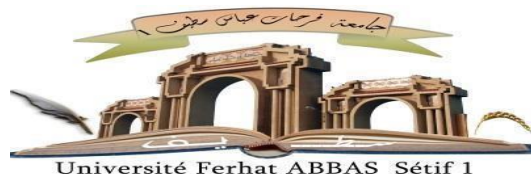


الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de L'Enseignement supérieur et de la Recherche Scientifique



UNIVERSITÉ FERHAT ABBAS - SETIF 1

FACULTÉ DE TECHNOLOGIE

THÈSE

Présentée au Département de Génie des Procédés

Pour l'obtention du diplôme de

DOCTORAT

Domaine : Science et Technologie

Filière : Génie des procédés

Option : Génie des polymères

Par

M^{elle} KHARCHI Nadia

THÈME

**Effet du traitement chimique et thermique d'un composite
(Polyacide lactique (PLA)/Ampélodesmos mauritanicus (Diss)).**

Soutenue le 22 / 10 / 2025 devant le Jury :

M.T. BENANIBA	Professeur	Université Ferhat.Abass. Sétif 1	Président
F. ROUABAH	Professeur	Université Ferhat.Abass. Sétif 1	Directeur de thèse
B. BARKA	MCA	Université Ferhat.Abass. Sétif 1	Co-Directeur de thèse
S. NEKKA	Professeur	Université Ferhat.Abass. Sétif 1	Examinatrice
A. MELOUKI	MCA	Université Mohamed Boudiaf - M'sila	Examineur
A. BENYAHIA	Professeur	Université Mohamed Boudiaf - M'sila	Examineur

Remerciement

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sein du Laboratoire Physico-Chimie des Hauts Polymères (LPCHP) du département de Génie des Procédés de l'Université Ferhat Abbas Sétif 1.

*Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers mon **Dieu**, qui m'a accordé le courage et la détermination nécessaires pour mener à bien ce travail.*

*Je tiens tout particulièrement à remercier mon directeur de thèse, Monsieur le Professeur **FARID ROUABEH**, pour l'encadrement qu'il m'a prodigué tout au long de ces cinq années. Je souligne sa remarquable disponibilité, la pertinence de ses conseils et la richesse de ses idées, ainsi que sa patience et son soutien constant.*

*Je tiens à adresser mes plus vifs remerciements à Monsieur **BRAHIM BARKA**, mon co-encadrant, dont l'aide précieuse et le suivi attentif ont marqué ces cinq années. Sa disponibilité, la pertinence de ses conseils et de ses idées, ainsi que sa patience et son soutien constants ont été essentiels à la réussite de ce parcours.*

J'exprime mes vifs et sincères remerciements à l'ensemble des membres du jury qui ont bien voulu consacrer de leur temps pour évaluer ce travail.

*Je remercie tout particulièrement Monsieur **MELOUKI AZEDDINE**, Maître de conférences à l'Université Mohamed Boudiaf de M'Sila, Monsieur **BENYAHIA AZZEDINE**, Professeur à la même université, ainsi que Monsieur **BENANIBA TAHAR**, Professeur à l'Université Ferhat Abbas Sétif 1, pour l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant de juger ce travail.*

*J'adresse également ma profonde gratitude à Madame **SORAYA NEKKAA**, Professeure à l'Université Ferhat Abbas Sétif 1, pour l'attention qu'elle a portée à mon travail, pour ses remarques pertinentes.*

*Mes plus sincères remerciements vont à Monsieur le Professeur **ABDELHAMID ISMAIL MOURAD** de l'Université des Émirats Arabes Unis. Son accompagnement constant et son aide précieuse ont été des piliers de ma réussite.*

*Je tiens également à adresser mes vifs remerciements à Mme **MAGALI FOIS**, membre du Centre d'Etudes et de Recherche en Thermique, Environnement et Système, Maître de Conférence à l'Université Paris Est Créteil, Créteil, (France) pour l'accueil chaleureux, pour avoir mis à ma disposition les équipements dont j'avais besoin. Je la remercie aussi pour sa gentillesse et sa disponibilité pendant mon séjour en France.*

*Je remercie vivement Melle **IBTISSEM SARROUB** pour son aide précieuse et sa disponibilité.*

Enfin, je tiens à remercier tous(es) qui ont contribué de près ou de loin à ma réussite.

Dédicace

*Ce travail est dédié à Dieu, et à mes merveilleux parents,
mon père et ma mère, qui ont toujours été là pour moi,
dans les bons et les mauvais moments. Leur amour
inconditionnel et leurs encouragements constants ont été une
source de force inépuisable. Merci de croire en moi.*

A mes chers sœurs et frères

*A toute ma famille en particulier qui a été proche de moi
dans tous les moments de joie et de bonheur, notamment
ma tante, que Dieu ait pitié d'elle*

A tous mes cousins et cousines.

A tous mes très chers amies et collègues.

*Et à tous les enseignants que j'ai rencontrés au cours de
mon parcours de l'école primaire à l'université.*

Liste des abréviations

Liste des abréviations

ATG : Analyse thermogravimétrique
BP : Particules de bambou
CNC : microfibres et de nanocristaux de cellulose
D : Isomères du lactide
DCP : Peroxyde de dicumyle
DMA : Analyse mécanique dynamique
DRX : Diffraction des rayons X
DSC : Analyse enthalpique différentielle
DTG : Dérivée ThermoGravimétrie
FDTAC : Fibre de Diss traitée avec l'acide citrique
FDNT : Fibre de Diss non traitée
FDTTH : Fibre de Diss traitée thermiquement
FTIR : Spectroscopie Infrarouge à Transformé de Fourier
L : Isomères du lactide
MCC : Cellulose microcristalline
MEB : Microscopie électronique à balayage
MFC : microfibres de cellulose
OPF : Fibre de fruits du palmier à huile (oil palm fruit)
PA : Polyamide
PCL : Polycaprolacton
PBAT: poly (butylène adipate-co-téréphtalate)
PDLA: Poly-D-lactique
PE : Polyéthylène
PET: Polyéthylène téréphtalate
PHA: Poly (hydroxyalcanoate) polyhydroxyalcanoates
PHB : Polyhydroxybutyrate poly-3-hydroxybutyrate
PHBV:(Poly (3-hydroxybutyrate-co-3- hydroxyvalérate)
PHH : Polyhydroxyhexanoate
PHV : Polyhydroxyvalérate
PLLA : Poly-L-lactide
POB : Peroxyde de benzoyle

Liste des abréviations

PP : Polypropylène

PS : Polystyrène

PTT : Poly (triméthylène téréphtalate)

PVA : Alcool polyvinylique

ROP : La polymérisation par ouverture d'anneau

S1,S2,S3 : Couches

Tc : Température de cristallinité

Tf : Température de fusion

Tg : Température de transition vitreuse

UV : Rayon ultraviolet

Xc : Indice de cristallinité

Liste des figures

Chapitre I

Figure I.1 Classification des matrices polymères vertes selon leur origine	5
Figure I.2 Classification des fibres naturelles selon leur origine renouvelable	6
Figure I.3 Micrographies des surfaces des composés BP/PLA : traités par une solution de NaOH pendant 3 heures	10
Figure I.4 Les thermogrammes TGA du PLA pur et des composites PLA/MCC avec différents teneurs en MCC.....	11
Figure I.5 Quelques applications des biocomposites	13

Chapitre II

Figure II.1 Classification des biopolymères	15
Figure II.2 une vue schématique d'un véhicule, avec l'indication des pièces pouvant être produites à partir de polymères biodégradables, par exemple les PHA.....	17
Figure II.3 Structure du PLA	18
Figure II.4 Stéréoisomères de l'acide lactique.....	19
Figure II.5 Voies de synthèse du PLA	20
Figure II.6 Le mécanisme réactionnel de la polycondensation de l'acide lactique menant à la formation du PLA.....	21
Figure II.7 Réaction de polycondensation azéotropique du PLA	21
Figure II.8 Polymérisation du PLA par ouverture de cycle du lactide	22

Chapitre III

Figure III.1 Paroi des fibres végétales et orientation des microfibrilles	28
Figure III.2 Structure chimique de la cellulose	29
Figure III.3 Structures des monomères essentiels à la formation des hémicelluloses.....	30
Figure III.4 Structure de lignine.....	31
Figure III.5 Structure de la pectine.....	31
Figure III.6 Impact du traitement à l'acide acrylique sur les fibres cellulosiques.....	35

Liste des figures

Figure III.7 Consommation d'énergie pour différents traitements chimiques par unité de fibre naturelle.....	36
Figure III.8 Plantes de Diss.....	39

Chapitre IV

Figure IV.1 Structure chimique de l'acide citrique.....	45
Figure IV.2 Organigramme de la méthodologie expérimental : partie A.....	52
Figure IV.3 Organigramme de la méthodologie expérimental : partie B.....	53

Chapitre V

Figure V.1 Spectres FTIR des fibres Diss : (a) non traitées, (b) traitées avec $C_6H_8O_2$	56
Figure V.2 Spectres FTIR des fibres Diss : (a) non traitées, (b) traitées thermiquement.....	56
Figure V.3 ATG de fibres de Diss non traitée, traitées avec (5%) l'acide citrique et traitées thermiquement.....	58
Figure V.4 Micrographies au microscope électronique à balayage (MEB) de fibres de Diss non traitées à (a) grossissement 300× et (b) grossissement 1200×.....	60
Figure V.5 Micrographies au microscope électronique à balayage (MEB) de fibres de Diss traitées à différents grossissements (a) 300×, (b) 1200× et (c) 2400×.....	60
Figure V.6 Micrographies au microscope électronique à balayage (MEB) de fibres de Diss traitées thermiquement à différents grossissements (a) 500×, (b) 200× et (c) 50×.....	61
Figure V.7 XRD du PLA et ses composites PLA/FDNT, PLA/FDTAC et PLA/FDTTH..	64
Figure V.8 (A) ATG et (B) DTG du PLA et leurs composites.....	66
Figure V.9 Micrographies électroniques à balayage montrant des composites PLA/FDNT à (a) grossissement 120×, (b) grossissement 650× et (c) grossissement 1000×.....	66
Figure V.10 Micrographies électroniques à balayage montrant des composites PLA/FDTAC à (a) grossissement 120×, (b) grossissement 650× et (c) grossissement 1500×.....	67
Figure V.11 Micrographies électroniques à balayage montrant des composites PLA/FDTTH (a) grossissement 120×, (b) grossissement 40× et (c) grossissement 50×.....	68

Liste des figures

Figure V.12 Analyse DSC du PLA pur, et de ses composites	69
Figure V 13 Résistance au choc Izod des composites de PLA pur et de ceux chargés avec des fibres de Diss traitées chimiquement et thermiquement (FDNT, FDTAC, FDTTH).....	72
Figure V 14 Propriétés mécaniques du PLA pur et ses composites : (a) module d'élasticité (GPa) et (b) résistance à la traction (MPa).....	74
Figure V 15 Allongement à la rupture de l'acide polylactique et de ses composites.....	76
Figure V 16 Variation du module de stockage (A) et de la tangente delta ($\tan \delta$) (B) en fonction de la température lors de l'analyse DMA du PLA pur, des composites PLA/FDNT PLA/FDTAC et PLA/FDTTH.....	77

Liste des tableaux

Chapitre I

Tableau I.1 Principaux avantages et inconvénients des biocomposites	12
--	----

Chapitre III

Tableau III.1 Composition de différentes fibres naturelles	32
Tableau III.2 Propriétés physiques de fibres végétales.....	40
Tableau III.3 L'absorption d'eau des fibres végétales dans les composites	40
Tableau III.4 Les propriétés mécaniques des différents fibres végétales	41
Tableau III.5 Principaux avantages et inconvénients des fibres végétales	42

Chapitre IV

Tableau IV.1 Caractéristiques de PLA (2003D).....	44
Tableau IV.2 Caractéristiques de l'acide citrique	45
Tableau IV.3 Composition des formulations matrice /fibre	46

Chapitre V

Tableau V.1 Comparaison de la composition chimique des fibres de Diss	54
Tableau V.2 Densité de fibres de Diss	55
Tableau V.3 Analyse thermogravimétrique des fibres de Diss (Ampélodesmos mauritanicus) sans et avec traitement	59
Tableau V.4 Analyse thermogravimétrique des composites PLA/Diss avec et sans traitement.	66
Tableau V.5 Résultats de l'analyse thermique du PLA pur, PLA/FDNT, PLA/FDTAC et PLA/FDTTH par DSC.....	71

Liste des tableaux

Tableau V.6 Analyse de la résistance au choc Izod des composites PLA, PLA/FDNT, PLA/FDTAC et PLA/FDTTH	72
Tableau V.7 Analyse des propriétés mécaniques du PLA pur et de ses composites avec les fibres de FDNT, FDTAC et FDTTH.....	75
Tableau V.8 Résultats viscoélastique du PLA pur et ses composites PLA/FDNT, PLA/FDTAC et PLA/FDTTH	79

Sommaire

Remerciements.....	i
Dédicaces.....	ii
Liste des abréviations.....	iii
Liste des figures	v
Liste des tableaux	viii
Sommaire	x
Introduction Générale	1

Chapitre I

État de l'art sur les biocomposites

I.1 Généralités sur les biocomposites	3
I.2 Composition des biocomposites.....	3
I.2.1 Matrice.....	3
I.2.1.1 Sources renouvelables	3
I.2.1.2 Sources à base de combustibles fossiles	4
I.2.1.3 Sources mixtes.....	4
I.2.2 Les renforts	5
I.3 Performances des bio-composites	6
I.3.1 Propriétés mécaniques	6
I.3.2 Propriétés thermiques	8
I.3.3 Propriétés morphologiques	9
I.4 Biocomposites PLA/fibres végétales.....	9
I.5 Avantages et inconvénients des biocomposites du point de vue environnemental	11
I.6 Applications des biocomposites	12

Chapitre II

Les polymères biodégradables

II.1 Polymères biodégradables	14
II.2 Classification des polymères biodégradables	14

II.3 Applications des Biopolymères	15
II.3.1 Applications d'emballage	16
II.3.2 Agriculture	16
II.3.3 Applications automobiles	16
II.3.4 Applications biomédicales	17
II.4 Polyacide lactique	17
II.5 Synthèse du PLA.....	18
II.6 Propriétés du polyacide lactique	22
II.6.1 Propriétés thermiques	23
II.6.2 Propriétés mécaniques	23
II.6.3 Propriétés rhéologiques	23
II.6.4 Autres propriétés du PLA : barrières, physique et optiques	24
II.7 Biodégradation du polyacide lactique	24
II.8 Facteurs influençant la biodégradation	25
II.8.1 Paramètres microbiens de la dégradation	25
II.8.2 Paramètres physico-chimiques de la dégradation	25
II.8.3 Propriétés structurelles des polymères constituant le matériau	25
II.8.4 Procédé de transformation du matériau	25
II.9 phases cristallines du PLA.....	25
II.9.1 Phase α	26
II.9.2 Phase β	26
II.9.3 Phase γ	26

Chapitre III

Généralité sur les fibres végétales

III Généralité sur les fibres végétales	27
III.1 Définition de la fibre végétale	27
III.2 L'histoire des fibres végétales	27
III.3 Structure et morphologie d'une fibre végétale	27

III.4 Composition chimique d'une fibre végétale	29
III.4.1 Cellulose	29
III.4.2 Hémicellulose	29
III.4.3 Lignine	30
III.4.4 Pectines	31
III.4.5 Extractibles	32
III.5 Traitement et modification de la surface des fibres végétales	32
III.5.1 Par voie chimique	33
III.5.1.1 Traitement alcalin	33
III.5.1.2 Traitement au permanganate	34
III.5.1.3 Silanisation	34
III.5.1.4 Traitement par acétylation	34
III.5.1.5 Traitement Acidification (acide citrique)	35
III.5.2 Par voie physique	36
III.5.2.1 Traitement corona	36
III.5.2.2 Traitement plasma	37
III.5.2.3 Traitement ultraviolet	37
III.5.3 Par voie thermique	37
III.5.4 Traitement enzymatique	38
III.6 Généralités sur la Plante de Diss	38
III.7 Les propriétés physiques et chimiques des fibres végétales	39
III.7.1 Propriétés physiques	39
III.7.2 Propriétés mécaniques	41
III. 8 Principaux avantages et inconvénients des fibres végétales	42
III.9 Applications des fibres végétales	42

Chapitre IV

Matériels et méthodes

IV.1 Objectif.....	44
IV.2 Matériaux utilisés.....	44
IV.2.1 Poly (acide lactique).....	44
IV.2.2 Ampélodesmos mauritanicus (Diss).....	44
IV.2.3 Acide citrique.....	45
IV.2.4 Agent de blanchiment.....	45
IV.3. Méthodologie expérimentale	45
IV.3.1 Prétraitement des feuilles de Diss	45
IV.3.2 Traitement chimique des fibres de Diss	45
IV.3.3 Traitement thermique des fibres de Diss	46
IV.3.4 Procédé de mise en œuvre	46
IV.4 Techniques de caractérisation	46
IV.4.1 Détermination de la composition chimique de la fibre de Diss.....	46
IV.4.1.1 Détermination du taux de l'hémicellulose.....	47
IV.4.1.2 Détermination du taux de la cellulose	47
IV.4.1.3 Détermination du taux de la lignine (Lignine de Klason)	47
IV.4.2 Détermination de la densité	48
IV.4.3 Infrarouge à Transformée de Fourier	48
IV.4.4 Analyse thermogravimétrique.....	49
IV.4.5 Diffraction des rayons X.....	49
IV.4.6 Calorimétrie différentielle à balayage	49
IV.4.7 Analyse dynamique mécanique.....	50
IV.4.8 Caractérisations mécaniques.....	50
IV.4.8.1 Résistance au choc (Izod)	50
IV.4.8.2 Essai de traction	51
IV.4.9. Microscopie électronique à balayage	51

IV.4.10 Méthodologie expérimentale	52
--	----

Chapitre V

Résultats et discussions

V.1 Caractérisation de la fibre de Diss.....	54
V.1.1 Composition chimique de la fibre de Diss	54
V.1.2 Densité	55
V.1.3 Analyse structurelle	56
V.1.4 Stabilité thermique	58
V.1.5 Analyse morphologique	60
V. 2 Caractérisation du composites (Diss/PLA).....	62
V.2.1 Analyse de la microstructure (DRX)	62
V.2.2 Stabilité thermique	64
V.2.3 Analyse morphologique	66
V.2.4 Propriétés thermiques	69
V.2.5 Propriétés mécaniques	71
V.2.5.1 Résistance au choc.....	71
V.2.5.2 Propriétés de traction	73
V.2.6 Propriétés viscoélastiques	76
Conclusion générale	80
Perspectives.....	82
Références bibliographiques.....	83

Introduction Générale

Introduction Générale

L'augmentation continue de l'emploi des plastiques, alimentée par la croissance industrielle, les avancées technologiques et de la population, met en évidence la nécessité d'alternatives durables. Les biocomposites émergent comme une solution prometteuse dans ce contexte. Ces matériaux, grâce à leur faible coût, leur disponibilité et leur biodégradabilité [1,2], s'imposent comme des matériaux importants aujourd'hui.

Un biocomposite est défini comme un matériau capable de se transformer en dioxyde de carbone, méthane et divers composés organiques sous l'action enzymatique des micro-organismes [3]. Ils sont classés parmi les polymères qui se décomposent en matériaux de faible poids moléculaire par le biais du métabolisme biologique naturel [4,5].

L'intérêt croissant pour les composites à base de biopolymères, tant dans la recherche que dans l'industrie, s'explique par leur respect de l'environnement, leur durabilité environnementale et leur potentiel pour diverses applications. Les biocomposites incorporant des fibres naturelles et des biopolymères sont considérés comme un choix idéal pour le développement de matériaux biodégradables pour de multiples usages.

Parmi les biopolymères prometteurs, le poly (acide lactique) se distingue par son caractère écologique et ses qualités uniques, telles qu'une bonne transparence, une excellente aptitude à la transformation, un aspect brillant et une forte rigidité. Les composites du PLA à base fibres naturelles représentent ainsi des matériaux entièrement biologiques dont la biodégradabilité et les propriétés mécaniques sont particulièrement encourageantes.

Les fibres naturelles, extraites de plantes ligneuses ou non ligneuses et majoritairement composées de cellulose, sont fondamentaux pour le développement des biocomposites. La cellulose, un composant cristallin, non toxique et d'une grande pureté, possède de bonnes propriétés mécaniques et une faible solubilité chimique [6,7]. Selon des études antérieures, une liaison efficace entre la matrice et la fibre est essentielle pour optimiser les caractéristiques mécaniques et la résistance thermique de ces biocomposites. Parallèlement, la demande de biopolymères s'est considérablement accrue au cours des dix dernières années, motivée par l'étendue croissante de leurs applications et les préoccupations environnementales [8-10].

Introduction Générale

Le poly (acide lactique), par exemple, est un biopolymère largement utilisé dans différents secteurs, notamment l'emballage, le médical, le rembourrage, le textile et les intérieurs automobiles, en raison de sa légèreté, de sa bonne biocompatibilité, de sa biodégradabilité et de certaines de ses propriétés mécaniques [11].

Cette thèse se concentre sur la valorisation d'une plante locale, le Diss (*Ampélodesmos mauritanicus*), en exploitant ses tiges comme renforcement dans des matériaux composites. Les fibres obtenues ont été soumises à un traitement à l'acide citrique avec 5%, composé naturel et biodégradable choisi comme une alternative plus écologique aux traitements alcalins traditionnels et un traitement thermique afin d'améliorer l'accessibilité de la cellulose pour la matrice polymère. Par la suite, nous avons effectué des caractérisations morphologiques, mécaniques et thermiques afin d'estimer l'influence des traitements appliqués aux fibres et l'adhérence à l'interface fibre-matrice.

La structure de cette thèse se compose de deux parties principales. Commence par la section, théorique, comprend trois chapitres qui explorent l'état actuel des connaissances sur les biocomposites (chapitre 1), les fondements des polymères biodégradables (chapitre 2) et les caractéristiques générales des fibres végétales (chapitre 3). La seconde section, expérimentale, est constituée de deux chapitres. Le premier décrit en détail l'approche méthodologique, les techniques expérimentales mises en œuvre et les protocoles d'élaboration des matériaux composites étudiés.

Le second chapitre présente et analyse les résultats obtenus sur la fibre de Diss (avant et après traitements) et les biocomposites. Finalement, l'ensemble des contributions de cette étude est résumé dans une conclusion générale.

Chapitre I

État de l'art sur les

biocomposites

I.1 Généralités sur les biocomposites

Une innovation capitale dans le domaine des matériaux composites réside dans les biocomposites. Ils combinent une matrice de polymère biodégradable et des biofibres comme éléments de renforcement. Les biocomposites suscitent un intérêt accru en raison d'une conscience environnementale grandissante et des technologies durables. [12]. Les biocomposites sont respectueux de l'environnement et leurs applications se développent dans divers domaines.

I.2 Composition des biocomposites

I.2.1 Matrice

Les « bioplastiques », ou matrices polymères vertes, représentent une catégorie de matériaux durables, tirés soit de sources entièrement renouvelables, soit de ressources fossiles, et conçus pour être biodégradables ou compostables grâce à l'action de micro-organismes [13]. Il est important de noter que la biodégradabilité d'un polymère ne garantit pas nécessairement son origine renouvelable. Certains polymères biodégradables, comme le polycaprolactone (PCL), sont synthétisés à partir de ressources fossiles.

Les matrices vertes sont classées en trois catégories, selon leur source d'origine :

- Les matrices issues de sources renouvelables
- Les matrices issues de sources de combustibles fossiles
- Les matrices issues de sources mixtes

I.2.1.1 Sources renouvelables

Les polymères de cette catégorie sont intégralement issus de sources renouvelables, telles que de matière végétale ou animale.

Cela inclut les biopolymères d'origine végétale tels que la cellulose, la lignine et l'amidon, ceux d'origine animale comme la chitine et les protéines, ainsi que les polymères synthétiques biosourcés tels que l'acide poly(lactique). Les polyhydroxyalcanoates (PHA) constituent une large famille de polymères d'origine renouvelable, synthétisés naturellement par des procédés de fermentation bactérienne de sucres ou de lipides.

Les trois polyhydroxyalcanoates les plus importants sont le poly (3-hydroxybutyrate) (**PHB**), le polyhydroxyvalérate (**PHV**) et le polyhydroxyhexanoate (**PHH**) [13].

I.2.1.2 Sources à base de combustibles fossiles

Il est important de distinguer les polymères biosourcés, souvent appelés « polymères verts », qui proviennent de sources renouvelables, des polymères biodégradables d'origine fossile. Certains polymères, bien que dérivés de combustibles fossiles, sont biodégradables. La nature des groupes fonctionnels présents sur ces polymères leur permet d'être dégradés par les bactéries dans certaines conditions. Par exemple, le polycaprolactone (PCL) et le poly (butylène adipate-co-téréphtalate) (PBAT), entièrement issus de combustibles fossiles, présentent la caractéristique d'être biodégradable [14].

I.2.1.3 Sources mixtes

Les bioplastiques à source mixte sont fabriqués à partir de monomères provenant à la fois de combustibles renouvelables et fossiles. Par exemple, le poly (triméthylène téréphtalate) (PTT) est synthétisé à partir d'acide téréphtalique (source fossile) et de 1,3-propanediol (source renouvelable) [13,14].

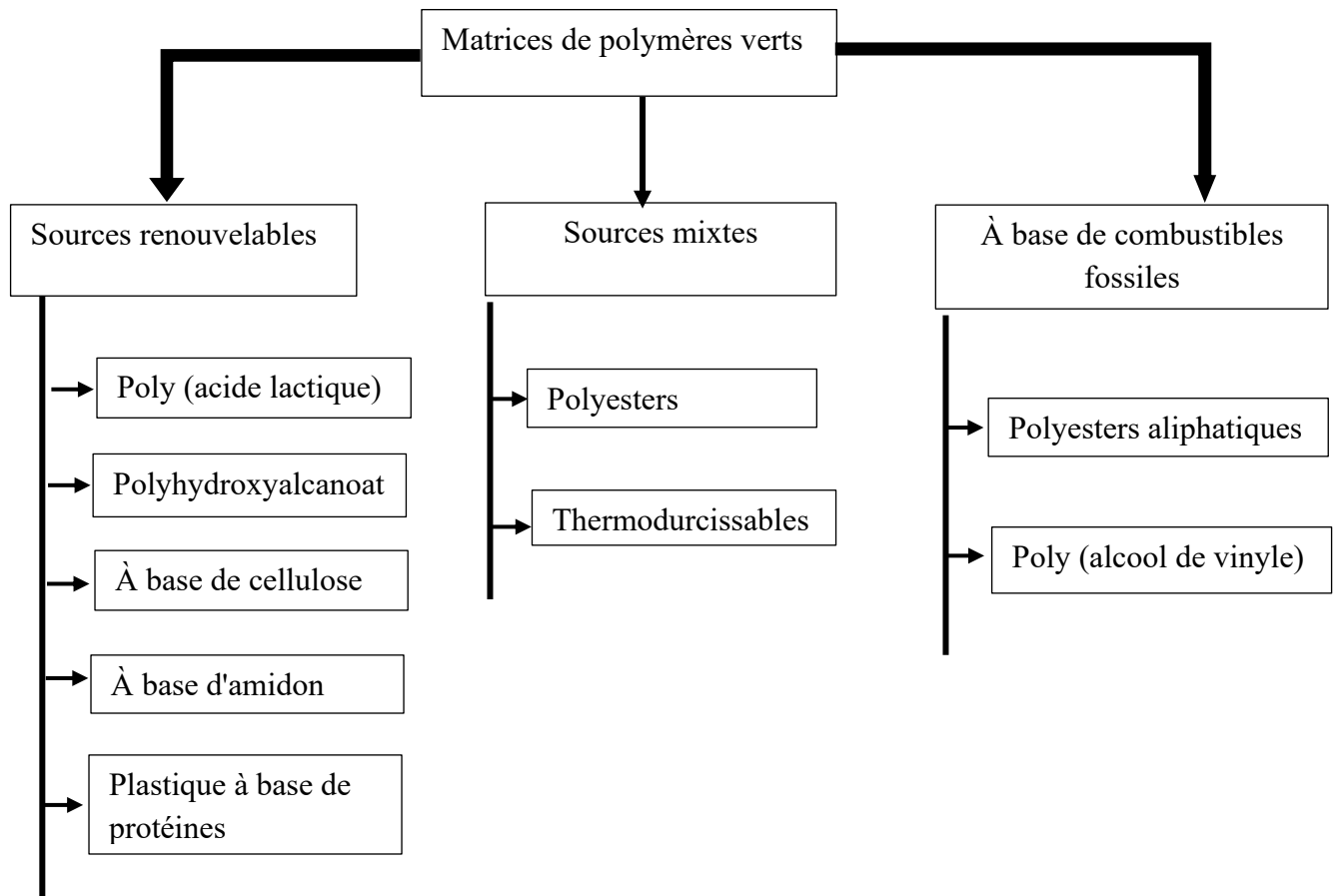


Figure I.1 Classification des matrices polymères vertes en fonction de leur origine [13].

I.2.2 Les renforts

Les renforts verts, ou biofibres, biocharges et fibres naturelles, sont majoritairement d'origine végétale et animale, issus de la biomasse. Leur typologie est basée sur leur provenance. L'ajout de ces fibres naturelles aux composites a pour but d'améliorer leurs propriétés mécaniques spécifiques [15,16].

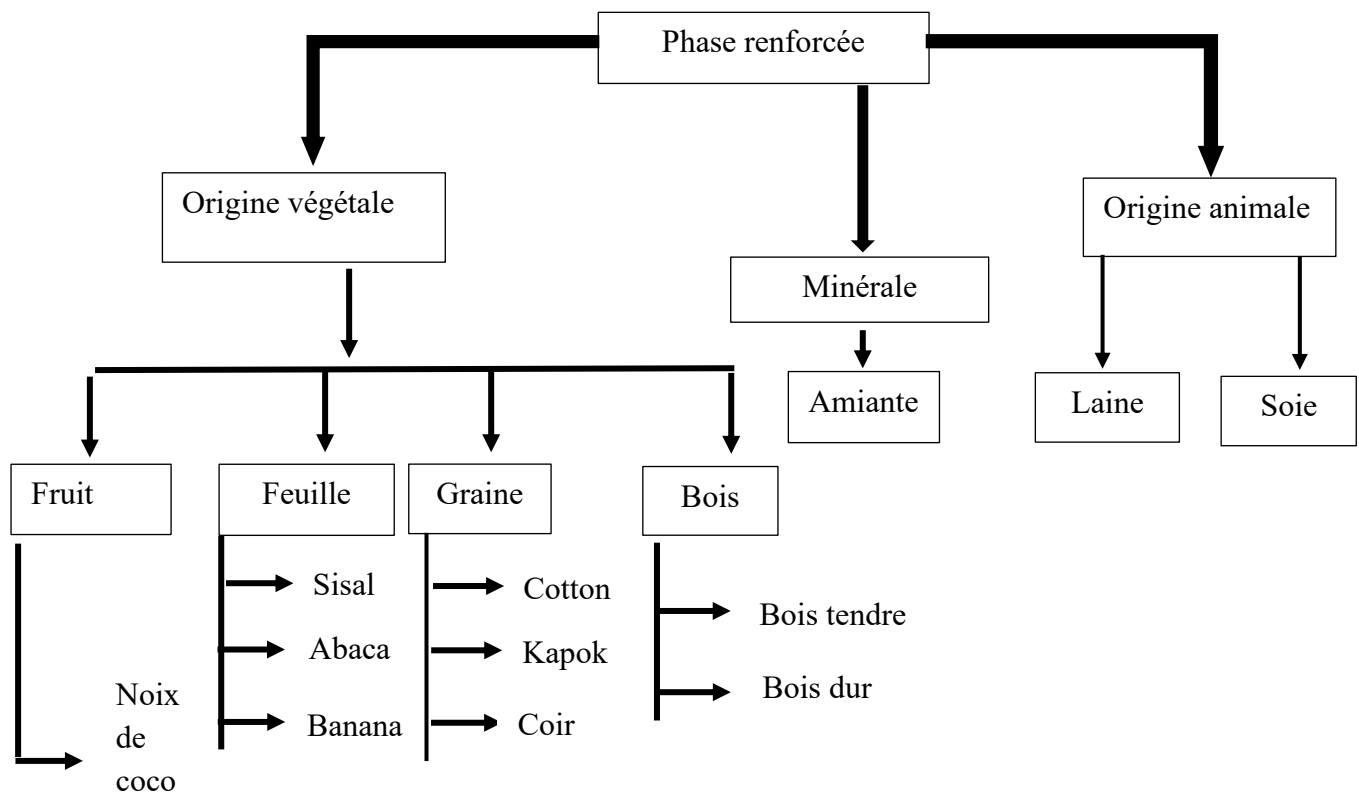


Figure I.2 Classification des fibres naturelles selon leur origine renouvelable [16].

I.3 Performances des bio-composites

Pour optimiser l'emploi des composites à fibres naturelles, il est essentiel de connaître leurs propriétés mécaniques.

Parmi ces propriétés, on peut citer la résistance à la traction, la flexion, la résilience au choc et les propriétés viscoélastiques (analyse mécanique dynamique) [17].

I.3.1 Propriétés mécaniques

Les propriétés mécaniques des biocomposites dépendent de plusieurs paramètres tels que la technique de fabrication, les propriétés des fibres et de la matrice, le contenu des matériaux constitutifs, la forme et la taille des fibres, la température, la liaison interfaciale, etc... [18,19].

- **Propriétés à la traction**

L'analyse des propriétés de traction est primordiale pour les composites à renforts de fibres naturelles. La résistance à la traction d'une fibre est un critère de sélection déterminant pour son utilisation dans une application spécifique [14-17].

Bledzki et al [20,21] ont étudié les propriétés mécaniques des composites PP renforcés de fibres d'abaca en fonction de la longueur des fibres (5, 25 et 40 mm) et de différents procédés de compoundage (moulage par mélangeur-injection, moulage par mélangeur-compression et moulage par compression directe). Les résultats ont mis en évidence un accroissement des propriétés de traction lié à l'augmentation de la longueur des fibres, Cependant, cette augmentation de la résistance à la traction des composites n'était pas statistiquement significative. Cela suggère que, dans les paramètres expérimentaux de cette étude, les variations de longueur de fibres n'ont pas eu un impact déterminant sur la résistance à la traction des composites.

En se basant sur les travaux de Bajpai et al [11], un biocomposite à base d'acide polylactique (PLA) a été développé, enrichi de 20 % en poids de fibres de sisal. L'ajout de ces fibres a considérablement amélioré les propriétés mécaniques, notamment la résistance à la traction, qui a atteint 80,6 MPa.

- **Propriétés à la flexion**

La rigidité en flexion évalue la capacité d'une structure à résister à la déformation sous une charge de flexion. Elle est déterminée par deux facteurs principaux : le module d'élasticité du matériau, qui représente sa résistance à la déformation élastique, et le moment d'inertie, qui décrit la distribution de la matière autour de l'axe de flexion [14].

En accord avec Bajpai et al [22] un biocomposite basé sur le poly (acide lactique), un polymère dégradé, a été élaboré avec un ajout de 20 % en masse de fibres de sisal, qui sont des fibres naturelles. Les études montrent que l'ajout de fibres de sisal a mené à une augmentation substantielle de la résistance à la flexion, atteignant 249,8 MPa.

Yu et al [19] ont observé dans leur étude que les propriétés de flexion des biocomposites PLA étaient améliorées par l'introduction de 30 % en poids de fibres de ramie jusqu'à 105,2 MPa.

En outre, l'effet de l'ajout du même pourcentage de fibres de ramie (30 % en poids) sur la résistance à la flexion a été étudié par Jiang et al [23]. Il a été observé que la résistance à la flexion a été augmentée à 132.5 MPa.

- **Résistance au choc**

La résistance au choc est une propriété essentielle qui détermine la résistance d'un matériau aux efforts dynamiques élevés, telles que celles rencontrées lors d'un impact.

Bien que les composites plastiques renforcés de biofibres présentent des avantages considérables, notamment en termes de propriétés spécifiques, leur résistance au choc est souvent inférieure en comparaison avec les composites traditionnels renforcés de fibres de verre, ce qui limite leur utilisation dans certaines applications [14].

Mohanty et al [24] ont examiné les effets d'un traitement spécifique sur les propriétés mécaniques de composites jute/Biopol, un polymère biodégradable, et jute/PA (polyamide). Les résultats ont démontré une augmentation de la résistance à l'impact des composites, atteignant des valeurs comparables à celles des feuilles de Biopol pur.

L'efficacité de la modification de surface pour améliorer les performances des composites à base de fibres naturelles est mise en évidence par ces résultats.

Les composites PP renforcés par des fibres d'abaca ont démontré une résistance aux chocs Charpy entaillé et la résistance à l'impact par la chute d'un poids significativement meilleures que les composites renforcés par des fibres de jute et de lin, selon l'étude comparative menée par Bledzki et al [20,21].

I.3.2 Propriétés thermiques

L'étude de Asrofi et al [25] a porté sur la fabrication réussie de biocomposites à base de PVA chargés de fibres d'abaca, par le procédé de coulée en solution. L'exposition UVB consiste à irradier le polymère avec des rayons ultraviolets B pour améliorer de manière efficace les caractéristiques mécaniques, thermiques et de cristallinité des biocomposites. Cet échantillon a également présenté la stabilité thermique la plus favorable, avec une température de dégradation de 322,7 °C dans la région 2.

La zone cristalline des biocomposites a augmenté avec la durée d'exposition aux UVB, ce qui indique que les fibres sont mieux dispersées dans la matrice.

L'étude de Ruz-Cruz et al. [26] a consisté à élaborer des composites à base des microfibrilles de cellulose (MFC), ainsi que par un mélange de microfibrilles et de nanocristaux de cellulose (CNC). Leurs observations ont révélé qu'en substituant 15 % des MFC par des CNC, une amélioration significative des propriétés mécaniques et thermiques était obtenue.

I.3.3 Propriétés morphologiques

Les propriétés morphologiques des composites décrivent la structure et l'arrangement des différents composants (matrice et renfort) au sein d'un matériau composite. Ces propriétés sont cruciales car elles influencent directement les performances globales du composite, notamment ses propriétés mécaniques, thermiques et chimiques.

Pujar and Mani [27] ont élaboré des composites de poly (acide lactique) renforcés par des fibres de tiges de Pois d'Angole. L'analyse morphologique des surfaces de rupture a révélé une adhésion solide et une distribution uniforme des fibres dans la matrice PLA.

I.4 Biocomposites PLA/fibres végétales

Les biocomposites PLA/fibres végétales incarnent une avancée significative vers des matériaux plus durables. En combinant la biodégradabilité du PLA, un polymère issu de ressources renouvelables, avec le renforcement apporté par les fibres végétales, on obtient un matériau dont l'empreinte environnementale est considérablement réduite. Ces biocomposites offrent une alternative viable aux plastiques traditionnels, contribuant ainsi à la diminution des déchets plastiques et en combattant le changement climatique. Leur capacité à se décomposer naturellement en fin de vie en fait des matériaux de choix pour une économie circulaire [25].

Les chercheurs ont étudié différentes combinaisons et proportions de biopolymères (comme le PLA, l'amidon, la cellulose) et de fibres végétales (lin, chanvre, bambou, etc...) afin de trouver les formulations les plus performantes.

Dans leur étude, Dhar et al. [28] ont fabriqué des films biocomposites PLA renforcés par des nanocristaux de cellulose (CNC). Ils ont utilisé un procédé d'extrusion avec du peroxyde de dicumyle (DCP) comme agent de réticulation.

Une amélioration marquée des propriétés mécaniques a été démontrée par leurs résultats, qui révèlent une hausse de 40 % de la résistance à la traction et de 490 % du module d'élasticité.

En outre, ils ont observé une plus grande stabilité thermique du biocomposite PLA/CNC grâce à l'utilisation du DCP. Cette amélioration de la stabilité thermique du matériau est directement influencée par son niveau de cristallinité, car le greffage du PLA sur les CNC agit comme un agent nucléant, favorisant ainsi la formation de cristaux.

Qian et al [29] ont examiné comment un prétraitement alcalin à faible concentration (0,3N) modifie les propriétés des composites PLA renforcés par des particules de bambou. Le traitement a entraîné une transformation de la surface du bambou, avec l'apparition de rainures verticales et un accroissement marqué de la surface spécifique, atteignant 376,92 m²/g après 3 heures. Cette modification de surface, associée au maintien des propriétés mécaniques des fibres de bambou, Cela a permis d'améliorer considérablement l'interface entre le bambou et le PLA, influençant positivement les performances du composite.



Figure I.3 Micrographies des surfaces des composés BP/PLA : traités par une solution de NaOH pendant 3 heures [29].

Haafiz et al [30] ont étudié les propriétés de composites à base d'acide polylactique renforcés par de la cellulose microcristalline (MCC) extraite de la biomasse du palmier à huile.

Leurs résultats ont démontré que l'incorporation de MCC améliorait significativement la stabilité thermique des composites PLA/MCC comparé au PLA pur.

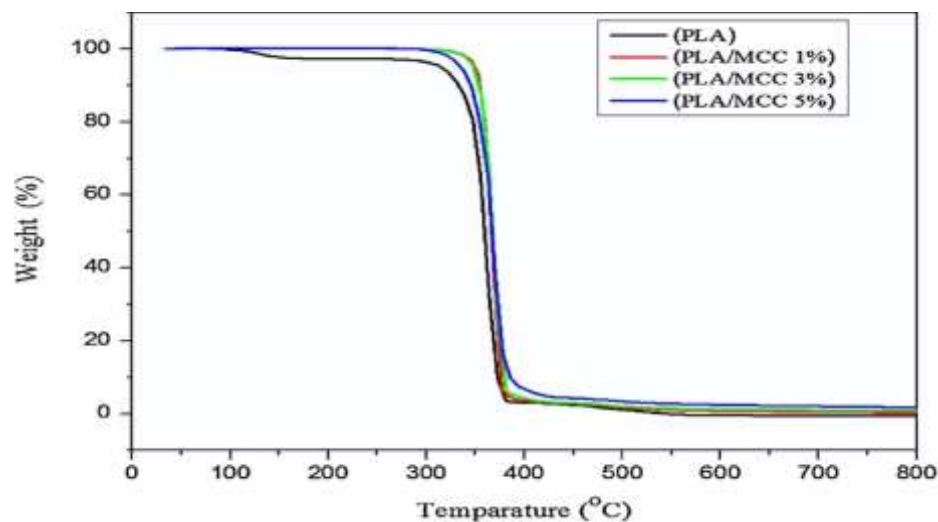


Figure I.4 Les thermogrammes ATG du PLA pur et des composites PLA/MCC avec différentes teneurs en MCC [30].

I.5 Avantages et inconvénients des biocomposites du point de vue environnemental

Une demande en forte hausse pour les matériaux composites, due à leurs propriétés exceptionnelles qui diversifient les possibilités d'application, suscite l'intérêt des chercheurs. L'ajoute majeur des composites face aux matériaux conventionnels en vrac et leur excellent rapport résistance/poids.

Les composites conventionnels sont habituellement produits à partir de polymères synthétiques, issus des dérivés pétroliers. Ces polymères ne bénéficient pas d'une large acceptation du fait de problématiques environnementales, étant donné qu'ils ne sont pas biodégradables, manquent de durabilité et contaminent l'environnement lorsqu'ils se décomposent.

De plus, les réserves de pétrole s'épuisent avec une grande rapidité et courent le danger d'être totalement épuisées à cause de leur consommation intensive.

Les biocomposites à base du PLA représentent une solution potentielle les plus efficaces pour substituer les composites qui ne sont ni biodégradables ni durables [31].

Tableau I.1 Principaux avantages et inconvénients des biocomposites [32,33].

Avantages	Inconvénients
Biodégradable et recyclable	Forte absorption d'humidité
Réduction de la pollution	Mauvaise compatibilité
Risques sanitaires minimales et moins toxiques Résistance à l'abrasion des machines	Mauvaise mouillabilité des renforts (hydrophiles) avec la matrice polymère (hydrophobe)
Faible besoin en énergie pour leur développement,	Propriétés non uniformes
Résistance à l'abrasion des machines	Résistance modérée
Nécessitent moins d'entretien	Faible stabilité thermique
Faible coût	

I.6 Applications des biocomposites

Les biocomposites offrent d'excellentes performances qui les rendent plus avantageux que les composites polymères à base de fibres synthétiques pour de multiples applications.

Les principaux domaines d'application des biocomposites sont les suivants : pièces automobiles, bâtiment et construction, industries électriques et électroniques, pièces d'équipement agricole, matériaux d'emballage, biomédical et pièces structurelles [34,35], et d'autres marchés commerciaux.

Diverses pièces automobiles, par exemple les tableaux de bord, les portières, les plateaux d'emballage, les garnitures de toit et certains composants internes, sont en cours de développement à l'aide de ces biopolymères à base de fibres naturelles [22,36]. Les marchés industriels des polymères biodégradables sont susceptibles d'augmenter considérablement dans un avenir proche [16,37].



Figure I.5 Quelques applications des biocomposites [38].

Chapitre II

Les polymères

biodégradables

II.1 Polymères biodégradables

Conformément à la norme ASTM D-5488-94d, Les polymères biodégradables sont des matériaux qui se décomposent naturellement, sous l'action de micro-organismes, en présence d'oxygène. Ce processus les transforme en éléments simples comme l'eau, le dioxyde de carbone et la biomasse, dans des conditions environnementales particulières. Ce processus de biodégradation implique l'action enzymatique de ces micro-organismes [39]. Les polymères biodégradables sont intéressants grâce à leur structure macromoléculaire innovante et de leur potentiel de fin de vie écologique, notamment par compostage. Ils représentent des matériaux à haute valeur ajoutée, contribuant à la durabilité des bioraffineries. Ils représentent une solution de rechange prometteuse face aux ressources pétrochimiques limitées, tout en jouant un rôle actif dans la diminution des émissions de CO₂ [40].

La biodégradation est un phénomène naturel essentiel en utilisant les substances organiques présentes dans la nature sont transformées en composés plus simples et inorganiques. Ces composés sont ensuite réintégrés dans les cycles biogéochimiques, comme ceux du carbone, de l'azote et du soufre. Ce processus ne peut se dérouler que dans la biosphère, car il repose sur l'activité des micro-organismes. Les bactéries, les champignons et les levures, grâce à leurs enzymes, jouent un rôle central en consommant les substances organiques comme source de nourriture, entraînant ainsi leur décomposition. Sous certaines conditions optimales d'humidité, de température et d'oxygénation, la biodégradation se produit à un rythme assez rapide [41].

II.2 Classification des polymères biodégradables

La classification des biopolymères repose sur deux critères essentiels : leur biodégradabilité et la provenance des ressources nécessaires à leur production. Cette classification permet de distinguer différents groupes, ou types, de polymères biodégradables, chacun étant caractérisé par son processus de synthèse spécifique [42].

- **Les polymères naturels** : Les polymères naturels sont des substances fabriquées par des êtres vivants (plantes, animaux, micro-organismes). Ils se répartissent en plusieurs familles :
 - **Les polysaccharides** : cette famille regroupe les glucides complexes tel que l'amidon, la cellulose, la lignine et la chitine.

- **Les protéines** : on y trouve des exemples comme le gluten, la caséine, le collagène et la gélatine.
- **Les lipides** : comprennent des huiles végétales comme celles de colza, de soja et de tournesol [39,40].
- **Les polymères d'origine bactérienne** : sont des polymères obtenus par production microbienne ou fermentation (les polyhydroxyalcanoates par exemple). Selon les souches bactériennes utilisées, on obtient des polymères variés tels que les PHA, PHV, EPS, Alginates et Xanthane [39-43].
- **Les polymères synthétisés par voie conventionnels** : issus de la biomasse sont synthétisés à partir de monomères obtenus par fermentation. La polycondensation de ces bio-monomères produit des polyesters, le plus connu étant le poly (acide lactique) (PLA). [41].

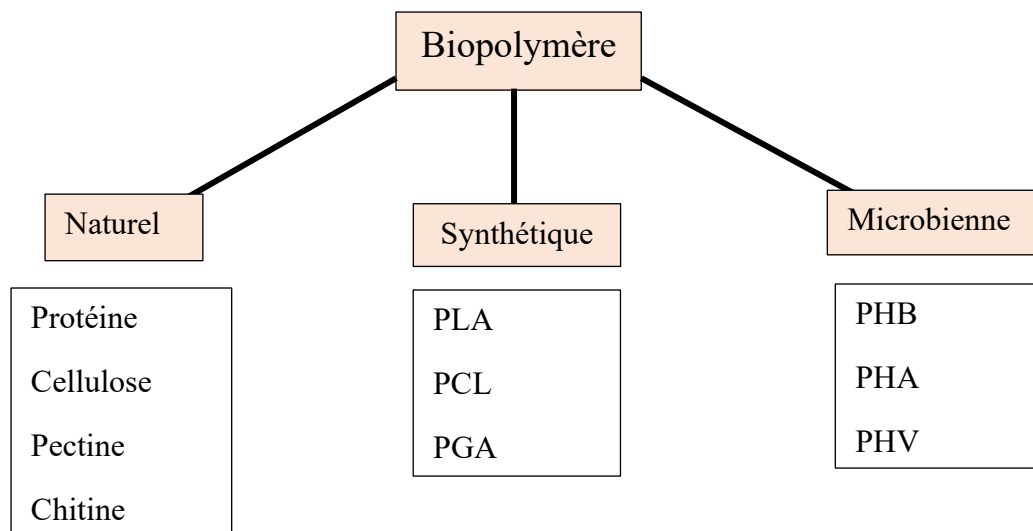


Figure II.1 Classification des biopolymères [5].

II.3 Applications des Biopolymères

Les polymères biodégradables trouvent leur utilité dans une multitude de secteurs, allant des applications courantes telles que l'emballage, l'agriculture, l'automobile, l'électronique et le textile, jusqu'aux domaines de pointe comme la médecine, où ils sont employés pour des dispositifs à haute valeur ajoutée tels que les implants vasculaires, les fils de suture, les vis et broches, et les ligaments artificiels [44].

II.3.1 Applications d'emballage

L'industrie de l'emballage se positionne comme un secteur de pointe pour l'adoption des matériaux biodégradables, en raison d'une conjoncture favorable. Les enjeux économiques considérables liés à ce marché, couplés à une recherche active pour améliorer les performances des emballages (notamment pour la barrière à la vapeur d'eau et la résistance), stimulent l'innovation. Parallèlement, l'impératif de sécurité alimentaire, qui exige une protection efficace des produits contre les altérations physiques, chimiques et biologiques à chaque étape de la distribution, renforce l'intérêt pour des solutions d'emballage durables et performantes. Ainsi, la convergence des impératifs économiques, des avancées technologiques et des exigences de sécurité fait de l'emballage un domaine d'application privilégié pour les matériaux biodégradables [45].

II.3.2 Agriculture

Les biopolymères offrent des avantages significatifs pour l'agriculture, en contribuant à une production accrue tout en préservant l'environnement et les ressources naturelles. Ces matériaux, tels que la cellulose, l'amidon, l'acide alginique, la lignine et la chitine, sont de plus en plus utilisés pour leur efficacité technique et leur rentabilité économique.

Ils présentent plusieurs avantages, comme la rétention de l'humidité du sol, la diminution de l'évaporation, l'augmentation de la température du sol pour une meilleure croissance des plantes, et limitent les herbes indésirables. En particulier, les films biopolymères gagnent en popularité, remplaçant progressivement les paillis en polymères conventionnels [41,45].

II.3.3 Applications automobiles

L'industrie automobile, pilier économique et technologique mondial, se tourne vers des solutions plus durables. Au Mexique, où ce secteur représente une part significative des exportations, les biopolymères offrent une alternative prometteuse aux plastiques traditionnels. Entièrement biodégradables, Ils aident à minimiser les conséquences environnementales de l'industrie automobile en limitant l'accumulation de déchets plastiques [46].

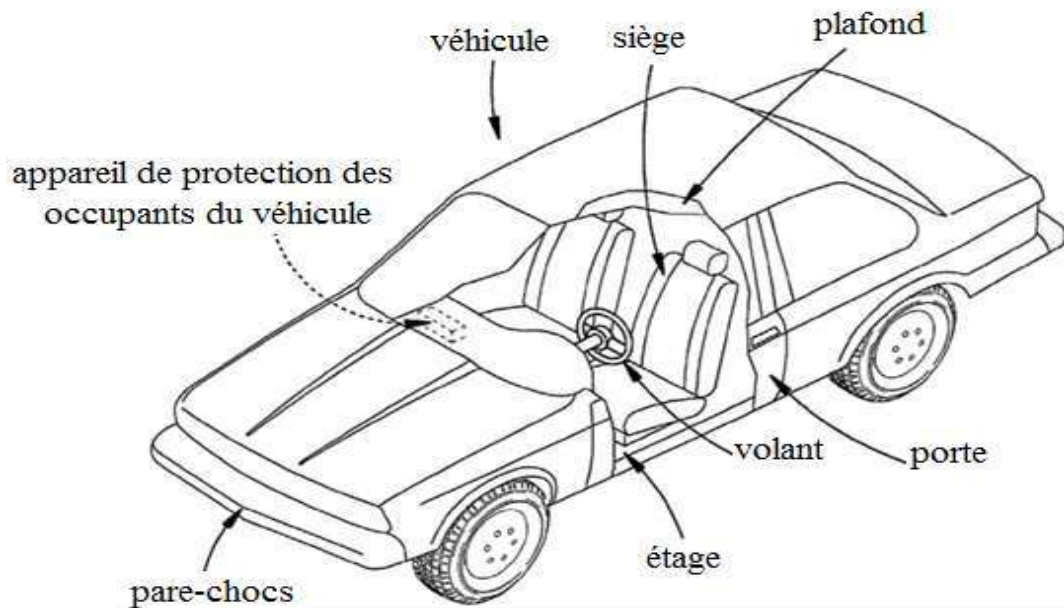


Figure II.2 Une vue schématique d'un véhicule, avec l'indication des pièces pouvant être produites à partir de polymères biodégradables, par exemple les PHA [45].

II.3.4 Applications biomédicales

Les biopolymères suscitent un intérêt croissant dans le domaine biomédical grâce à leurs applications variées, par exemple la fabrication de instruments médicaux, l'ingénierie tissulaire et les systèmes de libération de médicaments. Les biomatériaux fabriqués à partir de protéines, de sucres et de biopolymères synthétiques sont particulièrement privilégiés. Leur principale qualité réside dans leur biodégradabilité : ils se dégradent naturellement et ne génèrent aucun d'effets indésirables [45].

II.4 Polyacide lactique (PLA)

Le poly (acide lactique), également appelé polylactide, est un polymère thermoplastique aliphatique biodégradable et biocompatible. Il est considéré comme un biopolymère car il est dérivé de ressources renouvelables comme la canne à sucre, le maïs et le manioc.

L'obtention du PLA se fait à partir de l'acide lactique, issu de la fermentation de saccharides, et peut se réaliser par deux voies : la polycondensation de l'acide lactique ou la polymérisation par ouverture de cycle du lactide, le dimère cyclique de l'acide lactique [47].

Du fait de ses propriétés thermoplastiques, le PLA peut être transformé en une variété d'objets, notamment des produits jetables, des sacs, des doublures et des ustensiles. Ses nombreux avantages, tels que sa biodégradabilité, sa disponibilité, son respect de l'environnement, ses propriétés antibactériennes et sa grande résistance mécanique et thermiques, ce qui en fait un polymère prometteur pour les produits durables [48-50].

Cependant, le PLA présente également des inconvénients, notamment une faible ténacité, de faibles propriétés de barrière, une résistance thermique négligeable et une basse température de transition vitreuse [50].

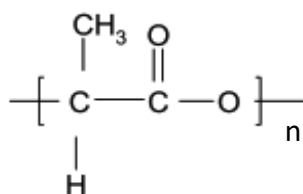


Figure II.3 Structure du PLA [49].

II.5 Synthèse du PLA

Le poly (acide lactique) a été découvert en 1780 par le chimiste suédois Scheele. Il se présente sous deux configurations isomères distinctes : l'acide L-lactique et l'acide D-lactique (Figure II.4).

Cette isomérisie donne lieu à différentes qualités de poly (acide lactique) disponibles sur le marché, telles que le poly-L-lactique pur (PLLA), le poly-D-lactique (PDLA) ou des PLA avec des variations de teneur en isomère D [14].

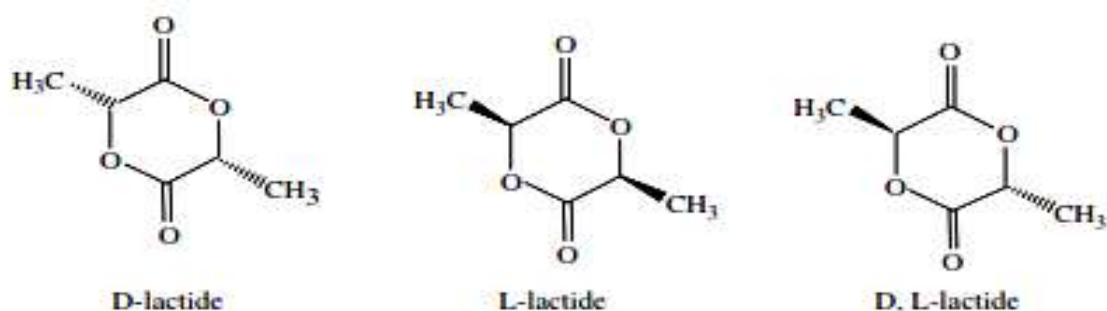


Figure II.4 Stéréoisomères de l'acide lactique [51].

Le poly (acide lactique)

Poly(acide lactique) synthesis à haute poids moléculaire nécessitent des températures élevées de 180 à 200°C, réalisée par trois différents procédés (Figure II-5) tels que :

- La polycondensation directe de l'acide lactique, développée à l'origine par Carothers, utilise souvent des allongeurs de chaîne.
- La polycondensation est couplée au retrait de l'eau formée par distillation azéotropique pendant la réaction.
- La polymérisation par ouverture d'anneau (ROP) à partir du [50,52].

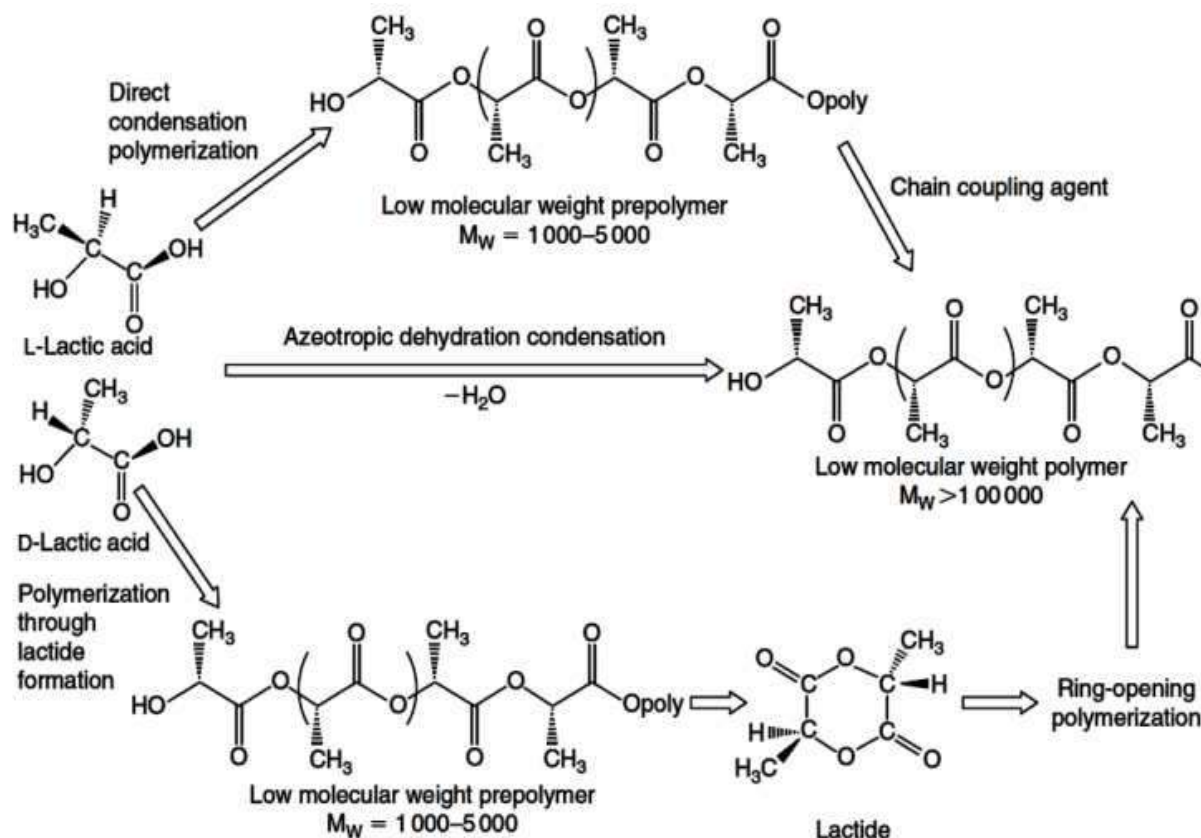


Figure II.5 Voies de synthèse du PLA [51,54].

La méthode de synthèse du PLA, ou acide polylactique, débute par la polycondensation directe de l'acide lactique [55].

Cette réaction, qui se déroule entre les groupements hydroxyles et carboxyles, entraîne l'élimination d'eau. Toutefois, cette approche est limitée par l'obtention de polymères de faible masse molaire, est due à la présence d'eau et d'impuretés dans le réacteur. L'avantage principal de la polycondensation directe réside dans la formation de chaînes de PLA dotées de groupements fonctionnels aux extrémités, ce qui facilite leur modification par réaction avec d'autres molécules, telles que les allongeurs de chaînes, pour augmenter le poids moléculaire ou créer divers polyesters. Le principal problème de cette méthode est la difficulté d'éliminer l'eau du mélange visqueux, ce qui limite le poids moléculaire [56].

De plus, cette technique n'est pas couramment appliquée dans le domaine de l'industrie en raison de la réaction compétitive de formation de lactide et du processus de dégradation simultané [57].

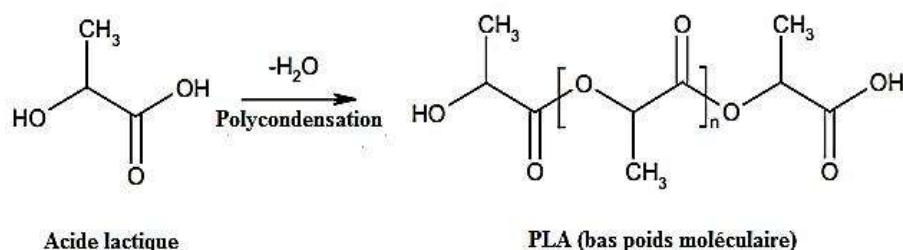


Figure II.6 Le mécanisme réactionnel de la polycondensation de l'acide lactique menant à la formation du PLA [58].

La polycondensation azéotropique de l'acide lactique en solvant est une seconde approche de synthèse du PLA, développée par M. Ajioka et K Suzuki [59]. Elle est conçue pour produire un PLA de masse moléculaire élevée en l'absence d'extenseurs de chaînes ou d'agents de couplage. Le procédé débute par une distillation de l'acide lactique sous pression réduite l'opération s'effectue à 130°C et prend de deux à trois heures, dans le but d'éliminer la majorité de l'eau [59]. L'ajout du catalyseur est suivi de plusieurs étapes réactionnelles.

Toutefois, cette technique a l'inconvénient d'exiger une grande quantité de catalyseur, ce qui peut provoquer des problèmes de décomposition et d'hydrolyse pendant le processus [55].

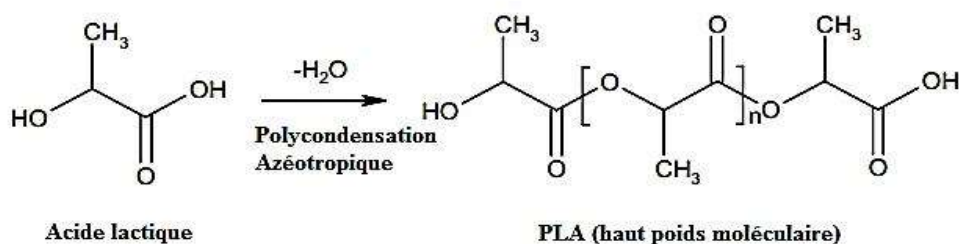


Figure II.7 Réaction de polycondensation azéotropique du PLA [60].

La méthode de synthèse la plus couramment utilisée pour le PLA à l'échelle industrielle est la polymérisation par ouverture de cycle du lactide, réalisée en utilisant d'un catalyseur (Figure II.8) [59].

Cette méthode est privilégiée en raison de son rendement élevé et de la possibilité de contrôler précisément les proportions des isomères L et D du lactide, ce qui permet d'ajuster les propriétés finales du polymère.

Le choix du catalyseur dépend du type de polymérisation (ionique, radicalaire ou par coordination) [61]. Les catalyseurs à base d'étain sont les plus répandus [62]. La formation de radicaux libres, initiée par l'ajout d'un initiateur sur les groupements fonctionnels, favorise le développement de la réaction en chaîne.

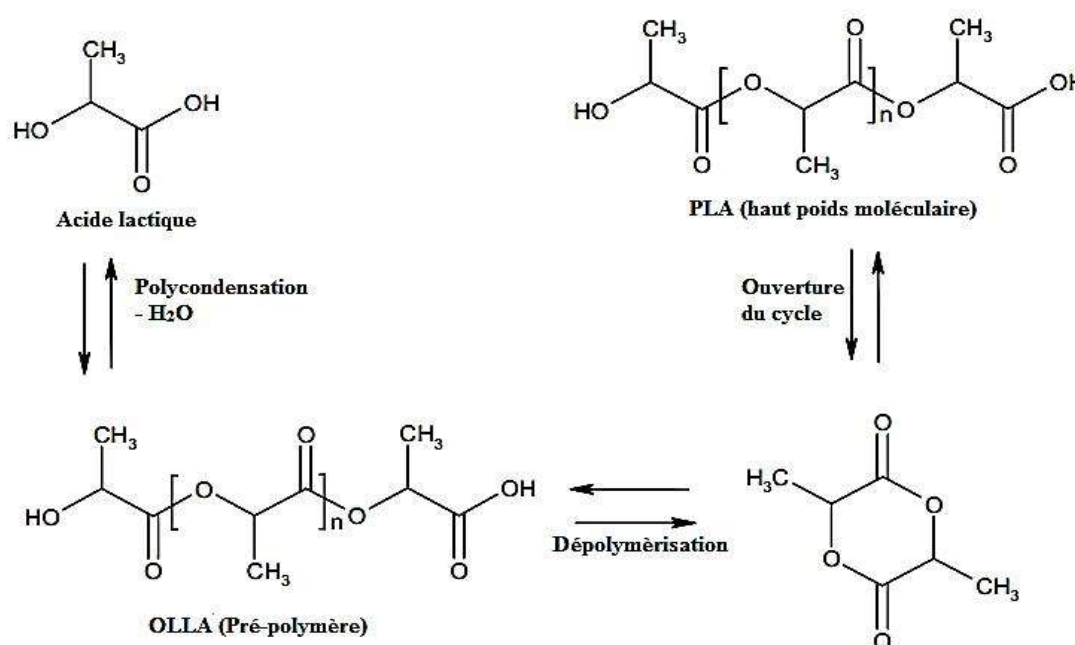


Figure II.8 Polymérisation du PLA par ouverture de cycle du lactide [63].

II.6 Propriétés du polyacide lactique (PLA)

Le poly (acide lactique) est couramment utilisé en raison de sa simplicité de fabrication et de ses propriétés de biocompatibilité et de biodégradabilité, cette dernière se faisant surtout par hydrolyse. Les propriétés du PLA sont très variées et dépendent de ses caractéristiques moléculaires, de ses propriétés structurales et morphologiques, telles que la cristallinité, le degré d'orientation de la chaîne et la taille des sphérolites [56].

En modifiant la composition et la masse molaire du PLA, il est possible d'obtenir une large gamme de propriétés physiques et mécaniques. Cette section est dédiée aux propriétés thermiques, mécaniques, rhéologiques et autres du PLA [56].

II.6.1 Propriétés thermiques

Les propriétés thermiques du PLA sont généralement mesurées à l'aide de trois méthodes d'analyse principales : la calorimétrie différentielle à balayage (DSC), l'analyse thermogravimétrique (ATG) et l'analyse dynamique mécanique thermique (DMA) [64].

Le PLA présente une température de transition vitreuse (T_g) d'autour 58 °C et une température de fusion (T_f). Au-dessus de T_g , il se comporte comme un caoutchouc, tandis qu'en dessous, il est cassant. La T_f du PLA est relativement basse comparée à d'autres thermoplastiques [65]. Pour le PLA amorphe, les changements de propriétés sont observables uniquement à et au-dessus de T_g . La T_f est souvent rapportée à 180 °C, tandis que la T_g varie de 50 à 60 °C, cette variation étant liée au taux d'isomère L dans la composition du PLA [39].

II.6.2 Propriétés mécaniques

La caractérisation des propriétés mécaniques d'un matériau, telles que la résistance à la traction, à l'impact, au cisaillement et à la compression, est cruciale pour comprendre son comportement [39]. Le poly (acide lactique) se distingue par des propriétés mécaniques intéressantes, notamment une résistance à la traction et à la flexion comparable à celle des polymères traditionnels (PP, PS, etc...). Il présente également une rigidité similaire à celle du PET à température ambiante. Néanmoins, il présente des limitations, telles qu'un faible allongement à la rupture et une sensibilité aux chocs [66]. Des recherches, comme celle de Perego et al [52], ont révélé l'impact du poids moléculaire du PLLA sur sa résistance à la flexion, cette dernière augmente significativement de 64 à 106 MPa avec le poids moléculaire.

II.6.3 Propriétés rhéologiques

Plusieurs facteurs influencent les propriétés rhéologiques d'un polymère, notamment la masse moléculaire, la température de transformation, le taux de cisaillement et la pureté racémique [67]. Le poly (acide lactique), un polymère thermoplastique, présente un comportement de fluide pseudoplastique non newtonien. Au-dessus de son point de fusion, il adopte un comportement de polymère classique à chaîne flexible, indépendamment de sa composition optique [68].

Contrairement au PLA amorphe, le PLA semi-cristallin se distingue par une viscosité de cisaillement plus élevée [69]. Les propriétés rhéologiques du PLA peuvent être modifiées par la présence d'additifs (charges, agents de moussage, etc...) et son degré de dégradation [65].

II.6.4 Autres propriétés du PLA : barrières, physique et optiques

Le poly (acide lactique) se distingue par plusieurs propriétés intéressantes. Il résiste excellemment aux huiles et graisses, et ses capacités de barrière empêchent le passage des arômes, des gaz et de la vapeur d'eau.

En termes de densité, le PLA présente une valeur de 1,25 g/cm³ à l'état solide pour les formes amorphe et semi-cristalline. Cependant, cette valeur varie en fonction du monomère utilisé, atteignant 1,33 g/cm³ pour le méso-lactide et 1,36 g/cm³ pour le L-lactide. La solubilité du PLA est également dépendante du solvant. Il est efficacement dissous par le chloroforme, ce qui en fait un solvant de choix pour le PLA et ses copolymères. Sa solubilité est partielle dans l'acétone, le toluène et l'éthylbenzène. Il est, en revanche, totalement insoluble dans l'eau, les alcools et les hydrocarbures non substitués. Enfin, il est essentiel de souligner que les propriétés optiques soient essentielles à la coloration du PLA, notamment pour l'emballage et le textile, elles ont été étonnamment peu étudiées dans la littérature [56].

II.7 Biodégradation du polyacide lactique

Le poly (acide lactique) est un polymère biodégradable dont la dégradabilité résulte principalement de la présence de liaisons esters, facilement hydrolysables en milieu humide. Bien que le PLA contienne des groupements oxygénés polaires, il demeure globalement peu hydrophile. Cette biodégradabilité contrôlée en fait un matériau particulièrement intéressant pour les applications médicales et industrielles.

Le PLA se biodégrade en deux phases majeures : d'abord, l'hydrolyse des chaînes de PLA à haute masse moléculaire en oligomères de plus faible masse moléculaire, puis la bio-assimilation de ces oligomères par des micro-organismes.

Pour mesurer le taux de biodégradation des polymères, diverses méthodes sont utilisées, notamment la mesure des gaz libérés (CO₂ ou CH₄) en fonction du temps [14,56].

II.8 Facteurs influençant la biodégradation

La complexité du processus de biodégradation est déterminée par de nombreux facteurs, regroupés en quatre catégories distinctes.

II.8.1 Paramètres microbiens de la dégradation

Une dégradation plus rapide est favorisée par la présence de micro-organismes ou d'enzymes adaptés au milieu. Le type de dégradation, aérobie ou anaérobie, dépend des micro-organismes présents, tels que les bactéries et les cyanobactéries.

II.8.2 Paramètres physico-chimiques de la dégradation

Trois paramètres physico-chimiques majeurs déterminent l'activité microbienne et, par conséquent, la vitesse de dégradation, la température, qui influence la cinétique des réactions enzymatiques, la teneur en eau, nécessaire à la diffusion des nutriments, et le pH, qui affecte la stabilité des enzymes.

II.8.3 Propriétés structurelles des polymères constituant le matériau

Le degré de cristallinité et la masse molaire des polymères sont des facteurs qui ralentissent la biodégradation.

II.8.4 Procédé de transformation du matériau

La biodégradation d'un matériau est déterminée par son procédé de fabrication (extrusion, injection etc...) et ses conditions de mise en forme (température, pression, additifs), qui affectent sa cristallinité, sa composition et son comportement face à l'eau. La pureté et l'épaisseur du matériau sont également des facteurs clés, influençant respectivement les propriétés mécaniques et la vitesse de dégradation [44].

II.9 phases cristallines du PLA

Le PLA possède trois formes cristallines connues (α , β et γ), mais leur structure détaillée reste à déterminer.

II.9.1 Phase α

La phase α représente la forme cristalline la plus fréquemment observée. Elle adopte une structure de maille pseudo-orthorhombique [70], caractérisée par les paramètres suivants, déterminés à partir d'une fibre : $a = 10,7 \text{ \AA}$, $b = 6,45 \text{ \AA}$ et $c = 27,8 \text{ \AA}$.

Des mesures réalisées sur un monocristal par Kalb et al [71] ont révélé des paramètres légèrement inférieurs, soit $a = 10,34 \text{ \AA}$ et $b = 5,97 \text{ \AA}$.

II.9.2 Phase β

En 1982, Eling et al [72] ont identifié une phase cristalline distincte dans des fibres de PLA hautement orientées et cristallines.

Cette phase se caractérise par des réflexions de diffraction des rayons X élargies, révélant une structure en hélice étendue ($c = 8,8 \text{ \AA}$) qui diffère de la phase α classique.

II.9.3 Phase γ

Cartier et al [73] a récemment mis en évidence cette phase par cristallisation épitaxiale sur un substrat d'hexaméthylène benzène.

Elle se caractérise par une maille orthorhombique contenant deux hélices anti-parallèles et des paramètres de maille $a = 9,95 \text{ \AA}$, $b = 6,25 \text{ \AA}$ et $c = 8,8 \text{ \AA}$.

Chapitre III
Généralité sur les
fibres végétales

III Généralité sur les fibres végétales

Les matériaux composites qui intègrent des fibres naturelles, comme les fibres végétales, offrent un double avantage. Sur le plan économique, ces fibres se distinguent par leur faible coût et leur large disponibilité. Sur le plan environnemental, elles représentent une solution avantageuse par rapport aux composites conventionnels. En effet, leur nature renouvelable, biodégradable et neutre en carbone, associée à une faible consommation d'énergie lors de leur production, en fait des matériaux durables.

De plus, les fibres naturelles sont composées de groupes hydroxyle ou d'autres groupes oxygénés qui absorbent l'humidité grâce à la liaison hydrogène [74].

III.1 Définition de la fibre végétale

Les fibres végétales sont des structures cellulaires mortes, résultant de l'assemblage de cellules individuelles en faisceaux. Chaque cellule est entourée d'une paroi principalement constituée de cellulose, d'hémicelluloses, de lignine et de pectines. La cohésion entre les fibres unitaires est assurée par un liant interstitiel composé de pectine et d'hémicelluloses. Dans la paroi, les molécules de cellulose s'organisent en microfibrilles, établissant des liaisons hydrogène entre elles. Cette organisation peut être de deux types : ordonnée ou désordonnée, en fonction du degré de croissance de la fibre [75].

III.2 L'histoire des fibres végétales

Depuis 3000 ans, les fibres végétales sont intégrées aux matériaux composites, comme en témoignent les exemples de l'Égypte ancienne. Aujourd'hui, elles connaissent un véritable regain d'intérêt. En effet, elles sont durables et moins polluantes que les fibres synthétiques. De plus, elles sont souvent plus faciles à recycler. Ainsi, les fibres végétales sont devenues des matériaux essentiels dans des applications variées comme le textile, l'automobile et le bâtiment, où elles sont utilisées pour renforcer les matériaux composites et les rendre plus durables [41,75].

III.3 Structure et morphologie d'une fibre végétale

Les fibres végétales sont des assemblages cellulaires sophistiqués, fonctionnant comme un matériau composite stratifié. Leur structure comprend des fibrilles, intégrées dans une matrice naturelle d'hémicellulose, de lignine et de pectine (14). L'interaction des groupes hydroxyles permet aux chaînes de cellulose de s'associer et de former des microfibrilles, l'unité structurale de base. L'hémicellulose, interagissant probablement avec les microfibrilles par des liaisons hydrogène.

Dans la paroi primaire, la matrice naturelle est composée de pectine, tandis qu'elle est faite de lignine dans la paroi secondaire [76]. Les fibrilles de cellulose s'organisent en hélice autour de l'axe longitudinal de la fibre, formant un angle appelé angle microfibrillaire.

Cet angle, variable selon le type de paroi cellulaire et l'espèce végétale, influence les propriétés mécaniques de la fibre. Une diminution de l'angle microfibrillaire entraîne une augmentation de la résistance mécanique de la fibre [77].

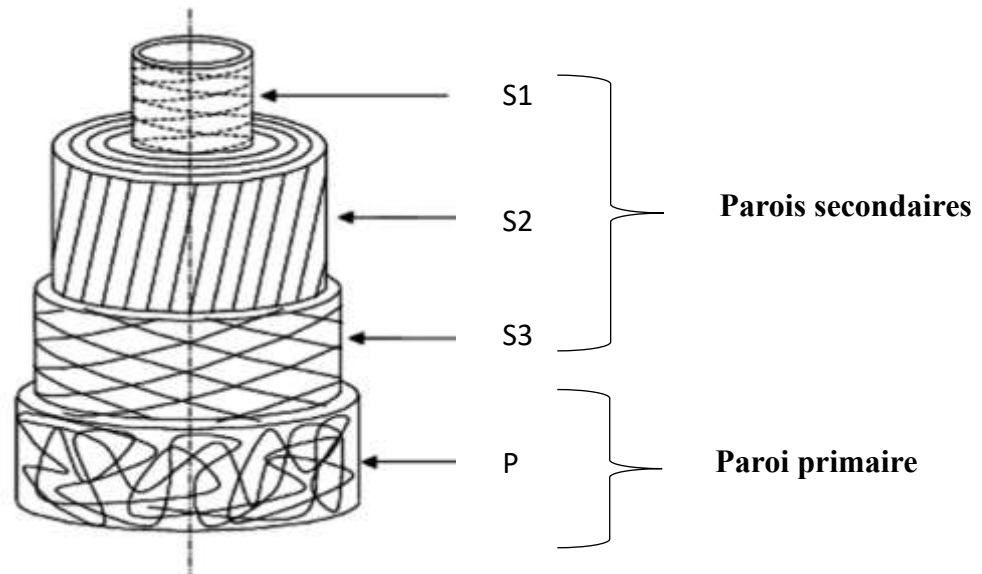


Figure III.1 Paroi des fibres végétales et orientation des microfibrilles [78].

La fibre possède une structure composée de deux parois, l'une primaire et l'autre secondaire. La paroi secondaire est elle-même divisée en trois couches, nommées S1, S2 et S3.

La composition chimique, l'épaisseur et l'angle microfibrillaire de ces couches sont différents. La paroi des fibres végétales comprend une paroi primaire désorganisée et une paroi secondaire à trois couches (S1, S2, S3). S1, la première formée et pauvre en cellulose (8-15%), a des fibrilles orientées de -80° à 80° et représente 5-10% de l'épaisseur. S2, la plus épaisse (75-85%), assure la rigidité. S3 a des microfibrilles orientées à $40-80^{\circ}$ [79]. On peut trouver dans la thèse de Nouri [80]. Le lumen, espace interne amorphe, permet aux cellules de rester soudées

III.4 Composition chimique d'une fibre végétale

La composition chimique des fibres végétales, constituée de divers éléments lignocellulosiques et organiques, détermine leur résistance, notamment en milieu alcalin où elles peuvent être particulièrement vulnérables.

III.4.1 Cellulose

La cellulose, de formule empirique $(C_6H_{10}O_5)_n$, est le composant principal des parois cellulaires végétales, où elle assure un rôle de soutien essentiel. Cette substance est la plus abondante des composés organiques dans la nature, et elle représente le constituant principal des fibres naturelles [81]. Ce polymère linéaire est constitué d'une chaîne de dimères de cellobiose, eux-mêmes formés de deux molécules de β -glucose. Les macromolécules de cellulose s'assemblent en microfibrilles, qui s'associent pour former la fibre. Ces structures sont maintenues par des liaisons hydrogène entre les macromolécules. Il existe deux types principaux de cellulose, en fonction de l'organisation des chaînes moléculaires : la cellulose native (cellulose I) et la cellulose régénérée (cellulose II) [80]. La cellulose cristalline est remarquable pour son module de Young environ 136 GPa, est nettement supérieur à celui de la fibre de verre qui est d'environ 75 GPa [82].

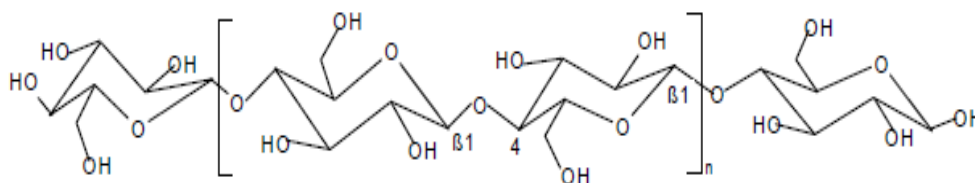


Figure III.2 Structure chimique de la cellulose [83].

III.4.2 Hémicellulose

Les hémicelluloses forment un ensemble hétérogène de polysaccharides complexes, caractérisés par un faible poids moléculaire et une forte hydrophilie. Composées de divers sucres (glucose, xylose, mannose, arabinose, etc....), elles jouent un rôle crucial dans l'architecture des parois cellulaires végétales [80]. Leur fonction principale est de contacter les fibrilles de cellulose l'une avec l'autre, assurant ainsi la cohésion et la rigidité de la paroi [83]. Cette liaison s'effectue principalement par des liaisons hydrogène [84].

De plus, les hémicelluloses peuvent former des liaisons covalentes avec la lignine, contribuant ainsi à la structure globale et à la solidité de la paroi [85].

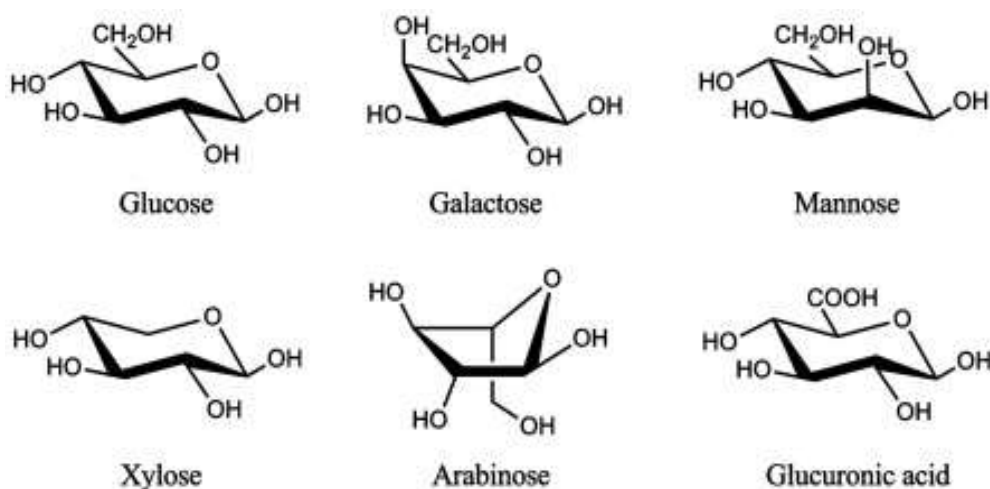


Figure III.3 Structures des monomères essentiels à la formation des hémicelluloses [86].

III.4.3 Lignine

La lignine, troisième macromolécule constitutive des parois cellulaires des fibres végétales, est un polymère phénolique tridimensionnel et amorphe.

Elle est composée de trois unités de phénylpropane différentes : les alcools p-coumarylique, sinapylique et coniférylique [83].

Ce polyphénol amorphe est fondamental pour la rigidification des fibres en assurant la cohésion des microfibrilles. De plus, sa faible sensibilité à la dégradation biologique lui confère une fonction de barrière morphologique contre la pénétration et la progression des agents pathogènes, contribuant ainsi à la défense naturelle des végétaux contre les attaques parasitaires. En considérant la fibre végétale comme un matériau composite, la lignine peut être assimilée à la matrice. Elle agit également comme un agent complexant pour les minéraux et favorise la rétention d'humidité dans les plantes [87].

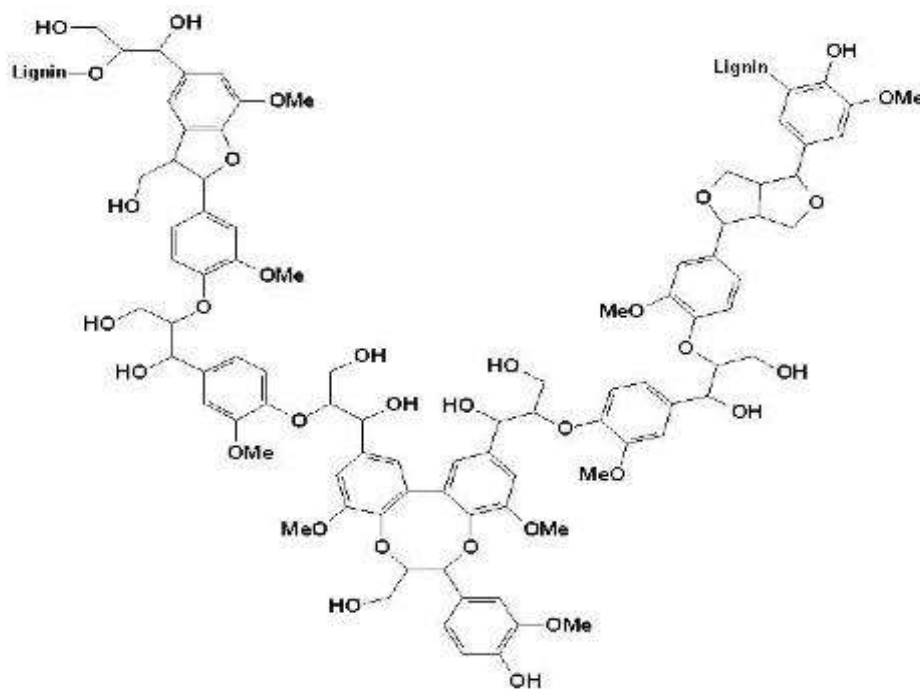


Figure III.4 Structure de lignine [88].

III.4.4 Pectines

Les pectines, un type de polysaccharide acide, sont des constituants majeurs de la paroi primaire et de la lamelle mitoyenne des végétaux supérieurs. Bien qu'elles représentent près de 35 % de la paroi primaire chez les dicotylédones et certaines monocotylédones, elles sont remarquablement absentes des parois secondaires [89].

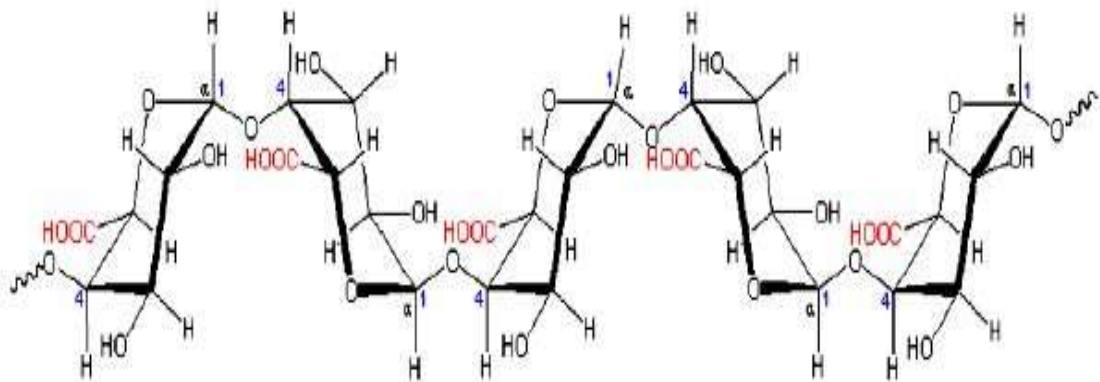


Figure III.5 Structure de la pectine [90].

III.4.5 Extractibles

On appelle extractibles les composés de faible poids moléculaire que l'on trouve dans les fibres et qui peuvent être extraits avec des solvants polaires (tels que l'acétone, l'eau ou l'éthanol) ou apolaires (comme le toluène). Ils influencent la couleur, l'hygroscopicité, l'odeur et la résistance mécanique des fibres [81].

Tableau III.1 Composition de différentes fibres naturelles [91].

	Cellulose	Hémicellulose	Lignine	Pectines	Cires
Cotton	82.7	5.7	-	5.7	0.6
Jute	64.4	12.0	11.8	0.2	0.5
Lin	64.1	16.7	2.0	1.8	1.5
Ramie	68.6	13.1	0.6	1.9	0.3
Sisal	65.8	12.0	9.9	0.8	0.3

III.5 Traitement et modification de la surface des fibres végétales

L'intégration réussie des fibres naturelles dans les matrices polymériques repose sur la l'adhérence la fibre et matrice. Afin d'optimiser cette interface, la recherche explore diverses stratégies de traitement, incluant des méthodes physiques, chimiques, enzymatiques et thermiques. Parmi ces approches, le traitement chimique des fibres végétales, qui vise principalement à altérer la cellulose, composant prédominant des fibres, se distingue par sa capacité à ajuster les propriétés interfaciales.

La structure de la cellulose, caractérisée par des régions amorphes plus accessibles aux réactifs que les régions cristallines, offre des possibilités de modification sélective, améliorant ainsi la compatibilité et la cohésion entre la fibre et la matrice [92,91].

III.5.1 Par voie chimique

Les traitements chimiques sont largement étudiés pour améliorer les propriétés des fibres naturelles. Les modifications les plus fréquentes visent à nettoyer la surface de la fibre, à modifier sa chimie, à réduire son taux d'humidité et à augmenter sa rugosité.

Ces altérations ont pour but d'optimiser l'interface fibre/matrice, ce qui se traduit par une amélioration des performances générales [87]. En effet, les fibres naturelles traitées par voie chimique présentent des propriétés supérieures à celles des fibres non traitées [93].

III.5.1.1 Traitement alcalin

Le traitement à l'hydroxyde de sodium (NaOH) modifie la structure de la cellulose des fibres naturelles en transformant les zones cristallines (Cellulose I → Cellulose II) [94,95] et en augmentant les régions amorphes. Ceci accroît l'accessibilité chimique, diminue les groupements –OH et forme des groupements –O-Na⁺ [96].

Ce traitement élimine également partiellement les composants non cellulosiques comme la lignine, l'hémicellulose, la pectine et les cires.

Les travaux de Bourahli et al [97] a révélé que la modification des fibres de Diss à la soude (NaOH) à 5 %, pendant des durées allant de 2,4,8 et 24 heures, conduisait à des résultats supérieurs à ceux obtenus avec des fibres non traitées.

Touati et al [98] ont également utilisé une solution de soude (NaOH) à 5 % pour traiter les fibres de Diss pendant 1 heure.

D'après leurs recherches, les biocomposites utilisant ces fibres traitées affichent une adhésion interfaciale et une harmonie améliorée entre les fibres et la matrice polymère.

Gheris et al [99] ont démontré qu'un traitement optimal des fibres de Diss par immersion dans une solution de NaOH à 10 % pendant 30 minutes à température ambiante permet d'obtenir la meilleure résistance à la traction.

En outre, une concentration de NaOH > 14 % détruit les microfibrilles constituant les faisceaux de fibres, ce qui provoque une dégradation des propriétés mécaniques [98].

III.5.1.2 Traitement au permanganate

Le traitement au permanganate transforme la surface des fibres naturelles, augmentant leur affinité pour les matrices polymères grâce à la création de sites actifs dans la cellulose [100, 101]. Touati [98] a exploré l'impact d'un traitement chimique sur les fibres de Diss. Les fibres ont subi un traitement à l'aide d'une solution de 0,02 % de permanganate de potassium (KMnO₄) pendant une durée de 3 minutes. Les analyses ont révélé que ce traitement améliorait l'interaction entre les fibres et la matrice polymère, ce qui se traduisait par une meilleure adhésion interfaciale et une compatibilité accrue dans les biocomposites finaux.

III.5.1.3 Silanisation

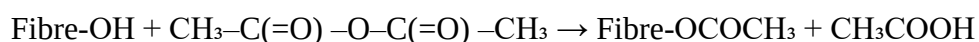
Les silanes (Si_nH_{2n+2}), composés chimiques similaires aux alcoxydes de silicium, agissent comme agents de pontage dans les composites [100,102,103]. Le traitement des fibres avec des agents de couplage silane est une méthode efficace pour optimiser l'adhésion interfaciale et les propriétés mécaniques des composites. La structure bifonctionnelle des silanes permet de créer une interface solide entre la cellulose des fibres et le polymère, grâce à la formation de liaisons chimiques stables [93].

Agrawal et al [102] ont exploré l'effet du traitement des fibres de palmier avec du silane. Ils ont constaté que ce procédé améliore la compatibilité entre les fibres et la résine, tout en renforçant la résistance à la traction et la stabilité thermique des matériaux composites.

III.5.1.4 Traitement par acétylation

L'acétylation est un traitement chimique qui rend les fibres végétales hydrophobes en agissant sur leur surface [104,105].

Les groupes hydroxyles (-OH) présents dans les composants de la fibre (cellulose, hémicellulose et lignine) réagissent avec un agent acétylant, tel que l'anhydride acétique (CH₃CO)₂O ou propionique, à température élevée [93]. La réaction de l'anhydride acétique avec la fibre est représentée comme suit :



Bessadok et al [106]. Ont modifié les fibres de Diss en les traitant avec une solution d'acide acrylique (0,3 M), en utilisant du peroxyde de benzoyle (POB) (0,01 M) comme initiateur.

Le traitement a été effectué pendant 1 heure à 85 °C. Cette modification réduit considérablement l'hygroscopie des fibres naturelles.

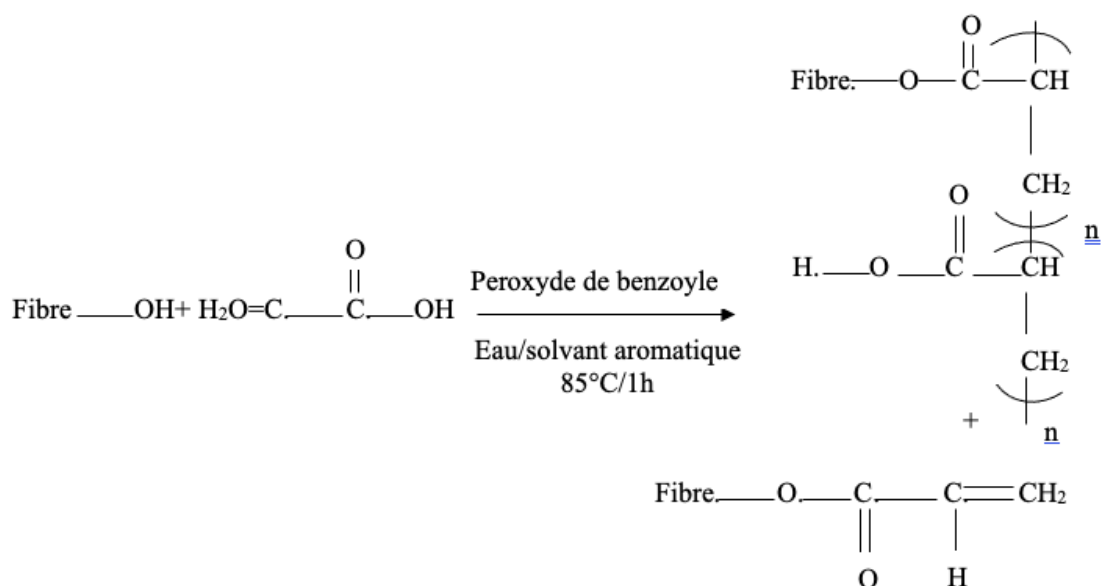


Figure III.6 Impact du traitement à l'acide acrylique sur les fibres cellulosiques [107].

III.5.1.5 Traitement Acidification (acide citrique)

Le traitement à l'acide citrique émerge comme une solution pour le traitement de surface des fibres, offrant une alternative respectueuse de l'environnement qui remplace l'hydroxyde de sodium. Cet acide organique faible, naturellement présent dans les agrumes et produit industriellement par fermentation du glucose, démontre une efficacité comparable tout en minimisant l'impact écologique [108,109].

Dans ce travail, les fibres d'*Ampelodesmos mauritanicus* ont été traitées dans une solution d'acide citrique à 5%, pendant 2 heures, à une température de 80°C.

Une étude menée par Pua et son équipe [110] a consisté à soumettre des fibres de kenaf à un traitement de 30 minutes, à température ambiante, dans une solution d'acide citrique de 0,6 M. Ils ont observé que cette modification améliorait les caractéristiques d'élongation du composite Kenaf/PVA.

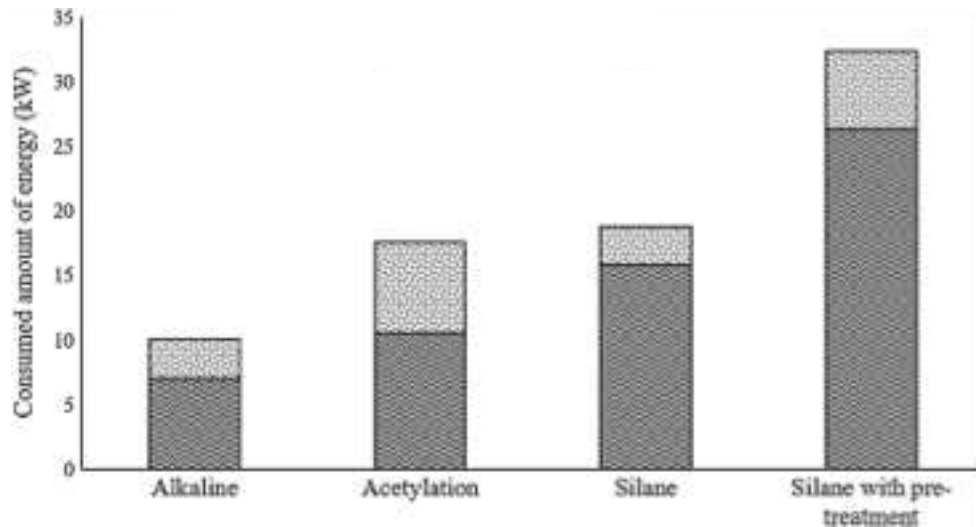


Figure III. 7 Consommation d'énergie pour différents traitements chimiques par unité de fibre naturelle [111].

III.5.2 Par voie physique

Des méthodes physiques peuvent être utilisées pour modifier les fibres de renforcement. En agissant sur leurs propriétés de surface et leur structure, elles permettent d'améliorer les liaisons mécaniques avec les polymères [91].

III.5.2.1 Traitement corona

Le traitement corona, un procédé de traitement de surface courant, consiste à appliquer un champ électrique intense et à haute fréquence entre deux électrodes, pour générer une décharge corona [91].

Le traitement corona, qui augmente l'énergie de surface des matériaux, modifiant ainsi leurs propriétés physiques et chimiques, est très répandu. Il est utilisé sur le papier, les polymères, l'aluminium, les textiles et bien d'autres matériaux. Il est aussi devenu essentiel dans le monde de l'imprimerie, où il équipe les photocopieuses et de nombreuses machines d'impression [112]. Chtourou et al [113] ont étudié des films de PE soumis à un traitement corona en atmosphère d'air. Les analyses obtenues par IRTF confirment que l'oxygène est incorporé sous forme de groupes hydroxyles.

III.5.2.2 Traitement plasma

Les traitements plasma modifient généralement la surface des fibres naturelles en éliminant les couches superficielles faiblement adhérentes et en créant de nouveaux groupes fonctionnels. Les modifications de surface obtenues dépendent du type et de la nature des gaz utilisés.

Des réticulations de surface peuvent être introduites, l'énergie de surface peut être augmentée ou diminuée, des radicaux libres réactifs et des groupes peuvent être créés [114,115].

Andreozzi et al [116] ont étudié le traitement de coton par plasma à basse température, en variant la durée d'exposition de 60 à 300 secondes.

Leur objectif était d'activer la surface des fibres naturelles pour permettre le greffage d'un monomère acrylique. Les échantillons de coton traités à différentes puissances du radicaux libres a permis de reconnaître et de quantifier quatre espèces différentes de radicaux libres qui persistent encore 30 heures après l'irradiation dans les échantillons maintenus sous atmosphère inerte.

III.5.2.3 Traitement ultraviolet

Le traitement par rayonnement ultraviolet (UV) représente une technique de préparation de surface moins conventionnelle. Il induit une oxydation de surface, dont l'efficacité a été démontrée comme équivalente à celle des traitements aux acides chromique et nitrique [117].

L'irradiation UV permet généralement d'améliorer la réactivité des fibres naturelles en générant des radicaux ou en oxydant leur surface. L'efficacité de ce processus de modification est conditionnée par des facteurs tels que les propriétés intrinsèques du matériau, la longueur d'onde d'irradiation, la distance à la source de lumière et les paramètres atmosphériques [118].

Dans une étude menée par Kato et al [117] les fibres de cellulose ayant subi un traitement par rayonnement ultraviolet (UV), le traitement à l'acide chromique et à l'acide nitrique étaient efficaces pour oxyder les fibres de cellulose. Tandis que le traitement à l'ozone gazeux et au peroxyde d'hydrogène était insuffisant pour activer l'oxydation de la cellulose dans les conditions de réaction étudiées.

III.5.3 Par voie thermique

Après avoir examiné diverses références bibliographiques sur les composites contenant de fibres végétales, nous avons opté pour un traitement thermique conventionnel.

L'étude menée par Touati et al [98] a porté sur l'effet du traitement thermique appliqué aux fibres de Diss. Ils ont chauffé ces fibres dans un four à 100°C pendant 4 heures. Leurs résultats indiquent que ce traitement thermique, considéré comme respectueux de l'environnement, améliore significativement les propriétés des composites à base de ces fibres de Diss.

III.5.4 Traitement enzymatique

Les traitements enzymatiques représentent une méthode de modification très prometteuse des surfaces des fibres naturelles [17,119]. Cette approche biologique présente deux avantages majeurs : elle est respectueuse de l'environnement et de la santé, car les enzymes sont des protéines biodégradables et non toxiques ; et elle permet d'extraire efficacement les composés non cellulotiques grâce à la spécificité d'action des enzymes.

La technologie enzymatique permet de bénéficier d'autres avantages, par exemple une réduction des coûts de traitement, conduisant à une réduction de la consommation d'eau et d'énergie, et à une meilleure qualité des produits [120], néanmoins, malgré ces atouts, [121] ont noté une réticence de la part des industriels à privilégier les traitements enzymatiques.

Cette réticence est principalement due à leur durée d'action plus longue par rapport aux traitements chimiques et physiques traditionnels.

Sarasini et al [122] ont soumis les fibres de Diss à un traitement enzymatique précis. Avec un dosage de 20 mg/g, une température de 50 °C $\pm$ 0,1 °C et une incubation d'une heure, le traitement a permis de transformer les fibres. Plus spécifiquement, il a efficacement éliminé les composants hydrophiles, ce qui a rendu les fibres plus compatibles avec les matrices non polaires.

III.6 Généralités sur la Plante de Diss

Cette étude se concentre sur la caractérisation approfondie de la plante de Diss. l'objectif ultime est de déterminer comment les traitements chimiques et thermiques peuvent améliorer ces fibres, afin de les rendre plus efficaces en tant que renforts pour les composites polymères. L'*Ampélodesmos mauritanicus*, ou Diss, est une plante de la famille des Poaceae, également connue sous les noms de stramma, herbe de Mauritanie et herbe à la corde. Cette plante vivace et luxuriante se rencontre fréquemment en Europe du Sud, en Afrique du Nord, en Asie occidentale et dans le sud-ouest de l'Amérique du Nord.

Elle se caractérise par des feuilles simples, linéaires, et peut atteindre une hauteur d'environ 3 mètres et pousse en touffe de 300 à 450 [123]. Préférant les environnements ensoleillés, elle prospère dans les sols sablonneux, caillouteux, limoneux et sablo-argileux modérément humides.

La plante Diss, produite en grandes quantités à travers le monde, est largement sous-exploitée, se limitant principalement à des applications artisanales. Pourtant, cette ressource biodégradable et écologique représente un potentiel considérable pour produire de fibres destinées aux matériaux composites et à d'autres industries [123].



Figure III.8 Plantes de Diss [77].

L'analyse des fibres de Diss, menée par Bourahli [77], révèle une composition majoritairement constituée de cellulose, d'hémicellulose et de lignine. En outre, ces fibres contiennent des extractibles (9%) ainsi que des matières minérales, incluant les hydrosolubles et les cendres, représentant 3,1% de leur masse.

III.7 Les propriétés physiques et chimiques des fibres végétales

III.7.1 Propriétés physiques

Les fibres végétales, dont les principales caractéristiques sont la longueur, le diamètre et la densité. Elles sont reconnues pour leur grande rigidité ainsi que pour leurs qualités d'isolants thermiques et acoustiques.

Elles agissent aussi comme de bons adsorbants. Le tableau ci-dessous répertorie les propriétés physiques de certaines de ces fibres, telles que rapportées dans la littérature.

Tableau III.2 Propriétés physiques de fibres végétales [80,124].

Fibres	Densité (g/cm ³)	Longueur(mm)	Diamètre (µm)	Humidité (%)
Sisal	0.75-1.07	200	0.08-0.30	11
Lin	1.54	4-77	5-76	10
Coton	1.5-1.6	35	19	/
Alfa	1.51	5-50	5-95	/
Jute	1.51	9-70	25-200	13
Coco	0.67-1	/	0.11-0.53	8

Les propriétés des fibres végétales sont influencées par plusieurs facteurs, dont leurs dimensions et leur capacité d'absorption d'eau. Premièrement, la variabilité des paramètres géométriques tels que la longueur et le diamètre s'explique par l'impact combiné des conditions de développement agricole et des processus d'industrialisation.

La dimension transversale des fibres n'est pas uniforme ; elle varie selon leur position dans la tige. Les fibres végétales se distinguent par leur rigidité élevée et leurs excellentes propriétés d'isolation thermique et acoustique. De plus, leur capacité d'absorption d'eau.

Tableau III.3 L'absorption d'eau des fibres végétales dans les composites [125].

Fibres	Absorption d'eau %
Sisal	110
Bambou	51
Palmier	129.9
Jute	281
Coco	93.8

III.7.2 Propriétés mécaniques

Les propriétés mécaniques des fibres végétales sont déterminées par une combinaison de facteurs intrinsèques, anthropiques et environnementaux. Les caractéristiques intrinsèques comprennent la composition chimique (cellulose, hémicellulose, lignine et pectines) et la structure de la fibre (section transversale, porosité, angle microfibrillaire, facteur de forme, rapport longueur/diamètre). Les facteurs anthropiques englobent les techniques de défibrage et les itinéraires techniques. Enfin, les caractéristiques environnementales, telles que le taux d'humidité, la localisation des fibres dans la tige, les défauts naturels et les conditions de croissance, jouent également un rôle crucial.

Malgré des variations, le module d'Young des fibres végétales est comparable à celui des fibres de verre. De plus, leurs propriétés spécifiques (rapportées à la densité) sont supérieures à celles du verre [91].

Tableau III.4 Les propriétés mécaniques des différents fibres végétales [111].

Fibre	Déformation à la rupture (%)	Résistance à la traction (MPa)	Module de Young (MPa)
Flax	1.2-3.2	345-1500	27.6-80
Hemp	1.6	550-900	70
Jute	1.5-1.8	393-800	13-30
kenaf	2.7-6.9	295-930	22-60
Ramie	2-3.8	220-938	44-128
Cotton	3-10	287-597	5.5-12.6
Bamboo	1.3-8	140-441	11-36
Sisal	2-15	400-700	9-38
Banana	5-6	529-914	27-32
Lin	3 .27	1339	58000
Alfa	1.6	75-154	12700

III. 8 Principaux avantages et inconvénients des fibres végétales

Les fibres végétales offrent de multiples bénéfices en tant que renfort pour les matériaux composites. Cependant, quelques faiblesses limitent leur adoption à grande échelle dans l'industrie. Le tableaux III.5 présentes les principaux avantages et inconvénients des fibres végétales.

Tableau III.5 Principaux avantages et inconvénients des fibres végétales [80,93].

Avantages	Inconvénients
Ressource renouvelable	Variation de la qualité en fonction du lieu de croissance et des conditions météorologiques
Faible densité et faible coût	Absorption d'eau
Neutre pour l'émission de CO ₂	Mauvaise tenue en vieillissement
Bonnes propriétés d'isolation thermique et acoustique	Renfort discontinu
Facile à recycler et biodégradables	Faible stabilité dimensionnelle
Non abrasives pour les outillages	Gestion de stock nécessaire pour les applications industrielles

III.9 Applications des fibres végétales

Les fibres naturelles offrent une alternative durable pour diverses applications, de la production de textiles et de cordages au renforcement de matériaux composites. Leur utilisation croissante en ingénierie, grâce à leurs propriétés de renfort dans les composites, contribue à une approche plus respectueuse de l'environnement

Dans le secteur aérospatial, les pays européens utilisent massivement les fibres végétales pour la fabrication de parois latérales [126].

L'industrie automobile bénéficie des avantages des composites à fibres naturelles, tels que leur rentabilité, légèreté et durabilité, par rapport aux composites synthétiques [127].

Le recours à ces composites contribue à l'allègement des véhicules, ce qui a pour effet de diminuer la consommation de carburant ainsi que les émissions de substances polluantes.

Les fibres de chanvre et de lin sont des alternatives prometteuses à la fibre de verre, notamment dans le secteur automobile allemand [128]. En outre, depuis plusieurs décennies, les fibres naturelles ont trouvé des applications diversifiées dans le secteur de la construction, en raison de leurs propriétés avantageuses.

Par conséquent, de nombreuses études explorent leur utilisation comme renfort dans le béton, dans le but de développer un matériau plus écologique et aux propriétés physicochimiques améliorées [129,130].

Chapitre IV Matériels et méthodes

IV.1 Objectif

Dans le cadre de ce travail, nous cherchons à développer et caractériser un nouveau matériau bio-composite. Il est composé d'un polymère biodégradable, le poly (acide lactique), renforcé par 20% de fibres végétales d'*Ampélodesmos mauritanicus* (Diss). Ces fibres présentent des avantages tels que leur caractère renouvelable, leur faible densité, leur bonne résistance thermique et mécanique, ainsi que leur respect de l'environnement. Cependant, l'incompatibilité entre le caractère hydrophile de la fibre et hydrophobe du polymère constitue un défi majeur. Afin d'améliorer l'adhésion à l'interface fibre-polymère, la surface des fibres de Diss a été modifiée à l'aide de traitements chimiques et thermiques.

IV.2 Matériaux utilisés

IV.2.1 Poly (acide lactique)

Le PLA qui a été utilisé dans cette étude provient de l'entreprise Nature Works LLC (2003D). Il s'agit d'un grade d'extrusion se présentant en granulés transparent. Les principales caractéristiques de ce matériau figurent dans le tableau IV.1.

Tableau IV.1 Caractéristiques de PLA (2003D).

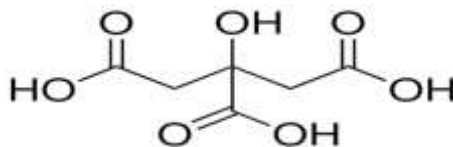
Caractéristiques	Valeur (Unité S.I)	Méthode ASTM
Densité	1,24	D792
Indice de fluidité, Condition (210 °C, 2,16kg)	6g/10min	D1238
Résistance à la traction à la rupture	7,700 (53) MPa	D882
Résistance au choc Izod	0,3 (16) J/m	D256
Allongement à la traction, en %.	6	D882
Température de fusion	210°C	/

IV.2.2 *Ampélodesmos mauritanicus* (Diss)

Les fibres d'*Ampélodesmos mauritanicus*, une plante qui appartient à la famille des Poaceae communément appelée Diss (en arabe), sont encore peu étudiées pour leur potentiel dans les matériaux composites. Ces fibres ont été collectées à Bouandas, au nord de Sétif, en Algérie.

IV.2.3 Acide citrique

L'acide citrique (pureté $\geq 98\%$, cristaux), de formule chimique $C_6H_8O_7$, provient de Sigma-Aldrich. Les caractéristiques de ce produit sont détaillées dans le tableau V.2.



Figures IV.1 Structure chimique de l'acide citrique.

Tableau IV.1 Caractéristiques de l'acide citrique.

Caractéristiques	Valeur
Densité	1,665 à 20°C
Aspect	Cristaux incolore
Point de fusion/point de congélation	153 °C
Point d'ébullition initial et intervalle d'ébullition	>175°C
Masse molaire	192,12g/mole

IV.2.4 Agent de blanchiment

L'agent de blanchiment utilisé dans cette étude est hypochlorite de sodium de la formule chimique ($NaClO$) d'une pureté 99%.

IV.3 Méthodologie expérimentale

IV.3.1 Prétraitement des feuilles de Diss

Les feuilles de Diss ont été prétraitées en les immergeant dans de l'eau distillée afin d'éliminer les impuretés et les grosses particules. Après avoir été rincées à l'eau distillée, les tiges ont été séchées à température ambiante pendant 24 heures. Les tiges séchées ont été directement défibrées, puis broyées à l'aide d'un broyeur. Les fibres obtenues ont ensuite été séparées par tamisage afin d'obtenir des particules de taille comprise entre 150 et 250 μm .

IV.3.2 Traitement chimique des fibres de Diss

Le traitement avec l'acide citrique a été réalisé en immergeant les fibres de Diss dans une solution acide citrique à 5 % en poids à température 80 °C pendant 2 heures.

Les fibres ont ensuite été lavées plusieurs fois avec de l'eau distillée jusqu'à la neutralisation du pH. Enfin, après avoir été maintenue à l'air libre et on termine avec une mise à l'étuve à 60 °C pendant 24h les fibres a été séchée à 60 °C pendant 24 heures.

Les fibres traitées par acide citrique sont immergées dans une solution aqueuse d'hypochlorite de sodium à 5% pendant 2 heures à une température 80°C.

IV.3.3 Traitement thermique des fibres de Diss

Les fibres de Diss ont été lavées à l'eau pour éliminer les contaminants et la poussière. Elles ont été séchées à température ambiante. Les fibres de Diss ont été soumises à un traitement thermique en plaçant les échantillons dans un four à 100 °C pendant 4 heures.

IV.3.4 Procédé de mise en œuvre

La première étape consiste à étuver les fibres à 60°C pendant 24 heures. Cette étape de conditionnement, réalisée avant la mise en œuvre, permet de limiter l'absorption d'humidité par la matière organique. La seconde étape consiste à mélanger le PLA (80%) et les fibres de Diss traitées et non traitées (20%), par voie fondue, à 190°C dans un BRABENDER, avec une vitesse de 50 tr/min et un temps de mélange de 8 minutes.

Le processus de fabrication s'est poursuivi par le broyage des différentes formulations, suivi du moulage par compression. Cette dernière étape a été effectuée à 150°C pendant 4 minutes, en utilisant une presse hydraulique de type CARVER.

Tableau IV.3 Composition des formulations matrice /fibre.

Échantillons	PLA (%)	Diss (<i>Ampélodesmos mauritanicus</i>) (%)
PLA pur	100	-
PLA/FDNT	80	20
PLA/FDTCH	80	20
PLA/FDTTH	80	20

IV.4 Techniques de caractérisation

IV.4.1 Détermination de la composition chimique de la fibre de Diss

Nous présenterons dans cette partie les protocoles expérimentaux permettant la détermination de la composition chimique de la fibre de Diss.

IV.4.1.1 Détermination du taux de l'hémicellulose

3g (P1) de la fibre de DISS séchée est traitée par une fiole de 120 ml d'eau distillée, 1 ml d'acide acétique et 2,5g de chlorite de sodium (NaClO_2) à 70°C pendant 1 heure.

Après la filtration et un lavage à grande eau, la suspension a de nouveau été traitée deux fois, à une heure d'intervalle à chaque reprise. Le résidu est ensuite filtré et lavé trois fois avec l'eau distillée, séché à 100°C et pesé (P2).

Le taux des hémicelluloses dans un échantillon est donné par la relation

$$\% \text{ Hémicelluloses} = (P_2/P_1).100 \dots\dots\dots (1).$$

IV.4.1.2 Détermination du taux de la cellulose

1g d'hémicellulose séchée, sont traitées par une 10 ml de la solution de soude caustique 1,75g, avec une agitation 30 minutes à 200 tr/min. le traitement est reconduit deuxième fois à 350 tr/min.

Ensuite ajouter 40 ml d'eau distillée, laver le résidu avec d'eau distillée jusqu'à la neutralisation du pH sécher pendant une nuit à 95°C.

$$\% \text{ Cellulose} = P_2/P_1 * P_3 \dots\dots\dots (2).$$

IV.4.1.3 Détermination du taux de la lignine (Lignine de Klason)

La détermination de la teneur en lignine insoluble de la fibre de DISS a été réalisée à l'aide de la méthode Klason. Les polysaccharides sont hydrolysés par l'acide, laissant la lignine sous forme de résidu insoluble.

1g (P₁) de matière sèche a été mélangé avec 30 ml d'acide sulfurique à 72%, l'ensemble a été agité pendant 30 min à une température ambiante. Puis 600 ml d'eau distillée sont ajoutés pour réduire la teneur en acide, et la solution est chauffée à l'ébullition et à reflux pendant 4h. Le résidu est ensuite filtré et lavé abondamment avec l'eau distillée, séché à 105°C et pesé (P₂)[131].

$$\% \text{ Lignine} = (P_2/P_1).100 \dots\dots\dots (3).$$

IV.4.2 Détermination de la densité

La densité de la fibre de Diss a été mesurée à l'aide d'un pycnomètre. Cette méthode consiste à peser le pycnomètre vide (m₀), puis d'y introduire 1g de fibre de Diss et de peser l'ensemble (m₁). On ajoute ensuite de l'éthanol et on pèse à nouveau (m₂). Enfin, on remplit le pycnomètre d'éthanol seul et on mesure sa masse (m₃). La densité est alors déterminée à l'aide de la relation 4.

$$d = \frac{m_1 - m_0}{(m_3 - m_0) - (m_2 - m_1)} \dots\dots\dots (4)$$

IV.4.3 Infrarouge à Transformée de Fourier

La spectroscopie vibrationnelle infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) est une technique très avancée pour l'analyse moléculaire des matériaux, notamment pour déterminer leur nature chimique. Cette méthode est basée sur l'excitation des molécules de l'échantillon par un rayonnement infrarouge. Les molécules absorbent certaines fréquences de ce rayonnement, ce qui provoque des changements dans leurs états vibrationnels.

Ces fréquences d'absorption sont caractéristiques de chaque groupement moléculaire, fournissant ainsi une empreinte spectrale unique.

Les échantillons à analysé ont été transformés en pastilles Pour cela, 3 % en masse d'échantillon préalablement séché à l'étuve ont été mélangés à 97 % en masse de KBr.

IV.4.4 Analyse thermogravimétrique

La technique d'analyse thermogravimétrique (ATG) consiste à suivre la variation de la masse d'un échantillon à mesure que la température ou le temps évoluent. Cette technique est particulièrement utile pour évaluer la teneur en eau, la décomposition thermique, l'oxydation et d'autres transformations subies par un matériau. Dans cette étude, a permis de quantifier l'humidité et d'étudier la stabilité thermique de substrats cellulosiques. Les analyses ont été effectuées au moyen d'un appareil du modèle (Q600). Le chauffage des échantillons a été réalisé sous atmosphère d'azote. La température a été augmentée de 25 °C à 600 °C, avec un taux de chauffe de 10 °C/min.

IV.4.5 Diffraction des rayons X

Le diffractomètre EMPYREAN a permis d'étudier la cristallinité du PLA pur et ses composites par diffraction des rayons X, l'analyse a utilisé les rayons X obtenus par CuK α avec une longueur d'onde de 0,15406 nm.

Les mesures de diffraction des rayons X ont été effectuées à l'aide d'un générateur de rayons X réglé à 40 kV. Les scans ont été mesurés sur une gamme d'angles de 2 θ .

IV.4.6 Calorimétrie différentielle à balayage

L'analyse par calorimétrie différentielle à balayage a été menée sur un calorimètre différentiel à balayage DSC modèle 2100. Un échantillon de 10 mg a été pesé, scellé et soumis à tous les cycles à une vitesse de chauffage et de refroidissement de 10°C/min. L'azote, utilisé comme gaz de balayage, a circulé à un débit de 50 ml/min. La détermination du degré de cristallinité a été effectuée à l'aide de l'équation (6).

$$X_c(\%) = \frac{\Delta H_m - \Delta H_{cc}}{\Delta H_m^\circ \times W_p} \times 100 \dots\dots (6).$$

X_c (%) : Taux de cristallinité

ΔH_m : Signifie l'enthalpie de fusion de l'échantillon

ΔH_{cc} : Représente la chaleur de cristallisation à froid,

ΔH_m° : Enthalpie de fusion pour un PLA 100 % cristallin, soit 93 J/g [132,133].

W_p : La proportion de PLA en poids.

IV.4.7 Analyse dynamique mécanique

Des échantillons du PLA renforcé par des fibres de Diss traitées (chimique thermique) et non traitées, de dimensions (40 x 10 x 2) mm³. Une analyse mécanique dynamique (DMA) a été effectuée sur les échantillons à l'aide d'un instrument TA Discovery HR-2.

Les essais ont été réalisés en torsion à une fréquence de 1 Hz, avec une déformation dynamique de 0,05 %, dans une plage de température de 23 à 150 °C et une vitesse de chauffe de 5 °C/min.

IV.4.8 Caractérisations mécaniques

IV.4.8.1 Résistance au choc (Izod)

La résistance au choc a été évaluée en mesurant l'énergie absorbée lors de la rupture d'une éprouvette soumise à un impact. Dans le cadre de cet essai, des éprouvettes non entaillées de dimensions (63.5×12.7×3) mm³ ont été utilisées. L'impact est généré par une machine de type JINGMI, équipé d'un marteau de 7,5 kg.

L'énergie absorbée par l'éprouvette lors de la rupture est mesurée par l'appareil. Cette énergie est ensuite divisée par la section de l'éprouvette, ce qui permet de déterminer la résilience en KJ/m².

IV.4.8.2 Essai de traction

Les essais de traction ont été réalisés sur des éprouvettes découpées conformément à la norme ASTM D638-1, en utilisant une machine d'essai universelle Zwick Roell 7100.

Une vitesse de 5 mm/min a été utilisée pour la réalisation des essais sur cinq éprouvettes, et la moyenne des résultats a été calculée afin d'assurer la fiabilité des mesures. Les essais de traction ont été effectués dans des conditions quasi-statiques à température ambiante, soit environ 20°C.

IV.4.9 Microscopie électronique à balayage

Les micrographies électroniques des échantillons de composites (fibres non traitées/PLA et fibres traitées/PLA) ont été examinées à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB) Quanta 650 à filament de tungstène, avec une tension d'accélération de 10 kV.

IV.4.10 Méthodologie expérimentale

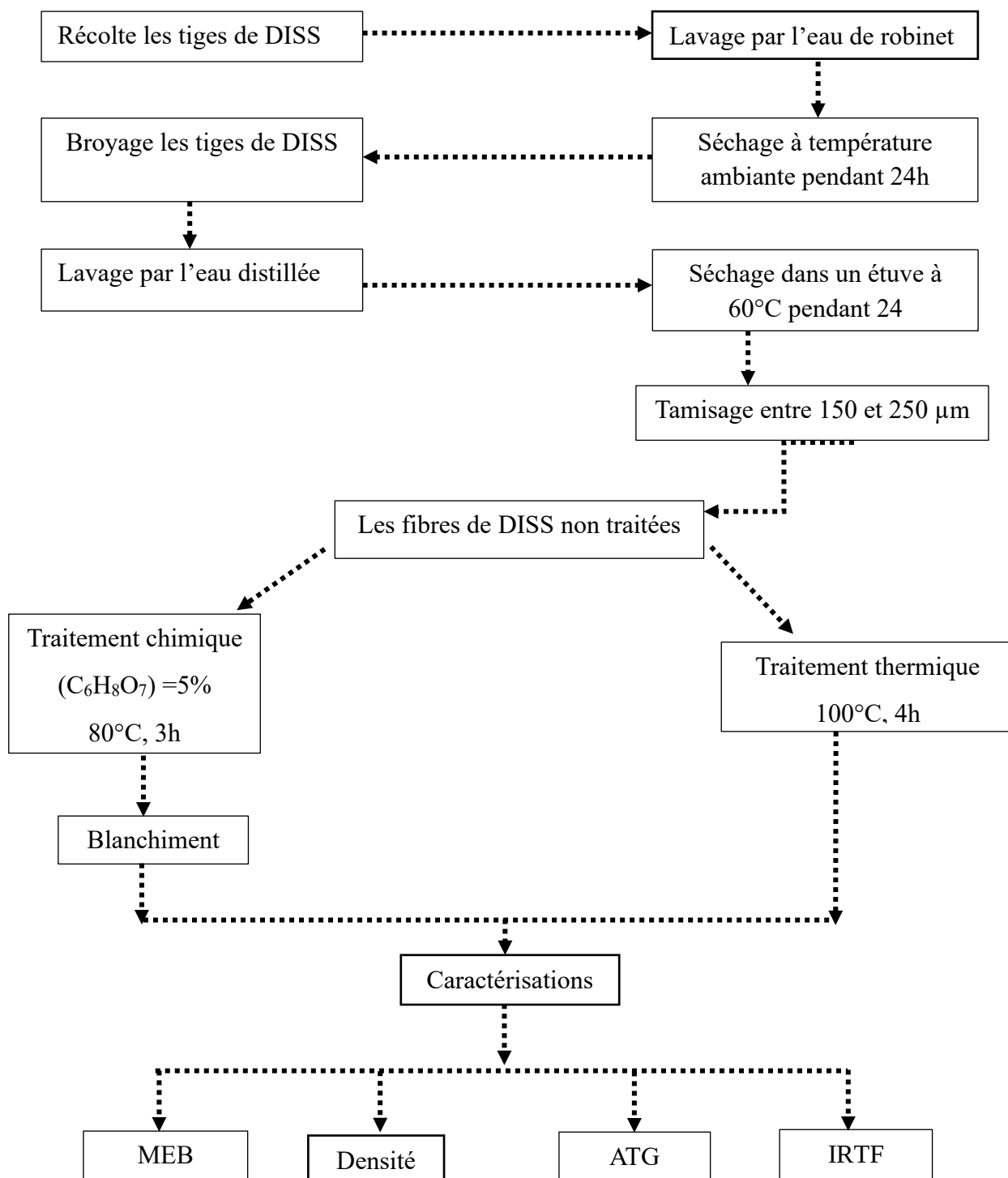


Figure IV.2 Organigramme de la méthodologie expérimental : partie A.

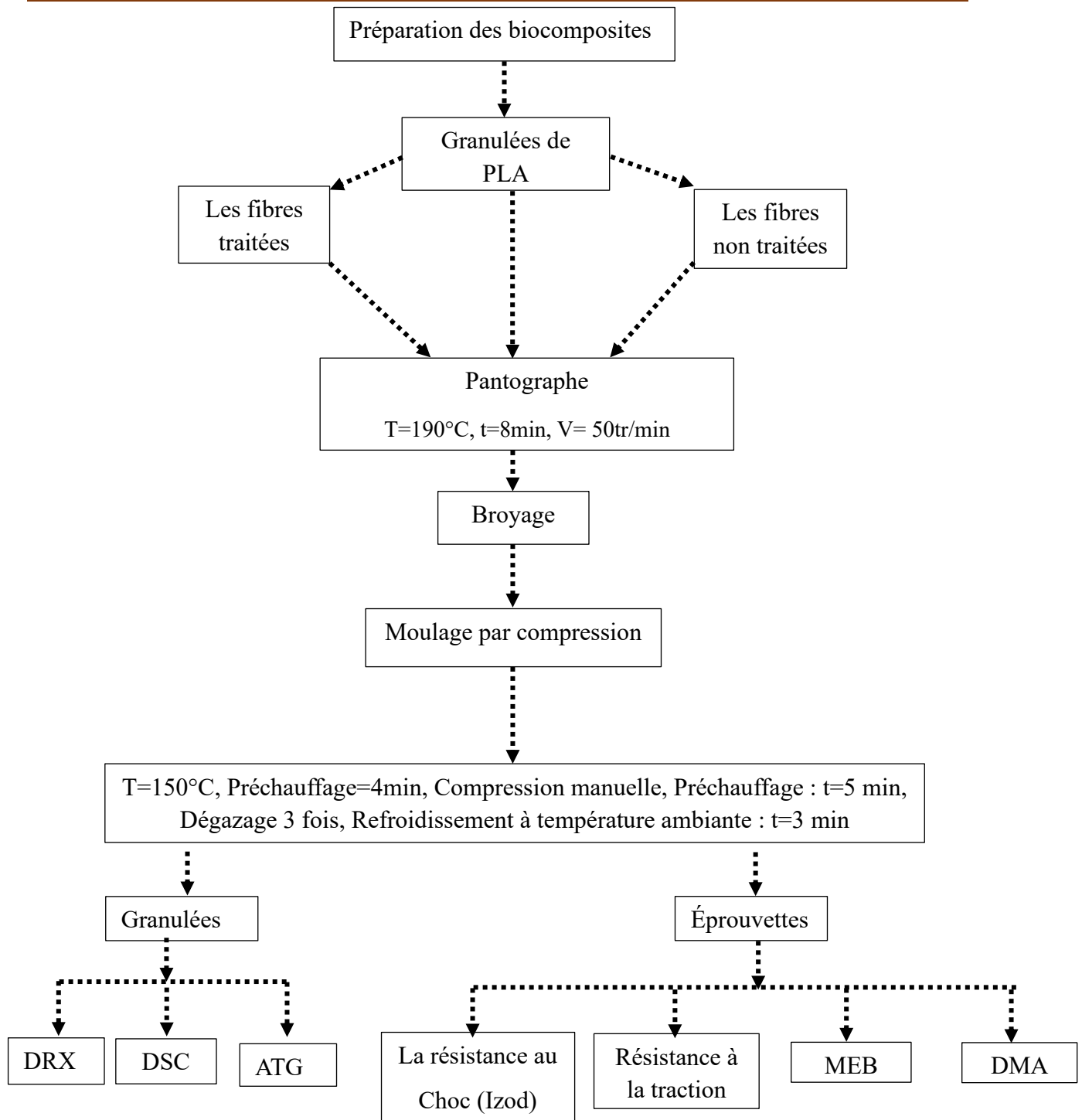


Figure IV.3 Organigramme de la méthodologie expérimentale : partie B

Chapitre IV Matériels et méthodes

V. 1 Caractérisation de la fibre de Diss

V.1.1 Composition chimique de la fibre de Diss

La composition d'une fibre végétale, notamment la proportion de microfibrilles de cellulose, de lignines et d'hémicelluloses, est un facteur déterminant de ses propriétés. Ces composés pariétaux influencent les propriétés physiques et mécaniques des fibres, ce qui a une influence directe sur les performances des composites. Il est donc essentiel de connaître cette composition pour caractériser et utiliser efficacement les fibres végétales. Les résultats des analyses des fibres de Diss figurent dans le tableau V.1.

Tableau V.1 Comparaison de la composition chimique des fibres de Diss.

Référence	Cellulose (%)	Hémicellulose (%)	Lignine (%)
Étude présente	45	26,7	16
C. May et A. Moussa 2020 [134]	28,13	26,26	22,08
C. May et A. Moussa 2018 [135]	28,13	26,26	24,95
Mohamed El Hadi Bourahli [97]	44,1	27	16,80

La légère variabilité observée dans les valeurs obtenues peut être attribuée à plusieurs facteurs interdépendants. Les conditions pédoclimatiques, qui peuvent varier considérablement en fonction des régions et des saisons, l'âge des fibres, qui dépend du stade de développement de la plante, leur position au sein de la gaine, qui peut affecter leur exposition aux éléments, ainsi que les différentes méthodes de dosage utilisées [136].

Les résultats indiquent que la fibre de Diss est principalement composée de cellulose (45 %), un élément essentiel qui leur confère un potentiel intéressant pour renforcer les matériaux polymères. La cellulose, grâce à sa structure semi-cristalline et aux liaisons hydrogène qui unissent ses unités de glucose, est le principal responsable des propriétés mécaniques des fibres végétales. Cependant, la teneur en hémicelluloses (26,7 %), inférieure à celle observée dans d'autres fibres végétales (tableau V.1).

Ces composés, hautement hydrophiles, pourraient en effet nuire à l'adhésion entre les fibres et les matrices polymères hydrophobes, ce qui pourrait impacter négativement les propriétés mécaniques des composites finaux [136].

La proportion de lignine dans les fibres de Diss s'élève à 16 %, ce qui est une valeur plus faible que celle observée pour d'autres fibres (voir Tableau V.1). En participant grandement à la rigidité des fibres végétales, ce composant empêche la réorientation des fibrilles de cellulose. Il limite ainsi le transfert de la charge lorsqu'une force extérieure est appliquée. La composition des fibres végétales fluctue considérablement à cause de la complexité des facteurs qui l'influencent : variété de la plante, nature du sol, climat, maturité, méthode de rouissage et conditions de mesure. Cette hétérogénéité, abondamment documentée [137], pose des défis majeurs pour les industries utilisatrices.

V.1.2 Densité

La densité se définit comme la masse par unité de volume total, a été déterminée par pycnomètre pour les fibres de Diss. Les résultats obtenus, avant et après les deux traitements, sont consignés dans le tableau V.2. La densité des fibres non traitées est de 0,94 g/cm³. Ces fibres de Diss non traitées ont une densité assez faible comparée avec d'autres fibres courantes, comme le lin (1,53-1,54 g/cm³), du chanvre (1,4-1,6 g/cm³), du sisal (1,45 g/cm³) et du jute (1,38-1,40 g/cm³) [138]. Un traitement à l'acide citrique (5%) pendant 2 heures entraîne une augmentation de la densité à 1,36 g/cm³, cette augmentation observée s'explique probablement par l'extraction des composés solubles de la fibre sous l'action de l'acide citrique, entraînant une diminution de la porosité. Tandis qu'un traitement thermique résulte en une densité de 0,98 g/cm³.

Tableau V.2 Densité de fibres de Diss.

	Densité (g/cm ³)
Diss brute	0,94
Diss traitée (5% acide citrique)	1,36
Diss traitée thermiquement	0,98

V.1.3 Analyse structurale

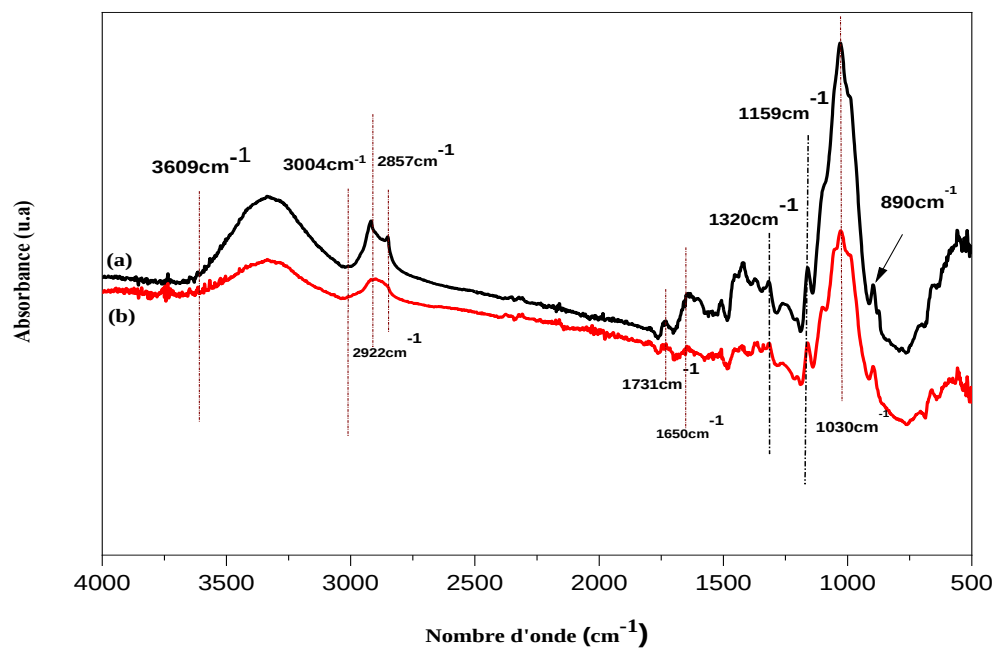


Figure V.1 Spectres IRTF des fibres Diss : (a) non traitées, (b) traitées avec $C_6H_8O_2$.

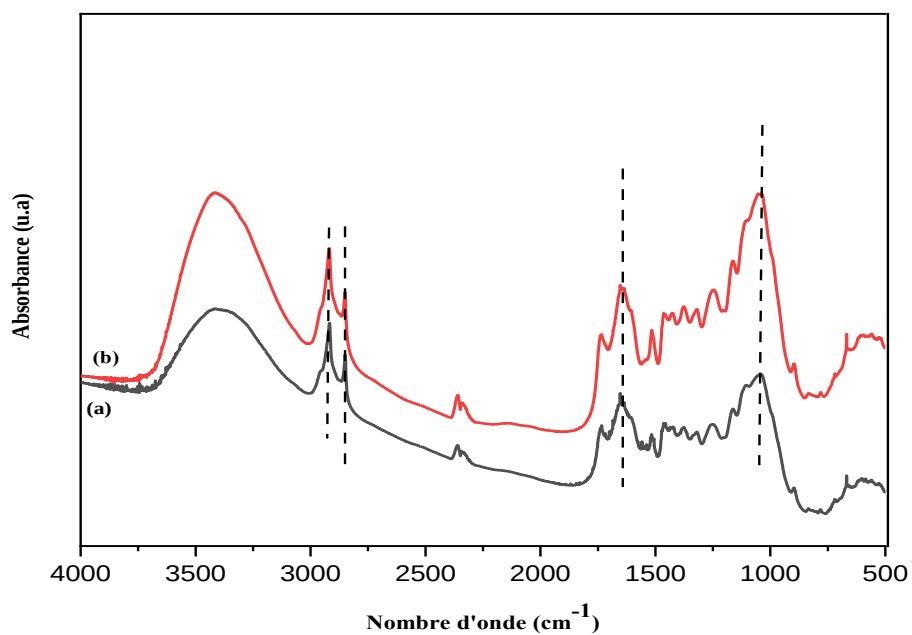


Figure V.2 Spectres IRTF des fibres Diss : (a) non traitées, (b) traitées thermiquement.

La Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (IRTF) a été utilisée pour identifier les groupes fonctionnels présents dans les fibres, avant et après leur traitement à l'acide citrique et le traitement thermique. Les figures V.1 et V.2 montrent les spectres comparatifs de cette analyse.

La majorité des pics observés ont été attribués à diverses liaisons au sein de la structure de la cellulose, le principal composant de la fibre de Diss (*Ampelodesmos mauritanicus*).

Dans la figure V.1 un pic important à 890 cm^{-1} dans le spectre indique des liaisons de type cellulosique entre les molécules de sucre [139]. En outre, un pic à 1030 cm^{-1} suggère la contribution des modes d'étirement C-O des groupes hydroxyles et des groupes éthers, tandis qu'un pic à 1159 cm^{-1} correspond à la vibration d'étirement de la liaison C-O-C au sein des liaisons glycosidiques de la cellulose [97].

Le pic à 1320 cm^{-1} était associé aux groupes alcooliques de la cellulose, et une autre bande autour de 1420 cm^{-1} était liée aux vibrations de flexion -CH₂- dans la cellulose. Un faible pic d'absorbance à 1650 cm^{-1} à proximité de cette région indique la présence de lignine [97].

En outre, un pic à 1731 cm^{-1} indique les vibrations d'étirement des liaisons C=O, provenant potentiellement de divers groupes fonctionnels tels que ceux trouvés dans la lignine, l'hémicellulose et la pectine [140].

Les pics dans la gamme $2857\text{-}2920\text{ cm}^{-1}$ étaient associés à des vibrations d'étirement C-H saturé aliphatique dans la cellulose. Par ailleurs, le pic à 2861 cm^{-1} correspond à la vibration d'étirement symétrique des liaisons C-H des groupes méthyles (-CH₃).

Alors que le pic à 2915 cm^{-1} est souvent attribué à la vibration d'étirement asymétrique des liaisons C-H des groupes méthylènes (-CH₂) présents dans les fibres de Diss. Dans la région des $3334,72\text{ cm}^{-1}$, une bande a été observée, principalement liée aux liaisons O-H des groupes hydroxyles, tandis que la bande des $3609\text{-}3004\text{ cm}^{-1}$ représentait les groupes OH et les liaisons hydrogène de la cellulose intramoléculaire et entre réseaux.

Des changements significatifs ont été notés en comparant les spectres des fibres non traitées et traitées avec 5% d'acide citrique. Premièrement, l'intensité de la bande $3334,72\text{ cm}^{-1}$ a diminué après le traitement à l'acide citrique, ce qui indique une réduction des groupes hydroxyles [141]. Deuxièmement, le traitement avec une solution d'acide citrique à 5 % a diminué l'intensité des pics à 2920 cm^{-1} et 2856 cm^{-1} , associés à la présence de lignine, de pectine et d'hémicellulose. La réduction de l'intensité à 1650 cm^{-1} et 1731 cm^{-1} a également été attribuée à la dégradation de la teneur en lignine après le traitement à l'acide citrique. L'acide citrique, un acide organique naturel et respectueux de l'environnement, agit comme un agent de couplage en introduisant des groupes carboxyles (-COOH) à la surface des fibres.

Ces groupes peuvent former des liaisons ester avec les groupes hydroxyle (-OH) de la matrice PLA pendant le traitement du composite. Cette interaction chimique entre la fibre et la matrice augmente l'adhésion à l'interface, qui est souvent le maillon faible des composites à base de fibres naturelles.

Bien que le traitement thermique n'ait pas altéré considérablement la surface des fibres (Figure V.2). Seule une augmentation de la cristallinité et de l'élimination de l'humidité se produit pour la dissolution après le traitement thermique [107,142].

V. 1.4 Stabilité thermique

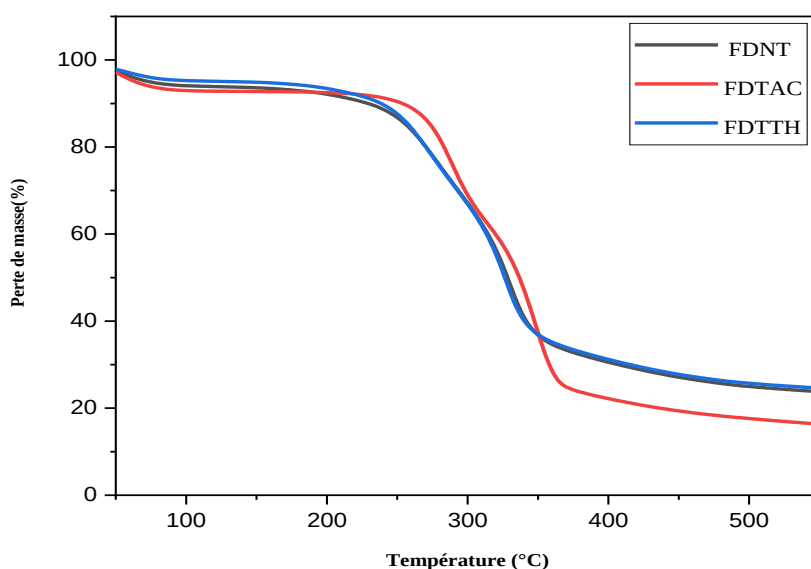


Figure V.3 Thermogrammes de fibres de Diss non traitées, traitées avec (5%) l'acide citrique et traitées thermiquement.

Une analyse thermogravimétrique a été effectuée sur les fibres Diss, immergées dans une solution à 5% d'acide citrique, traitées thermiquement, et non traitées, afin d'évaluer leur comportement thermique. Les résultats sont résumés dans la figure V.3 et le tableau V.3. Il y a trois étapes principales, la première étape entre 50-161°C est associée à l'évaporation de l'humidité, avec une perte de poids d'environ 6%. Il est intéressant de noter que Touati et al [98] a rapporté une perte de masse similaire d'environ (5%) en utilisant un traitement alcalin.

La deuxième étape, entre 200 et 356 °C, contribue à la décomposition de l'hémicellulose et de la cellulose [143].

L'hémicellulose se dégrade facilement entre 200 et 315°C, tandis que la principale plage de température pour la pyrolyse de la cellulose se situe entre 315 et 400°C [122-145]. La troisième étape correspond à la dégradation de la lignine et se déroule entre 400 et 572°C [98].

La comparaison des performances thermiques des fibres traitées et non traitées révèle une amélioration significative de la stabilité. En particulier, les fibres traitées avec 5 % d'acide citrique ont affiché une température de début de dégradation (Td) plus élevée (de 172,20 °C à 225,88 °C) par rapport aux fibres traitées thermiquement et aux fibres non traitées.

De plus, la température maximale de dégradation a également augmenté après le traitement des fibres avec l'acide citrique. Cette augmentation a été observée principalement après le traitement chimique des fibres, (Tmax=349,45°C de FDNT à Tmax=365,50°C de la FDTAC). Ces observations suggèrent que les fibres traitées avec 5% d'acide citrique présentent une plus grande résistance à la dégradation thermique que les fibres traitées thermiquement et non traitées.

Tableau V.3 Analyse thermogravimétrique des fibres de Diss (*Ampélodesmos mauritanicus*) sans et avec traitement.

Échantillons	T _{début} (°C)	T _{max} (°C)
FDNT	172,20	349,49
FDTAC	225,88	365,50
FDTTH	175,56	350,39

V.1.5 Analyse morphologique

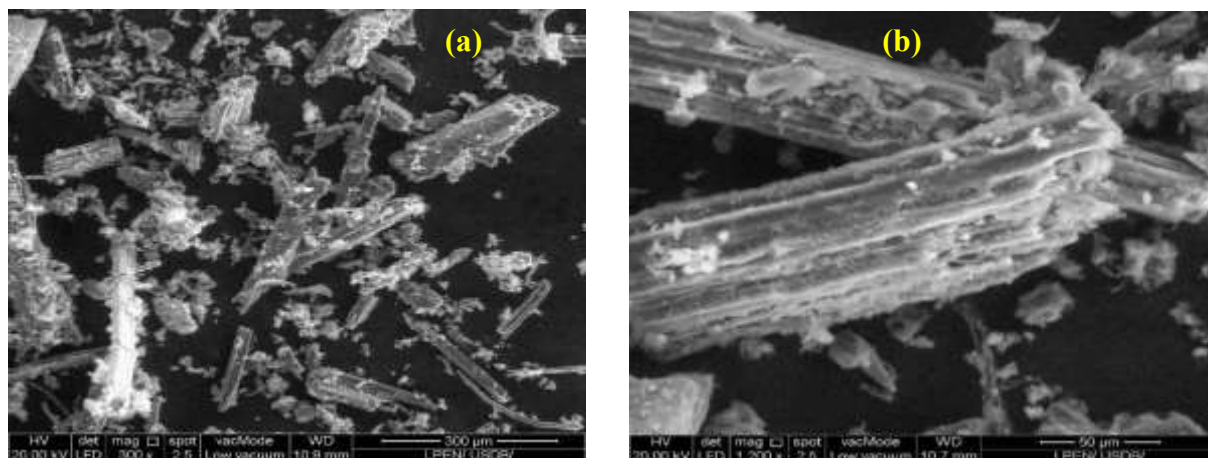


Figure V.4. Micrographies au microscope électronique à balayage (MEB) de fibres de Diss non traitées à (a) grossissement 300× et (b) grossissement 1200×.

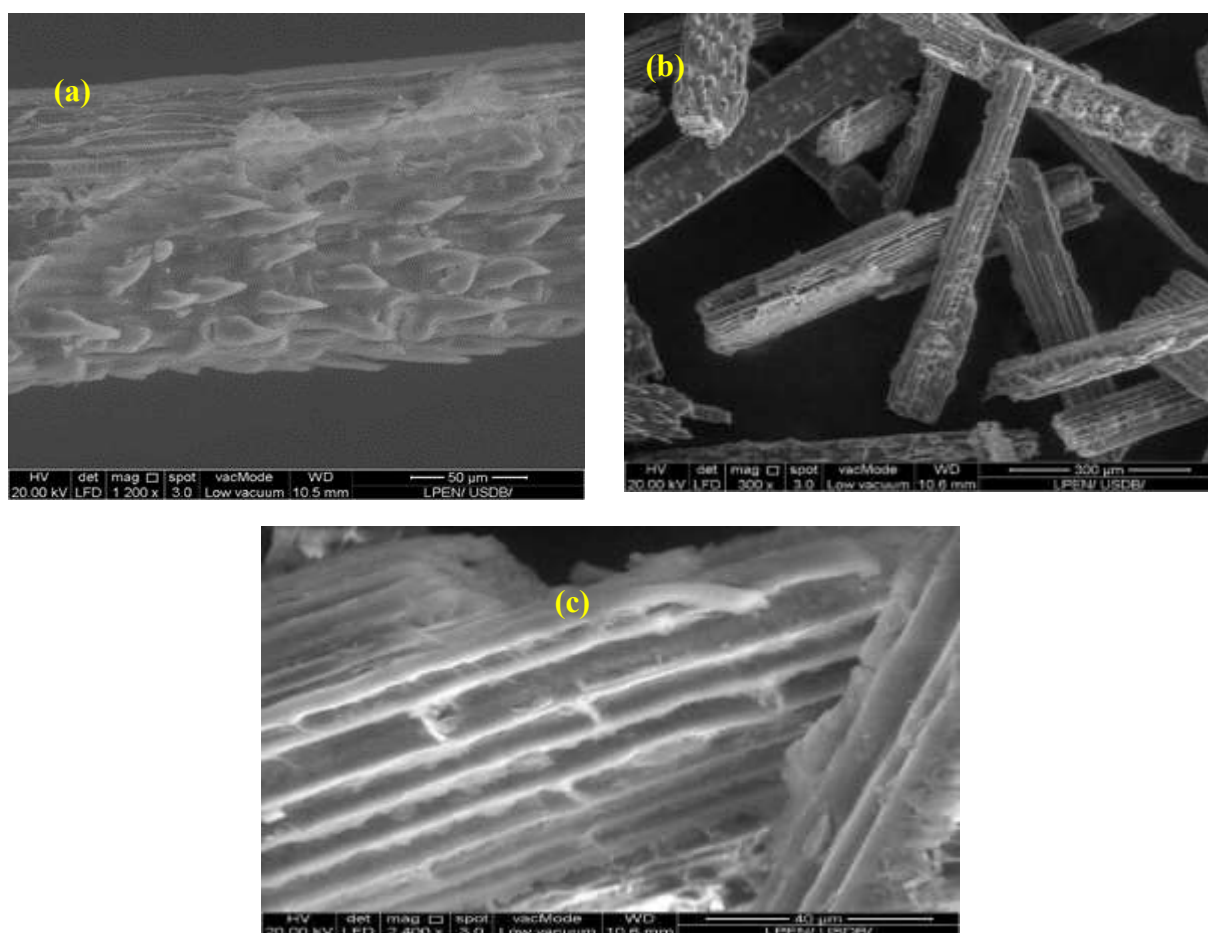


Figure V.5 Micrographies au microscope électronique à balayage (MEB) de fibres de Diss traitées avec l'acide citrique à différents grossissements (a) 300×, (b) 1200× et (c) 2400×.

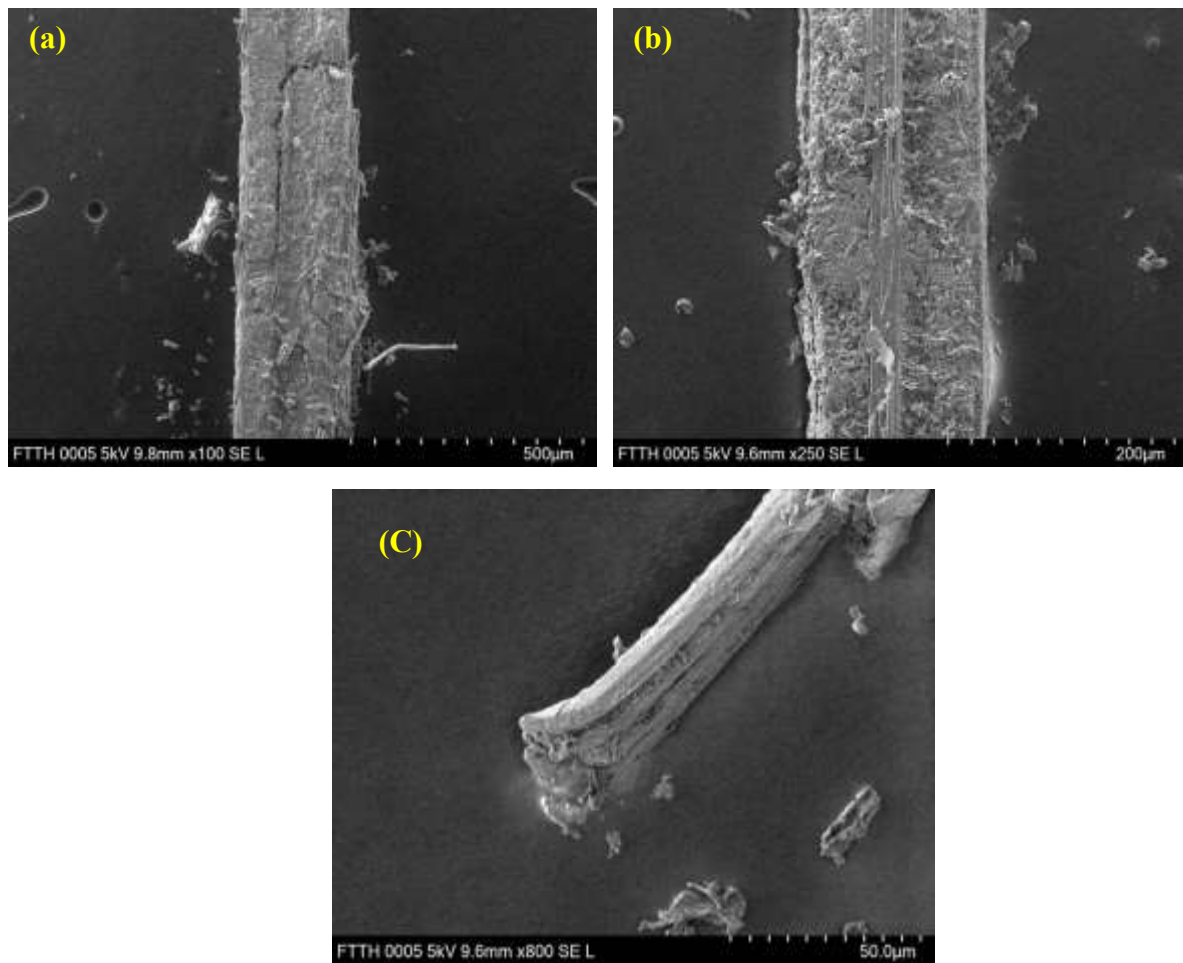


Figure V.6 Micrographies au microscope électronique à balayage (MEB) de fibres de Diss traitées thermiquement à différents grossissements (a) 500×, (b) 200× et (c) 50×.

La morphologie de la surface des fibres de Diss, avant et après traitement, a été examinée à différents grossissements en utilisant un microscope électronique à balayage.

La figure V.4 montre la micrographie MEB des fibres de Diss non traitées, indiquant une surface irrégulière couverte d'impuretés. Les micrographies MEB des fibres de Diss non traitées montrent généralement une surface hétérogène avec des irrégularités et des impuretés naturelles. Les surfaces des fibres peuvent présenter des textures rugueuses en raison de la présence d'hémicellulose, de lignine et d'autres composants non cellulosiques. En outre, une partie de la lignine peut être présente à la surface [146].

La figure V.5 illustre des micrographies MEB de fibres de Diss modifiées avec (5%) d'acide citrique, la surface des fibres devient plus propre et plus uniforme, ce qui peut être attribué à l'élimination des composants de cire, de l'hémicellulose, de la lignine et d'autres impuretés.

Des surfaces de fibres plus lisses et plus uniformes sont observées après le traitement d'acide citrique, ce qui indique une réduction de l'aspérité de la surface et une amélioration de l'adhésion fibre-matrice. Cette amélioration de l'état de surface améliore l'adhésion à l'interface entre les matériaux biocomposites.

De plus, l'observation des fibres de Diss traitées thermiquement par microscopie électronique à balayage (MEB) (Figure V.6) montre des modifications significatives de la surface, qui devient rugueuse, et une tendance des fibres celluloses à s'agréger en faisceaux. On y trouve également de lignine et des hémicelluloses [147].

V. 2 Caractérisation du composites (Diss/PLA)

V.2.1 Analyse de la microstructure (DRX)

La technique de diffraction des rayons X a été utilisée pour évaluer la structure cristalline des biocomposites. La figure V.7 présente les diagrammes de diffraction du PLA pur et ses composites PLA/FDNT, PLA/FDTAC et du PLA/FDTTH.

Le diagramme DRX du PLA pur présente des pics caractéristiques à $2\theta = 12,37^\circ$, $14,78^\circ$, $16,71^\circ$, $19,1^\circ$ et $22,4^\circ$ qui coïncident avec les données publiées précédemment [148,149]. Les deux pics à $2\theta = 12,37^\circ$ et $14,78^\circ$ indiquent une structure amorphe du PLA, la plus forte intensité de réflexion diffraction du PLA apparaît à $16,71^\circ$ présente une diffraction forte assigné à la phase cristalline α [36,71]. Les pics à $19,1^\circ$ et $22,4^\circ$ montre que le polymère PLA est de nature semi-cristalline [150].

Le spectre DRX du composite PLA/FDTAC, montre deux pics diffractions, le premier est situé à $2\theta = 15,23^\circ$ et l'autre à $17,39^\circ$. Ces pics correspondent respectivement aux plans cristallographiques (110) / (200) et (203) / (113). Selon la littérature [151,152], ces observations suggèrent une croissance de nouveaux cristaux dans la matrice PLA. Ce phénomène est probablement favorisé par les particules de FDTAC agissant comme un agent nucléant hétérogène. Cependant, ce mécanisme de nucléation n'est pas observé dans les composites à renforcé par des fibres non traitées ou traitées thermiquement, ce qui pourrait être dû à la formation d'agrégats de charge qui perturbent la croissance de la cristallisation.

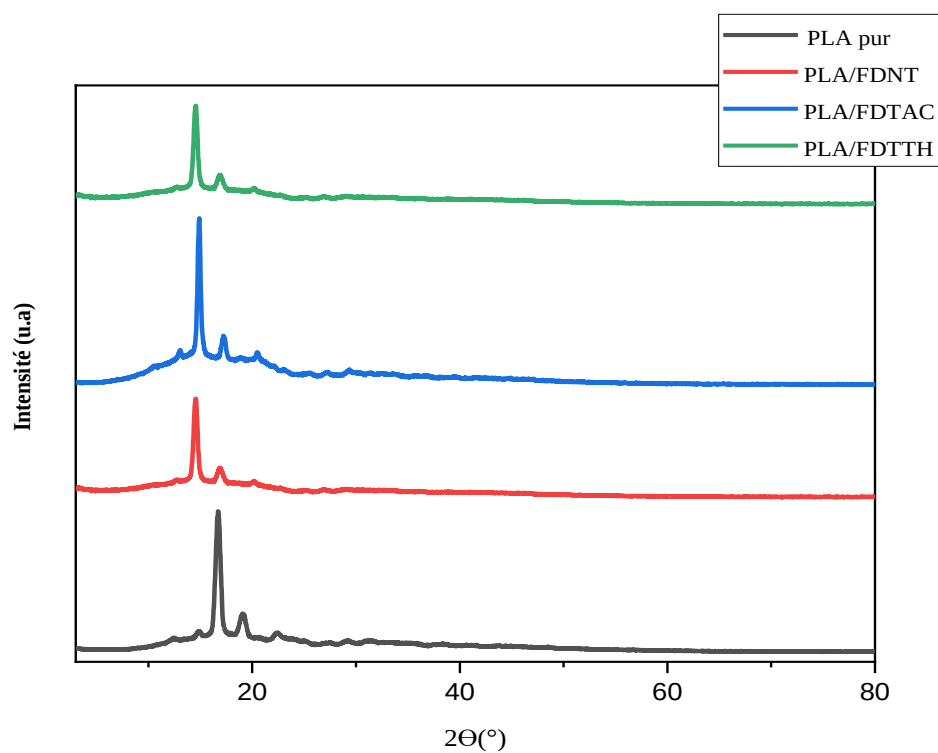


Figure V. 7 Diffraction des rayons X du PLA et ses composites PLA/FDNT, PLA/FDTAC et PLA/FDTTH.

V.2.2 Stabilité thermique

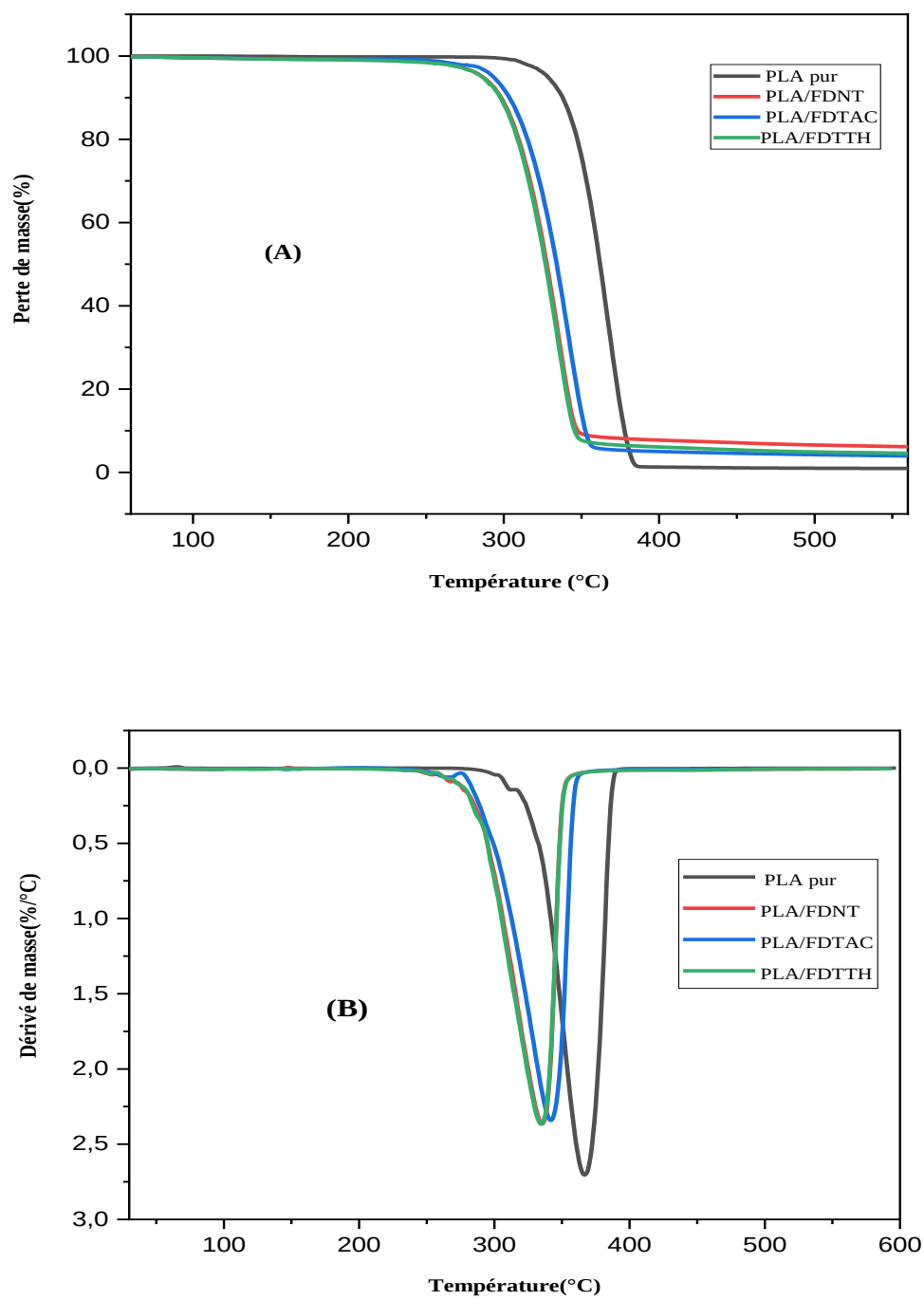


Figure V.8 (A) Analyse Thermogravimétrique et (B) Dérivée Thermogravimétrique du PLA et leurs composites.

L'étude de la stabilité thermique a été menée par (ATG) et (DTG) permettant de comparer le comportement du PLA pur à celui des composites chargés. La figure V.8 montre les courbes ATG (A) et DTG (B) pour le PLA pur, le PLA/FDNT, le PLA/FDTAC et PLA/FDTTH.

L'introduction de fibres de Diss (*Ampélodesmos mauritanicus*), avec ou sans traitement préalable, a modifié la stabilité thermique des composites, comme le montrent les courbes ATG (A) et DTG (B) par rapport au PLA pur [153].

Les températures de dégradation initiale et maximale rapportées pour le PLA pur sont respectivement de 302,86°C et 386,37°C.

Pour les biocomposites, la présence de fibres de Diss (*Ampélodesmos mauritanicus*) sans traitement, traitées avec 5% d'acide citrique et traitées thermiquement dans le PLA réduit leur stabilité thermique par rapport au PLA pur.

Des travaux menés par Yussuf et al. [154] ont montré que l'ajout de fibres naturelles, telles que le kenaf et la balle de riz, au PLA réduisait sa stabilité thermique.

Kalam et al [155] ont trouvé que la fibre de fruits du palmier à huile (OPF) présente une température de décomposition plus basse, ce qui augmente probablement la déformation de la structure cristalline du PLA et entraîne une réduction de la stabilité thermique des composites. Ils ont observé une tendance similaire par ATG pour le composite polypropylène à base de fibres OPF. Entre 300 et 400 °C, tous les échantillons se sont dégradés d'environ 85 à 90 %.

En revanche, les composites contenant des fibres Diss (*Ampélodesmos mauritanicus*) traitées avec l'acide citrique présentent une stabilité thermique accrue par rapport à ceux contenant des fibres Diss (*Ampélodesmos mauritanicus*) traitées thermiquement et non traitées, et les données correspondantes figurent dans le tableau V.4. L'élimination des impuretés est un facteur majeur de l'augmentation de la stabilité thermique.

Les impuretés peuvent agir comme des points faibles et se dégrader à des températures plus basses, compromettant ainsi le composite [156].

En conclusion, le traitement chimique des fibres d'*Ampélodesmos mauritanicus* avec 5% d'acide citrique permet d'améliorer la résistance thermique des composites PLA par apport au fibres traitées thermiquement et non traitées, De ce fait, ces composites sont particulièrement appropriés pour des applications qui exigent une bonne stabilité thermique. La modification de la surface des fibres naturelles par l'acide citrique améliore leur stabilité thermique, due à la réduction des groupes hydroxyle des molécules de cellulose dans la fibre traitée [157].

Tableau V.4 Analyse thermogravimétrique des composites PLA/Diss avec et sans traitement.

Échantillons	T _{début} (°C)	T _{max} (°C)
PLA pur	302,86	386,37
PLA/FDNT	254,49	352,51
PLA/FDTAC	285,93	363,32
PLA/FDTTH	265.31	354.54

V.2.3 Analyse morphologique

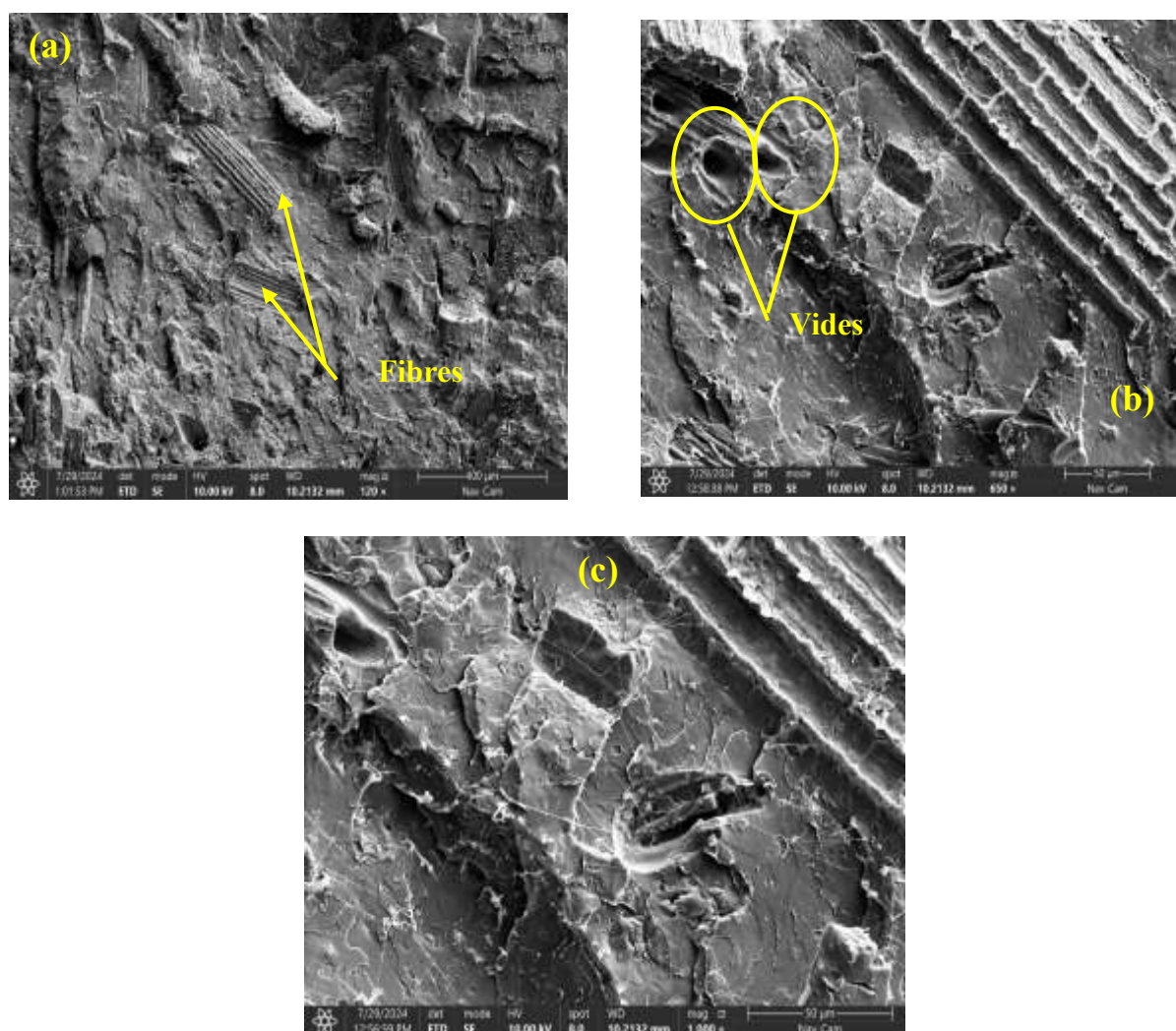


Figure V.9 Micrographies électroniques à balayage montrant des composites PLA/FDNT à (a) grossissement 120×, (b) grossissement 650× et (c) grossissement 1000×.

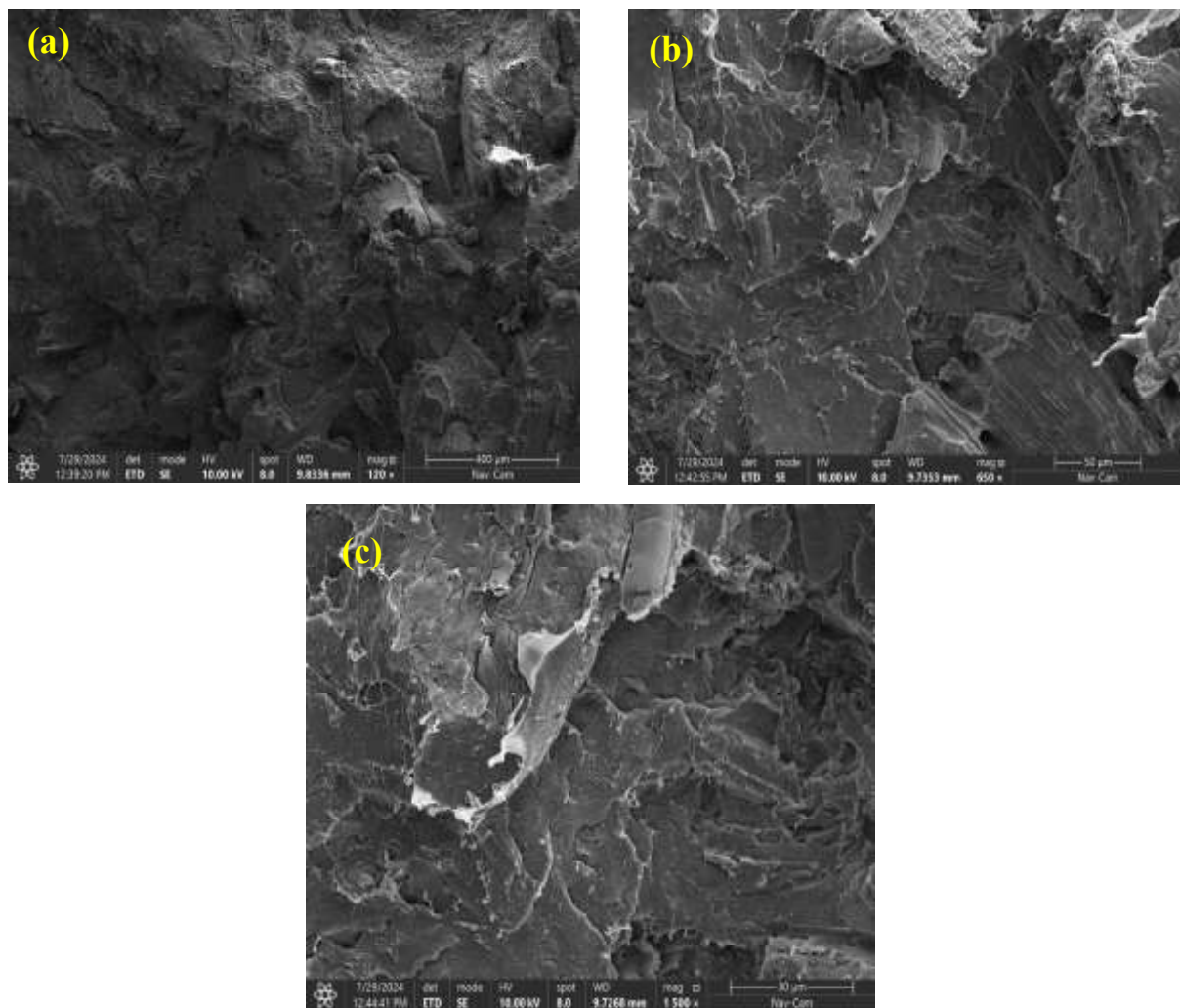


Figure V.10 Micrographies électroniques à balayage montrant des composites PLA/FDTAC à (a) grossissement 120×, (b) grossissement 650× et (c) grossissement 1500×.

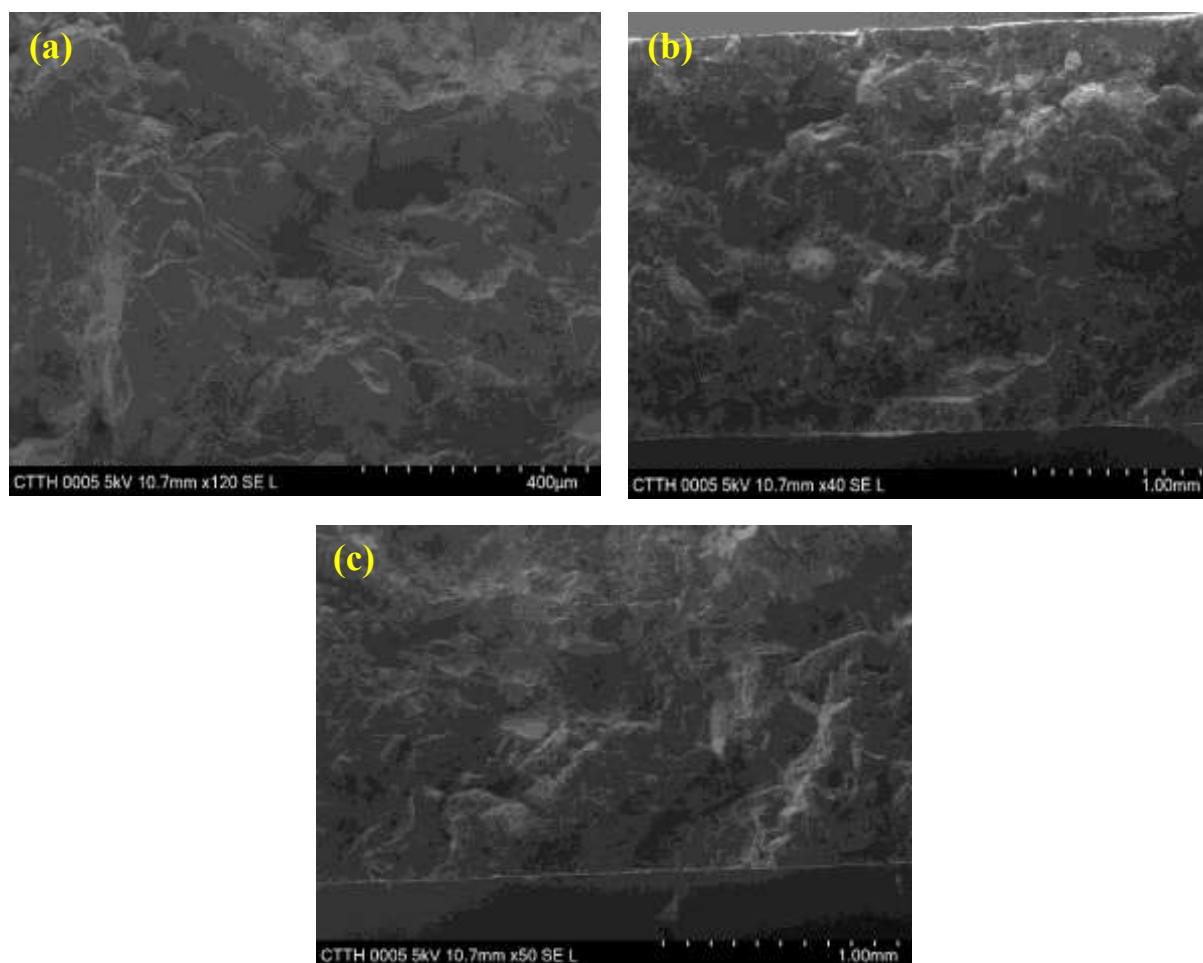


Figure V.11 Micrographies électroniques à balayage montrant des composites PLA/FDTTH à (a) grossissement 120×, (b) grossissement 40× et (c) grossissement 50×.

Les figures V.9, V.10 et V.11 présentent une comparaison visuelle de la morphologie structurale de composites PLA chargé de fibres de Diss (*Ampélodesmos mauritanicus*). La figure V.9 montre un composite dans lequel les fibres n'ont subi aucun traitement de surface. La figure V.10, en revanche, montre l'importante modification de surface appliquée aux fibres Diss et son effet sur la morphologie du composite obtenu.

Les micrographies au microscope électronique à balayage (MEB) du composite PLA/FDNT révèlent la présence de défauts tels que des vides et des cavités interfaciales, attribuables à une mauvaise mouillabilité des fibres non traitées par la matrice PLA.

En comparaison, les images MEB du composite PLA/FDTAC ne montrent pas de défauts, tels que des agglomérats de fibres ou des vides, contrairement aux images MEB des composites PLA/FDNT et PLA/FDTTH. Cela suggère une meilleure adhésion et une répartition plus cohérente des fibres de Diss (*Ampelodesmos mauritanicus*) traitées dans le matériau composite PLA/FDTAC [158].

Les analyses MEB et FTIR ont révélé une élévation significative de la rugosité de la surface des fibres après le traitement à l'acide citrique. L'amélioration de l'adhésion interfaciale fibre-polymère est une conséquence directe de cette modification de surface. En revanche la présence de vides et de cavités interfaciales dans les images MEB du composite PLA/FDTTH (figure V.11) indique une adhésion potentiellement faible entre les fibres et la matrice. Cette mauvaise adhésion peut être due à soit à une mouillabilité insuffisante des fibres par le PLA, soit à un mouillage imparfait des fibres pendant la préparation du composite, causant une séparation locale des interfaces.

V.2.4 Propriétés thermiques

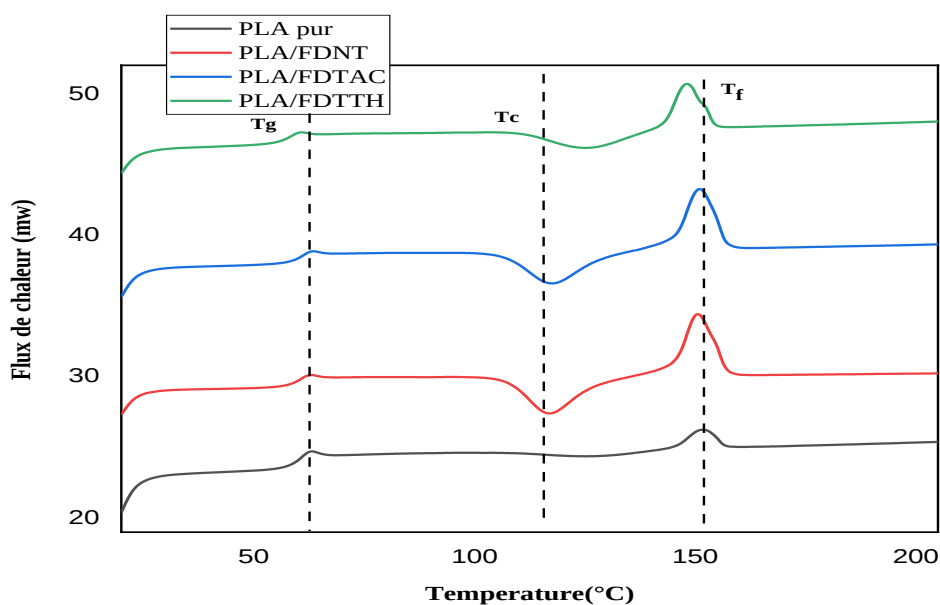


Figure V.12 Analyse calorimétrique différentielle à balayage du PLA pur et de ses composites.

Les propriétés thermiques du PLA pur et de ses composites (PLA/FDNT, PLA/FDTAC et FDTTH) ont été caractérisées par calorimétrie à balayage différentiel (DSC), comme le montrent la figure V.12 et le tableau 5. Polyacide lactique pur a subi trois transitions claires.

La transition vitreuse s'est produite à 62,60°C, suivie d'une cristallisation à froid à 115.36°C et enfin d'une fusion à 151,60°C. En effet, la température de transition vitreuse (T_g) du PLA marque le passage d'un état dur et vitreux à un état mou et caoutchouteux [159].

La Température T_c indique la température à laquelle le PLA cristallise lors du refroidissement et est influencée par la vitesse de refroidissement et la présence d'agents nucléant [160].

Enfin, T_m est la température à laquelle les régions cristallines du PLA fondent, indiquant la stabilité thermique du polymère [161].

L'incorporation de fibres de Diss (*Ampélodesmos mauritanicus*), qu'elles soient non traitées ou traitées, dans le PLA élève légèrement la température de transition vitreuse (T_g) des composites. Cette élévation de la T_g peut être due à une réduction du volume libre au sein du matériau, ce qui entrave la mobilité des chaînes polymères et, par conséquent, augmentant la viscosité [162]. Plus précisément, la T_g du PLA renforcé par 5% de fibres traitées à l'acide citrique a atteint 63.32°C, une valeur supérieure à celle du PLA pur (61.88°C), du composite PLA/fibres non traitées (62.98°C) et du composite PLA/fibres traitées thermiquement (61.16°C).

Les études menées par Orue et al [163] ont montré que le traitement de surface des fibres de sisal augmente la température de transition vitreuse (T_g) des composites à base de PLA. Plus précisément, l'ajout de 30 % en poids de fibres traitées a fait passer la T_g de 60,3 °C à 62,4 °C. Une légère augmentation de l'intensité de la température de cristallisation (T_c) a été constatée pour les composites PLA/FDNT et PLA/FDTAC en comparaison avec le PLA pur. Cela peut s'expliquer par une adhésion entre la fibre et le PLA.

En outre, le déplacement de la T_c vers une température plus élevée dans le composite PLA/FDTTH (123.59°C) est associé à l'effet de nucléation plus important des fibres traitées qui influencent négativement la cristallisation du PLA [36].

Le taux de cristallisation (X_c) augmente pour les composites PLA/FDTAC par rapport aux composites PLA/FDNT ou aux composites PLA/FDTTH. Cette observation suggère une réduction du nombre de radicaux libres dans la fibre, favorisant ainsi une meilleure adhésion interfaciale entre la matrice et la fibre [164].

Tableau V.5 Résultats de l'analyse thermique du PLA pur, PLA/FDNT, PLA/FDTAC et PLA/FDTTH par DSC.

Échantillons	T _g (°C)	T _c (°C)	T _f (°C)	ΔH _c (J.g ⁻¹)	ΔH _m (J.g ⁻¹)	X _c (%)
PLA pur	61.88	115.36	151.60	2.57	13.20	11.35
PLA/FDNT	62.98	116.80	150.50	33.09	35.15	2.76
PLA/FDTAC	63.32	118.23	150.88	36.05	41.85	7.80
PLA/FDTTH	61.16	123.59	148.015	20.03	23.85	5.19

V.2.5 Propriétés mécaniques

V.2.5.1 Résistance au choc

Les fibres naturelles non traitées sont intrinsèquement hydrophiles, ce qui entraîne une mauvaise compatibilité avec la matrice hydrophobe du PLA, entraînant une faible liaison interfaciale. Le traitement chimique et thermique réduit l'hydrophilie des fibres en réagissant avec les groupes hydroxyle de surface, ce qui améliore la dispersion des fibres dans la matrice PLA, et donc les propriétés mécaniques du composite au fil du temps, telles que la résistance et la rigidité des composites.

Les résultats du test Izod, qui évalue la résistance au choc du PLA et de ses biocomposites (PLA/FDNT, PLA/FDTAC, PLA/FDTTH), sont illustrés par la figure V.13 et le tableau V.6. L'essai de choc Izod, une méthode standard pour évaluer la résistance au choc, révèle que l'incorporation de charges FDNT, FDTAC et FDTTH dans le PLA a modifié sa ténacité. Les valeurs obtenues pour les biocomposites PLA/FDNT (10,42 kJ/m), PLA/FDTAC (15,06 kJ/m) et PLA/FDTTH (13,27 kJ/m) sont inférieures à celle du PLA pur (24,15 kJ/m). La résistance au choc des biocomposites PLA renforcés avec des fibres de Diss traitées thermiquement et chimiquement s'est établie à 15,06 kJ/m (PLA/FDTAC) et 13,27 kJ/m (PLA/FDTTH). Pour déterminer l'impact précis de ce traitement, une comparaison avec l'utilisation de fibres brutes. L'observation d'une résistance au choc plus élevée avec le traitement à l'acide citrique par rapport au traitement thermique et aux fibres brutes suggère que ce dernier favorise une meilleure compatibilité et adhésion interfaciale au sein du composite, influençant ainsi la résistance au choc.

Par exemple les composites PHBV (Poly (3-hydroxybutyrate-co-3- hydroxyvalérate) /farine de bois (70/30 et 60/40) ont montré une résistance au choc inférieure à celle du PHBV pur, tombant respectivement à 30 kJ/m et 24,4 kJ/m contre 34 kJ/m.

Cette diminution est attribuable à une transition ductile-fragile induite par l'incorporation de la farine de bois [165,166]. On peut conclure que la résistance au choc est déterminée par une combinaison de propriétés physiques et géométriques de la fibre de bois (cristallinité, % de cellulose, allongement, géométrie et longueur) et de la matrice polymère [167].

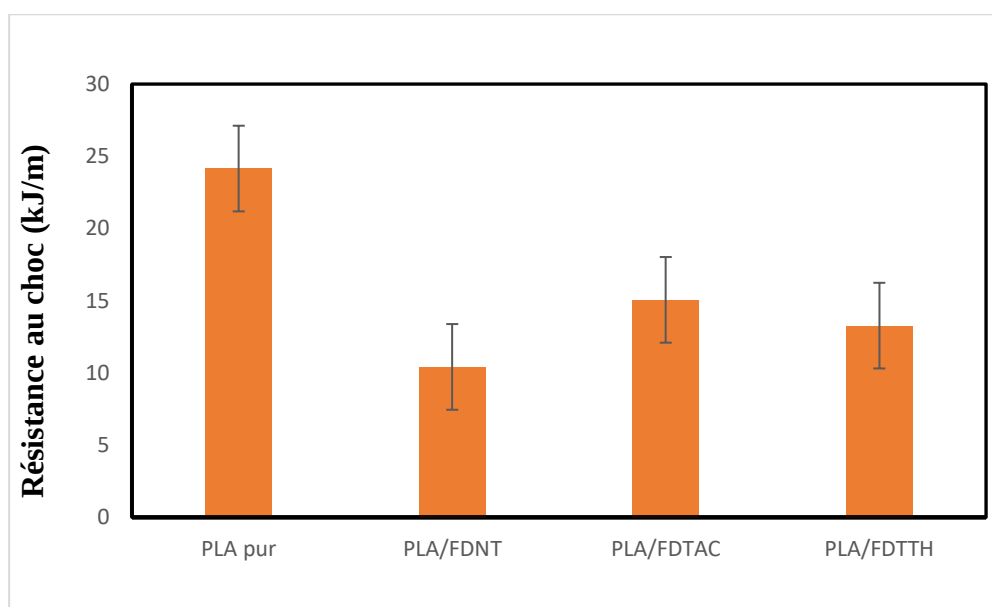


Figure V.13 Résistance au choc Izod des composites de PLA pur et de ceux chargés avec des fibres de Diss traitées chimiquement et thermiquement (FDNT, FDTAC, FDTTH).

Tableau V.6 Analyse de la résistance au choc Izod des composites PLA, PLA/FDNT, PLA/FDTAC et PLA/FDTTH.

Echantillons	Résistance aux chocs Izod (kJ/m)
PLA pur	24,15±4,49
PLA/FDNT	10,42±3,42
PLA/FDTAC	15,06±6,01
PLA/FDTTH	13,27±4,74

V.2.5.2 Propriétés de traction

La figure V.14 compare le module d'élasticité et la résistance à la traction du PLA pur et des composites PLA/Diss, avec et sans traitement. Chaque matériau a été testé avec cinq échantillons.

Les propriétés mécaniques du PLA pur et des composites renforcés avec de la fibre de Diss brute, traitée avec l'acide citrique et traitée thermiquement sont résumées dans le tableau V.7. Le composite PLA chargé avec des fibres de Diss brutes présentait un module de Young de 4,044 GPa et une résistance à la traction de 46,37 MPa. Le traitement des fibres avec 5 % d'acide citrique a entraîné une élévation du module d'élasticité à 4,680 GPa et de la résistance à la traction à 48,90 MPa. Inversement, le traitement thermique des fibres (4h à 100°C) a diminué ces propriétés, ramenant le module d'élasticité à 3,240 GPa et la résistance à la traction à 38,60 MPa.

Cette amélioration des propriétés mécaniques pour le traitement d'acide citrique peut s'expliquer par un meilleur contact entre les fibres et le PLA.

L'augmentation du module dans le composite PLA/FDTAC peut être expliquée par l'augmentation de la liaison hydrogène et l'indice de cristallinité élevé de la charge qui est une caractéristique typique des composites charge/polymère [168] par ailleurs la réduction du module d'élasticité du composite PLA/FDTTH pourrait s'expliquer par les défauts introduits au cours du traitement des fibres de Diss, et la faible résistance à la traction peut être causée par l'agréation de la fibre de Diss due aux forces de Van der Waal [169].

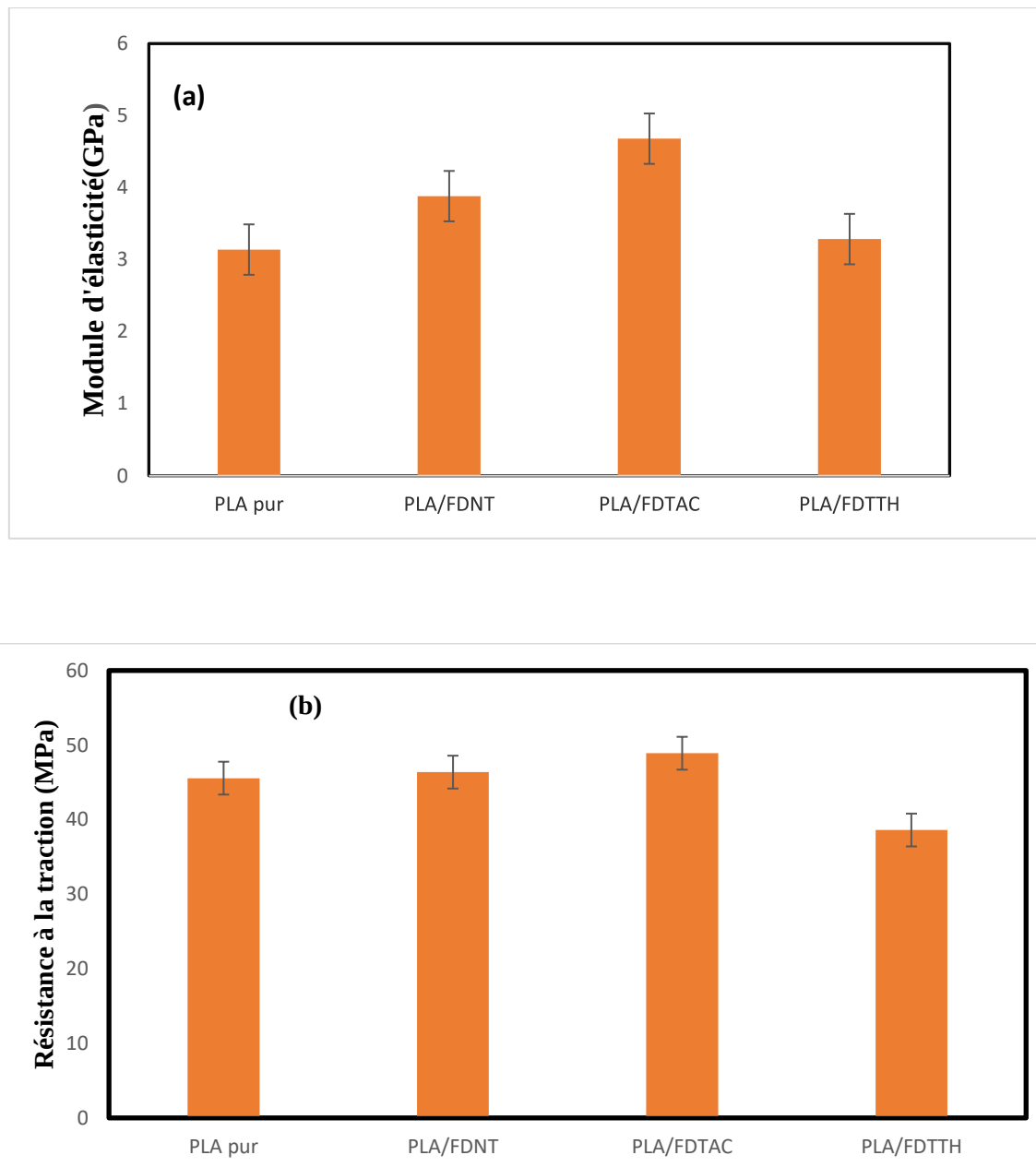


Figure V.14 Propriétés mécaniques du PLA pur et ses composites : (a) module d'élasticité (GPa) et (b) résistance à la traction (MPa).

Tableau V.7 Analyse des propriétés mécaniques du PLA pur et de ses composites avec les fibres de FDNT, FDTAC et FDTTH.

Échantillons	Module d'élasticité (GPa)	Allongement à la rupture (%)	Résistance à la traction (MPa)
PLA pur	3,140±0,41	3,10±0,70	45,56±3,65
PLA/FDNT	4,044±0,35	2,34±0,64	46,37±4,00
PLA/FDTAC	4,680±0,680	2,52±0,34	48,90±3,85
PLA/FDTTH	3,24±0,185	2,18±0,24	38,60 ±1,15

L'allongement à la rupture du PLA pur et de ses composites PLA/FDNT, PLA/FDTAC et PLA/FDTTH est représenté graphiquement à la figure V.15. Les valeurs de ces allongements figurent dans le tableau V.7.

Par rapport au PLA pur, l'allongement à la rupture diminue lorsque des fibres de Diss non traitées sont incorporées dans la matrice de PLA.

Le PLA renforcé par des fibres de Diss ayant subi un traitement chimique à l'acide citrique à 5% affiche un allongement à la rupture de 2.52%, surpassant ainsi les valeurs trouvées pour les fibres de Diss modifiées thermiquement (2.18%) et celles n'ayant reçu aucun traitement (2.34%). Selon Pei et al [170], l'élongation à la rupture est affectée par les facteurs suivants par la fraction volumique du renfort ajouté, la dispersion du renfort dans la matrice et l'interaction entre le renfort et la matrice.

La fibre de Diss traitée avec l'acide citrique présentait une interaction et une dispersion remarquable au sein de la matrice PLA, dues à une faible tendance à l'agglomération. Cette amélioration de l'allongement à la rupture peut également être attribuée à une meilleure liaison interfaciale, résultant d'une adhésion fibre-matrice accrue.

Dans le cas des fibres de Diss traitées thermiquement, la réduction de l'allongement à la rupture peut s'expliquer par l'effet rigidifiant de la charge. En restreignant le mouvement des segments de la charge, elle limite le mouvement de la chaîne segmentaire du PLA pendant l'essai de traction [168].

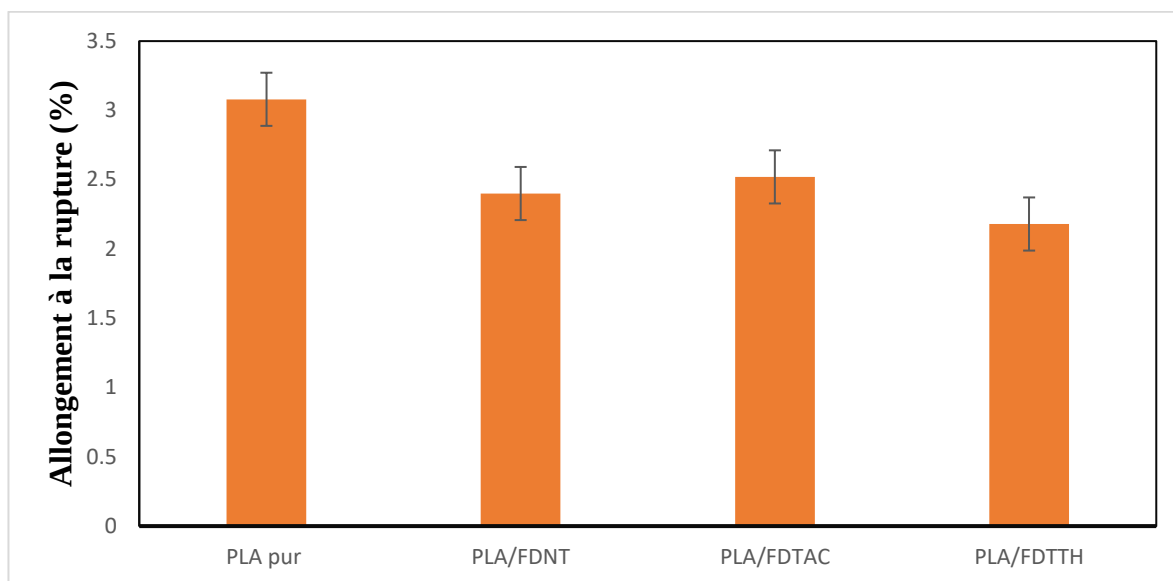


Figure V.15 Allongement à la rupture de poly (acide lactique) et de ses composites.

V.2.6 Propriétés viscoélastiques

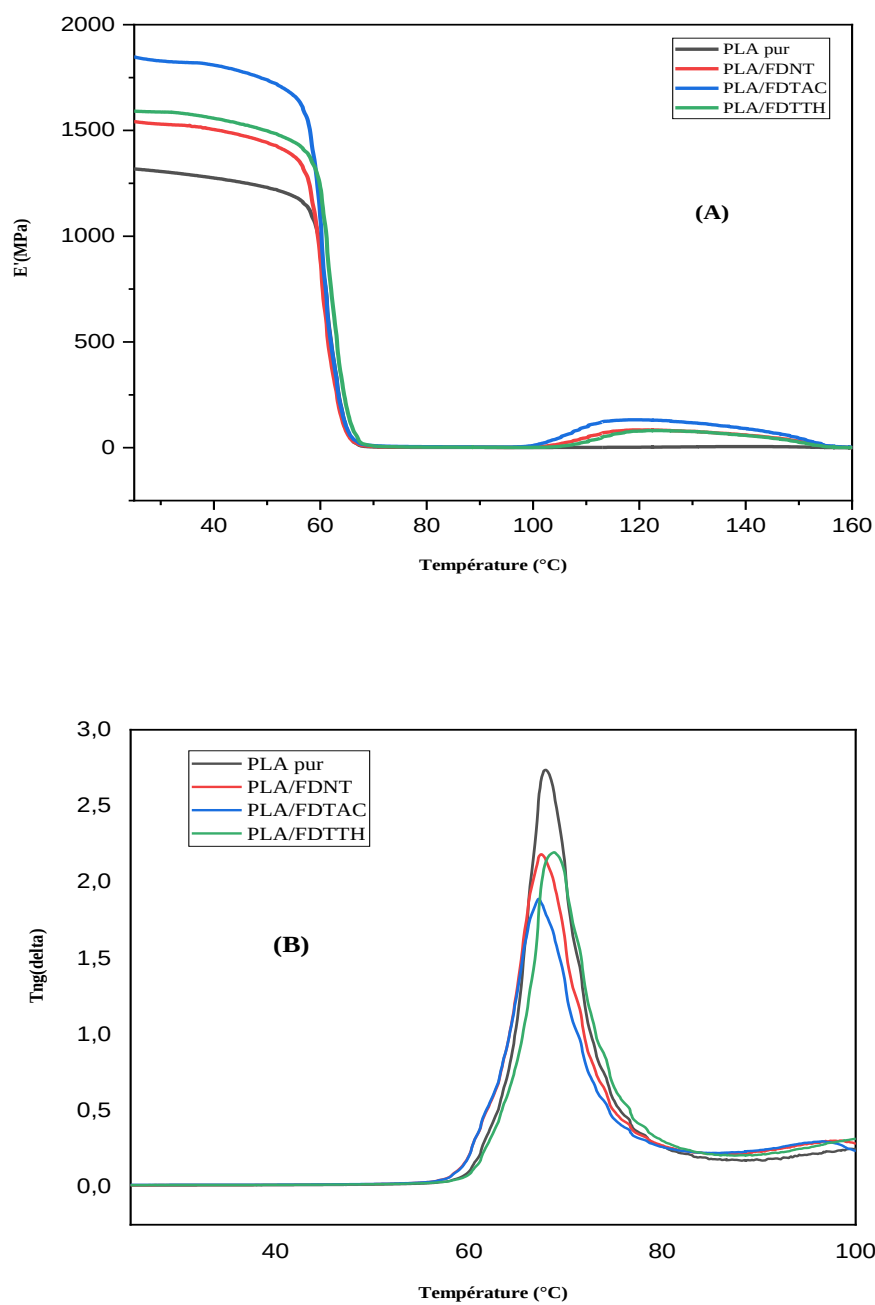


Figure V. 16 Variation du module de stockage (A) et de la tangente delta ($\tan \delta$) (B) en fonction de la température lors de l'analyse DMA du PLA pur, des composites PLA/FDNT PLA/FDTAC et PLA/FDTTH.

Le module de stockage est une partie réelle du module complexe qui est défini comme l'énergie maximale stockée par les composites fibreux à base de polymères pendant un cycle d'oscillation. Il présente une approximation du comportement de rigidité dépendant de la température et de la capacité de charge du matériau composite [171].

Les courbes (A) et (B) dans la figure V.16 illustrent respectivement les variations du module de stockage (E') et du facteur d'amortissement ($\tan \delta$) en fonction de la température, pour le PLA pur, PLA/FDNT, PLA/FDTAC et le PLA/FDTTH.

Dans la région vitreuse, le PLA présente un module de stockage d'environ 1318 MPa. La chute du module de stockage observée autour de 67.63°C est attribuée à la transition vitreuse et correspond également à un pic dans les variations de $\tan \delta$ (Figure V.16 (B)) [172].

Concernant les composites PLA/FDNT, PLA/FDTAC et PLA/FDTTH, l'intégration de fibres de Diss brutes et traitées a résulté en une augmentation de leur module de stockage, atteignant respectivement 1536, 1849 et 1597.

Une meilleure propriété élastique des matériaux est associée à un module de stockage plus élevé [173]. Dans cette étude, les composites non traités, ainsi que ceux traités avec 5% d'acide citrique et ceux traités thermiquement, ont tous démontré des augmentations de leur module de stockage par rapport au PLA pur. Ces augmentations étaient respectivement de 17%, 40% et 21%, soulignant l'impact des traitements sur la rigidité des matériaux.

Concernant du composite PLA/FDTAC, l'augmentation du module de stockage pourrait résulter de la formation d'une interface plus rigide [173]. Ceci est interprété par le fait qu'après le traitement à l'acide citrique, la rugosité de la surface de fibre de Diss est fortement augmentée due à l'élimination des composés de couverture, tels que l'hémicellulose et la lignine, et de l'effet de décapage de la solution de l'acide citrique. Il en résulte l'exposition d'un plus grand nombre de fibrilles de cellulose et l'augmentation de la quantité de fibres de cellulose.

La figure V.16 (B) présente la valeur $\tan \delta$ pour le PLA pur et les composites non traités, traités avec l'acide citrique et traités thermiquement avec une teneur en fibres de 20 % en volume, mesurée dans la plage de température de 30 °C à 100 °C. Le pic $\tan \delta$ a diminué en magnitude pour les composites traités avec l'acide citrique comparé au PLA pur et aux composites non traités et traités thermiquement.

Ceci est le résultat par la présence d'une interface fibre-matrice forte dans le composite, ce qui réduit le comportement viscoélastique de la dissipation d'énergie dans le composite [173].

Tableau V.8 Résultats viscoélastiques du PLA pur et ses composites PLA/FDNT, PLA/FDTAC et PLA/FDTTH.

Échantillons	T _g (°C)	Tan δ Peak	Module de stockage
PLA pur	67.63	2.69	1318
PLA/FDNT	67.18	2.17	1536
PLA/FDTAC	67.44	1.82	1849
PLA/FDTTH	68.70	2.15	1597

Conclusion Générale

Conclusion Générale

Conclusion Générale

Ce travail de recherche se focalise sur la réparation et la caractérisation de biocomposites composés d'une combinaison d'un polymère biodégradable et d'une fibre végétale (*Ampélodesmos mauritanicus*), soumise à un traitement chimique et thermique. L'objectif est de renforcer la compatibilité entre la fibre et le polymère, d'accroître le nombre de groupes fonctionnels présents en surface de la fibre, et de garantir une adhésion interfaciale optimale à l'intérieur du biocomposite entre la matrice et la fibre. Elle a aussi pour objectif d'optimiser la répartition des fibres dans la matrice tout en minimisant leur nature hydrophile.

L'analyse structurale et morphologique de la fibre de Diss avant et après traitement chimique à l'acide citrique (5%) a mis en évidence l'élimination d'une part significative des composants extracellulosiques, l'exposition de la cellulose et la réduction de l'hydrophilie de la fibre. Par ailleurs, l'application de ce traitement a eu un impact positif sur la stabilisation thermique du biocomposite obtenu, comme le montrent les courbes ATG. Ce traitement a également favorisé le degré de fibrillation de la fibre et son affinité pour la matrice hydrophobe.

La caractérisation des biocomposites à matrice PLA renforcée par des fibres de Diss non traitées et traitées (à l'acide citrique) a mis en évidence que l'amélioration de l'adhésion interfaciale, résultant du traitement avec l'acide citrique, conduit à une cristallinité de la phase PLA supérieure à celle observée dans les composites renforcés par des fibres non traitées, et potentiellement différente de celle des composites renforcés par des fibres traitées thermiquement. Ainsi, il a été observé que certaines propriétés mécaniques telles que l'allongement à la rupture, la résistance à la traction et le module de Young ont été améliorées et leurs valeurs ont atteint respectivement 2,52 %, 48,90 MPa et 4,68 GPa.

Le composite de fibres *Ampélodesmos mauritanicus* renforcé de PLA offre une série d'avantages, notamment des propriétés de traction améliorées, une biodégradabilité, une durabilité et des avantages économiques qui rendent ces composites polyvalents et mieux adaptés à une multitude d'applications dans le cadre de l'émergence de nouveaux matériaux biodégradables.

Conclusion Générale

En conclusion, l'innovation du procédé à base d'acide citrique appliqué aux fibres d'*ampélodesmos mauritanicus* repose sur sa capacité à renforcer les caractéristiques adhésives entre les fibres naturelles et une matrice PLA grâce à un processus écologique.

Ce procédé entraîne une amélioration des caractéristiques mécaniques et thermiques du composite, ce qui donne lieu à un matériau renforcé, résistant et viable, potentiellement exploitable dans différentes industries.

Perspectives

À l'issue de cette étude, et dans le but d'approfondir le thème abordé dans cette thèse, nous proposons les perspectives suivantes :

- L'utilisation de techniques de caractérisation avancées, notamment l'étude de l'activité antibactérienne et des propriétés de barrière, serait essentielle pour évaluer le potentiel futur de ces matériaux dans des domaines clés comme l'emballage alimentaire et les applications biomédicales.
- Effectuer des tests de dégradation pour évaluer la durabilité des fibres Diss dans la matrice polymère et l'impact des traitements chimiques sur leur dégradation.

Références Bibliographiques

- [1]: H. M. Wang, T. Q. Yuan, G. Y. Song, and R. C. Sun, “Advanced and versatile lignin-derived biodegradable composite film materials toward a sustainable world,” *Green Chemistry*, vol. 23, no. 11, pp. 4110–4125, Jun. 07, 2021, doi: 10.1039/d1gc00790d.
- [2]: Z. Kovačević, S. Flinčec Grgac, and S. Bischof, “Progress in biodegradable flame-retardant nano-biocomposites,” *Polymers*, vol. 13, no. 5, pp. 741, Mar. 2021, doi: 10.3390/polym13050741.
- [3]: M. J. Mochane, S. I. Magagula, J. S. Sefadi, and T. C. Mokhena, “A review on green composites based on natural fiber-reinforced polybutylene succinate (PBS),” *Polymers*, vol. 13, no. 8, pp. 1200, Apr. 2021, doi: 10.3390/polym13081200.
- [4]: T. Jiang, Q. Duan, J. Zhu, H. Liu, and L. Yu, “Starch-based biodegradable materials: Challenges and opportunities,” *Advanced Industrial and Engineering Polymer Research*, vol. 3, no. 1, pp. 8–18, Jan. 2020, doi: 10.1016/j.aiepr.2019.11.003.
- [5]: M. A. Woodruff and D. W. Hutmacher, “The return of a forgotten polymer - Polycaprolactone in the 21st century”, *Progress in Polymer Science*, vol. 35, no. 10, pp. 1217–1256, Oct. 2010, doi: 10.1016/j.progpolymsci.2010.04.002.
- [6]: M. Asrofi *et al.*, “Influence of ultrasonication time on the various properties of alkaline-treated mango seed waste filler reinforced PVA biocomposite”, *Reviews on Advanced Materials Science*, vol. 62, no. 1, pp.1-13, Jan. 2023, doi: 10.1515/rams-2023-0137.
- [7]: O. D. Samuel *et al.*, “Comparison of the Techno-Economic and Environmental Assessment of Hydrodynamic Cavitation and Mechanical Stirring Reactors for the Production of Sustainable Hevea brasiliensis Ethyl Ester”, *Sustainability*, vol. 15, no. 23, pp. 16287, Dec. 2023, doi: 10.3390/su152316287.
- [8]: O. Faruk, A. K. Bledzki, H. P. Fink, and M. Sain, “Progress report on natural fiber reinforced composites”, *Macromolecular Materials and Engineering*, vol. 299, no. 1, pp. 9–26, Jan. 2014, doi: 10.1002/mame.201300008.
- [9]: G. Koronis, A. Silva, and M. Fontul, “Green composites: A review of adequate materials for automotive applications”, *Composites Part B: Engineering*, vol. 44, pp. 120–127, Jun. 2013. doi: 10.1016/j.compositesb.2013.02.011.
- [10]: F. P. La Mantia and M. Morreale, “Green composites: A brief review”, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 42, no. 6, pp. 579–588, Jun. 2011. doi: 10.1016/j.compositesa.2011.01.017.
- [11]: P. K. Bajpai, I. Singh, and J. Madaan, “Tribological behavior of natural fiber reinforced PLA composites,” *Wear*, vol. 297, no. 1–2, pp. 829–840, 2013, doi: 10.1016/j.wear.2012.10.019.

Références Bibliographiques

- [12]: D. Ray and S. Sain, “Plant fibre reinforcements”, in *Biocomposites for High-Performance Applications: Current Barriers and Future Needs Towards Industrial Development*, Amsterdam, Netherlands: Elsevier, 2017, pp. 1–21. doi: 10.1016/B978-0-08-100793-8.00001-6.
- [13]: M. Nagalakshmaiah *et al.*, “Biocomposites: Present trends and challenges for the future”, in *Green Composites for Automotive Applications*, Elsevier, 2018, pp. 197–215. doi: 10.1016/B978-0-08-102177-4.00009-4.
- [14] : A, Larous. « Effets de la fibre de Rétama avant et après modification sur les propriétés du mélange PLA/PC (80/20) compatibilisé par la réaction de transestérification catalysée par l'acétylacétonate de samarium ». Thèse de doctorat. Université de Ferhat Abbas Sétif 1, Algérie, 2023, pp. 28-34.
- [15]: N. Reddy and Y. Yang, “Non-traditional lightweight polypropylene composites reinforced with milkweed floss”, *Polymer International*, vol. 59, no. 7, pp. 884–890, Jul. 2010, doi: 10.1002/pi.2798.
- [16]: L. F. Drummy, B. L. Farmer, and R. R. Naik, “Correlation of the β -sheet crystal size in silk fibers with the protein amino acid sequence,” *Soft Matter*, vol. 3, no. 7, pp. 877–882, 2007, doi: 10.1039/b701220a.
- [17]: O. Faruk, A. K. Bledzki, H. P. Fink, and M. Sain, “Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000-2010”, *Progress in Polymer Science*, vol. 37, no. 11, pp. 1552–1596, Nov. 2012. doi: 10.1016/j.progpolymsci.2012.04.003.
- [18]: T. Yu, J. Ren, S. Li, H. Yuan, and Y. Li, “Effect of fiber surface-treatments on the properties of poly (lactic acid)/ramie composites”, *Compos Part A Applied Science and Manufacturing*, vol. 41, no. 4, pp. 499–505, Apr. 2010, doi: 10.1016/j.compositesa.2009.12.006.
- [19]: T. Yu, Y. Li, and J. Ren, “Preparation and properties of short natural fiber reinforced poly (lactic acid) composites”, *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, vol. 19, no. suppl. 3, pp. s651–s655, Dec. 2009, doi: 10.1016/S1003-6326(10)60126-4.
- [20]: A. K. Bledzki, O. Faruk, and A. A. Mamun, “Influence of compounding processes and fibre length on the mechanical properties of abaca fibre-polypropylene composites”, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 41, no. 3, pp. 372–379, Mar. 2010, doi: 10.1016/j.compositesa.2009.12.004.
- [21]: A. K. Bledzki, A. A. Mamun, and O. Faruk, “Abaca fibre reinforced PP composites and comparison with jute and flax fibre PP composites”, *Express Polymer Letters*, vol. 1, no. 11, pp. 755–762, Nov. 2007, doi: 10.3144/expresspolymlett.2007.104.

Références Bibliographiques

- [22]: P. K. Bajpai, I. Singh, and J. Madaan, “Development and characterization of PLA-based green composites: A review,” Jan. 2014. doi: 10.1177/0892705712439571.
- [23]: T. Yu, N. Jiang, and Y. Li, “Study on short ramie fiber/poly (lactic acid) composites compatibilized by maleic anhydride”, *Compos Part A Appl Sci Manuf*, vol. 64, pp. 139–146, 2014, doi: 10.1016/j.compositesa.2014.05.008.
- [24]: A. K. Mohanty, M. A. Khan, and G. Hinrichsen, “Surface modification of jute and it’s influence on performance of biodegradable jute-fabric/Biopol composites”, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 31, no. 2, pp. 143–150, Feb. 2000, doi: 10.1016/S1359-835X(99)00068-5.
- [25]: M. Asrofi et al., “Enhancing mechanical and thermal properties of PVA-abaca fiber biocomposites via ultrasonic vibration bath treatment”, *Results in Engineering*, vol. 25, Art. no. 103935, Mar. 2025, doi: 10.1016/j.rineng.2025.103935.
- [26]: M. A. Ruz-Cruz, et al., “Thermal and mechanical properties of PLA-based multiscale cellulosic biocomposites”, *Journal of Materials Research and Technology*, vol. 18, pp. 485–495, May 2022, doi: 10.1016/j.jmrt.2022.02.072.
- [27]: N. M. Pujar and Y. Mani, “Development and Characterization of Pigeon Pea Stalk Fiber Reinforced Polylactic Acid Sustainable Composites”, *Journal of Natural Fibers*, vol. 19, no. 17, pp. 15637–15652, 2022, doi: 10.1080/15440478.2022.2131684.
- [28]: P. Dhar, D. Tarafder, A. Kumar, and V. Katiyar, “Thermally recyclable polylactic acid/cellulose nanocrystal films through reactive extrusion process”, *Polymer*, vol. 87, pp. 268–282, Mar. 2016, doi: 10.1016/j.polymer.2016.02.004.
- [29]: S. Qian, H. Mao, K. Sheng, J. Lu, Y. Luo, and C. Hou, “Effect of low-concentration alkali solution pretreatment on the properties of bamboo particles reinforced poly (lactic acid) composites”, *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 130, no. 3, pp. 1667–1674, Nov. 2013, doi: 10.1002/app.39328.
- [30]: M. K. M. Haafiz, A. Hassan, Z. Zakaria, I. M. Inuwa, M. S. Islam, and M. Jawaid, “Properties of polylactic acid composites reinforced with oil palm biomass microcrystalline cellulose”, *Carbohydrate Polymers*, vol. 98, no. 1, pp. 139–145, 2013, doi: 10.1016/j.carbpol.2013.05.069.
- [31]: M. R. Sanjay, et al, “Characterization and properties of natural fiber polymer composites: A comprehensive review”, *Journal of Cleaner Production*, vol. 172, pp. 566–581, Jan. 20, 2018, doi: 10.1016/j.jclepro.2017.10.101.
- [32]: H. Kargarzadeh et al., “Recent developments on nanocellulose reinforced polymer nanocomposites: A review”, *Polymer*, vol. 132, pp. 368–393, Dec. 2017, doi: 10.1016/j.polymer.2017.09.043.

Références Bibliographiques

- [33]: M. Jawaid, S. Mohd, S. Othman, and Y. Alothman Editors, “Green Energy and Technology Green Biocomposites Manufacturing and Properties”. Springer, 2017 [Online]. Available: <http://www.springer.com/series/8059>.
- [34]: H. Dahy, “Natural fibre-reinforced polymer composites (NFRP) fabricated from lignocellulosic fibres for future sustainable architectural applications, case studies: Segmented-shell construction, acoustic panels, and furniture”, *Sensors*, vol. 19, no. 3, pp. 738, Feb. 2019, doi: 10.3390/s19030738.
- [35]: E. Castro-Aguirre, F. Iñiguez-Franco, H. Samsudin, X. Fang, and R. Auras, “Poly (lactic acid)—Mass production, processing, industrial applications, and end of life”, *Advanced Drug Delivery Reviews*, vol. 107, pp. 333–366, Dec. 15, 2016, doi: 10.1016/j.addr.2016.03.010.
- [36]: W. Jia, R. H. Gong, and P. J. Hogg, “Poly (lactic acid) fibre reinforced biodegradable composites”, *Composites Part B: Engineering*, vol. 62, pp. 104–112, 2014, doi: 10.1016/j.compositesb.2014.02.024.
- [37]: M. M. Reddy, S. Vivekanandhan, M. Misra, S. K. Bhatia, and A. K. Mohanty, “Biobased plastics and bionanocomposites: Current status and future opportunities”, *Progress in Polymer Science*, vol. 38, no. 10–11, pp. 1653–1689, Oct.–Nov. 2013, doi: 10.1016/j.progpolymsci.2013.05.006.
- [38]: R. Siakeng, et al., “Natural fiber reinforced polylactic acid composites: A review”, *A review*, *Polymer Composites*, vol. 40, no. 2, pp. 446–463, Feb. 2019, doi: 10.1002/pc.24747.
- [39]: F. Walha. « Elaboration de mélanges à base de Bio- polymères : Etude des corrélations entre Structure, Propriétés et Transformation ». Thèse de doctorat. L’Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, France. 2017, pp. 24.
- [40]: T. Gurunathan, S. Mohanty, and S. K. Nayak, “A review of the recent developments in biocomposites based on natural fibres and their application perspectives”, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 77, pp. 1–25, Jun. 29, 2015, doi: 10.1016/j.compositesa.2015.06.007.
- [41]: T. Do. « Matériaux composites à fibres naturelles / polymère biodégradables ou non ». Thèse de doctorat. Université de Grenoble, France. 2011, pp 11-28.
- [42]: S. Chanprateep, “Current trends in biodegradable polyhydroxyalkanoates”, *Journal of Bioscience and Bioengineering*, vol. 110, no. 6, pp. 621–632, Dec. 2010, doi: 10.1016/j.jbiosc.2010.07.014.

Références Bibliographiques

- [43]: A. Molla, A. Al Moyeen, R. Mashfiqua Mahmud, and Md. J. Haque, “Plant fiber-reinforced green composite: A review on surface modification, properties, fabrications and applications”, *Materials Open Research*, vol. 3, pp. 6, Mar. 2024, doi: 10.12688/materialsopenres.17651.1.
- [44]: M, Maiza. « Formulation et caractérisation des matériaux biodégradables à base de l’acide polylactique-Plastifiants ». Thèse de doctorat. Université Ferhat Abbas Sétif-1, Algérie. 2016, pp 34-55.
- [45]: R, Karek. « Valorisation des matériaux composites d’origine naturelle ». Thèse de doctorat, Université Kasdi Merbah Ouargla, Algérie 2022, pp 3-37.
- [46]: M. Guzmán-Baeza, et al., “Analysis of a Biopolymer Implementation in the Automotive Instrument Panel”, *Revista de Gestão Social Ambiental*, vol. 18, no. 10, pp. e06499, Sep. 2024, doi: 10.24857/rgsa.v18n10-100.
- [47]: E.S. Stevens. “Green Plastics: An Introduction to the New Science of Biodegradable Plastics“, *Science of biodegradable plastic*. 2002.
- [48]: G. L. Siparsky, K. J. Voorhees, J. R. Dorgan, and K. Schilling, “Water transport in polylactic acid (PLA), PLA/polycaprolactone copolymers, and PLA/polyethylene glycol blends”, *Journal Environmental Polymer Degradation*, vol. 5, no. 3, pp. 125–136, Jul. 1997, doi: 10.1007/bf02763656.
- [49]: O. Avinc and A. Khoddami, “Overview of poly (lactic acid) (PLA) fibre”, *Fibre Chemistry*, vol. 41, no. 6, pp. 391–401, 2009, doi: 10.1007/s10692-010-9213-z.
- [50]: A. K. Trivedi, M. K. Gupta, and H. Singh, “PLA based biocomposites for sustainable products: A review”, *Artificial Intelligence in Engineering and Product Design Review*, vol. 7, no. 1, pp. 1–15, Oct. 2023, doi: 10.1016/j.aiepr.2023.02.002.
- [51]: B. Gupta, N. Revagade, and J. Hilborn, “Poly (lactic acid) fiber: An overview”, *Progress in Polymer Science*, vol. 32, no. 4, pp. 455–482, Apr. 2007, doi: 10.1016/j.progpolymsci.2007.01.005.
- [52]: G. Perego, D. Glan, C. Cella, and N. S. P. A. Bastloll, “Effect of Molecular Weight and Crystallinity on Poly (lactic acid) Mechanical Properties”, in *Introduction to Poly (lactic acid)*, John Wiley & Sons, Inc., 1996.
- [53]: K. Madhavan Nampoothiri, N. R. Nair, and R. P. John, “An overview of the recent developments in polylactide (PLA) research”, *Bioresource Technology*, vol. 101, no. 22, pp. 8493-8501, Nov. 2010. doi: 10.1016/j.biortech.2010.05.092.

Références Bibliographiques

- [54]: H. Tsuji, "Chapter 8 Poly (lactic acid)", in *Poly(lactic acid): Synthesis, Structures, Properties, Processing and Applications*, Wiley, 2010, doi: 10.1002/9781118676646.ch8.
- [55]: D. Garlotta, "A Literature Review of Poly (Lactic Acid)", *Journal of Environmental Polymer Degradation*, vol. 9, no. 2, pp. 99–112, 2001, doi: 10.1023/A:1020200822435.
- [56]: I. Mayouf. « Modification du poly (acide lactique) par des extenseurs de chaînes et/ou par la fibre de poly (éthylène téréphtalate) : Caractérisations structurale, morphologique et thermomécanique ». Thèse de doctorat. Université Ferhat Abbas Sétif-1, Algérie. 2021, pp 7-20.
- [57]: A. J. R. Lasprilla, G. A. R. Martinez, B. H. Lunelli, A. L. Jardini, and R. M. Filho, "Poly-lactic acid synthesis for application in biomedical devices - A review", *Biotechnology Advances*, vol. 30, pp. 321-328, Jan. 2012. doi: 10.1016/j.biotechadv.2011.06.019.
- [58]: F. Zuluaga, "Synthesis of Poly (Lactic Acid) and Production of Scaffolds by Electrospinning," *MOJ Proteomics & Bioinformatics*, vol. 4, no. 6, Dec. 2016, doi: 10.15406/mojpb.2016.04.00140.
- [59]: M. Ajioka and K Suzuki, "The Basic Properties of Poly (lactic Acid) Produced by the Direct Condensation Polymerization of Lactic Acid", *Journal of Environmental Polymer Degradation*, vol. 3, pp. 225–234, Oct. 1995, doi: 10.1007/BF02068677.
- [60]: T. V. Shah and D. V. Vasava, "A glimpse of biodegradable polymers and their biomedical applications", *e-Polymers*, vol. 19, pp. 385-410, 2019, doi: 10.1515/epoly-2019-0041.
- [61]: R. M. Rasal, A. V. Janorkar, and D. E. Hirt, "Poly (lactic acid) modifications", *Progress in Polymer Science*, vol. 35, no. 3, pp. 338–356, Mar. 2010, doi: 10.1016/j.progpolymsci.2009.12.003.
- [62]: J, Jean Mario. « Développement de polymères et composites alvéolaires biosourcés à base de poly (acide lactique) ». Thèse de doctorat, Université de Lille-1, France, 2011, pp 96-115
- [63]: J. Jiménez, M. J. Mena, J. Prendiz, L. Salas and J. Vega-Baudrit, "Polylactic Acid (PLA) as a Bioplastic and its Possible Applications in the Food Industry," *Food Sci. Nutr.*, vol. 5, no. 2, Art. no. 100048, Oct. 2019, doi: 10.24966/FSN-1076/100048.
- [64]: L. T. Sin, A. R. Rahmat, W. A. W. A. Rahman, "Polylactic acid PLA biopolymer technologand application". Ed. Elsevier, Oxford, 2012.
- [65]: L. T. Lim, R. Auras, and M. Rubino, "Processing technologies for poly (lactic acid)", *Progress in Polymer Science*, vol. 33, no. 8, pp. 820–852, Aug. 2008. doi: 10.1016/j.progpolymsci.2008.05.004.

Références Bibliographiques

- [66]: K. Hamad, M. Kaseem, H. W. Yang, F. Deri, and Y. G. Ko, “Properties and medical applications of polylactic acid: A review”, *Express Polymer Letters*, vol. 9, no. 5, pp. 435–455, 2015, doi: 10.3144/expresspolymlett.2015.42.
- [67]: A. Komesu, J. Allan Rocha de Oliveira, L. Helena da Silva Martins, M. Regina Wolf Maciel, and R. Maciel Filho “, Lactic acid production to purification: A review”, *BioResources*, vol. 12, no. 2, pp. 4364-4383, 2017, doi: 10.15376/biores.12.2.4364-4383.
- [68]: J. Ahmed and S. K. Varshney, “Polylactides-chemistry, properties and green packaging technology: A review”, *Int J Food Properties*, vol. 14, no. 1, pp. 37–58, Jan. 2011, doi: 10.1080/10942910903125284.
- [69]: J. Lunt, “Large-scale production, properties and commercial applications of polylactic acid polymers”, *Polymer Degradation and Stability*, 59(1–3), pp.145–152,1998, 10.1016/S0141-3910(97)00148-I.
- [70]: P. De and A. J. Kovacs, “Molecular Conformation of Poly (S-lactic Acid)”, *Biopolymers*, vol. 6, no. 3, pp. 299-306, 1968, doi: 10.1002/bip.1968.360060305.
- [71]: B. Kalb and A. J. Pennings, “General crystallization behaviour of poly (L-lactic acid)”, *Polymer*, vol. 21, no. 6, pp. 607-612, 1980, doi: 10.1016/0032-3861(80)90315-8.
- [72]: B. Eling, S. Gogolewski, and A. J. Pennings, “Biodegradable materials of poly (L-lactic acid): 1. Melt-spun and solution-spun fibres”, *Polymer*, vol.23, no. 11, pp. 1587-1593, Oct. 1982, doi:10.1016/0032-3861(82)90176-8
- [73]: L. Cartier, T. Okihara, Y. Ikada, H. Tsuji, J. Puiggali, and B. Lotz, “Epitaxial crystallization and crystalline polymorphism of polylactides.” [Online]. Available: www.elsevier.nl/locate/polymer.
- [74]: J. De and R. N. Baxi, “Experimental Investigation and Analysis of Mercerized and Citric Acid Surface Treated Bamboo Fiber Reinforced Composite”, in *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, vol.225, no. 012154, Institute of Physics Publishing, Sep. 2017. doi: 10.1088/1757-899X/225/1/012154.
- [75]: D, E, Aizi. « Extraction, caractérisation morphologique, physico-chimique et mécanique des fibres caulinaires de Retama monosperme L.Boiss ». Thèse de doctorat. Université des Sciences et de la Technologie d’Oran Mohamed Boudiaf, Algérie. 2017, pp 8-20.
- [76]: L. Osorio, E. Trujillo, A. W. Van Vuure, and I. Verpoest, “Morphological aspects and mechanical properties of single bamboo fibers and flexural characterization of bamboo/ epoxy composites”, *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 30, no. 5, pp. 396–408, Mar. 2011, doi: 10.1177/0731684410397683.

Références Bibliographiques

- [77]: M, E,Bourahli. « Caractérisation d'un composite verre/époxy ». Thèse de doctorat. Université Ferhat Abbas Sétif -1, Algérie. 2014, pp 8-23.
- [78]: S. K. Shaha, S. Dyuti, Q. Ahsan, and M. Hasan, "Effect of alkali treatment on surface morphology and properties of jute yarns", *Advanced Materials Research*, vol. 264–265, pp. 1922–1927, 2011, doi: 10.4028/www.scientific.net/AMR.264-265.1922.
- [79]: C. Baley, A. Le Duigou, A. Bourmaud, and P. Davies, "Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites", *Compos Part A Appl Sci Manuf*, vol. 43, no. 8, pp. 1226–1233, Aug. 2012, doi: 10.1016/j.compositesa.2012.03.005.
- [80]: A, Sellami. « Elaboration des composites cimentaires à base de fibres végétales locales (le Diss) : Caractérisations, Durabilité et Application au cas de la maçonnerie ». Thèse de doctorat. Université Badji Mokhtar-Annaba, Algérie.2015, pp 36-50.
- [81] : S, Ikhlef. « Contribution à l'amélioration de la compatibilité interfaciale farine de Genêt d'Espagne/matrice thermoplastique ». Thèse de doctorat. Université Ferhat Abbas Sétif-1, Algérie. 2019, pp 6-20.
- [82]: D. Sedan, C. Pagnoux, A. Smith, and T. Chotard, "Mechanical properties of hemp fibre reinforced cement: Influence of the fibre/matrix interaction" , *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 28,no. 1, pp. 183-192, 2008, doi: 10.1016/j.jeurceramsoc.2007.05.019.
- [83]: K,Elfehri Borchani. « Développement d'un composite à base d'un polymère biodégradable et de fibres extraites de la plante d'Alfa ». Thèse de doctorat. École Nationale d'Ingénieurs de Sfax, Tunisie. 2016, pp. 9-26.
- [84]: P, Edwige. « Matériaux lignocellulosiques' Elaboration et caractérisation' ». Thèse de doctorat. École nationale supérieure des mines de Paris, France. 2013, pp 44-52.
- [85]: L. Augier, G. Sperone, C. Vaca-Garcia, and M. E. Borredon, "Influence of the wood fibre filler on the internal recycling of poly (vinyl chloride)-based composites", *Polymer Degradation Stability*, vol. 92, no. 7, pp. 1169–1176, Jul. 2007, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2007.04.010.
- [86]: J. Guillou, D. N. Lavadiya, T. Munro, T. Fronk, and H. Ban, "From lignocellulose to biocomposite: Multi-level modelling and experimental investigation of the thermal properties of kenaf fiber reinforced composites based on constituent materials", *Appl Therm Eng*, vol. 128, pp. 1372–1381, 2018, doi: 10.1016/j.applthermaleng.2017.09.095.

Références Bibliographiques

- [87]: L. Vidil. « Etude de matériaux naturels 2D – Potentialités d'utilisation comme renfort de matériaux composites ». Thèse de doctorat. Université des Antilles, France. 2019, pp 27-49.
- [88]: A. Richel, "La lignine, une molécule d'intérêt issue du bioraffinage." [Online]. Available: <https://www.researchgate.net/publication/284513994>.
- [89]: A. Lara-Márquez, M. G. Zavala-Páramo, E. López-Romero, and H. C. Camacho, "Biotechnological potential of pectinolytic complexes of fungi", *Biotechnology Letters*, vol. 33, no. 5, pp. 859–868, May 2011. doi: 10.1007/s10529-011-0520-0.
- [90]: D, Mohamed. « Evaluation du potentiel textile des fibres d'Alfa (*Stipa Tenacissima L.*) : Caractérisation physico-chimique de la fibre au fil ». Thèse de doctorat. Université de Haute Alsace, France. 2012, pp 5-36.
- [91]: A. K. Bledzki and J. Gassan, "Composites reinforced with cellulose based fibres", *Progress in Polymer Science*, vol. 24, no. 2, pp. 221–274, May .1999, doi: 10.1016/S0079-6700(98)00018-5.
- [92]: E. S. Rodriguez, P. M. Stefani, and A. Vazquez, "Effects of fibers' alkali treatment on the resin transfer molding processing and mechanical properties of Jute-Vinylester composites," *Journal Composites Materials*, vol. 41, no. 14, pp. 1729–1741, Jul. 2007, doi: 10.1177/0021998306069889.
- [93]: T. Sonar, S. Patil, V. Deshmukh, and R. Acharya, "Natural Fiber Reinforced Polymer Composite Material-A Review." [Online]. Available: www.iosrjournals.org.
- [94]: L. Y. Mwaikambo and M. P. Ansell, "Chemical modification of hemp, sisal, jute, and kapok fibers by alkalization," *Journal Applied Polymer Science*, vol. 84, no. 12, pp. 2222–2234, Jun. 2002, doi: 10.1002/app.10460.
- [95]: M. M. Kabir, H. Wang, K. T. Lau, and F. Cardona, "Chemical treatments on plant-based natural fibre reinforced polymer composites: An overview", *Composites Part B: Engineering*, vol. 43, no. 7, pp. 2883–2892, Oct. 2012, doi: 10.1016/j.compositesb.2012.04.053.
- [96]: M. J. John and R. D. Anandjiwala, "Recent developments in chemical modification and characterization of natural fiber-reinforced composites", *Polymer Composites*, vol. 29, no. 2, pp. 187-207, Feb. 2008. doi: 10.1002/pc.20461.
- [97]: M. E. H. Bourahli and H. Osmani, "Chemical and Mechanical Properties of Diss (*Ampelodesmos mauritanicus*) Fibers," *Journal of Natural Fibers*, vol. 10, no. 3, pp. 219–232, Jul. 2013, doi: 10.1080/15440478.2012.761115.

Références Bibliographiques

- [98]: Z. Touati, P. L. de Hoyos-Martinez, N. Belhaneche-Bensemra, and F. Charrier- El Bouhtoury, “Influence of Different Diss Fiber Treatments over the Properties of Poly Propylene/Recycled and Regenerated Low-Density Polyethylene Based Biocomposites”, *Journal Polymer Environ*, vol. 29, no. 1, pp. 291-303, Sep. 2020, doi: 10.1007/s10924-020-01877-7.
- [99]: A. Gheris and A. Hamrouni, “Treatment of an expansive soil using vegetable (DISS) fibre”, *Innovative Infrastructure Solutions*, vol. 5, no. 1, Apr. 2020, doi: 10.1007/s41062-020-0281-5.
- [100]: X. Li, L. G. Tabil, and S. Panigrahi, “Chemical treatments of natural fiber for use in natural fiber-reinforced composites: A review”, *Journal of Polymers and the Environment*, vol. 15, no. 1, pp. 25-33, Jan. 2007. doi: 10.1007/s10924-006-0042-3.
- [101]: S. Kalia, B. S. Kaith, and I. Kaur, “Pretreatments of natural fibers and their application as reinforcing material in polymer composites-a review”, *Polym Eng Sci*, vol. 49, no. 7, pp. 1253–1272, 2009, doi: 10.1002/pen.21328.
- [102]: R. Agrawal, N. Saxena, K. Sharma, S. Thomas, and M. Sreekala, “Activation energy and crystallization kinetics of untreated and treated oil palm fibre reinforced phenol formaldehyde composites,” 2000. [Online]. Available: www.elsevier.com/locate/msea
- [103]: K. L. Pickering, A. Abdalla, C. Ji, A. G. McDonald, and R. A. Franich, “The effect of silane coupling agents on radiata pine fibre for use in thermoplastic matrix composites,” *Compos Part A Appl Sci Manuf*, vol. 34, no. 10, pp. 915–926, Oct. 2003, doi: 10.1016/S1359-835X(03)00234-3.
- [104]: A. P. Haseena, G. Unnikrishnan, and G. Kalaprasad, “Dielectric properties of short sisal/coir hybrid fibre reinforced natural rubber composites,” 2007. [Online]. Available: www.brill.nl/ci.
- [105]: C. A. S. Hill, H. P. S. A. Khalil, and M. D. Hale, “A study of the potential of acetylation to improve the properties of plant fibres”, *Industrial Crops and Products*, vol. 8, no. 1, pp. 53–63, 1998, doi: 10.1016/S0926-6690(97)10012-7.
- [106]: A. Bessadok, S. Roudesli, S. Marais, N. Follain, and L. Lebrun, “Alfa fibres for unsaturated polyester composites reinforcement: Effects of chemical treatments on mechanical and permeation properties”, *Compos Part A Appl Sci Manuf*, vol. 40, no. 2, pp. 184–195, Feb. 2009, doi: 10.1016/j.compositesa.2008.10.018.

Références Bibliographiques

- [107]: Z. Touati, H. Boulahia, N. Belhaneche-Bensemra, and V. Massardier, “Modification of Diss Fibers for Biocomposites Based on Recycled Low-Density Polyethylene and Polypropylene Blends”, *Waste Biomass Valorization*, vol. 10, no. 8, pp. 2365–2378, Aug. 2019, doi: 10.1007/s12649-018-0225-x.
- [108]: A.-Z. A. Abou-Zeid and M. A. Ashy, “Production of Citric Acid: A Review”, *Agricultural Wastes*, vol. 9, no. 1, pp. 51-76, 1984.
- [109]: G. T. Tsao, N. J. Cao, J. Du, and C. S. Gong, “Production of Multifunctional Organic Acids from Renewable Resources”, *Adv. Biochem. Eng. Biotechnol*, vol. 65, pp. 243-280, 1999.
- [110]: F. L. Pua, S. M. Sapuan, E. S. Zainudin, and M. Z. Adib, “Effect of fibre surface modification on properties of Kenaf/Poly (vinyl alcohol) composite film”, *J Biobased Mater Bioenergy*, vol. 7, no. 1, pp. 95–101, Feb. 2013, doi: 10.1166/jbmb.2013.1270.
- [111]: B. Koohestani, A. K. Darban, P. Mokhtari, E. Yilmaz, and E. Darezereshki, “Comparison of different natural fiber treatments: a literature review”, *International Journal of Environmental Science and Technology*, vol. 16, no. 1, pp. 629-642, Jan.2019, doi: 10.1007/s13762-018-1890-9.
- [112]: L, Y, El Hadji-Babacar. « Nouveaux matériaux composites thermoformables à base de fibres de cellulose ». Thèse de doctorat. Institut national polytechnique de Grenoble, France. 2008, pp 218.
- [113]: H. Chtourou, B. Riedl, and B. Vaclav Kokta, “Surface characterizations of modified polyethylene pulp and wood pulps fibers using XPS and inverse gas chromatography”, *Journal Adhes Sci Technol*, vol. 9, no. 5, pp. 551–574, 1995, doi: 10.1163/156856195X00455.
- [114]: M. N. Belgacem, P. Bataille, and S. Sapieha, “Effect of Corona Modification on the Mechanical Properties of Polypropylene/ Cellulose Composites”, *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 53, no. 4, pp. 379–385, 1994, doi: 10.1002/app.1994.070530403.
- [115]: Q. I. Wang, S. Kaliacutine, and A. Ait-Kadi’, “Catalytic Crafting: A New Technique for Polymer-Fiber Composites. 111. Polyethylene-Plasma-treated Kevlar 1 M Fibers Composites: Analysis of the Fiber Surface”, *Journal. Appl. Polym. Sci.*, vol. 48, pp. 121–136, 1999.
- [116]: L. Andreozzi *et al.*, “Free radical generation upon plasma treatment of cotton fibers and their initiation efficiency in surface-graft polymerization,” *Journal Colloid Interface Sci*, vol. 289, no. 2, pp. 455–465, Sep. 2005, doi: 10.1016/j.jcis.2005.03.058.

Références Bibliographiques

- [117]: K. Kato, V. N. Vasilets, M. N. Fursa, M. Meguro, Y. Ikada, and K. Nakamae, “Surface oxidation of Cellulose fibers by Vacuum Ultraviolet Irradiation “J. Polym. Sci. Part A: Polym. Chem., vol. 37, no. 3, pp. 357-361, 1999, doi: 10.1002/(SICI)1099-0518(199902)37:3<357:AID-POLA5>3.0.CO;2-7.
- [118]: S. Benhadi. «Greffage de cyclodextrines modifiées par traitement Corona sur matériaux cellulosiques ». Thèse de doctorat. Université Henri Poincaré Nancy, France. 2010, pp 155.
- [119] :P. A. Sreekumar, F. Albert, G. Unnikrishnan, K. Joseph, and S. Thomas, “Mechanical and water sorption studies of ecofriendly banana fiber-reinforced polyester composites fabricated by RTM”, Journal Appl Polym Sci, vol. 109, no. 3, pp. 1547–1555, Aug. 2008, doi: 10.1002/app.28155.
- [120]: W. Aehle., “Enzymes in Industry: Products and Applications”, John Wiley and Sons., 2006.
- [121]: R. Millati, S. Syamsiah, C. Niklasson, M. Nur Cahyanto, K. Lundquist, and M. J. Taherzadeh, “Biological pretreatment: Review”, Bioresources, vol. 6, no. 4, pp. 5224-5259, 2011, doi: 10.15376/biores.6.4.5224-5259.
- [122]: F. Sarasini et al., “Thermal and mechanical behavior of thermoplastic composites reinforced with fibers enzymatically extracted from *Ampelodesmos mauritanicus*,” *Polym Eng Sci*, vol. 59, no. 12, pp. 2418–2428, Dec. 2019, doi: 10.1002/pen.25093.
- [123]: M. E. H. Bourahli and H. Osmani, “Chemical and Mechanical Properties of Diss (*Ampelodesmos mauritanicus*) Fibers”, *Journal of Natural Fibers*, vol. 10, no. 3, pp. 219–232, Jul. 2013, doi: 10.1080/15440478.2012.761115.
- [124]: R. D. Tol E Edo Filho, K. Ghavami, G. L. England, and K. Scrivener, “Development of vegetable fibre-mortar composites of improved durability.” [Online]. Available : www.elsevier.com/locate/cemconcomp.
- [125] : C, Magniont. « Contribution à la formation et à la caractérisation d’un Eco-matériau de construction à base d’agroressources ». Thèse de doctorat. Université de Toulouse III-Paul Sabatier, France, 2010, pp 60-89.
- [126]: M. G. De Castro Ho et al., “Plant Fiber Reinforced Polymeric Composites for Engineering Applications: A Review,” *Revista de Gestao Social e Ambiental*, vol. 18, no. 2, 2024, doi: 10.24857/rgsa.v18n2-086.

Références Bibliographiques

- [127]: S. Choudhary *et al.*, “Advantages and applications of sisal fiber reinforced hybrid polymer composites in automobiles: A literature review,” *Mater Today: Proc*, Amsterdam, 2023, doi: 10.1016/j.matpr.2023.02.072.
- [128]: R. Jeyapragash, V. Srinivasan, and S. Sathiyamurthy, “Mechanical properties of natural fiber/particulate reinforced epoxy composites - A review of the literature”, *Materials Today: Proceedings*, vol. 22, pp. 1223–1227, 2020, doi: 10.1016/j.matpr.2019.12.146.
- [129]: A. Azevedo *et al.*, “Rheology, hydration, and microstructure of portland cement pastes produced with ground açai fibers,” *Applied Sciences (Switzerland)*, vol. 11, no. 7, Apr. 2021, doi: 10.3390/app11073036.
- [130]: B. Hu *et al.*, “Enhanced flexural performance of epoxy polymer concrete with short natural fibers”, *Sci China Technol Sci*, vol. 61, no. 8, pp. 1107–1113, Aug. 2018, doi: 10.1007/s11431-
- [132]: L. Segal, J. J. Creely, A. E. Martin, and C. M. Conrad, “opportunity for new developments in all phases of textile manufacturing.’ Literature Cited an Empirical Method for Estimating the Degree of Crystallinity of Native Cellulose Using the X-Ray Diffractometer”, *Textile Research Journal*, vol. 29, no. 10, pp. 786–794, Oct. 1959, doi: 10.1177/004051755902901003.
- [133]: F. Wang, S. Zhou, L. Li, and X. Zhang, “Changes in the morphological–mechanical properties and thermal stability of bamboo fibers during the processing of alkaline treatment,” *Polym Compos*, vol. 39, pp. E1421–E1428, Jun. 2018, doi: 10.1002/pc.24332.
- [134]: M. Chenah, and M. Amrani, “Structural, Anatomy Characteristics and Thermal Properties of *Ampelodesmos Mauritanicus* (Diss)”, *Acta Scientific Agriculture* vol. 4, no. 2, pp. 1–6, 2020, doi: 10.31080/asag.2020.04.0779.
- [135]: C. May and A. Moussa, “Chemical and Structural Analysis of Lignocellulosic Biomass of *Ampelodesmos Mauritanicus* (Diss) And *Stipa Tenacissima*”, *Wood Research*, vol. 63, no. 4, pp. 699-712, 2018.
- [136]: V, Lisa. « Etude de matériaux naturels 2D – Potentialités d’utilisation comme renfort de matériaux composites ». Thèse de doctorat. Université des Antilles, France. 2019, pp 166-152.
- [137]: J, Mańkowski, “The Effect of Some Agronomic Factors on the Amount and Quality of Homomorphic Fiber”, *Fibers and Textiles in Eastern Europe* vol. 11, no. 4, pp. 5, 2003. doi: 10.1016/j.carbpol.2019.01.048.
- [138]: A. Bourmaud, J. Beaugrand, D. U. Shah, V. Placet, and C. Baley, “Towards the design of high-performance plant fibre composites”, *Progress in Materials Science*, vol. 97, pp. 347–408, Aug. 2018, doi: 10.1016/j.pmatsci.2018.05.005.

Références Bibliographiques

- [139]: Luzi, F., D. Puglia, F. Sarasini, J. Tirillò, G. Maffei, A. Zuerro, R. Lavecchia, J. M. Kenny, and L. Torre. “Valorization and Extraction of Cellulose Nanocrystals from North African Grass: *Ampelodesmos Mauritanicus* (Diss)”, *Carbohydrate Polymers*, vol. 209, pp. 328–337, Apr. 2019,
- [140]: M. Nouri, I. Griballah, M. Tahlaiti, F. Grondin, and J. Beaugrand, “Plant Extraction and Physicochemical Characterizations of Untreated and Pretreated Diss Fibers (*Ampelodesmos mauritanicus*)”, *Journal of Natural Fibers*, vol. 18, no. 8, pp. 1083–1093, 2021, doi: 10.1080/15440478.2019.1687062.
- [141]: A. Céline, O. Gonçalves, F. Jacquemin, and S. Fréour, “Utilisation de la spectrométrie infrarouge pour une quantification rapide du taux d’humidité dans des fibres végétales,” *Revue des composites et des matériaux avancés = Journal of Composite and Advanced Materials*, vol. 24, no. 1, 2014, doi: 10.3166/rcma.24.81-95i.
- [142]: Luzi, F., D. Puglia, F. Sarasini, J. Tirillò, G. Maffei, A. Zuerro, R. Lavecchia, J. M. Kenny, and L. Torre. “Valorization and Extraction of Cellulose Nanocrystals from North African Grass: *Ampelodesmos Mauritanicus* (Diss)”, *Carbohydrate Polymers*, vol. 209, pp. 328–337, Apr. 2019, Sreekumar *et al.*, “Thermal behavior of chemically treated and untreated sisal fiber reinforced composites fabricated by resin transfer molding”, *Compos Interfaces*, vol. 15, no. 6, pp. 629–650, 2008, doi: 10.1163/156855408785971317.
- [143]: F. Sarasini, J. Tirillò, G. Maffei, A. Zuerro, R. Lavecchia, and M. Abdelhak, “Enzyme-assisted extraction of fibres from *Ampelodesmos mauritanicus* and mechanical characterization of their composites”, in *AIP Conference Proceedings*, vol. 1981, American Institute of Physics, Jul. 2018, Art. no. 020166, doi: 10.1063/1.5045882.
- [144]: C. Covino, A. Sorrentino, P. Di Pierro, G. Roscigno, A. P. Vece, and P. Masi, “Lignocellulosic fibres from enzyme-treated tomato plants: Characterisation and application in paperboard manufacturing”, *Int J Biol Macromol*, vol. 161, pp. 787–796, Oct. 2020, doi: 10.1016/j.ijbiomac.2020.06.077.
- [145]: X. Zhang, F. Wang, and L. M. Keer, “Influence of surface modification on the microstructure and thermo-mechanical properties of bamboo fibers”, *Materials*, vol. 8, no.10, pp. 6597–6608, 2015, doi: 10.3390/ma8105327.
- [146]: H. Zergane *et al.*, “*Ampelodesmos mauritanicus* a new sustainable source for nanocellulose substrates”, *Ind Crops Prod*, vol. 144, Feb. 2020, doi: 10.1016/j.indcrop.2019.112044.
- [147]: N. H. A. Rahman, B. W. Chieng, N. A. Ibrahim, and N. A. Rahman, “Extraction and characterization of cellulose nanocrystals from tea leaf waste fibers”, *Polymers (Basel)*, vol.9, no. 11, Nov. 2017, doi: 10.3390/polym9110588.

Références Bibliographiques

- [148]: A. S. Luyt and S. Gasmi, “Influence of blending and blend morphology on the thermal properties and crystallization behaviour of PLA and PCL in PLA/PCL blends”, *J Mater Sci*, vol. 51, no. 9, pp. 4670–4681, May 2016, doi: 10.1007/s10853-016-9784-z.
- [149]: X. Liu *et al.*, “Effects of alkali treatment on the properties of WF/PLA composites,” *Journal Adhes Sci Technol*, vol. 31, no. 10, pp. 1151–1161, May 2017, doi: 10.1080/01694243.2016.1248703.
- [150]: P. I. Siafaka, P. Barmbalexis, and D. N. Bikiaris, “Novel electrospun nanofibrous matrices prepared from poly (lactic acid)/poly (butylene adipate) blends for controlled release formulations of an anti-rheumatoid agent,” *European Journal of Pharmaceutical Sci*, vol. 88, pp. 12–25, 2016, doi: 10.1016/j.ejps.2016.03.021.
- [151]: S. P. Makri et al., “Effect of Micro- and Nano-Lignin on the Thermal, Mechanical, and Antioxidant Properties of Biobased PLA–Lignin Composite Films”, *Polymers (Basel)*, vol. 14, no. 23, Dec. 2022, doi: 10.3390/polym14235274.
- [152]: S. Dadbin and F. Naimian, “Gamma radiation induced property modification of poly (lactic acid)/hydroxyapatite bio-nanocomposites”, *Polym Int*, vol. 63, no. 6, pp. 1063–1069, 2014, doi: 10.1002/pi.4611.
- [153]: C. Gozdecki, K. Moraczewski, and M. Kociszewski, “Thermal and Mechanical Properties of Biocomposites Based on Polylactide and Tall Wheatgrass”, *Materials*, vol. 16, no. 21, Nov. 2023, doi: 10.3390/ma16216923.
- [154]: A. A. Yussuf, I. Massoumi, and A. Hassan, “Comparison of polylactic Acid/Kenaf and polylactic Acid/Rise husk composites: The influence of the natural fibers on the mechanical, thermal and biodegradability properties”, *Journal Polym Environ*, vol. 18, no. 3, pp. 422–429, Sep. 2010, doi: 10.1007/s10924-010-0185-0.
- [155]: A. Kalam, M. Berhan, and H. Ismail, “Physical and mechanical characterizations of oil palm fruit bunch fiber filled polypropylene composites”, *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 29, no. 21, pp. 3173–3184, Nov. 2010, doi: 10.1177/0731684410367963.
- [156]: S. Tablit et al., “Effect of chemical treatments of arundo donax L. fibre on mechanical and thermal properties of the PLA/PP blend composite filament for FDM 3D printing”, *Journal Mech Behav Biomed Mater*, vol. 152, Apr. 2024, doi: 10.1016/j.jmbbm.2024.106438.
- [157]: M. J. Kamran *et al.*, “Characterization and Comparative Study on Chemically Treated Luffa Fiber as Reinforcement for Polylactic Acid Bio-composites”, *Bioresources*, vol. 17, no. 2, pp. 2576–2597, 2022, doi: 10.15376/biores.17.2.2576-2597.

Références Bibliographiques

- [158]: B. Asaithambi, G. S. Ganesan, and S. Ananda Kumar, “Banana/sisal fibers reinforced (lactic acid) hybrid biocomposites; influence of chemical modification of BSF towards thermal properties”, *Polym Compos*, vol. 38, no. 6, pp. 1053–1062, Jun. 2017, doi: 10.1002/pc.23668.
- [159]: S. Farah, D. G. Anderson, and R. Langer, “Physical and mechanical properties of PLA, and their functions in widespread applications — A comprehensive review”, *Advanced Drug Delivery Reviews*, vol. 107, pp. 367–392, Dec. 2016, doi: 10.1016/j.addr.2016.06.012.
- [160]: M. L. Di Lorenzo, “Calorimetric analysis of the multiple melting behavior of poly (L-lactic acid)”, *Journal Appl Polym Sci*, vol. 100, no. 4, pp. 3145–3151, May 2006, doi: 10.1002/app.23136.
- [161]: A. P. Gupta and V. Kumar, “New emerging trends in synthetic biodegradable polymers - Polylactide: A critique”, *European Polymer Journal*, vol. 43, no. 10, pp. 4053–4074, Oct. 2007, doi: 10.1016/j.eurpolymj.2007.06.045.
- [162]: J. Finnerty *et al.*, “Effect of Mechanical Recycling on the Mechanical Properties of PLA-Based Natural Fiber-Reinforced Composites”, *Journal of Composites Science*, vol. 7, no. 4, Apr. 2023, doi: 10.3390/jcs7040141.
- [163]: A. Orue, A. Eceiza, and A. Arbelaiz, “The effect of sisal fiber surface treatments, plasticizer addition and annealing process on the crystallization and the thermo-mechanical properties of poly (lactic acid) composites”, *Ind Crops Prod*, vol. 118, pp. 321–333, Aug. 2018, doi: 10.1016/j.indcrop.2018.03.068.
- [164]: W. Mu, X. Chen, S. Li, Y. Sun, Q. Wang, and J. Na, “Mechanical Performances Analysis and Prediction of Short Plant Fiber-Reinforced PLA Composites”, *Polymers (Basel)*, vol. 15, no. 15, Aug. 2023, doi: 10.3390/polym15153222.
- [165]: X. Wang, Y. Li, Y. Jiao, H. Zhou, and X. Wang, “Microcellular Foaming Behaviors of Poly (Lactic Acid)/Low-Density Polyethylene Blends Induced by Compatibilization Effect” *Journal Polym Environ*, vol. 27, no. 8, pp. 1721–1734, Aug. 2019, doi: 10.1007/s10924-019-01466-3.
- [166]: A. Ashori and A. Nourbakhsh, “Bio-based composites from waste agricultural residues,” *Waste Management*, vol. 30, no. 4, pp. 680–684, Apr. 2010, doi: 10.1016/j.wasman.2009.08.003.
- [167]: W. D. Callister, *Materials science and engineering: an Introduction: Instructor Evaluation copy*. Wiley, 2018.

Références Bibliographiques

- [168]: Q. Cheng, S. Wang, and T. G. Rials, “Poly (vinyl alcohol) nanocomposites reinforced with cellulose fibrils isolated by high intensity ultrasonication”, *Compos Part A Appl Sci Manuf*, vol. 40, no. 2, pp. 218–224, Feb. 2009, doi: 10.1016/j.compositesa.2008.11.009.
- [169]: G. H. Yew, A. M. Mohd Yusof, Z. A. Mohd Ishak, and U. S. Ishiaku, “Water absorption and enzymatic degradation of poly (lactic acid)/rice starch composites”, *Polym Degrad Stab*, vol. 90, no. 3, pp. 488–500, Dec. 2005, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2005.04.006.
- [170]: A. Pei, Q. Zhou, and L. A. Berglund, “Functionalized cellulose nanocrystals as biobased nucleation agents in poly(l-lactide) (PLLA) - Crystallization and mechanical property effects”, *Compos Sci Technol*, vol. 70, no. 5, pp. 815–821, May 2010, doi: 10.1016/j.compscitech.2010.01.018.
- [171]: M. K. Gupta and R. Singh, “Flexural and Dynamic Mechanical Analysis (DMA) of Polylactic Acid (PLA) Coated Sisal Fibre Reinforced Polyester Composite”, in *Materials Today: Proceedings*, 2018, pp. 6109–6114. doi: 10.1016/j.matpr.2017.12.216. (article DMA PLA).
- [172]: N. Chelghoum, M. Guessoum, M. Foïs, and N. Haddaoui, “Contribution of Catalytic Transesterification Reactions to the Compatibilization of Poly (lactic acid)/Polycarbonate Blends: Thermal, Morphological and Viscoelastic Characterization”, *Journal Polym Environ*, vol. 26, no. 1, pp. 342–354, Jan. 2018, doi: 10.1007/s10924-017-0950-4.
- [173]: N. Lu and S. Oza, “Thermal stability and thermo-mechanical properties of hemp-high density polyethylene composites: Effect of two different chemical modifications”, *Compos B Eng*, vol. 44, no. 1, pp. 484–490, Jan. 2013, doi: 10.1016/j.compositesb.2012.03.024.

Résumé

Cette recherche a étudié l'effet d'une modification thermique et chimique à l'acide citrique sur les propriétés adhésives d'un composite à base de poly (acide lactique) et de fibres d'Ampélodesmos mauritanicus. Des biocomposites contenant 20 % en poids de fibres ont été préparés à l'aide d'un palatographe. La caractérisation des fibres traitées et non traitées a été réalisée par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF), analyse thermogravimétrique (ATG) et microscopie électronique à balayage (MEB). Le traitement à l'acide citrique a réduit la teneur en hémicellulose, lignine et cire, comme l'indique la disparition ou l'atténuation des bandes d'absorption à 1650 et 1731 cm^{-1} en IRTF. Ce traitement a également amélioré la stabilité thermique et la rugosité des fibres de Diss (l'Ampélodesmos mauritanicus) par rapport aux fibres non traitées et traitées thermiquement. Des essais mécaniques sur les composites renforcés par ces fibres ont révélé qu'un traitement à 5 % d'acide citrique augmentait le module d'élasticité (4,680 GPa), la résistance à la traction (48,90 MPa) et l'allongement à la rupture (2,52 %) par rapport aux composites non traités et traités thermiquement. Ces observations ont été corroborées par microscopie électronique à balayage.

Mots clés: Biocomposites, fibre Ampélodesmos mauritanicus, Acide citrique, Poly (acide lactique).

Abstract

This research studied the effect of thermal and chemical modification with citric acid on the adhesive properties of a composite based on poly (lactic acid) and Ampelodesma mauritanica fibers. Biocomposites containing 20% by weight of fibers were prepared using a palatograph. Treated and untreated fibers were characterized by Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR), thermogravimetric analysis (TGA) and scanning electron microscopy (SEM). Citric acid treatment reduced hemicellulose, lignin and wax content, as indicated by the disappearance or attenuation of absorption bands at 1650 and 1731 cm^{-1} in FTIR. This treatment also improved the thermal stability and roughness of Diss (Ampelodesma mauritanica) fibers compared with untreated and thermal treated fibers. Mechanical tests on composites reinforced with these fibers revealed that treatment with 5% citric acid increased modulus of elasticity (4.680 GPa), tensile strength (48.90 MPa) and elongation at break (2.52%) compared with untreated and thermal treated composites. These observations were corroborated by scanning electron microscopy.

Keywords: Biocomposites, Ampelodesma mauritanica fiber, Citric acid, Polylactic acid.

ملخص

درس هذا البحث تأثير التعديل الحراري والكيميائي بحمض الستريك على الخصائص اللاصقة لمركب يعتمد على البولي (حمض الاكتيك) وألياف الأمبلوديسما موريتانكا. تم تحضير مركبات حيوية تحتوي على 20% من الألياف عن طريق الخلط الذائب باستخدام بلاستوجراف، تم تشخيص الألياف المعالجة وغير المعالجة عن طريق التحليل الطيفي بالأشعة تحت الحمراء الفورية، التحليل الحراري الوزني و مجهر المسح الإلكتروني. المعالجة بحمض الستريك قللت من نسبة الهيميسليلوز واللجنين والشمع، كما يتضح من اختفاء أوتوهين نطاقات الامتصاص عند 1650 و 1731 cm^{-1} في تحليل الأشعة تحت الحمراء الفورية. كما أدت هذه المعالجة أيضا إلى تحسين الثبات الحراري وخشونة ألياف الديس مقارنة بالألياف غير المعالجة والمعالجة حراريا. كما كشفت الخصائص الميكانيكية على المركبات المعززة بهذه الألياف بينت أن المعالجة بحمض الستريك بنسبة 5% زادت من معامل المرونة (4.680) جيغا باسكال (قوة الشد 48.90) ميغا باسكال واستطالة الكسر (2.52%) مقارنة بالمركبات غير المعالجة والمعالجة حراريا. تم تأكيد هذه الملاحظات عن طريق الفحص المجهر الإلكتروني.

الكلمات المفتاحية: المركبات الحيوية، ألياف أمبلوديسما موريتانكا، حمض الستريك، حمض البولي لاكتيك.