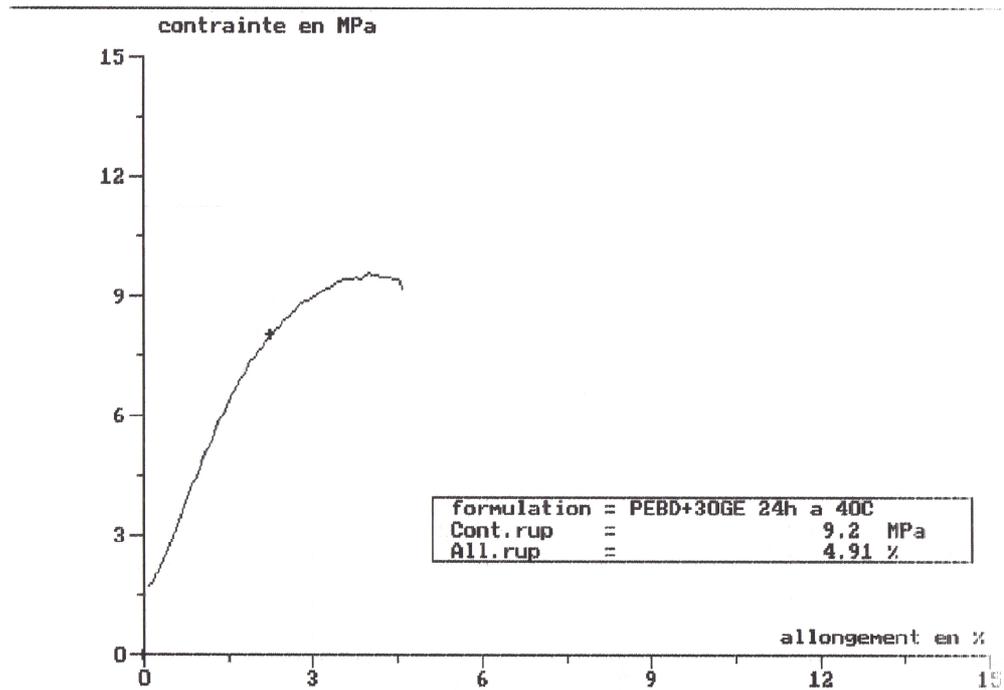
**Figure 10.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 48h à 25°C (éprouvette1).



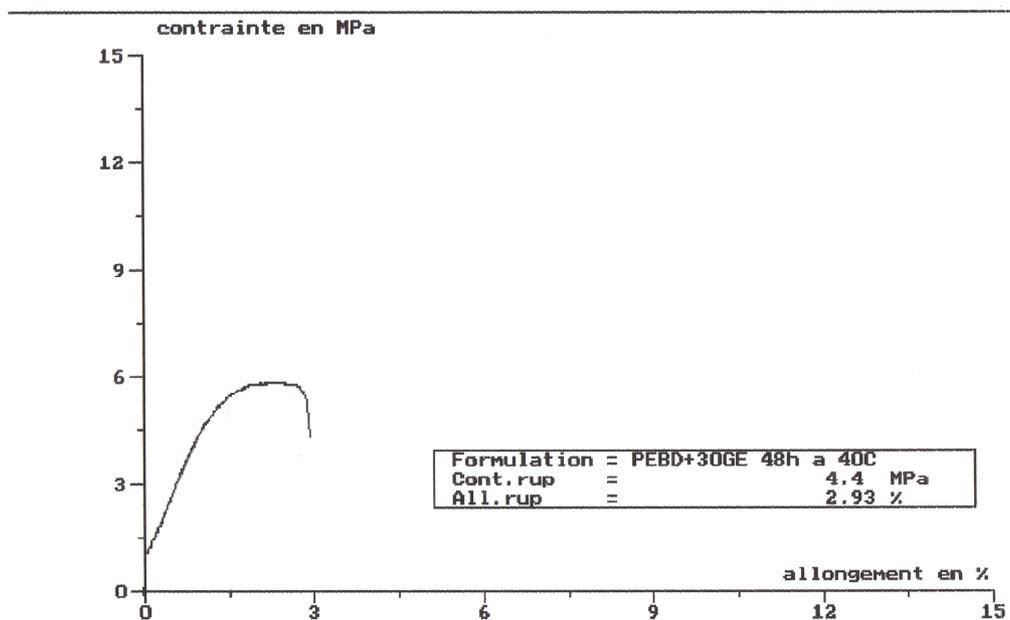
**Figure 11.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) traitée pendant 72h à 25°C (éprouvette1).



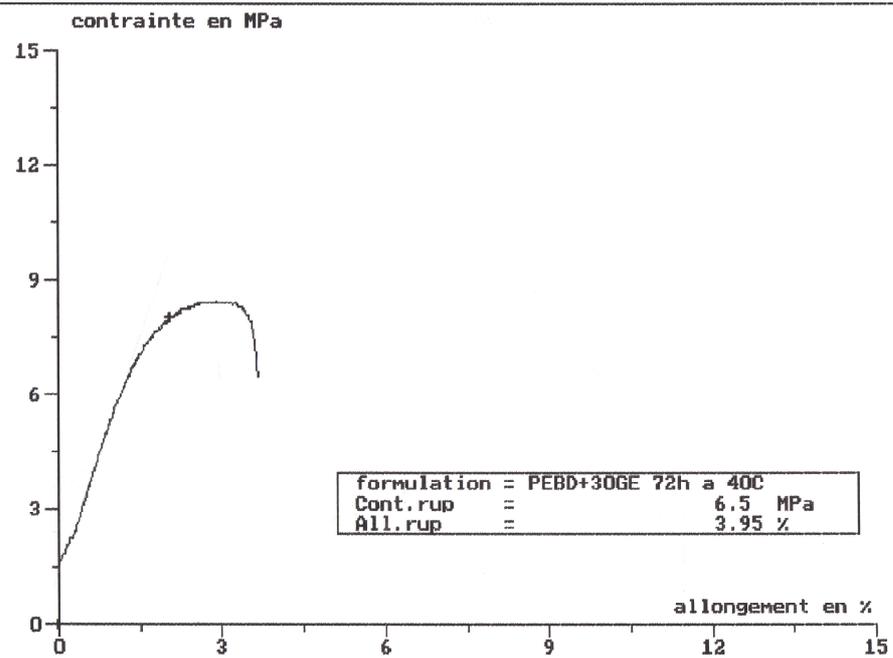
**Figure 12.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 72h à 25°C (éprouvette1).



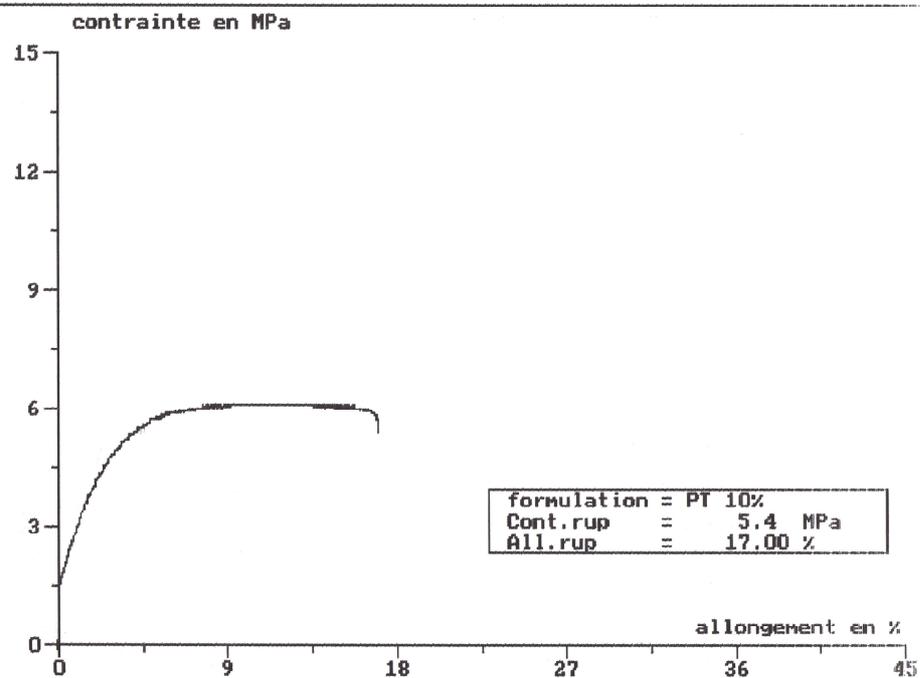
**Figure 13.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 24h à 40°C (éprouvette1).



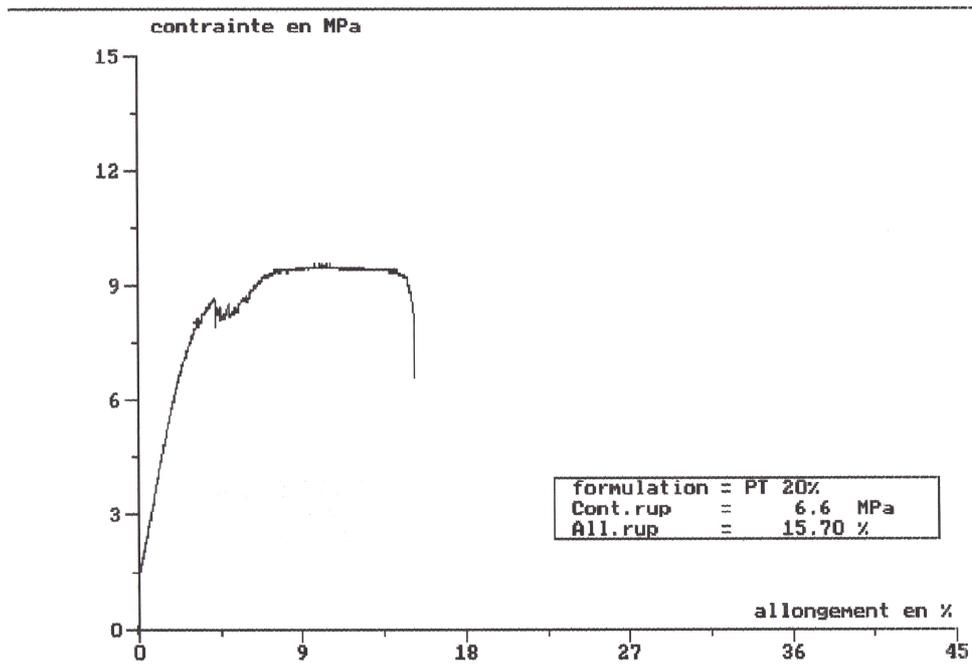
**Figure 14.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 48h à 40°C (éprouvette1).



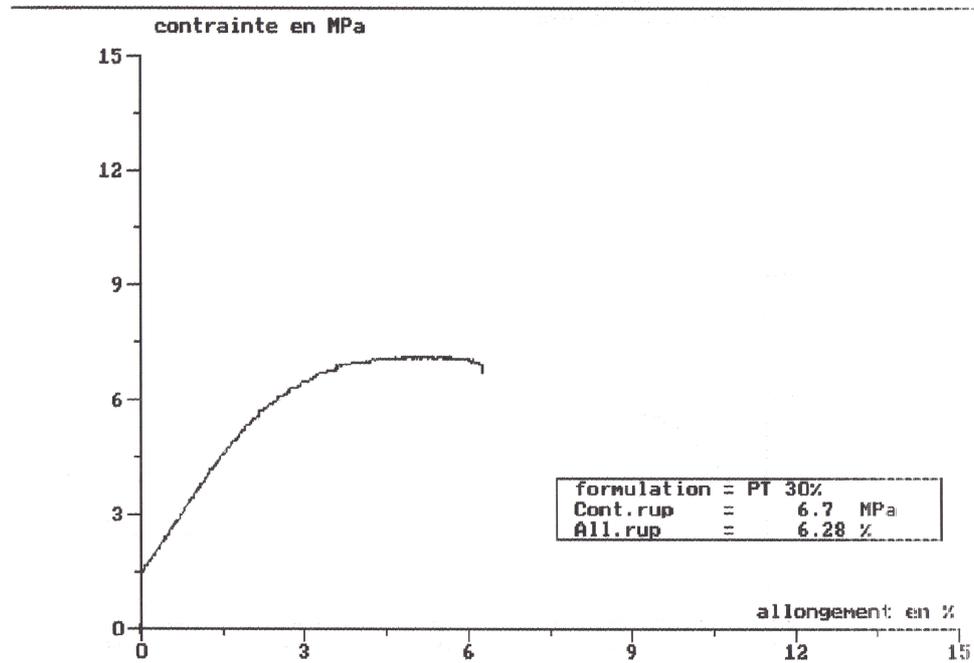
**Figure 15.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 72h à 40°C (éprouvette1).



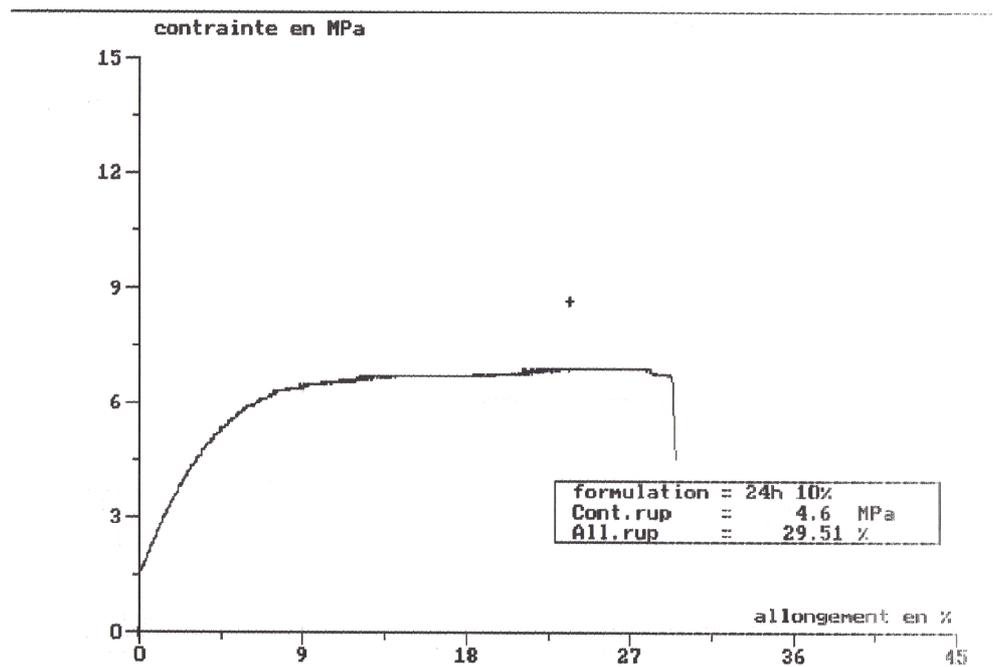
**Figure 16.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) non traitée après absorption d'eau.



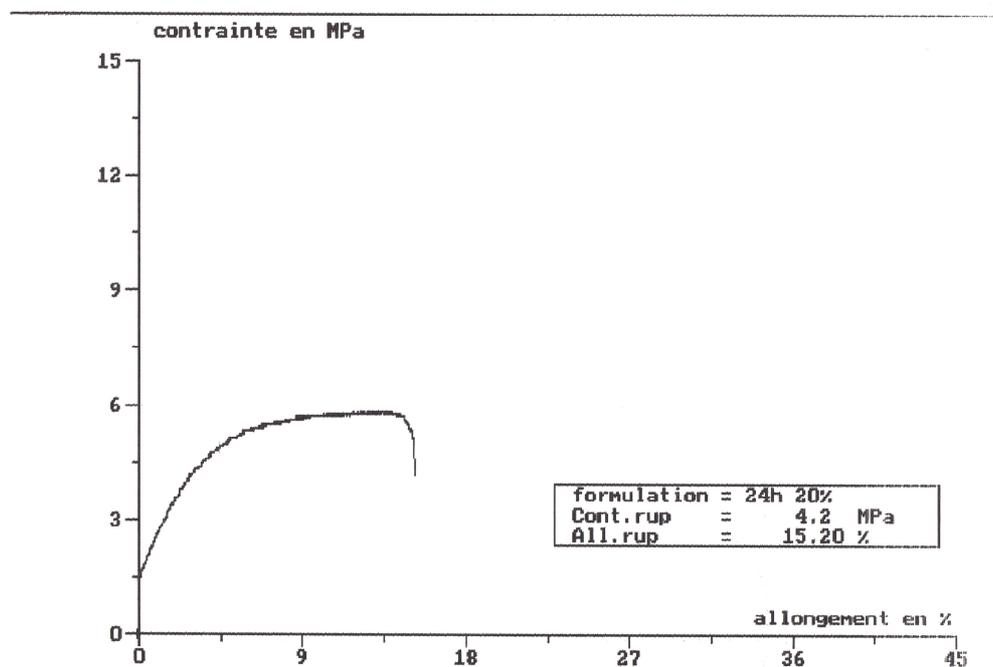
**Figure 17.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) non traitée après absorption d'eau.



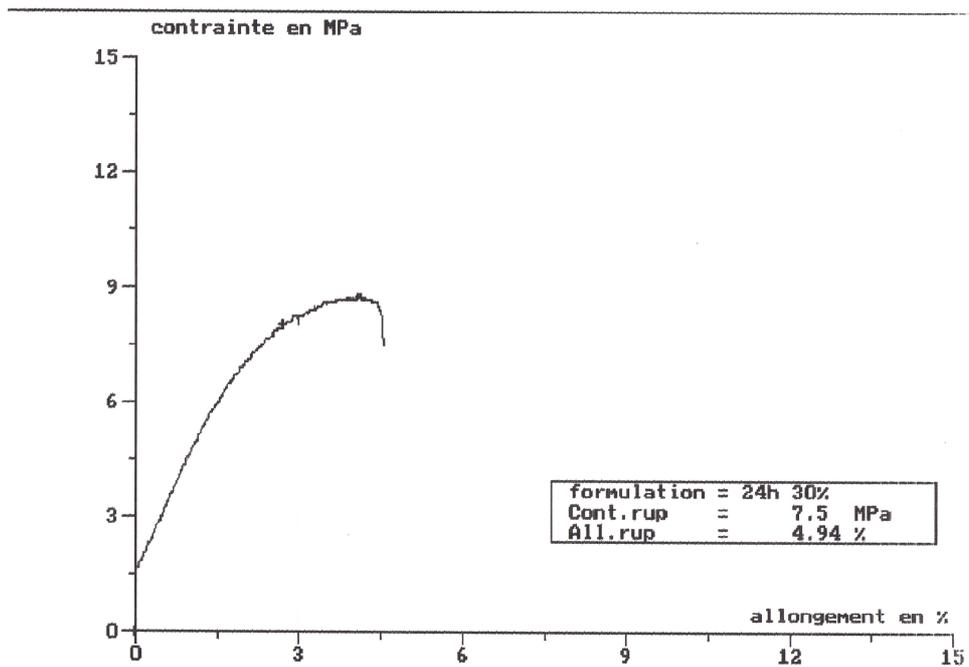
**Figure 18.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) non traitée après absorption d'eau.



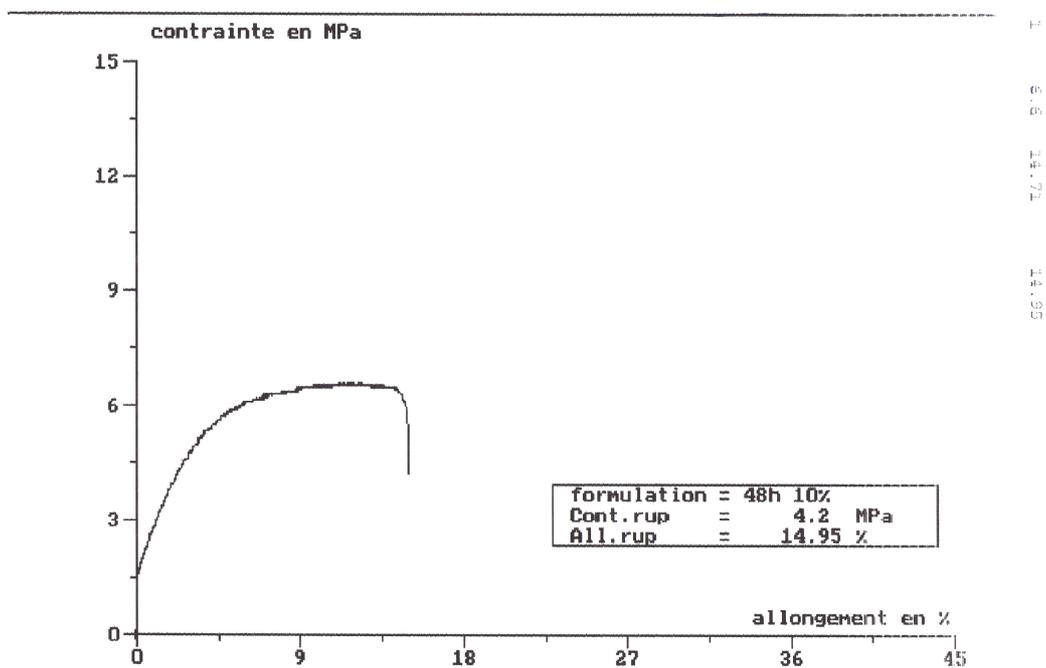
**Figure 19.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) traitée pendant 24h à 25°C après absorption d'eau.



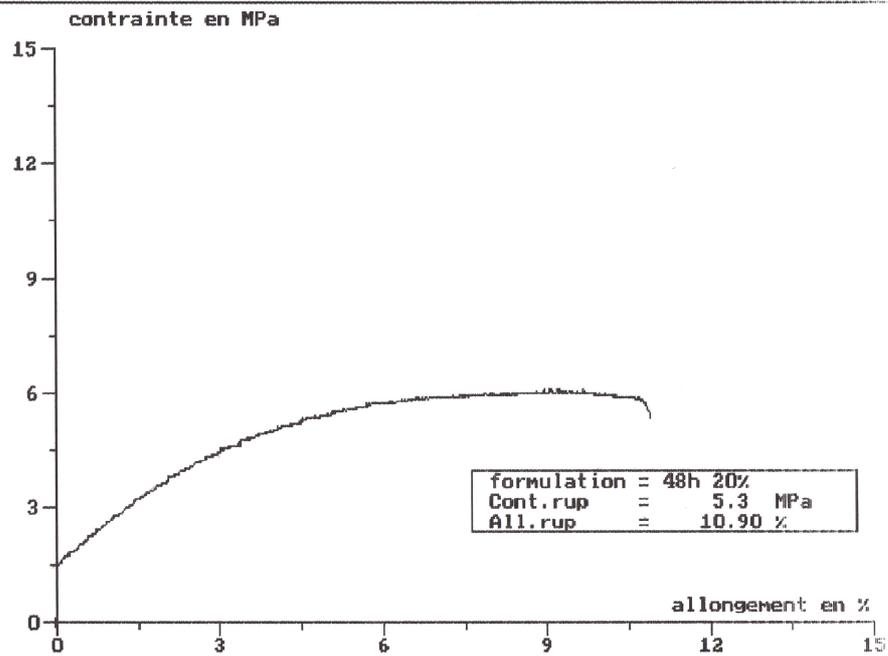
**Figure 20.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) traitée pendant 24h à 25°C après absorption d'eau.



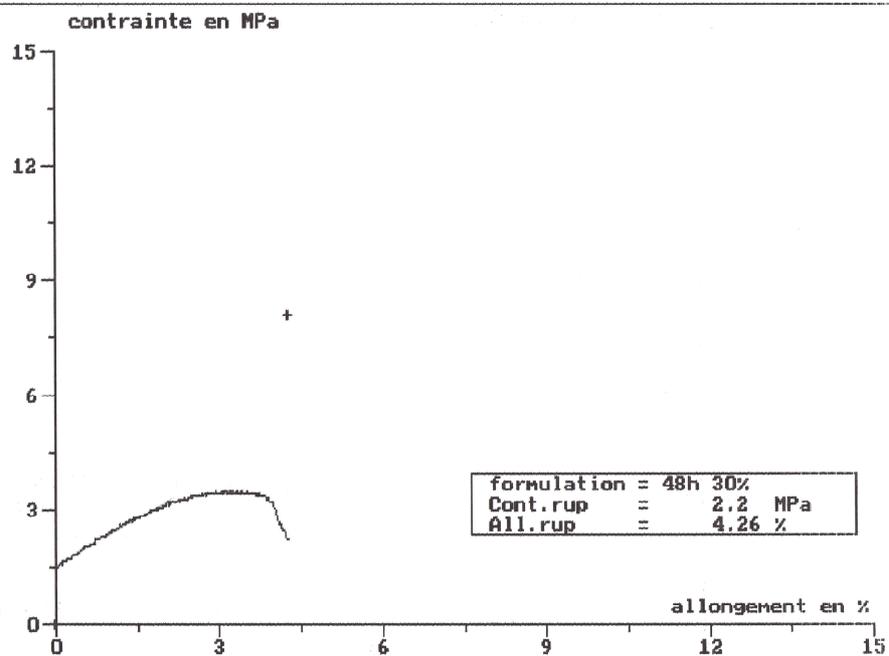
**Figure 21.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 24h à 25°C après absorption d'eau.



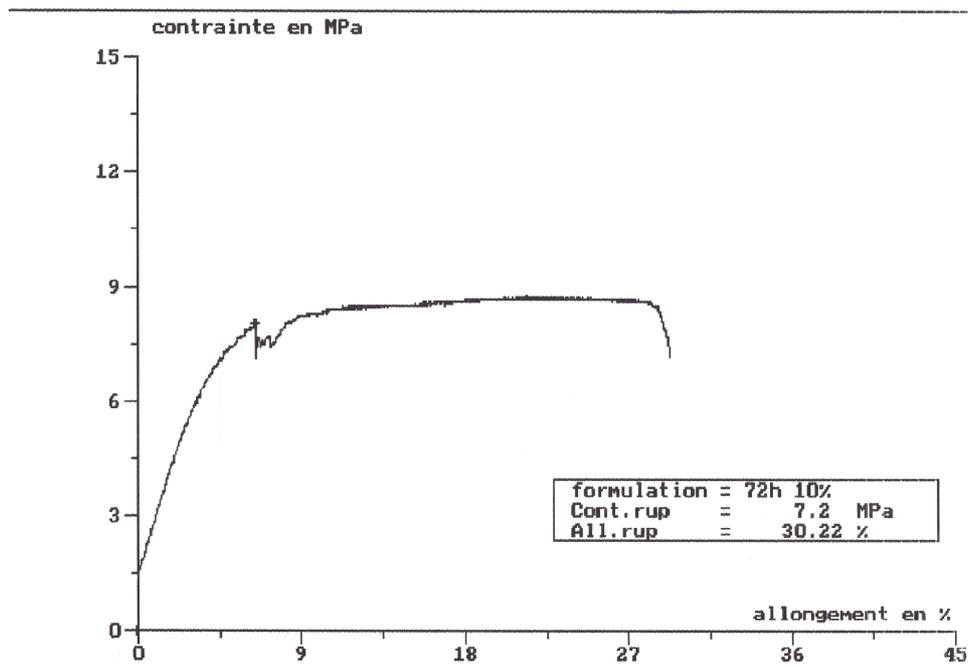
**Figure 22.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) traitée pendant 48h à 25°C après absorption d'eau.



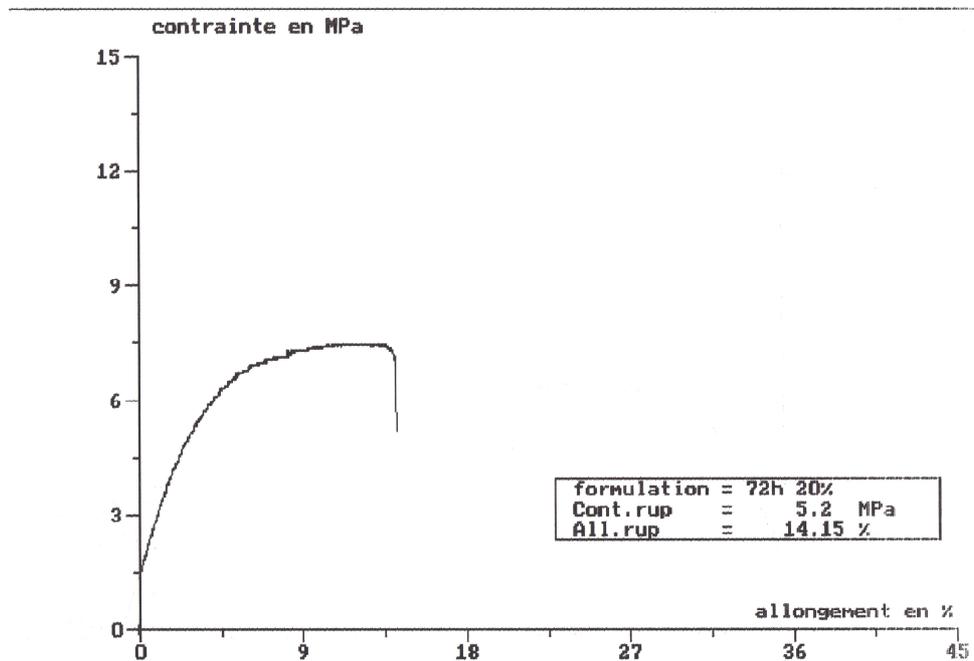
**Figure 23.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) traitée pendant 48h à 25°C après absorption d'eau.



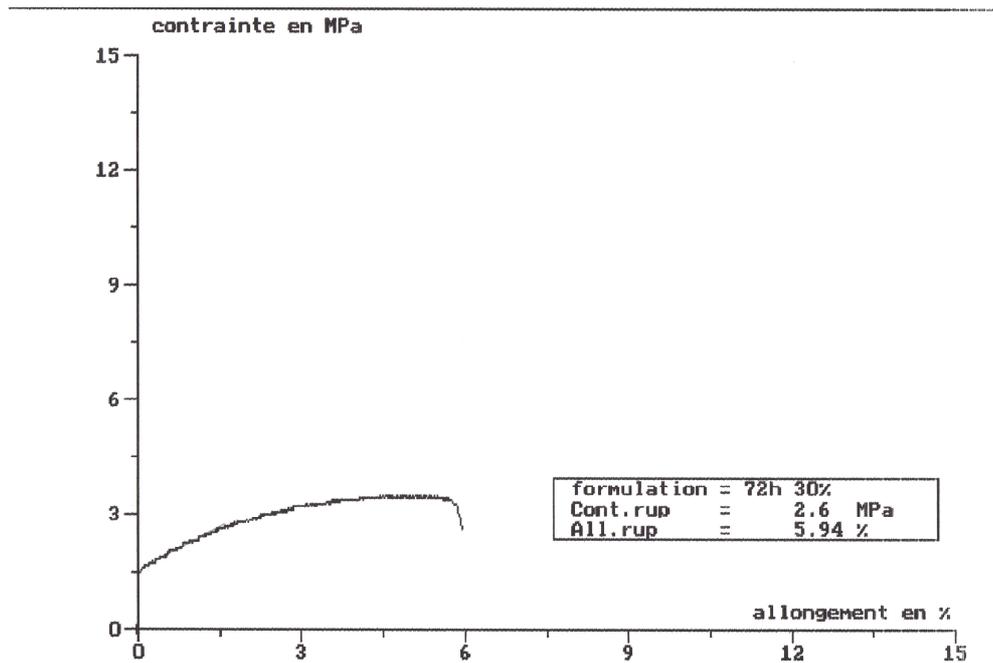
**Figure 24.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 48h à 25°C après absorption d'eau.



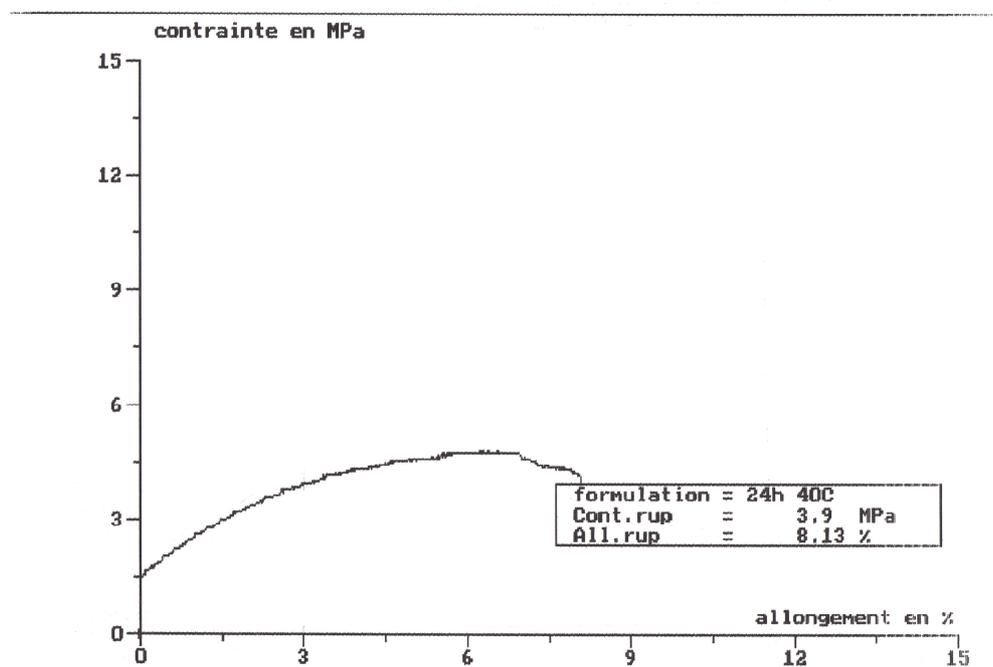
**Figure 25.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) traitée pendant 72h à 25°C après absorption d'eau.



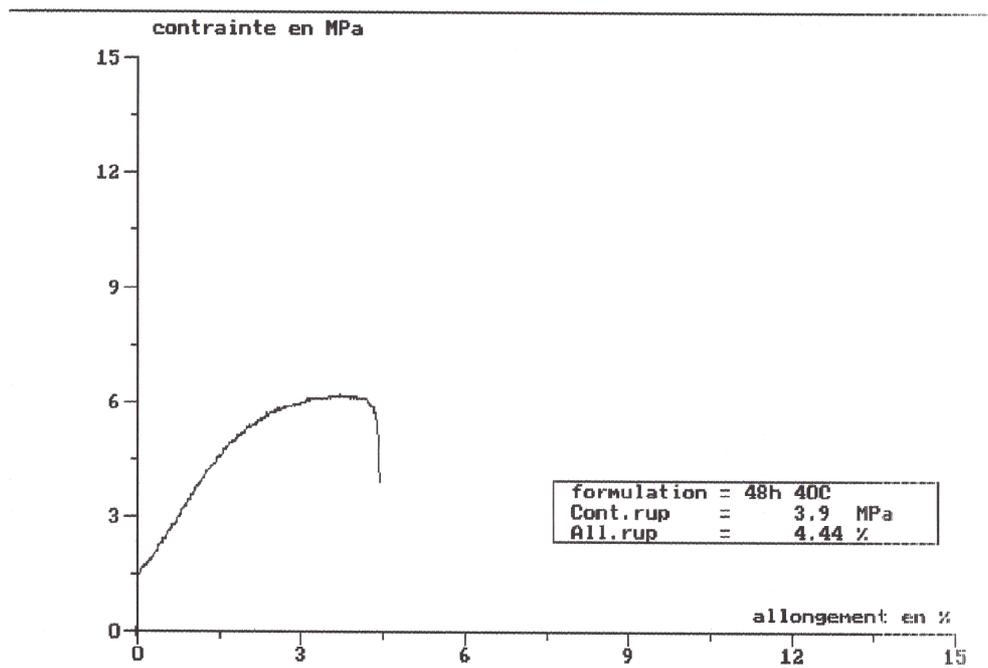
**Figure 26.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) traitée pendant 72h à 25°C après absorption d'eau.



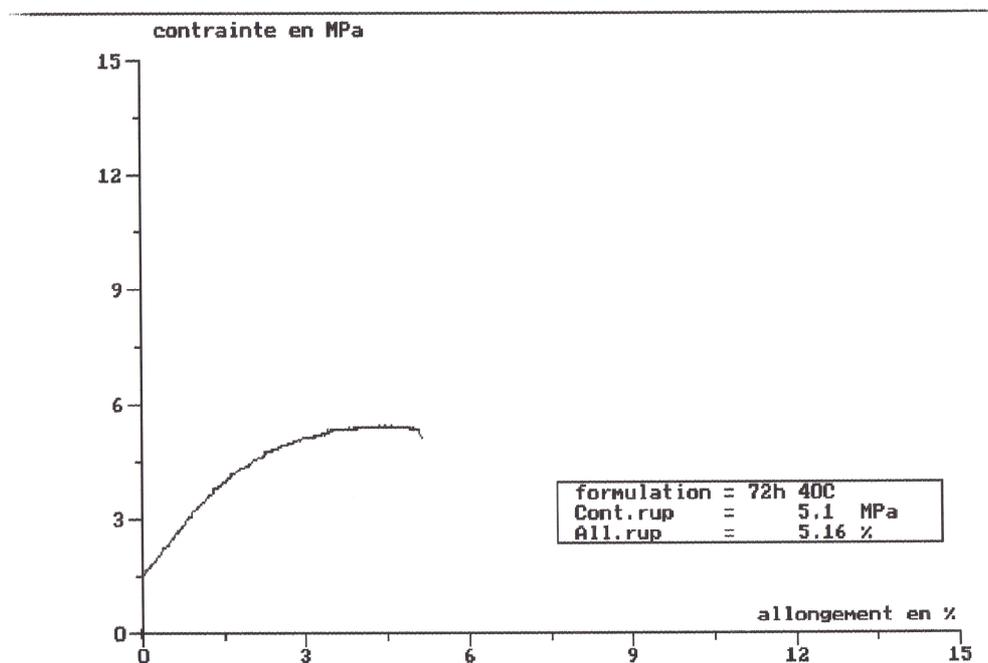
**Figure 27.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 72h à 25°C après absorption d'eau.



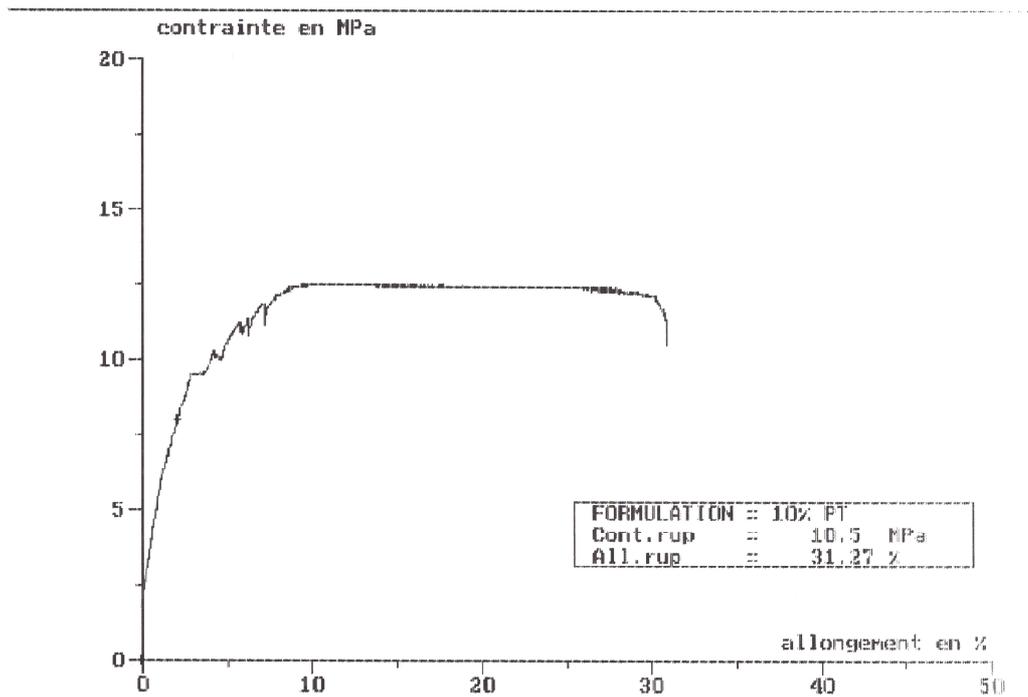
**Figure 28.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 24h à 40°C après absorption d'eau.



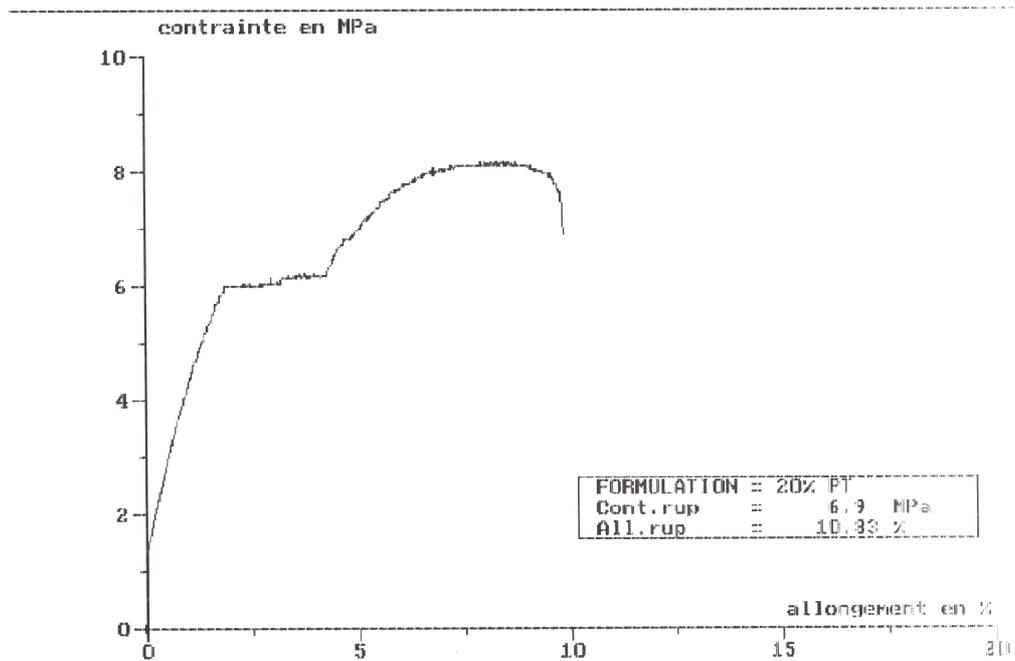
**Figure 29.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 48h à 40°C après absorption d'eau.



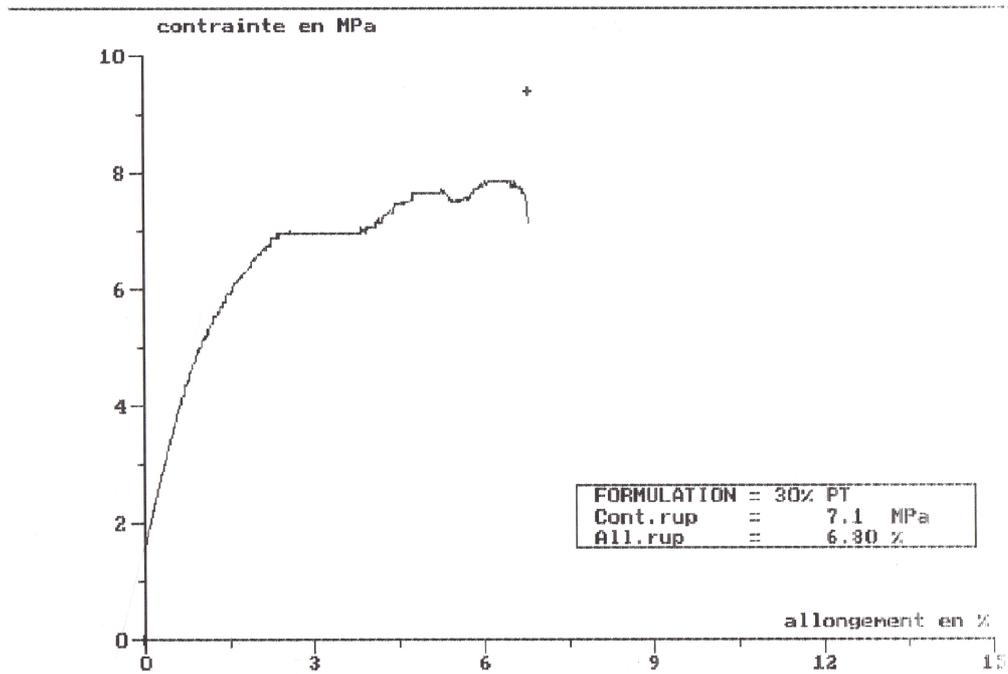
**Figure 30.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 72h à 40°C après absorption d'eau.



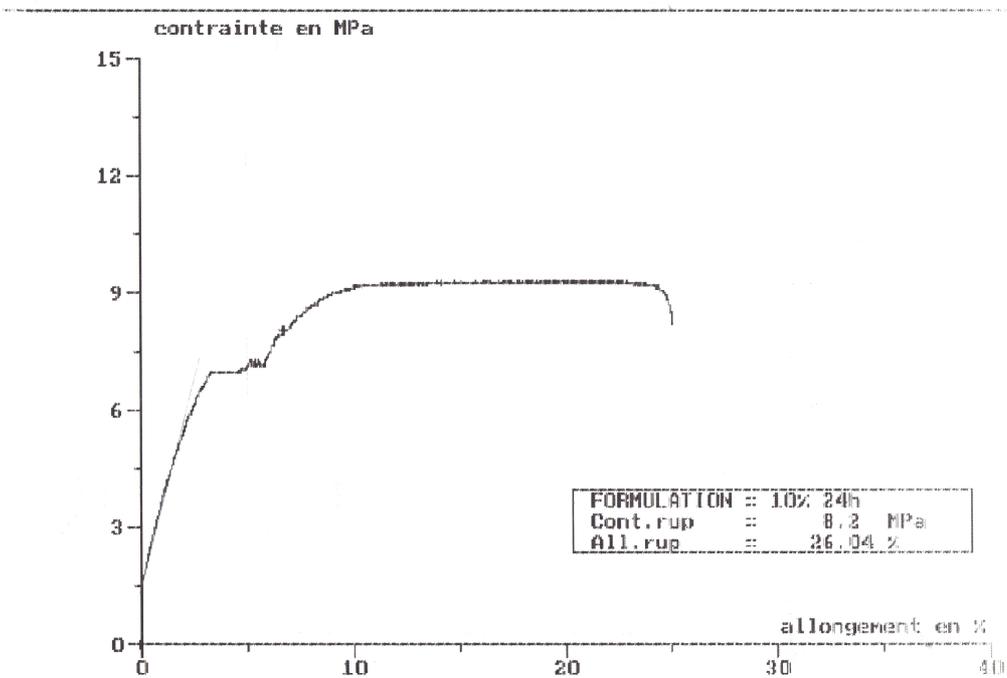
**Figure 31.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) non traitée après biodégradation.



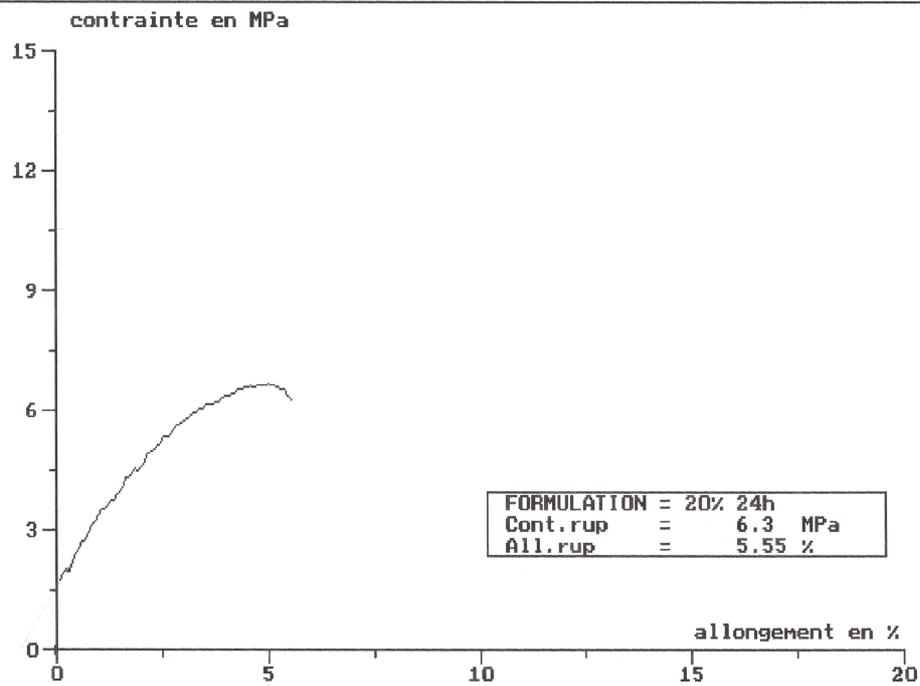
**Figure 32.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) non traitée après biodégradation.



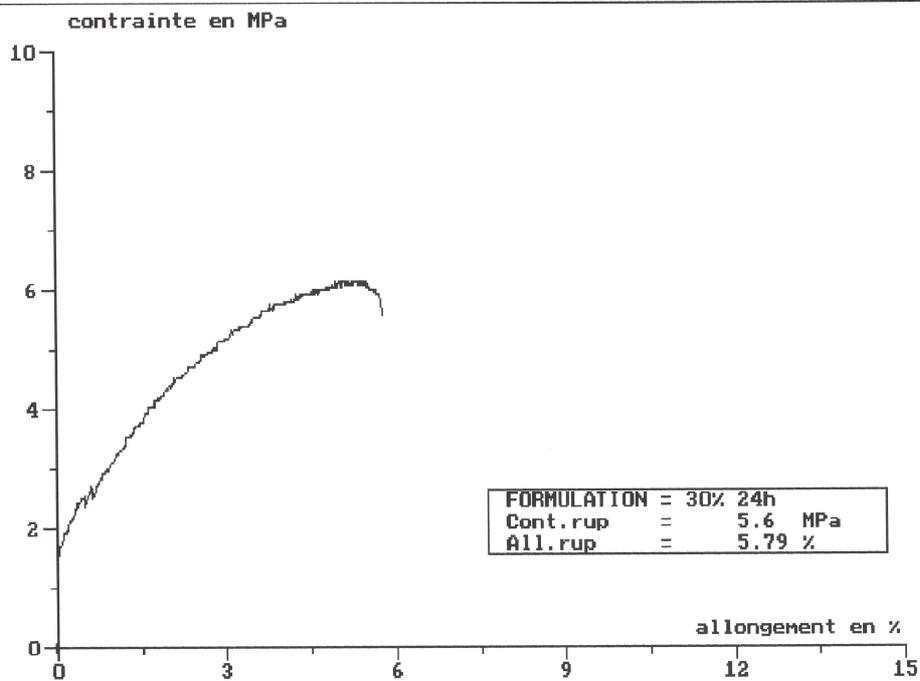
**Figure 33.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) non traitée après biodégradation.



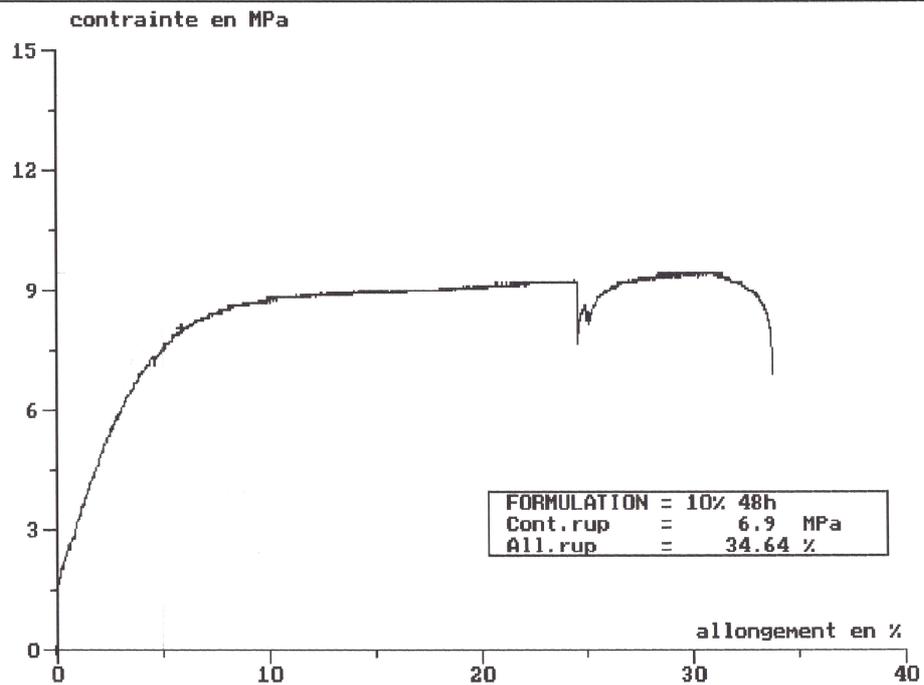
**Figure 34.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) traitée pendant 24h à 25°C après biodégradation.



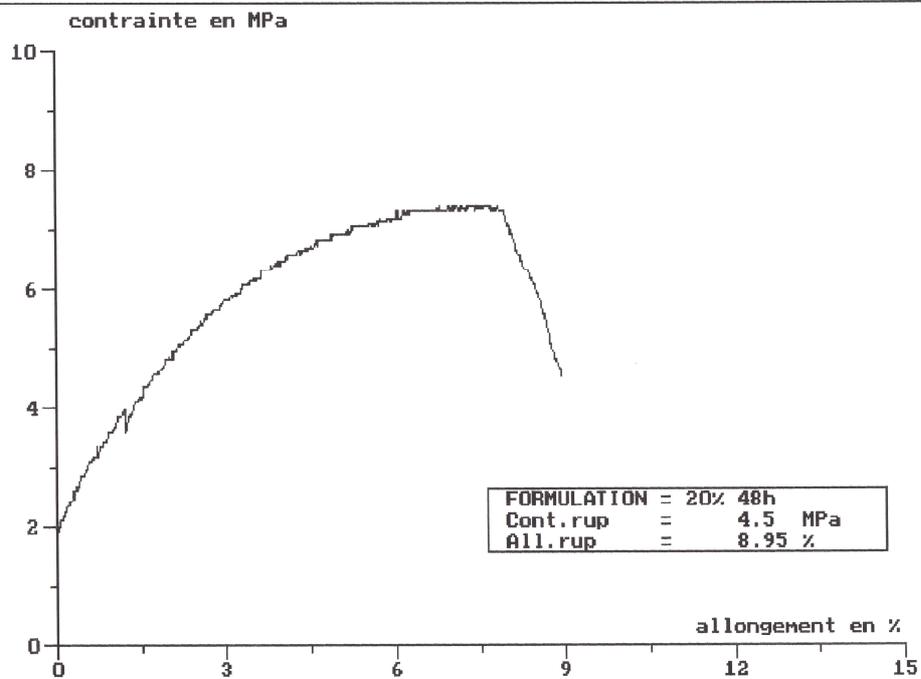
**Figure 35.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) traitée pendant 24h à 25°C après biodégradation.



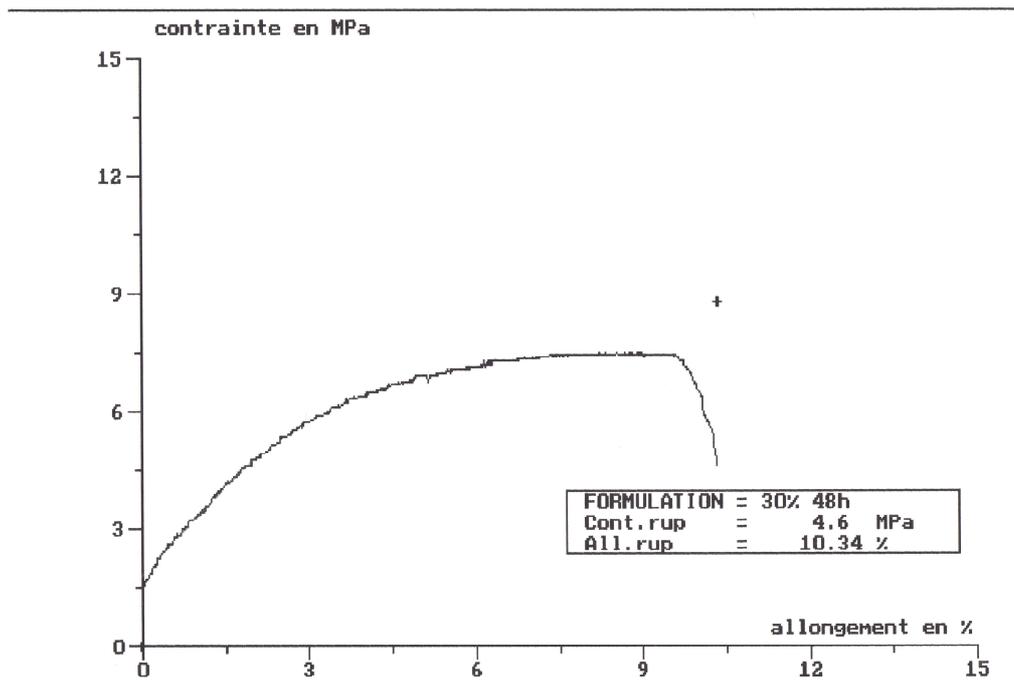
**Figure 36.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 24h à 25°C après biodégradation.



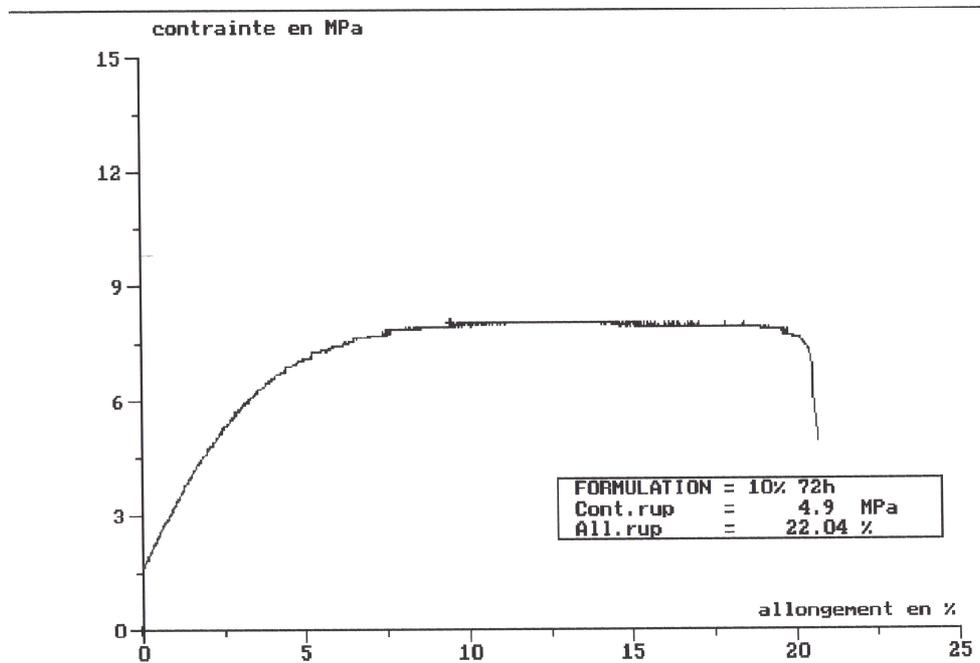
**Figure 37.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) traitée pendant 48h à 25°C après biodégradation.



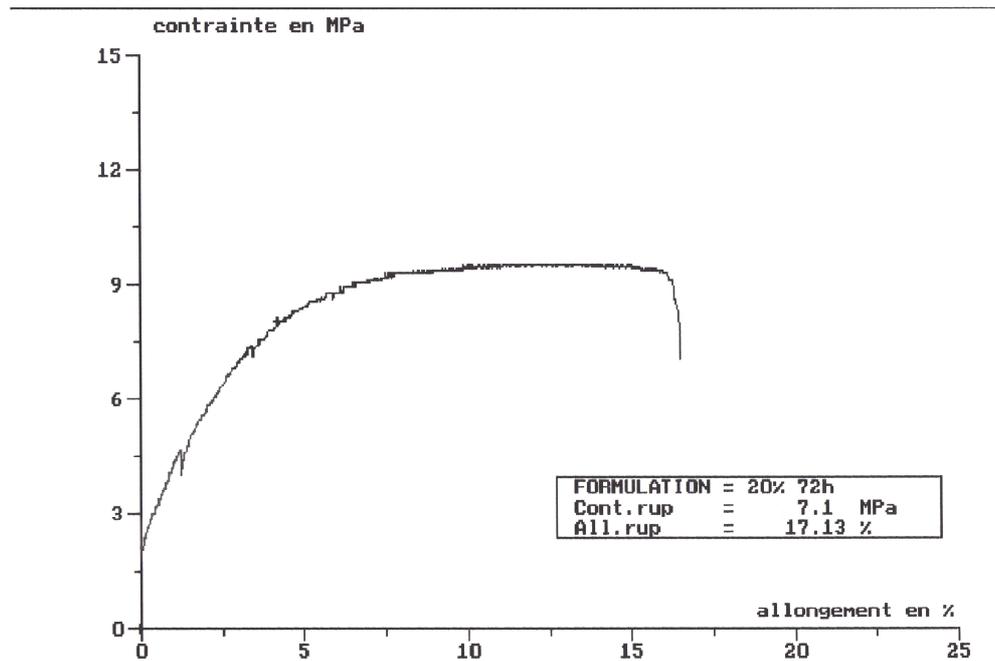
**Figure 38.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) traitée pendant 48h à 25°C après biodégradation.



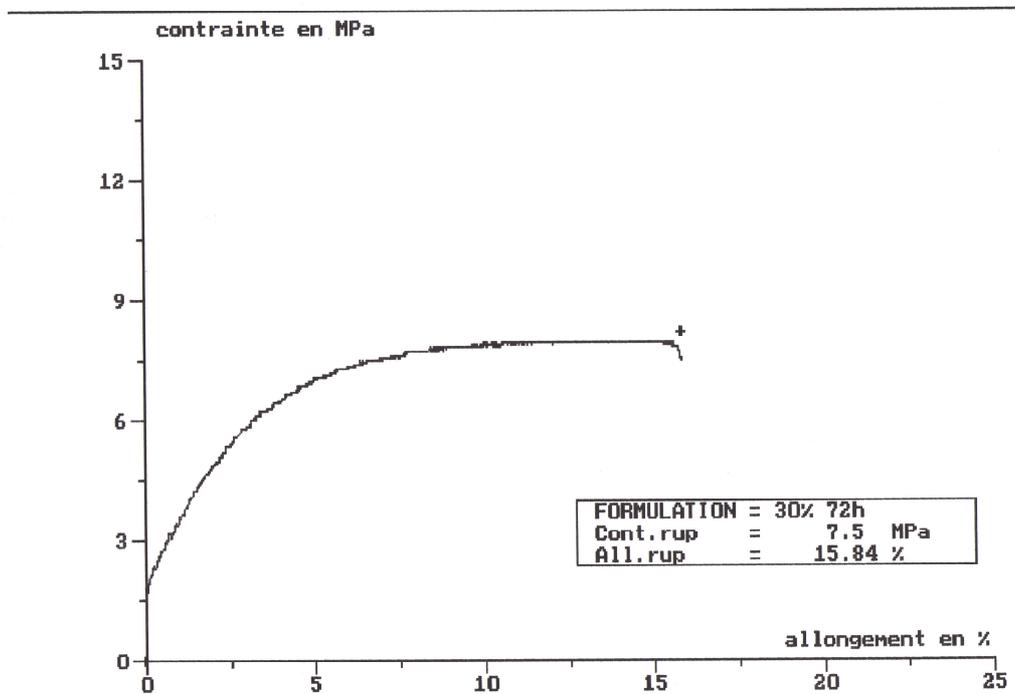
**Figure 39.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 48h à 25°C après biodégradation.



**Figure 40.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (90/10) traitée pendant 72h à 25°C après biodégradation.



**Figure 41.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (80/20) traitée pendant 72h à 25°C après biodégradation.



**Figure 42.** Courbe de traction du composite PEBD/GE (70/30) traitée pendant 72h à 25°C après biodégradation.

# **ANNEXE B**

**Tableau 1:** Valeurs du taux d'absorption d'eau du PEBD vierge et des composites PEBD/farine de GE non traitée.

Temps (heures)	PEBD	PEBD/GE (90/10)	PEBD/GE (80/20)	PEBD/GE (70/30)
1	0,003969041	0,31023002	0,69096221	0,86256059
2	0,000119071	0,57127724	0,86468986	1,11919019
3	0,000238142	0,64315981	1,2516287	1,16196179
4	0,000238142	0,65072639	1,33454416	1,35086969
5	0,000357214	0,65829298	1,33849252	1,35086969
6	0,000396904	0,66207627	1,34244087	1,39007699
7	0,000476285	0,66585956	1,37797607	1,42571999
23	0,000595356	0,66585956	1,42930469	1,95323638
24	0,000714427	0,67720944	1,44114976	2,03877958
25	0,000793808	0,68099274	1,44114976	2,04590818
26	0,000873189	0,69234262	1,44509812	2,10293698
27	0,000873189	0,6999092	1,44509812	2,10650128
28	0,00091288	0,71125908	1,44904647	2,11006558
29	0,00099226	0,71882567	1,44904647	2,18491588
30	0,001031951	0,77179177	1,45299483	2,23838038
31	0,001190712	0,78314165	1,45299483	2,25263758
47	0,001190712	0,78692494	1,46483989	2,25976618
48	0,001190712	0,80205811	1,48063332	2,29184488
49	0,001190712	0,8058414	1,48458167	2,29184488
50	0,001190712	0,8058414	1,48458167	2,31679498
51	0,001190712	0,81719128	1,50432345	2,39164528
52	0,001190712	0,84367433	1,53196194	2,40233818
53	0,001190712	0,84745763	1,53591029	2,41303108
54	0,001190712	0,85502421	1,53591029	2,43441688
55	0,001190712	0,87772397	1,56749714	2,47718848
71	0,001190712	0,92690678	1,57144549	2,49500998
72	0,001190712	0,98743947	1,57539385	2,55560308
73	0,001190712	1,04040557	1,58329056	2,55916738
74	0,001190712	1,04797215	1,61092905	2,64827488
75	0,001190712	1,07067191	1,62277411	2,67322498
76	0,001190712	1,27875303	1,63067083	2,74094668
77	0,001428855	1,30145278	1,67015438	2,76946108
78	0,001428855	1,53980024	1,69384451	2,79084688
120	0,001428855	1,53980024	1,69384451	2,79084688
143	0,001428855	1,53980024	1,69384451	2,79084688

**Tableau 2:** Valeurs du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/farine de GE traitée pendant 24h à 25°C.

Temps (heures)	PEBD/GE (90/10)	PEBD/GE (80/20)	PEBD/GE (70/30)
1	0,4675046	0,45759835	0,84542928
2	0,50582465	0,50926268	0,99984558
3	0,51348866	0,52771422	1,01914762
4	0,52498467	0,87091298	1,0577517
5	0,5441447	0,90043546	1,33956146
6	0,55180871	0,91150638	1,39746757
7	0,57480074	0,92995793	1,48239654
23	0,58629675	0,92995793	1,50169858
24	0,61695279	0,96317071	1,52100062
25	0,61695279	0,97793195	1,54802347
26	0,62078479	0,98531257	1,58276714
27	0,63611281	0,99269319	1,63295244
28	0,63994482	1,0369769	1,67541692
29	0,64377682	1,04066721	1,72174182
30	0,64377682	1,08126061	1,73332304
31	0,65910484	1,09233154	1,75262508
47	0,66293685	1,09971216	1,77578752
48	0,67060086	1,1181637	1,77964793
49	0,69742489	1,12185401	1,8645769
50	0,70892091	1,12554432	1,8645769
51	0,71275291	1,13292494	1,89932057
52	0,73574494	1,15506679	1,90704138
53	0,74340895	1,17351834	1,90704138
54	0,75107296	1,17351834	1,91862261
55	0,79705702	1,18089896	1,95336628
71	0,79705702	1,18458927	1,99969117
72	0,81238504	1,21411174	2,03057443
73	0,81621704	1,22518267	2,06145769
74	0,82004905	1,23256329	2,12708462
75	0,82771306	1,2362536	2,16182829
76	0,96949724	1,276847	2,1656887
77	0,97332925	1,52409772	2,18113033
78	1,07296137	1,54254927	2,4204756
120	1,07296137	1,54254927	2,4204756
143	1,07296137	1,54254927	2,4204756

**Tableau 3:** Valeurs du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/farine de GE traitée pendant 48h à 25°C.

Temps (heures)	PEBD/GE (90/10)	PEBD/GE (80/20)	PEBD/GE (70/30)
1	0,32613451	0,23775559	0,51852652
2	0,34204351	0,34078301	0,64455727
3	0,36988426	0,45173562	0,67696518
4	0,37783876	0,4636234	0,80299593
5	0,38181601	0,46758599	0,90742141
6	0,39374776	0,52306229	1,07306183
7	0,44147476	0,53098748	1,09106622
23	0,45738376	0,66967824	1,1450794
24	0,47727002	0,68156602	1,17388643
25	0,50511077	0,6894912	1,17388643
26	0,50511077	0,74496751	1,22069785
27	0,55681502	0,75289269	1,26390839
28	0,56079227	0,76874307	1,30351806
29	0,57272402	0,77666825	1,33952684
30	0,57670127	0,78063084	1,36473299
31	0,58863302	0,78063084	1,37193475
47	0,58863302	0,78855603	1,41154442
48	0,60056477	0,78855603	1,41874617
49	0,60851927	0,80044381	1,49076375
50	0,61647377	0,80044381	1,49436462
51	0,62840552	0,80044381	1,53037341
52	0,63636002	0,81629418	1,5663822
53	0,66022352	0,83214456	1,57358395
54	0,66420077	0,85195752	1,58798747
55	0,68408702	0,85195752	1,61319362
71	0,69999602	0,85195752	1,6167945
72	0,74374577	0,85592011	1,62759713
73	0,75170027	0,87969567	1,62759713
74	0,82329078	0,89158345	1,65280328
75	0,84715428	0,90347123	1,68521119
76	0,85510878	0,90347123	1,70681646
77	0,89885853	0,9787605	1,76082964
78	0,91874478	1,03027421	1,79683843
120	0,91874478	1,03027421	1,79683843
143	0,91874478	1,03027421	1,79683843

**Tableau 4:** Valeurs du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/farine de GE traitée pendant 72h à 25°C.

Temps (heures)	PEBD/GE (90/10)	PEBD/GE (80/20)	PEBD/GE (70/30)
1	0,09915913	0,2626072	0,12179818
2	0,20625099	0,40622051	0,14394331
3	0,21418372	0,46366583	0,15132502
4	0,24591464	0,51700792	0,1845427
5	0,25384737	0,52931763	0,19192441
6	0,26971284	0,53752411	0,21776039
7	0,26971284	0,53752411	0,23621466
23	0,27764557	0,54573058	0,29526833
24	0,28161193	0,54573058	0,4096848
25	0,28161193	0,56624677	0,43182993
26	0,29351103	0,59086619	0,45397505
27	0,30144376	0,59496943	0,46873847
28	0,32920831	0,63600181	0,4982653
29	0,32920831	0,64010504	0,51671957
30	0,33317468	0,64420828	0,52410128
31	0,34110741	0,66062123	0,52779213
47	0,34507377	0,66882771	0,53886469
48	0,35697287	0,67293094	0,5462464
49	0,39267016	0,67703418	0,55362811
50	0,40456925	0,69755037	0,56470067
51	0,40853562	0,71396332	0,57208238
52	0,41250198	0,7344795	0,57946409
53	0,42440108	0,75499569	0,5868458
54	0,42836744	0,79602807	0,59791836
55	0,42836744	0,80423454	0,61637263
71	0,43233381	0,81244102	0,62375434
72	0,46009837	0,85757663	0,63851775
73	0,4680311	0,8657831	0,65328117
74	0,50769475	0,86988634	0,66804459
75	0,5473584	0,87809282	0,76400679
76	0,5592575	0,898609	0,7713885
77	0,59098842	0,9314349	0,78246106
78	0,59495478	1,13659677	0,78615192
120	0,59495478	1,13659677	0,78615192
143	0,59495478	1,13659677	0,78615192

**Tableau5:** Valeurs du taux d'absorption d'eau des composites PEBD/Farine de GE (70/30) traitée à différents temps à 40°C.

Temps (heures)	PEBD/GE (90/10)	PEBD/GE (80/20)	PEBD/GE (70/30)
1	0,00395977	0,01345442	0,01722416
2	0,81967213	1,4530777	1,04722863
3	0,85531005	1,69189371	1,06100796
4	0,81571236	1,75580222	1,05756313
5	0,87114912	2,10898083	1,33659444
6	1,00182149	2,32088799	1,4433842
7	1,00578126	2,34106963	1,4537187
23	1,0137008	2,34779684	1,46060836
24	1,02558011	2,35452405	1,46749802
25	1,03349964	2,36125126	1,47438768
26	1,04141918	2,37134208	1,48127734
27	1,04933872	2,38816011	1,48816701
28	1,05725826	2,39488732	1,49505667
29	1,06517779	2,40161453	1,50194633
30	2,39170032	2,92633703	1,50883599
31	2,39170032	2,92633703	1,50883599
47	2,39170032	2,92633703	1,50883599
48	2,39170032	2,92633703	1,50883599
49	2,39170032	2,92633703	1,50883599
50	2,39170032	2,92633703	1,50883599
51	2,39170032	2,92633703	1,50883599
52	2,39170032	2,92633703	1,50883599
53	2,39170032	2,92633703	1,50883599
54	2,39170032	2,92633703	1,50883599
55	2,39170032	2,92633703	1,50883599
71	2,39170032	2,92633703	1,50883599
72	2,39170032	2,92633703	1,50883599
73	2,39170032	2,92633703	1,50883599
74	2,39170032	2,92633703	1,50883599
75	2,39170032	2,92633703	1,50883599
76	2,39170032	2,92633703	1,50883599
77	2,39170032	2,92633703	1,50883599
78	2,39170032	2,92633703	1,50883599
120	2,39170032	2,92633703	1,50883599
143	2,39170032	2,92633703	1,50883599

## **Résumé:**

Le développement de matériaux composites à base des charges végétales présente de nombreux avantages dus à leur biodégradabilité, leur faible densité et leur faible coût. Cependant, la présence des groupements hydroxyles à la surface des charges végétales lui donne un caractère hydrophile qui les rend non compatibles avec la matrice polymérique à caractère fortement hydrophobe. La modification de la surface de la charge est généralement nécessaire pour créer des liaisons entre la charge et la matrice.

L'objectif de ce travail est l'étude des propriétés mécaniques, rhéologiques, thermiques, comportement à l'absorption d'eau et la biodégradation des composites polyéthylène basse densité/farine de Genêt d'Espagne non traitée et traitée par un traitement alcalin en fonction du temps et de la température.

**Mots Clés:** Absorption d'eau, Biodégradabilité, Charges végétales, Composites, Genêt d'Espagne, Propriétés mécaniques, Polyéthylène, Traitement de surface.

## **Abstract:**

Vegetables fillers have attracted much attention recently for use as reinforcing agents in composite materials. The advantages of vegetables fillers over their traditional counter-parts include: relatively biodegradability, lower density and lower cost. However, the main disadvantage of vegetables fillers is their hydrophilic nature that lowers the compatibility with hydrophobic polymeric matrices during composite fabrication. Due to the poor compatibility, surface of vegetables fillers must be treated to form bonds between the fillers and the polymer matrix

The aim of this work is to investigate the mechanical, rheological, thermal properties, water absorption behaviour and the biodegradability of the low density polyethylene/ filler of Spartium Junceum untreated and treated with alkaline treatment as a function of the time and temperature.

**Keywords:** Water absorption, Biodegradability, Vegetables fillers, Composites, Spartium Junceum, Mechanical properties, Polyethylene, Surface treatment.

## **ملخص :**

إن استعمال البودرة النباتية (على شكل ألياف) لتقوية المواد المركبة عرف تطورا كبيرا نظرا لخصائصها الميكانيكية، كثافتها المنخفضة، تدهورها الطبيعي و تكلفتها المنخفضة. تتكون البودرة النباتية أساسا من السيليلوز و التي تعد متعدد جزيئات يتميز بقابليته الكبيرة لامتصاص الماء و التي تخلق أهم مشكلة وهي عدم التصاقها مع المواد البلاستيكية.

الهدف من هذا العمل هو دراسة الخصائص الميكانيكية، الريولوجية، الحرارية، امتصاص الماء و التدهور الطبيعي للمواد المركبة بولي ايتيلان/بودرة الطرطاق غير المعالجة والمعالجة فلوليا بدلالة الزمن و درجة الحرارة.

**كلمات مفتاحية:** امتصاص الماء، تدهور طبيعي، البودرة النباتية، مواد مركبة، الطرطاق، خصائص ميكانيكية، بولي

ايتيلان، المعالجة السطحية.