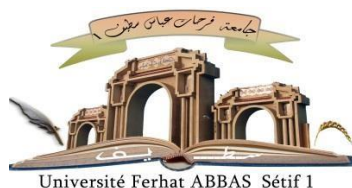


الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

République Algérienne Démocratique et Populaire

Ministère de L'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique



UNIVERSITÉ SETIF-1 FERHAT ABBAS

FACULTÉ DE TECHNOLOGIE

THESE

Présentée au Département de Génie Des Procédés

Pour l'obtention du diplôme de

DOCTORAT EN LMD

Filière : Génie des Procédés

Option : Génie des Polymères

Par

ABDERRAOUF Seddik

THÈME

Impact du traitement chimique sur les caractéristiques structurales, mécaniques, thermiques et morphologiques des composites polymères semi-cristallins à base de courge éponge (Luffa Aegyptiaca).

Soutenue le 04/02 /2026 devant le Jury :

DOUFNOUNE Rachida	Professeur	Univ. Ferhat Abbas Sétif 1	Présidente
ROUABAH Farid	Professeur	Univ. Ferhat Abbas Sétif 1	Directeur de thèse
GUESSOUM Melia	Professeur	Univ. Ferhat Abbas Sétif 1	Examineur
A. BENYAHIA	Professeur	Université Mohamed Boudiaf - M'sila	Examineur
A. MELLOUKI	M.C.A.	Université Mohamed Boudiaf - M'sila	Examineur

Remerciement

Je rends grâce, en premier lieu, à Dieu Tout-Puissant, Le Très Miséricordieux, pour Ses innombrables bienfaits, Sa protection et Sa guidance qui ont éclairé chacune des étapes de ce parcours doctoral. Sans Sa volonté et Son soutien, rien n'aurait été possible.

J'exprime ensuite ma profonde reconnaissance à mon cher directeur et encadrant, Pr. Farid Rouabah, pour sa confiance, son accompagnement constant, ses conseils avisés et la qualité de son encadrement scientifique. Je lui suis particulièrement reconnaissant pour sa patience, sa disponibilité et ses encouragements, qui ont fortement contribué à la réussite de ce travail.

Mes sincères remerciements vont également à Pr. Maalem Oum Kalthoum, dont l'appui, les orientations précieuses et l'implication ont joué un rôle déterminant dans l'aboutissement de ce travail. J'adresse aussi ma gratitude à Pr. Agdail Hakim pour ses conseils stimulants, sa bienveillance et son soutien académique et moral tout au long de ce parcours.

Je tiens également à remercier chaleureusement les membres du jury pour l'honneur qu'ils m'ont fait en évaluant ce travail. Ma gratitude va à Mme Doufnoune Rachida, Présidente du jury, ainsi qu'à Pr. Melia Guessoum, Pr. A. Benyahia et M. A. Mellouki, pour le temps qu'ils ont consacré à l'examen de ce mémoire et pour leurs remarques constructives qui ont enrichi la qualité de cette recherche.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude et mon amour à mes parents, pour leur soutien inconditionnel, leurs sacrifices silencieux, leurs prières et leur présence rassurante. Ils sont, et ont toujours été, les piliers de mes accomplissements. Que Dieu les préserve et les comble de Ses bénédictions.

J'adresse également mes remerciements chaleureux à mes frères et sœurs, pour leur affection, leur encouragement permanent et pour avoir cru en moi à chaque étape de ma vie.

Que Dieu vous bénisse et vous récompense tous.

Dédicaces

A l'âme qui été pour mon corps mieux qu'un cœur :

Mes parents.

A tous ceux qui me sont chers.

A toute ma grande famille.

A mes collègues des études.

Mes fidèles amies.

Mes très chers amis.

A Tous ...



Figure	Titre	Page
Figure I.1	Illustration de la transition morphologique ; de (a) morphologie sphérolitique à haut degré de cristallinité à (b) lamelles cristallines individuelles dispersées aléatoirement dans la phase amorphe à faible degré de cristallinité.	24
Figure I.2	(a) Une image optique de sphérulites isotropes tirée de Sidelman et al. (2010) [22] ainsi que (b) une représentation schématisée de la morphologie sphérolitique d'un polymère semi-cristallin.	25
Figure I.3	Processus de formation d'une sphérolite dans certains polymères semi-cristallins.	25
Figure I.4	Schéma illustratif de la (a) microstructure sphérolitique en condition isotrope et (b) microstructure cristallisée induite par la contrainte.[32]	27
Figure I.5	Processus de déformation élastique dans un polymère semi-cristallin dans des conditions de charge de traction.[38]	28
Figure II.1	Classification of composites.	44
Figure II.2	Structure de Luffa cylindrica	47
Figure II.3	structure en faisceau des fibres de luffa cylindrica	48
Figure II.4	L'alumine (oxyde d'aluminium, Al_2O_3), La phase α -alumine (corindon)	54
Figure III. 1	Spectres FTIR du luffa non traité et du luffa traité au NaOH.	79
Figure III. 2	Spectres FTIR de l'alumine et de l'alumine traitée à l'acide stéarique (SA).	80
Figure III. 3	Spectres FTIR des échantillons composites de charges de polypropylène synthétisées.	81
Figure III. 4	Images de microscopie électronique à balayage (MEB) de (a) Luffa non traité, (b) Luffa traité au NaOH, (c) Luffa traité au SA.	83
Figure III. 5	Images micrographiques de (a) PP/NT-Al -2%, (b) PP/T-NaOH-Luffa-2%, (c) PP/T-NaOH-SA-Luffa-2% et (d) PP/T-SA-[Al+Luffa] -2%.	84
Figure III.6	Diagrammes XRD de (a) Luffa non traité, Luffa traité avec NaOH et Luffa traité avec de l'acide stéarique (SA), (b) Alumine et Alumine traité avec de l'acide stéarique (SA).	87
Figure III. 7	Résultats XRD de PP/T-NaOH-Luffa-2%, PP/T-NaOH-SA-Luffa-2% et PP/T-SA-[Al+Luffa] -2%.	87
Figure III. 8	Thermogrammes DSC de PP/T-NaOH-Luffa-2%, PP/T-NaOH-SA-Luffa-2% et PP/T-SA-[Al+Luffa]-2%.	89
Figure III. 9	Graphiques comparatifs de l'analyse thermogravimétrique des composites.	92
Figure III. 10	Résistance aux chocs Izod des échantillons de PP pur, (PP/NT-Al-2%) et (PP/T-SA-Al-2%).	94
Figure III. 11	Résistance aux chocs Izod des échantillons selon la matrice expérimentale.	96
Figure IV. 1	Spectre FTIR des formulations A, B, C, D et E.	118
Figure IV. 2	les spectres d'absorption UV-Visible des formulations A, B, C, D et E	118
Figure IV. 3	Thermogrammes DSC des formulations à base de PEHD (A à E).	120
Figure IV. 4	Izod impact strength of virgin HDPE (A), untreated HDPE/Luffa (B), treated HDPE/Luffa (C), untreated HDPE/Luffa with compatibilizer (D), and treated HDPE/Luffa without compatibilizer (E).	121
Figure IV. 5	Contrainte de traction à la rupture du PEHD vierge (A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).	123
Figure IV. 6	Allongement à la rupture du PEHD vierge (A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du	124



	PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).	
Figure IV. 7	Module d'élasticité du PEHD vierge (A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).	125
Figure IV.8	Courbes d'analyse thermogravimétrique (ATG) du PEHD vierge (A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).	126
Figure IV.9	Variation du module de stockage (E') et du facteur de perte ($\tan \delta$) du PEHD vierge (A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).	129
Figure IV. 10	Absorption d'eau du PEHD vierge (A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).	131



Tableau	Titre	Page
Tableau I.1	Comparaison des propriétés du polypropylène (PP) et du polyéthylène haute densité (PEHD) en tant que matrices pour biocomposites	35
Tableaux II.1	synthétise les caractéristiques comparées des fibres de Luffa et des particules d'alumine comme renforts de composites polymères	62
Tableaux III.1	Différentes compositions PP/charges.	74
Tableaux III.2	Résumé des principales bandes FTIR et des pics XRD pour différents traitements.	90
Tableaux III.2	Transitions thermiques obtenues à partir des thermogrammes DSC de PP/T-NaOH-Luffa-2%, PP/T-NaOH-SA-Luffa-2% et PP/T-SA-[Al+Luffa]-2%.	92
Tableaux III.2	Température de dégradation maximale (Tmax) obtenue par ATG des composites synthétisés.	95
Tableau IV.3	Formulations composites (non titré explicitement, mais décrit dans le texte).	112
Tableau IV.4	Paramètres thermogravimétriques sous N ₂ (10°C min ⁻¹).	124



ATG	Analyse thermogravimétrique
ATD	Analyse thermique différentielle
DSC	Analyse calorimétrique différentielle
DMA	Analyse Mécanique Dynamique
DRX	Diffraction des rayons X
FTIR	Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier
PP	polypropylène
Lc	La taille de cristallite
MA	Anhydride maléique
MEB	Microscope électronique à balayage
AS	Acide stéarique
PE	Polyéthylène
PEBD	Polyéthylène basse densité
T _g	Température de transition vitreuse
T _f	Température de fusion



Remercement	i
Dedicases.....	ii
Introduction générale.....	15
PARTIE THÉORIQUE	
CHAPITRE I : Polymères semi-cristallins – Cas du Polypropylène (PP) et du Polyéthylène Haute Densité (PEHD)	20
1.1. Introduction aux polymères semi-cristallins.....	20
1. Définition et caractéristiques.....	20
2. Structure cristalline et amorphe des polymères semi-cristallins.....	21
- Échelle moléculaire.....	21
- Échelle microscopique : morphologies cristallines.....	22
• Lamelles cristallines.....	22
• Sphérolites.....	22
• Mécanismes de cristallisation.....	23
- Modèle à deux phases.....	23
3. Influence de la cristallinité sur les propriétés.....	24
- Morphologie et comportement mécanique.....	24
- Propriétés thermiques.....	25
- Propriétés optiques et densité.....	25
4. Contrôle de la cristallinité.....	26
1.2. Étude du Polypropylène (PP)	30
1. Généralités sur le PP.....	30
2. Applications industrielles.....	31
3. Travaux de recherche sur le PP renforcé par des fibres végétales.....	31
1.3. Étude du Polyéthylène Haute Densité (PEHD).....	32
1. Généralités et production.....	32
2. Applications industrielles.....	33
3. Travaux de recherche sur le PEHD renforcé par des fibres végétales.....	33
1.4. Comparaison PP vs PEHD comme matrices de biocomposites.....	34
- Critères comparatifs (rigidité, ductilité, résistance au choc, Tm, coût, etc.).....	34
1.5. Conclusion du Chapitre I.....	34
CHAPITRE II : Comparaison entre les fibres naturelles et minérales	41
I) Matériaux composites à matrice polymère.....	41
1. Définition et classification des composites.....	41
2. Structure d'un matériau composite.....	42
- La matrice.....	42
- Le renfort.....	42
- L'interface.....	43
3. Classification des composites.....	43
- Selon la nature de la matrice (polymère, métal, céramique).....	43
- Selon la géométrie et l'architecture du renfort.....	44
4. Importance des fibres de renfort dans les composites.....	44
5. Comparaison des principales fibres de renfort.....	44
II) Fibres naturelles – Cas des fibres de Luffa.....	45
1. Définition et origine.....	45
- Espèces et distribution géographique.....	45
- Botanique et culture.....	46
2. Propriétés physico-chimiques et mécaniques.....	46
- Composition chimique.....	46
- Structure du faisceau fibreux.....	47
- Caractéristiques morphologiques.....	47
- Propriétés physiques (densité, porosité, absorption d'eau, etc.).....	48



- Propriétés mécaniques (résistance, module, allongement)	49
3. Travaux de recherche antérieurs.....	50
III) Charges minérales – Cas de l’Alumine (Al_2O_3).....	52
1. Définition et caractéristiques générales.....	52
2. Structure et propriétés fondamentales de l’alumine.....	53
3. Phases cristallines et intérêt dans les matériaux composites.....	54
- Particules sphériques.....	54
- Particules angulaires.....	54
- Particules submicroniques.....	55
4. Applications de l’alumine dans les polymers.....	55
- Effets sur la rigidité, la stabilité thermique et la conductivité.....	55
5. Inconvénients et limites d’utilisation.....	56
6. Études antérieures sur les composites polymères renforcés d’alumine.....	57
Synthèse comparative entre fibres naturelles et minérales.....	60
Conclusion du cadre théorique.....	61
PARTIE EXPERIMENTALE	
CHAPITRE III : Amélioration thermique et mécanique des composites de polypropylène	67
Introduction.....	68
2.1. Réactifs chimiques.....	70
2.2. Traitement de surface des charges.....	70
2.2.1. Modification des fibres de luffa (procédé humide)	71
2.2.2. Traitement mécanique de l’alumine (procédé sec)	71
2.2.3. Préparation des composites.....	72
2.3. Techniques de caractérisation.....	73
- Microscopie Électronique à Balayage (MEB)	73
- Analyse par diffraction des rayons X (DRX)	74
- Analyse thermique (TGA / DSC)	75
- Essais mécaniques (Izod, traction, module)	75
3. Résultats et discussion.....	76
3.1. Analyse FTIR.....	76
3.2. Analyse microstructurale (MEB)	80
3.3. Analyse DRX.....	83
3.4. Analyse thermique.....	88
3.5. Propriétés mécaniques.....	92
CHAPITRE IV : Étude des effets de la modification de la surface des fibres sur les propriétés physico-mécaniques des composites luffa/PEHD bio-renforcés	105
1.Introduction.....	106
2.Matériaux et méthodes.....	109
- Polyéthylène haute densité (PEHD)	109
- Compatibilisant PE-g-MA.....	109
- Fibres de Luffa cylindrica.....	110
3.Préparation des composites.....	111
4.Méthodes de caractérisation.....	112
- FTIR.....	112
- DSC.....	113
- TGA.....	114
- UV-Visible.....	115
- Tests mécaniques (traction, module, impact)	116
- Analyse mécanique dynamique (DMA)	117
- Absorption d’eau.....	118



Résultats et discussion.....	115
- Analyse FTIR.....	115
- Analyse calorimétrique (DSC).....	116
- Analyse thermogravimétrique (TGA).....	117
- Analyse optique (UV-Vis).....	118
- Propriétés mécaniques.....	119
Conclusion générale.....	130
Références bibliographiques.....	136



INTRODUCTION



Introduction générale

Les matériaux composites à matrice polymère représentent aujourd'hui une classe de matériaux d'ingénierie incontournable, combinant les propriétés avantageuses d'une matrice polymère (légèreté, mise en œuvre aisée, résistance à la corrosion) avec celles de renforts (rigidité, résistance mécanique élevée) pour créer des matériaux aux performances optimisées [1]. Ces matériaux hybrides trouvent des applications croissantes dans de nombreux secteurs industriels : automobile, aéronautique, construction, emballage, équipements sportifs, et biens de consommation [2].

Historiquement, les fibres synthétiques (verre, carbone, aramide) ont dominé le marché des renforts de composites grâce à leurs excellentes propriétés mécaniques spécifiques et leur disponibilité industrielle [3]. Cependant, ces fibres présentent des inconvénients environnementaux et économiques significatifs : consommation énergétique élevée lors de la production, non-biodégradabilité, émissions de gaz à effet de serre, difficultés de recyclage en fin de vie, et coûts de production importants [4]. Dans un contexte global de développement durable et de transition écologique, la communauté scientifique et industrielle s'oriente progressivement vers des solutions alternatives plus respectueuses de l'environnement [5].

Les fibres naturelles d'origine végétale (lin, chanvre, jute, sisal, kenaf, bambou, etc.) émergent comme des candidats prometteurs pour remplacer partiellement ou totalement les fibres synthétiques dans certaines applications de composites [6]. Ces fibres renouvelables offrent plusieurs avantages : faible densité, biodégradabilité, faible empreinte carbone, coût réduit, abondance et disponibilité locale, et moindre abrasivité des outillages lors de la mise en œuvre [7]. Parmi ces fibres végétales, les fibres de Luffa (*Luffa cylindrica* ou *Luffa aegyptiaca*), issues du réseau vasculaire fibreux du fruit de la courge Luffa, présentent des caractéristiques morphologiques uniques avec une structure tridimensionnelle réticulée et une architecture poreuse qui les distinguent des fibres végétales conventionnelles [8].

Cependant, les fibres naturelles présentent également des limitations intrinsèques : propriétés mécaniques inférieures aux fibres synthétiques, variabilité des propriétés selon l'origine, caractère hydrophile entraînant une mauvaise compatibilité interfaciale avec les matrices polymères hydrophobes, sensibilité à l'humidité, température maximale d'utilisation limitée, et durabilité réduite face aux attaques biologiques et aux UV [9].

Pour pallier ces limitations tout en conservant les avantages environnementaux et économiques, une stratégie innovante consiste à développer des composites à renforts hybrides combinant des



fibres naturelles avec des charges ou fibres minérales [10]. L'incorporation de particules d'alumine (Al_2O_3), céramique technique aux excellentes propriétés mécaniques, thermiques et chimiques, dans des composites à fibres végétales, pourrait créer une synergie entre les deux types de renforts [11].

Le présent travail s'inscrit dans cette démarche d'hybridation en proposant l'élaboration et la caractérisation de composites à matrice polymère semi-cristalline (polypropylène PP et polyéthylène haute densité PEHD) renforcés par une combinaison de fibres naturelles de Luffa et de particules d'alumine. Le choix des matrices PP et PEHD se justifie par leur utilisation extensive dans l'industrie, leur coût modéré, leur facilité de mise en œuvre, et leur recyclabilité [12].

L'objectif principal est d'évaluer l'effet de l'incorporation individuelle et combinée de ces deux types de renforts sur les propriétés mécaniques, thermiques et morphologiques des composites obtenus, afin d'identifier d'éventuels effets synergiques et d'optimiser les formulations pour des applications ciblées.

Cette partie théorique est organisée en deux chapitres complémentaires. Le Chapitre I présente les polymères semi-cristallins retenus comme matrices, à savoir le polypropylène (PP) et le polyéthylène haute densité (PEHD). Leur structure, leurs propriétés intrinsèques et leurs principales limites sont détaillées, avant d'aborder l'état de l'art concernant leur renforcement par des fibres végétales. Le Chapitre II, quant à lui, propose une analyse comparative approfondie entre les fibres naturelles – en particulier les fibres de *Luffa aegyptiaca* – et les charges minérales telles que l'alumine. Ce chapitre examine leurs caractéristiques physico-chimiques, leurs mécanismes d'action dans les matrices polymères ainsi que les travaux antérieurs ayant exploré leur utilisation individuelle ou en combinaison. Cette revue bibliographique critique permet ainsi de situer l'étude dans le contexte scientifique international et de justifier les choix méthodologiques retenus pour la partie expérimentale.

Le Chapitre III décrit l'ensemble des matériaux utilisés ainsi que les techniques expérimentales mises en œuvre pour l'élaboration et la caractérisation des composites à matrice polypropylène. Il détaille la préparation des fibres de Luffa traitées chimiquement, la modification de l'alumine par revêtement stéarate, ainsi que les différentes formulations développées. Les méthodes de caractérisation mobilisées (FTIR, SEM, XRD, DSC, TGA) sont présentées, puisqu'elles permettent d'évaluer l'adhésion interfaciale, la cristallinité, la morphologie et le comportement thermique des composites.

Le Chapitre IV expose et discute l'étude des composites PEHD renforcés par des fibres de Luffa.



Ce chapitre analyse l'impact du traitement alcalin et de l'ajout du compatibilisant PE-g-MA sur la cohésion fibre–matrice, ainsi que sur les propriétés mécaniques, la stabilité thermique, la réponse dynamique et l'absorption d'eau. L'ensemble des analyses mécaniques, thermiques et morphologiques vise à évaluer l'influence des différentes stratégies de modification adoptées. Enfin, une conclusion générale récapitule les points essentiels de l'étude et propose plusieurs perspectives pour des travaux futurs.

.

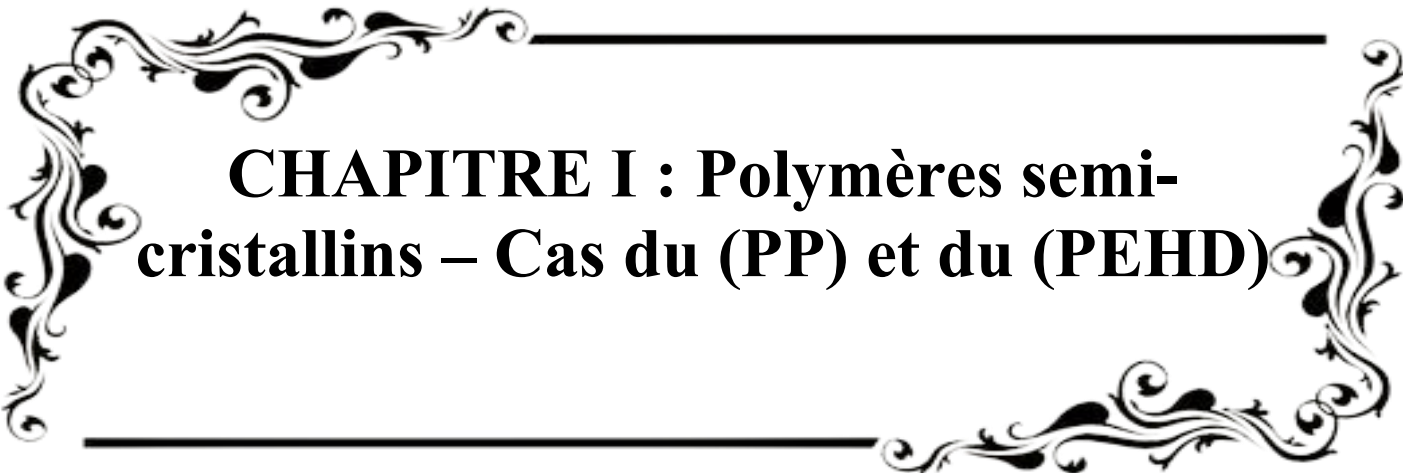
Liste des références bibliographiques (sélection)

- [1] Mallick P.K., *Fiber-Reinforced Composites: Materials, Manufacturing, and Design*, CRC Press, 2021, pp. 1–25.
- [2] Zweben C., *Composites in Engineering Applications*, Springer, 2022, pp. 45–78.
- [3] Chawla K.K., *Composite Materials: Science and Engineering*, Springer, 2019, pp. 156–189.
- [4] Pickering S.J. et al., *Recycling of Composite Materials*, Elsevier, 2016.
- [5] Joshi S.V., Drzal L.T., Mohanty A.K., Arora S., *Natural Fibres, Biopolymers, and Biocomposites*, CRC Press, 2004.
- [6] Mohanty A.K., Misra M., Drzal L.T., *Natural Fibres, Biopolymers, and Biocomposites*, CRC Press, 2000.
- [7] Bledzki A.K., Gassan J., *Composites Reinforced with Cellulose-Based Fibres, Progress in Polymer Science*, 1999, pp. 221–274.
- [8] Siqueira G. et al., *Luffa Cylindrica Fibers as Reinforcement in Composites, Composites Part A*, 2010.
- [9] John M.J., Thomas S., *Biofibres and Biocomposites, Carbohydrate Polymers*, 2008.
- [10] Fu S.Y., Feng X.Q., Lauke B., Mai Y.W., *Effects of Particle Size, Particle/Matrix Interface Adhesion and Particle Loading on Mechanical Properties of Particulate–Polymer Composites, Composites Part B*, 2002.
- [11] Chawla K.K., *Composite Materials: Science and Engineering*, Springer, 2019, pp. 445–478 ; Mallick P.K., *Fiber-Reinforced Composites*, CRC Press, 2021, pp. 289–315.
- [12] Brydson J.A., *Plastics Materials*, Butterworth-Heinemann, 1999 ; Vasile C., Pascu M., *Polymer Blends and Composites*, Marcel Dekker, 2005.



PARTIE THÉORIQUE





CHAPITRE I : Polymères semi-cristallins – Cas du (PP) et du (PEHD)



CHAPITRE I : Polymères semi-cristallins Cas du (PP) et du (PEHD)

1.1. Introduction aux polymères semi-cristallins

Définition et caractéristiques

Les polymères sont des macromolécules constituées d'unités structurales répétitives appelées *monomères*, liées entre elles par des liaisons covalentes pour former de longues chaînes moléculaires dont la masse molaire peut atteindre plusieurs millions de grammes par mole [1]. Ces chaînes peuvent adopter diverses configurations spatiales selon la nature des monomères, la longueur de la chaîne et le degré d'enchevêtrement moléculaire.

Selon leur organisation structurale à l'échelle nanométrique et microscopique, les polymères se classent généralement en trois grandes catégories : les polymères amorphes, les polymères semi-cristallins et les polymères à cristaux liquides [2]. Les polymères amorphes présentent une structure totalement désordonnée, comparable à celle des verres, tandis que les polymères cristallins possèdent un ordre orienté intermédiaire entre l'état solide et l'état liquide, conférant des propriétés optiques et mécaniques particulières.

Les polymères semi-cristallins, quant à eux, représentent une classe intermédiaire présentant la coexistence de régions cristallines ordonnées et de régions amorphes désordonnées au sein de la même structure moléculaire [3]. Cette dualité structurale confère à ces matériaux un équilibre remarquable entre rigidité et flexibilité : les zones cristallines assurent la résistance mécanique, la dureté et la stabilité dimensionnelle, tandis que les zones amorphes contribuent à la résilience, la ductilité et la capacité d'absorption d'énergie [4].

Le degré de cristallinité défini comme la fraction volumique ou massique des régions cristallines dans l'ensemble du polymère — constitue un paramètre fondamental déterminant les propriétés finales du matériau. Typiquement, ce taux varie de 30 % à 80 % selon la nature du polymère, la vitesse de refroidissement, les traitements thermiques et les procédés de mise en forme utilisés [5]. Ainsi, une cristallinité élevée accroît la rigidité et la résistance thermique, mais diminue la transparence optique et la ténacité à basse température.

Les polymères semi-cristallins les plus couramment employés dans l'industrie comprennent notamment : le polyéthylène (PE), le polypropylène (PP), les polyamides (PA ou nylons), les



polyesters tels que le polyéthylène téréphtalate (PET) et le polybutylène téréphtalate (PBT), le polyoxyméthylène (POM), le polyfluorure de vinylidène (PVDF) et le polyétheréthercétone (PEEK)[6]. Ces polymères sont largement utilisés dans les domaines de l'emballage, de l'automobile, de la construction, de l'électrotechnique, du médical et du textile, en raison de leur excellent compromis entre propriétés mécaniques, coût de production et facilité de mise en œuvre [7].

Leur structure semi-cristalline permet une transformation aisée par des procédés industriels standards tels que l'extrusion, l'injection ou le moulage par compression, tout en offrant une recyclabilité appréciable pour les thermoplastiques, atout majeur dans la perspective d'une économie circulaire durable [8].

Structure cristalline et amorphe des polymères semi-cristallins

La structure hiérarchique des polymères semi-cristallins s'étend sur plusieurs échelles de longueur, depuis l'arrangement moléculaire à l'échelle nanométrique jusqu'aux morphologies cristallines visibles à l'échelle microscopique [9]. Cette organisation multiscalaire, caractérisée par la coexistence de régions ordonnées (cristallines) et désordonnées (amorphes), joue un rôle fondamental dans la détermination des propriétés mécaniques, thermiques, optiques et même de transport (perméabilité, diffusion) du matériau.

Échelle moléculaire :

Dans les régions cristallines appelées *cristallites* les chaînes macromoléculaires adoptent une conformation régulière et périodique [10]. Elles s'alignent de manière parallèle ou légèrement hélicoïdale selon la chimie du polymère, formant un réseau tridimensionnel compact et ordonné [11]. Cet arrangement réduit l'énergie libre du système et maximise les interactions intermoléculaires, notamment les forces de Van der Waals et, pour certains polymères polaires, les liaisons hydrogène [12]. La taille typique des cristallites varie de 10 à 50 nanomètres, dépendant de la vitesse de refroidissement et de la flexibilité des chaînes macromoléculaires.

Toutefois, la perfection cristalline n'est jamais atteinte : des défauts structuraux tels que les chaînes repliées, les terminaisons libres, ou encore les branchements latéraux perturbent la régularité du réseau et limitent la croissance des lamelles cristallines [13]. Ces défauts sont d'ailleurs essentiels à la stabilité mécanique, car ils empêchent une rupture fragile du



matériau.

Dans les régions amorphes, les chaînes polymériques adoptent une conformation aléatoire dite de *pelote statistique*, où elles s'enchevêtrent sans ordre à longue distance [14]. Selon la température, ces zones peuvent se trouver dans un état vitreux (en dessous de la température de transition vitreuse, T_g) ou caoutchouteux (au-dessus de T_g), influençant directement la flexibilité et la résilience du polymère [15]. Ces segments amorphes jouent un rôle de liant entre les cristallites, assurant la cohésion du matériau et sa capacité à absorber l'énergie mécanique avant rupture.

Ainsi, la combinaison harmonieuse entre l'ordre des cristallites et le désordre des phases amorphes détermine la performance globale du polymère semi-cristallin, expliquant sa large utilisation dans des applications nécessitant un équilibre entre rigidité, ténacité et stabilité thermique [16].

Échelle microscopique : Morphologies cristallines

Sur le plan microscopique, les cristallites adoptent généralement une morphologie lamellaire, c'est-à-dire des feuillets cristallins d'une épaisseur de 10 à 30 nm et de dimensions latérales atteignant plusieurs micromètres [17]. Les chaînes polymériques se replient périodiquement sur elles-mêmes (*chain folding*) pour former ces lamelles, séparées par des couches amorphes interlamellaires[18].

Lorsque la cristallisation s'effectue à partir de l'état fondu, les lamelles s'organisent radialement autour de sites de nucléation, constituant des structures sphériques appelées sphérolites. Ces entités polycristallines, dont le diamètre peut varier de quelques à plusieurs centaines de micromètres, présentent une biréfringence caractéristique observable en microscopie optique polarisée [19].

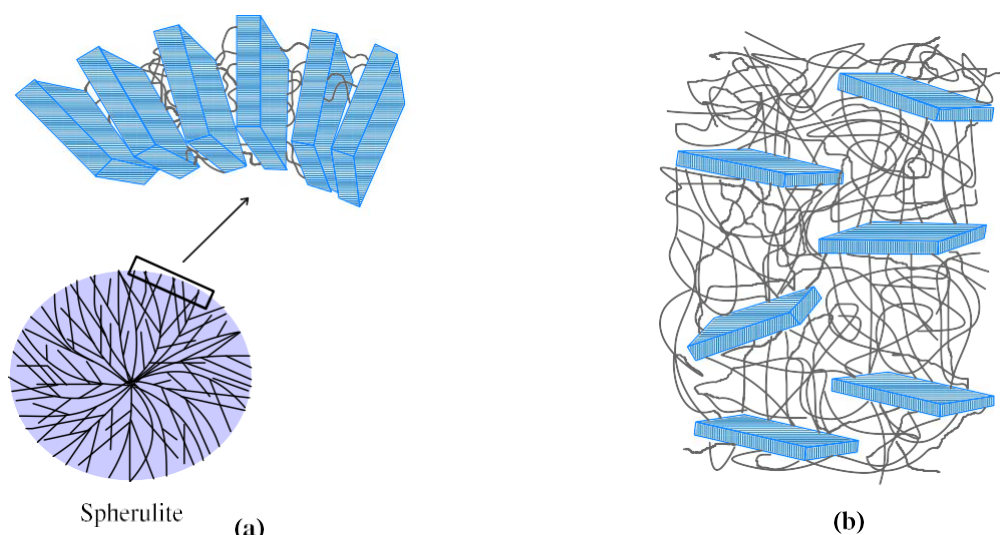


Figure 1. Illustration de la transition morphologique ; de (a) morphologie sphérolitique à haut degré de cristallinité à (b) lamelles cristallines individuelles dispersées aléatoirement dans la phase amorphe à faible degré de cristallinité.

Cette transition morphologique, depuis une structure sphérolitique compacte vers une dispersion de lamelles individuelles dans une matrice amorphe moins cristallisée, est représentée à la Fig. 1. Celle-ci illustre (a) la morphologie sphérolitique typique observée dans les polymères présentant un haut degré de cristallinité, et (b) la disposition aléatoire de lamelles cristallines isolées dans une phase amorphe lorsque le taux de cristallinité est plus faible.

➤ Sphérolites :

Les sphérolites constituent des entités polycristallines dont le diamètre varie de quelques à plusieurs centaines de micromètres [20]. Ils sont aisément observables en microscopie optique polarisée grâce à leur biréfringence caractéristique, se manifestant par une figure d'extinction en croix, connue sous le nom de croix de Malte [21].

Cette morphologie typique est illustrée à la *Figure 2*, qui présente : (a) une image optique de sphérolites isotropes [22] et (b) une représentation schématique de la structure sphérolitique d'un polymère semi-cristallin.

Les mécanismes de cristallisation responsables de la formation de ces sphérolites résultent de deux étapes successives.

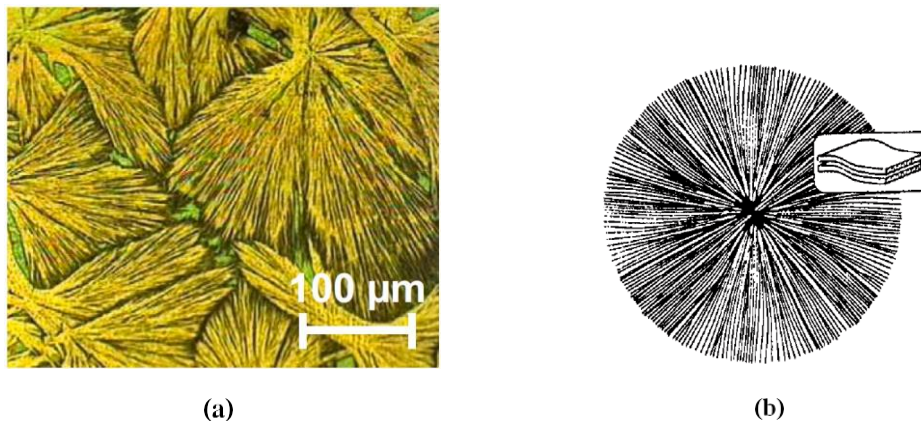


Figure 2. (a) Une image optique de sphérulites isotropes tirée de Sidelman et al. (2010) [22] ainsi que (b) une représentation schématique de la morphologie sphérolitique d'un polymère semi-cristallin.

- **la cristallisation primaire**, correspondant à la formation d'une première lamelle à partir d'un germe de nucléation,
- et **la cristallisation secondaire**, lors de laquelle les zones amorphes interlamellaires se cristallisent partiellement, complétant la structure.

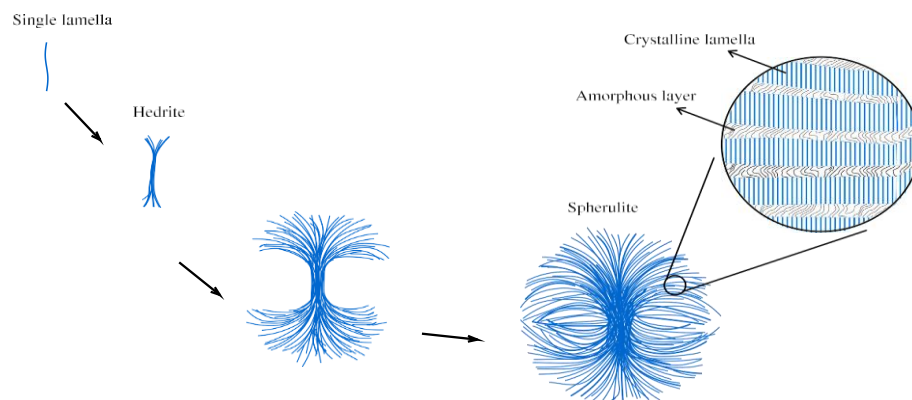


Figure 3. Processus de formation d'une sphérolite dans certains polymères semi-cristallins.

Modèle à deux phases

Ces mécanismes sont représentés schématiquement à la *Figure 3*, redessinée d'après les travaux de Pérez-Martín *et al* [23] et Raphael *et al* [24], qui illustrent le processus de croissance et d'organisation des lamelles au sein d'un sphérolite dans différents polymères



semi-cristallins.

Le modèle structural classique des polymères semi-cristallins est un modèle à deux phases : une phase cristalline, constituée de lamelles ordonnées, et une phase amorphe, formée de zones désordonnées, coexistant intimement à l'échelle nanométrique [25].

Une phase interfaciale de transition, d'une épaisseur de quelques nanomètres, se développe entre les cristaux et les zones amorphes, présentant un ordre structural intermédiaire. Cette zone interfaciale joue un rôle déterminant dans la transmission des contraintes mécaniques et dans la résilience globale du matériau [26].

Influence de la cristallinité sur les propriétés

Le taux de cristallinité constitue un paramètre structural clé gouvernant la majorité des propriétés physiques, mécaniques et thermiques des polymères semi-cristallins [27]. Une augmentation du degré de cristallinité se traduit généralement par un renforcement des interactions intermoléculaires, une augmentation du module d'élasticité et une diminution de la ductilité du matériau.

a) Influence de la cristallinité sur la morphologie et le comportement mécanique

La morphologie des polymères semi-cristallins se compose de sphérolites, formés par l'organisation radiale de lamelles cristallines séparées par des zones amorphes plus désordonnées[28].

Cette structure hétérogène, représentée schématiquement à la *Figure 5a*, correspond à un état isotrope, où les chaînes cristallines et amorphes ne présentent aucune orientation préférentielle. La formation et l'agencement des sphérolites dépendent étroitement du processus de cristallisation, de la vitesse de refroidissement, et de la mobilité moléculaire des chaînes polymériques [29].

Sous l'effet d'une sollicitation mécanique, cette microstructure évolue de façon marquée. Lorsqu'un polymère semi-cristallin est soumis à une contrainte uniaxiale, les lamelles cristallines s'orientent progressivement dans la direction de la traction, tandis que les chaînes amorphes s'étirent et se réalignent [30].

Cette réorganisation conduit à une cristallisation induite par la déformation, un phénomène



documenté expérimentalement et représenté à la *Figure 5b*. Ce processus engendre une microstructure orientée, responsable d'une augmentation significative de la rigidité et de la résistance mécanique du matériau[31].

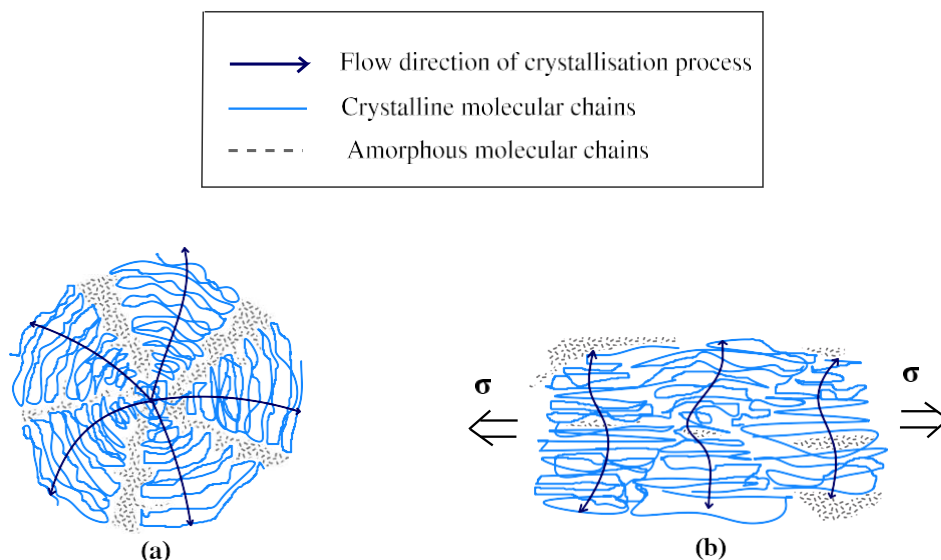


Figure 4 Schéma illustratif de la (a) microstructure sphérolitique en condition isotrope et (b) microstructure cristallisée induite par la contrainte [32]

Mécanismes de déformation des polymères semi-cristallins sous traction

Le processus de déformation d'un polymère semi-cristallin soumis à une traction uniaxiale peut être décrit à plusieurs échelles structurales. Dans un premier temps, la réponse élastique initiale est dominée par l'étirement des chaînes amorphes et la flexion des liaisons covalentes présentes au sein des lamelles cristallines [33].

À mesure que la déformation progresse, certaines lamelles cristallines se rompent partiellement ou se désorganisent, ce qui provoque un adoucissement mécanique (ou *yielding*) associé à une réorientation locale des chaînes polymériques [34].

Lorsque la déformation dépasse ce seuil, les chaînes amorphes commencent à s'aligner progressivement le long de la direction de la charge appliquée, entraînant une cristallisation induite par la déformation et une augmentation de la cohésion intermoléculaire [35].

Ce comportement est représenté à la *Figure 5*, illustrant les étapes successives de la



déformation élastique sous traction. On y observe que les lamelles cristallines s'inclinent et se réorientent selon l'axe de la contrainte (P), tandis que les chaînes amorphes se détendent et se réalignent, assurant une redistribution homogène des contraintes à l'échelle microscopique [36].

Cette organisation hiérarchique entre phases cristallines et amorphes constitue l'un des fondements essentiels de la résistance mécanique accrue observée dans les polymères semi-cristallins à fort taux de cristallinité [37].

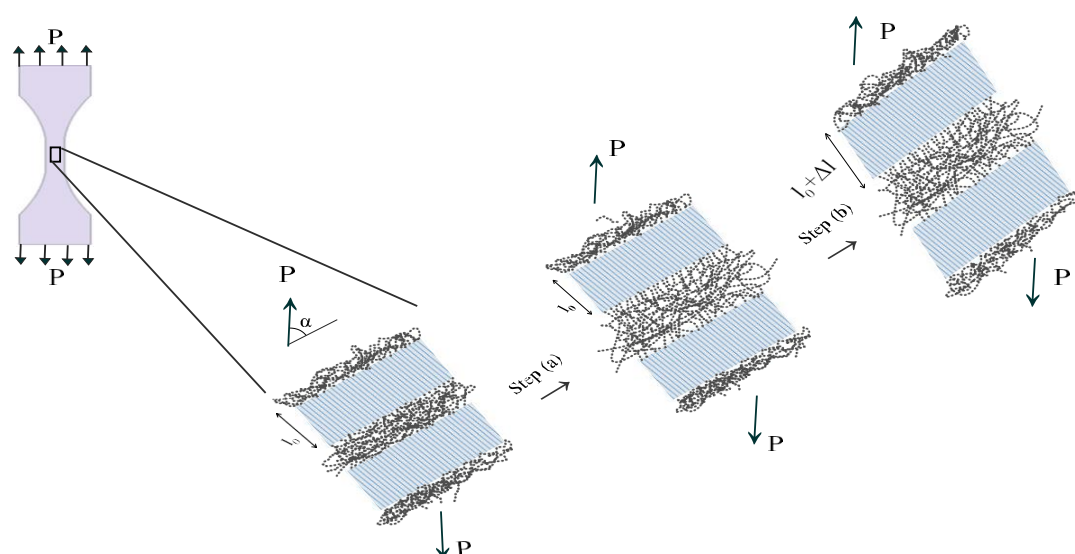


Figure 5. Processus de déformation élastique dans un polymère semi-cristallin dans des conditions de charge de traction [38]

Ainsi, la compréhension de ces mécanismes morphologiques et structuraux permet de relier le taux de cristallinité à l'évolution du comportement mécanique global. Une cristallinité modérée assure un équilibre optimal entre rigidité et ténacité, tandis qu'une cristallinité trop élevée favorise la fragilisation du matériau, phénomène fréquemment observé dans les polymères techniques à haute orientation cristalline [39].

a) Propriétés thermiques

Les propriétés thermiques des polymères semi-cristallins sont étroitement corrélées à leur structure cristalline interne. La température de fusion (T_m) dépend principalement du degré de perfection cristalline et de l'épaisseur lamellaire : des cristaux plus petits ou présentant des défauts structuraux fondent à des températures plus basses, conformément à la relation de



Gibbs–Thomson [40].

Une cristallinité plus élevée confère une meilleure stabilité thermique, car les zones amorphes moins stables énergétiquement sont les premières à subir des dégradations thermiques [41]. De plus, la conductivité thermique croît légèrement avec la cristallinité, les régions ordonnées favorisant une propagation plus efficace des phonons à travers le réseau polymérique [42].

b) Propriétés optiques et densité

Sur le plan optique, la transparence d'un polymère diminue avec l'augmentation du taux de cristallinité, car les sphérolites diffusent la lumière visible en raison de leur taille comparable à la longueur d'onde de celle-ci, provoquant un effet d'opacité ou de blanchiment[43]. Cependant, certaines stratégies de formulation telles qu'une nucléation intensive menant à la formation de sphérolites submicroniques, ou encore la copolymérisation permettent de maintenir une transparence acceptable tout en conservant de bonnes propriétés mécaniques[44].

Enfin, la densité du matériau augmente linéairement avec la cristallinité, car les chaînes macromoléculaires compactées dans les cristaux occupent moins de volume que celles des régions amorphes.

Cette relation empirique est souvent décrite par la loi de mélange, exprimée par l'équation :

$$\rho = \chi_c \times \rho_c + (1 - \chi_c) \times \rho_a$$

Où :

- ρ est la densité globale du polymère,
- χ_c le degré de cristallinité,
- ρ_c et ρ_a les densités des phases cristalline et amorphe respectivement[45].

Contrôle de la cristallinité :

Le taux de cristallinité obtenu dans un polymère semi-cristallin résulte d'un équilibre subtil entre la cinétique de cristallisation et les conditions thermiques imposées au cours du procédé de mise en forme. La cristallinité finale influence directement les propriétés



mécaniques, thermiques, optiques et chimiques du matériau, notamment la rigidité, la transparence et la résistance à la traction [46].

Plusieurs paramètres déterminent ce degré de cristallinité :

1. Vitesse de refroidissement

Le rythme de refroidissement après fusion est un facteur déterminant. Un refroidissement lent, tel qu'un recuit contrôlé, permet aux chaînes macromoléculaires de s'organiser plus efficacement, conduisant à une cristallinité élevée et à des cristaux bien formés [47].

À l'inverse, un refroidissement rapide (trempe) fige les chaînes dans des positions désordonnées, limitant la cristallisation et favorisant la formation d'une structure majoritairement amorphe.

2. Température de cristallisation

Lors d'une cristallisation isotherme, une température proche du point de fusion T_m favorise la croissance de cristaux plus épais et plus parfaits. En revanche, une cristallisation à température plus basse entraîne la formation de cristaux fins et moins ordonnés, du fait de la mobilité réduite des chaînes [48].

3. Présence d'agents nucléants

L'incorporation de particules fines telles que le talc, la bentonite ou certains pigments agit comme sites de nucléation supplémentaires. Ces additifs favorisent la multiplication des germes cristallins, conduisant à la formation de sphérolites plus petits et plus nombreux, une cristallinité potentiellement accrue, et une meilleure transparence optique du matériau final [49].

4. Structure moléculaire

La capacité d'un polymère à cristalliser dépend étroitement de la régularité de ses chaînes macromoléculaires. La tacticité (arrangement stéréochimique des unités répétitives), la masse molaire, la présence de ramifications, ainsi que la



copolymérisation influencent la facilité de repliement et d'empilement des chaînes dans un réseau ordonné [50].

En combinant ces paramètres, il est possible de **contrôler la morphologie cristalline** et d'adapter les propriétés finales du polymère à une application donnée. Le contrôle précis des conditions de refroidissement et de cristallisation constitue ainsi une étape essentielle dans la conception et l'optimisation des matériaux polymères semi-cristallins modernes.

1.2. Étude du Polypropylène (PP)

Le polypropylène (PP) est un polymère thermoplastique semi-cristallin appartenant à la famille des polyoléfines. Il est obtenu par polymérisation du monomère propylène ($\text{CH}_2=\text{CH}-\text{CH}_3$) en présence de catalyseurs stéréospécifiques tels que les catalyseurs Ziegler-Natta ou les métallocènes [51] découvert et industrialisé dans les années 1950, le PP a rapidement acquis une importance majeure dans l'industrie mondiale des plastiques, grâce à son excellent compromis entre légèreté, rigidité, stabilité chimique et aptitude au moulage [52].

Aujourd'hui, il figure parmi les polymères les plus produits au monde, avec une production annuelle dépassant 70 millions de tonnes, se classant au second rang après le polyéthylène [53]. Environ 30 à 40 % de la production mondiale est dédiée à l'emballage (films, flacons, barquettes), 20 à 25 % à l'automobile (pare-chocs, tableaux de bord), 10 à 15 % au textile (fibres techniques, tapis, géotextiles), et le reste à la construction, l'électroménager et le médical [54].

⊗ Travaux de recherche sur le PP renforcé par des fibres végétales

Depuis deux décennies, l'incorporation de fibres naturelles dans une matrice de PP pour la fabrication de biocomposites suscite un intérêt croissant. Ces matériaux visent à réduire la dépendance aux ressources fossiles tout en maintenant de bonnes performances mécaniques [55]. Les principales fibres étudiées sont le lin, chanvre, jute, sisal, kenaf, bambou, fibres de bois et coco [56].

Cependant, la mauvaise compatibilité interfaciale entre fibres hydrophiles et matrice hydrophobe limite le transfert de charge mécanique [57]. Pour y remédier, des agents de couplage tels que le PP greffé à l'anhydride maléique (PP-g-MA) sont largement utilisés [58]. Cet agent crée des liaisons ester entre les groupes hydroxyle des fibres et les chaînes de PP,



améliorant ainsi l'adhésion interfaciale et la résistance mécanique [59].

Des traitements chimiques (NaOH, silane, acétylation) ou physiques (corona, plasma) sont également employés pour éliminer la lignine, augmenter la rugosité de surface et réduire l'humidité, favorisant ainsi une meilleure dispersion et mouillabilité des fibres [60].

Les études expérimentales montrent une augmentation du module d'Young de 50 à 300 %, et une amélioration modérée de la résistance à la traction (+20 à +60 %), lorsque le couplage fibre-matrice est bien maîtrisé [61]. Toutefois, la ductilité et la résistance aux chocs diminuent, et la variabilité naturelle des fibres reste un défi majeur [62].

⊗ Le cas des fibres de *Luffa cylindrica*

Les fibres de luffa présentent une structure tridimensionnelle poreuse et une faible densité, leur conférant un potentiel élevé comme renfort de matrices thermoplastiques [63]. Leur composition lignocellulosique 60 % cellulose, 30 % hémicellulose, 10 % lignine assure une bonne résistance mécanique après traitement de surface [64].

Campos et al. (2022) ont montré qu'une incorporation de 10 % de fibres de luffa dans le PP augmentait le module d'Young de 17 %, bien que la résistance à la traction diminue pour des taux plus élevés (20 %), en raison d'une adhésion interfaciale insuffisante [65]. Les analyses SEM ont révélé des vides et zones d'agglomération, confirmant une dispersion incomplète malgré la présence du compatibilisant [66].

Sur le plan thermique, la température de cristallisation (T_c) augmente légèrement, indiquant un effet nucléant des fibres de luffa, alors que la température de fusion (T_m) reste quasi inchangée [67].

Des études complémentaires ont montré que les traitements alcalins (NaOH) améliorent la rugosité des fibres et la cohésion interfaciale [68].

D'autres travaux confirment que les traitements combinés NaOH/silane optimisent la compatibilité chimique, réduisent l'absorption d'eau et améliorent la stabilité thermique [69]. Les composites traités présentent des surfaces de rupture plus cohésives et homogènes, traduisant une meilleure mouillabilité et adhésion entre fibres et matrice [69].

En conclusion, les composites PP/luffa offrent un bon compromis rigidité-stabilité thermique,



mais souffrent encore d'une ductilité réduite et d'une dispersion imparfaite des fibres [70]. De nouvelles études visent à optimiser cette interface pour exploiter pleinement le potentiel du luffa dans les biocomposites polymériques modernes.

1.3. Étude du Polyéthylène Haute Densité (PEHD)

Le polyéthylène (PE) est le polymère le plus simple chimiquement et le plus produit mondialement (>100 millions de tonnes/an, toutes variétés confondues), obtenu par polymérisation de l'éthylène (éthène, $\text{CH}_2=\text{CH}_2$) [71].

Applications industrielles du PEHD

Le polyéthylène haute densité (PEHD) occupe une place majeure parmi les polymères thermoplastiques grâce à sa combinaison équilibrée de propriétés mécaniques, chimiques et économiques [72]. Sa forte résistance chimique, sa rigidité et sa facilité de mise en œuvre en font un matériau privilégié dans de nombreux secteurs industriels. Environ 35 à 40 % de la production mondiale est consacrée au flaconnage et à l'emballage rigide, notamment pour les bouteilles de produits alimentaires, cosmétiques et chimiques. Le PEHD est également largement utilisé dans la fabrication de tuyauteries et raccords (20-25 %), offrant une excellente durabilité et une longévité supérieure à 50 ans, même en conditions agressives. D'autres applications notables incluent les films et sacs (15-20 %), les pièces injectées (10-15 %), ainsi que les géomembranes et géotextiles destinés à l'étanchéité des infrastructures hydrauliques et des décharges. Sa stabilité diélectrique élevée et sa résistance à la corrosion justifient en outre son emploi dans les gaines et isolants pour câblage électrique [73].

Travaux de recherche sur le PEHD avec renforts à fibres végétales

Bien que le PEHD ait été historiquement moins étudié que le PP pour les bio-composites à fibres végétales, un corpus significatif de travaux explore le renforcement du PEHD par diverses fibres naturelles, motivé par les mêmes objectifs de durabilité et d'amélioration des propriétés [74].

Comme pour le PP, la principale difficulté provient de la forte incompatibilité interfaciale entre la matrice PEHD, de nature apolaire et constituée exclusivement de chaînes $-\text{CH}_2-\text{CH}_2-$, et les fibres lignocellulosiques, riches en groupements hydroxyles hydrophiles [75]. Cette



différence de polarité limite le transfert de contrainte et la cohésion à l'interface. Pour y remédier, plusieurs stratégies ont été développées : l'utilisation d'agents de couplage tels que le polyéthylène greffé à l'anhydride maléique (PE-g-MA ou MAPE)[76], ainsi que divers traitements chimiques des fibres — notamment l'alcalinisation, la silanisation et l'acétylation — visant à modifier leur surface et à réduire leur hydrophilie [77].

Les études portant sur les composites PEHD renforcés par fibres végétales ont permis de dégager plusieurs tendances générales. Les systèmes PEHD/bois constituent la base des composites « wood-plastic » (WPC), incorporant 20 à 60 % en masse de fibres ou farine de bois[78]. Ces composites présentent des gains notables en rigidité (augmentation du module de Young de 100 à 300 %) et en résistance à la traction (+30 à +70 %) lorsque le MAPE est utilisé comme agent de couplage, tout en conservant une bonne résistance à l'humidité et aux intempéries. De même, les composites PEHD/jute montrent des améliorations marquées du module et de la résistance à la traction (+40 à +80 %) pour des fractions massiques de 20 à 50 %, mais au prix d'une réduction drastique de la ductilité [79].

De manière générale, l'incorporation de fibres végétales dans le PEHD entraîne des effets comparables à ceux observés dans les composites à base de PP. Les principales améliorations concernent le module d'Young (jusqu'à +400 %), la résistance à la traction (+30 à +100 %), la stabilité dimensionnelle et la réduction du coût global du matériau. En revanche, plusieurs dégradations sont également observées : diminution notable de la ductilité et de la ténacité, baisse de la résistance au choc, augmentation de l'absorption d'eau, légère réduction de la stabilité thermique et difficulté accrue de mise en œuvre. Ces observations confirment la nécessité d'un compromis entre renforcement mécanique et aptitude au procédé, ainsi que l'importance de l'ingénierie interfaciale pour garantir la performance des composites PEHD à fibres naturelles.

Comparaison PP vs PEHD comme matrices pour biocomposites :

Tableau. 1 Comparaison des propriétés du polypropylène (PP) et du polyéthylène haute densité (PEHD) en tant que matrices pour biocomposites.

Critère	PP	PEHD
Rigidité	Plus rigide (module initial plus élevé)	Moins rigide



Ductilité	Modérée (allongement ~100-600%)	Très élevée (allongement >500%)
Résistance au choc (basse T°)	Fragilisation <0°C	Excellente même à -40°C
T _m	~160-165°C (plus élevée)	~125-135°C (plus basse)
Fenêtre de transformation	Plus large (T _m élevée, fibres tolèrent mieux)	Plus étroite (risque dégradation fibres proche T _m)
Résistance chimique	Bonne	Excellente (supérieure)
Coût	Légèrement supérieur	Légèrement inférieur
Applications dominantes biocomposites	Automobile (rigidité, T° service élevée)	Construction, mobilier extérieur (résistance chimique, intempéries)

Conclusion du Chapitre I

Le polypropylène (PP) et le polyéthylène haute densité (PEHD) sont deux polymères thermoplastiques semi-cristallins de la famille des polyoléfines, largement utilisés dans l'industrie grâce à leur excellent compromis entre propriétés mécaniques, chimiques, thermiques, coût, et facilité de mise en œuvre.[80] Leur structure semi-cristalline, caractérisée par la coexistence de régions cristallines ordonnées et de zones amorphes désordonnées, confère à ces matériaux une combinaison avantageuse de rigidité (cristallites) et de ténacité (zones amorphes), avec des propriétés fortement dépendantes du taux de cristallinité [81].

Le renforcement de ces matrices par des fibres naturelles végétales constitue une voie prometteuse vers des matériaux composites plus durables et respectueux de l'environnement, répondant aux exigences croissantes de l'éco-conception et de la réduction de l'empreinte carbone [82]. Les travaux de recherche extensive menés au cours des deux dernières décennies ont démontré que l'incorporation de fibres végétales (bois, jute, lin, chanvre, sisal, kenaf, bambou, etc.) dans des matrices PP ou PEHD permet d'améliorer significativement la rigidité (module d'Young) et, dans une moindre mesure, la résistance à la traction, tout en réduisant le coût et la densité des composites finaux [83].

Cependant, ces biocomposites présentent également des limitations importantes : perte de ductilité et de ténacité, augmentation de l'absorption d'eau, variabilité des propriétés (dépendance aux caractéristiques variables des fibres naturelles), et surtout, mauvaise adhésion interfaciale entre fibres hydrophiles et matrices hydrophobes [84]. Cette dernière



problématique nécessite impérativement l'utilisation d'agents de couplage (PP-g-MA ou PE-g-MA) et/ou de traitements chimiques des fibres pour optimiser le transfert de charge fibre-matrice et obtenir des propriétés mécaniques satisfaisantes [85].

Les composites PP/fibres végétales dominent actuellement le marché des biocomposites structuraux, particulièrement dans le secteur automobile (panneaux de porte, habillages intérieurs, tablettes arrière) où la rigidité, la légèreté, et l'absorption acoustique sont valorisées, tandis que les composites PEHD/fibres trouvent des applications davantage dans la construction (decking, clôtures, panneaux), le mobilier d'extérieur, et les emballages industriels où la résistance chimique et aux intempéries est primordiale [86].

Malgré ces avancées, les biocomposites actuels basés uniquement sur des fibres végétales présentent des performances mécaniques et thermiques limitées comparées aux composites conventionnels renforcés par fibres de verre ou de carbone, restreignant leurs domaines d'application à des pièces semi-structurales ou non-structurales [87]. Une stratégie innovante pour surmonter ces limitations tout en conservant les bénéfices environnementaux des fibres naturelles consiste à développer des systèmes de renforts hybrides combinant fibres végétales et charges ou fibres minérales, exploitant la complémentarité et les synergies potentielles entre ces deux types de renforts [88]. Cette approche fait l'objet du Chapitre II suivant.

**Liste des références bibliographiques (sélection)**

- [1] Young R.J., Lovell P.A., *Introduction to Polymers*, 3^e éd., CRC Press, 2011, pp. 1–35.
- [2] Ward I.M., Sweeney J., *An Introduction to the Mechanical Properties of Solid Polymers*, 2^e éd., John Wiley & Sons, 2012, pp. 45–89.
- [3] Strobl G., *The Physics of Polymers: Concepts for Understanding Their Structures and Behavior*, 3^e éd., Springer, 2007, pp. 112–158.
- [4] Callister W.D., Rethwisch D.G., *Materials Science and Engineering: An Introduction*, 10^e éd., John Wiley & Sons, 2020, pp. 567–598.
- [5] Gedde U.W., Hedenqvist M.S., *Fundamentals of Polymer Engineering*, 2^e éd., Springer, 2019, pp. 203–245.
- [6] Brydson J.A., *Plastics Materials*, 7^e éd., Butterworth-Heinemann, 1999, pp. 121–178.
- [7] Vasile C., Pascu M., *Polymer Blends and Composites*, Marcel Dekker, New York, 2005, pp. 67–142.
- [8] Ehrenstein G.W., *Polymeric Materials: Structure, Properties, Applications*, Hanser Publishers, 2001, pp. 389–412.
- [9] Strobl G., *The Physics of Polymers*, 3^e éd., Springer, 2007, pp. 158–205.
- [10] Gedde U.W., Hedenqvist M.S., *Fundamentals of Polymer Engineering*, 2^e éd., Springer, 2019, pp. 210–235.
- [11] Young R.J., Lovell P.A., *Introduction to Polymers*, 3^e éd., CRC Press, 2011, pp. 85–98.
- [12] Strobl G., *The Physics of Polymers*, Springer, 2007, pp. 190–196.
- [13] Gedde U.W., *Polymer Physics*, Chapman & Hall, 1995, pp. 251–273.
- [14] Callister W.D., Rethwisch D.G., *Materials Science and Engineering: An Introduction*, 10^e éd., John Wiley & Sons, 2020, pp. 572–585.
- [15] Ward I.M., Sweeney J., *Mechanical Properties of Solid Polymers*, John Wiley & Sons, 2012, pp. 96–118.
- [16] Ehrenstein G.W., *Polymeric Materials*, Hanser Publishers, 2001, pp. 402–428.
- [17] Strobl G., *The Physics of Polymers*, Springer-Verlag, 2007, pp. 175–190.
- [18] Gedde U.W., Hedenqvist M.S., *Fundamental Polymer Science: An Introductory Text*, Springer, 2019, pp. 220–240.
- [19] Ward I.M., Sweeney J., *An Introduction to the Mechanical Properties of Solid Polymers*, John Wiley & Sons, 2012, pp. 95–145.
- [20] Young R.J., Lovell P.A., *Introduction to Polymers*, 3^e éd., CRC Press, 2011, pp. 98–115.
- [21] Callister W.D., Rethwisch D.G., *Materials Science and Engineering: An Introduction*, 10^e éd., John Wiley & Sons, 2020, pp. 590–595.
- [22] Sidelman J. et al., *Optical Characterization of Polymer Morphologies*, Elsevier, 2010.
- [23] Pérez-Martín J. et al., « Morphological Evolution during Crystallization of Semicrystalline



Polymers », *Polymer Crystallization*, Wiley, 2022, pp. 45–62.

[24] Raphael E. et al., « Lamellar Growth and Structural Ordering in Polymer Spherulites », *Macromolecules*, vol. 52, no. 8, 2019, pp. 3101–3115.

[25] Ward I.M., Sweeney J., *An Introduction to the Mechanical Properties of Solid Polymers*, 2^e éd., John Wiley & Sons, 2012, pp. 110–125.

[26] Strobl G., *The Physics of Polymers*, 3^e éd., Springer-Verlag, 2007, pp. 195–215.

[27] Young R.J., Lovell P.A., *Introduction to Polymers*, 3^e éd., CRC Press, 2011, pp. 115–145.

[28] Ward I.M., Sweeney J., *An Introduction to the Mechanical Properties of Solid Polymers*, 2^e éd., John Wiley & Sons, 2012, pp. 125–148.

[29] Young R.J., Lovell P.A., *Introduction to Polymers*, 3^e éd., CRC Press, 2011, pp. 132–140.

[30] Shojaei A., Li G., « Deformation-Induced Crystallization and Orientation in Semicrystalline Polymers », *Polymer Engineering and Science*, Wiley, 2013, pp. 2105–2120.

[31] Ward I.M., Sweeney J., *An Introduction to the Mechanical Properties of Solid Polymers*, 2^e éd., John Wiley & Sons, 2012, pp. 145–155.

[32] Shojaei A., Li G., « Viscoplasticity analysis of semicrystalline polymers », *International Journal of Plasticity*, vol. 42, 2013, pp. 31–49.

[33] Strobl G., *The Physics of Polymers*, 3^e éd., Springer-Verlag, 2007, pp. 220–235.

[34] Gedde U.W., Hedenqvist M.S., *Fundamentals of Polymer Engineering*, 3^e éd., Springer, 2019, pp. 260–278.

[35] Strobl G., *The Physics of Polymers*, Springer-Verlag, 2007, pp. 240–250.

[36] Gedde U.W., Hedenqvist M.S., *Fundamentals of Polymer Engineering*, 3^e éd., Springer, 2019, pp. 275–290.

[37] Callister W.D., Rethwisch D.G., *Materials Science and Engineering: An Introduction*, 9^e éd., John Wiley & Sons, 2018, pp. 610–625.

[38] Callister W.D., Rethwisch D.G., *Materials Science and Engineering: An Introduction*, vol. 9, Wiley, 2018.

[39] Young R.J., Lovell P.A., *Introduction to Polymers*, 2011, pp. 135–148.

[40] Strobl G., *The Physics of Polymers*, 3^e éd., Springer-Verlag, 2007, pp. 230–255.

[41] Callister W.D., Rethwisch D.G., *Materials Science and Engineering: An Introduction*, 10^e éd., John Wiley & Sons, 2020, pp. 600–610.

[42] Young R.J., Lovell P.A., *Introduction to Polymers*, 3^e éd., CRC Press, 2011, pp. 425–440.

[43] Young R.J., Lovell P.A., *Introduction to Polymers*, 3^e éd., CRC Press, 2011, pp. 455–475.

[44] Callister W.D., Rethwisch D.G., *Materials Science and Engineering: An Introduction*, 10^e éd., John Wiley & Sons, 2020, pp. 605–615.

[45] Gedde U.W., Hedenqvist M.S., *Fundamentals of Polymer Engineering*, 3^e éd., Springer, 2019, pp. 180–195.

[46] Strobl G., *The Physics of Polymers*, Springer, 2007, pp. 255–285.



- [47] Young R.J., Lovell P.A., *Introduction to Polymers*, 3^e éd., CRC Press, 2011, pp. 105–120.
- [48] Ward I.M., Sweeney J., *An Introduction to the Mechanical Properties of Solid Polymers*, 2^e éd., Wiley, 2012, pp. 125–145.
- [49] Gedde U.W., Hedenqvist M.S., *Fundamentals of Polymer Engineering*, 3^e éd., Springer, 2019, pp. 270–290.
- [50] Strobl G., *The Physics of Polymers*, Springer, 2007, pp. 140–165.
- [51] Brydson J.A., *Plastics Materials*, 7^e éd., Butterworth-Heinemann, 1999, pp. 245–290.
- [52] Moore E.P., *Polypropylene Handbook*, 2^e éd., Hanser Publishers, 2017.
- [53] Pasquini N., *Polyolefins: The Most Widely Used Plastics*, Wiley, 2005.
- [54] Callister W.D., Rethwisch D.G., *Materials Science and Engineering: An Introduction*, 10^e éd., Wiley, 2020.
- [55] Faruk O., Bledzki A.K., Fink H.P., Sain M., *Progress in Polymer Science*, vol. 37, 2012, pp. 1552–1596.
- [56] Pickering K.L., Efendy M.G.A., Le T.M., *Composites Part A*, vol. 83, 2016, pp. 98–112.
- [57] John M.J., Thomas S., *Carbohydrate Polymers*, vol. 71, 2008, pp. 343–364.
- [58] La Mantia F.P., Morreale M., *Composites Part A*, vol. 42, 2011, pp. 579–588.
- [59] Felix J.M., Gatenholm P., *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 42, 1991, pp. 609–620.
- [60] Li X., Tabil L.G., Panigrahi S., *Journal of Polymers and the Environment*, vol. 15, 2007, pp. 25–33.
- [61] Bledzki A.K., Gassan J., *Progress in Polymer Science*, vol. 24, 1999, pp. 221–274.
- [62] Wambua P., Ivens J., Verpoest I., *Composites Science and Technology*, vol. 63, 2003, pp. 1259–1264.
- [63] Satyanarayana K.G., Guimarães J.L., Wypych F., *Composites Part A*, vol. 38, 2007, pp. 1694–1709.
- [64] Reddy K.O., Maheswari C.U., Rajulu A.V., *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, vol. 19, 2013, pp. 1151–1155.
- [65] Campos A., Lima M.C., Ferreira F.V., Pinheiro I.F., *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 139, 2022, p. 51762.
- [66] Ramesh M., Palanikumar K., Reddy K.H., *Materials and Design*, 2021.
- [67] Srinivasan V.S. et al., *Materials Today: Proceedings*, vol. 5, 2018, pp. 4448–4454.
- [68] Hassan A. et al., *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 38, 2019, pp. 211–229.
- [69] Gurunathan T., Mohanty S., Nayak S.K., *Composites Part A*, vol. 77, 2015, pp. 1–25.
- [70] Naveen J., Jawaid M., Zainudin E.S., *Composites Part B*, vol. 182, 2020, p. 107596.
- [71] Oksman K., Skrifvars M., Selin J.-F., *Composites Science and Technology*, vol. 63, 2003, pp. 1317–1324.
- [72] Brydson J.A., *Plastics Materials*, 7^e éd., Butterworth-Heinemann, Oxford, 1999, pp. 215–245.
- [73] Vasile C., Pascu M., *Practical Guide to Polyethylene*, Smithers Rapra Publishing, 2005, pp. 105–



115.

- [74] Mohanty A.K., Misra M., Hinrichsen G., « Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites », *Macromolecular Materials and Engineering*, vol. 276–277, 2000, pp. 1–24.
- [75] Bledzki A.K., Gassan J., « Composites reinforced with cellulose based fibres », *Progress in Polymer Science*, vol. 24, 1999, pp. 221–274.
- [76] Lu J.Z., Wu Q., McNabb H.S., « Chemical coupling in wood fibre and polymer composites », *Wood and Fibre Science*, vol. 32, 2000, pp. 88–104.
- [77] Li X., Tabil L.G., Panigrahi S., « Chemical treatments of natural fiber », *Journal of Polymers and the Environment*, vol. 15, 2007, pp. 25–33.
- [78] Ichazo M.N., Albano C., González J., Perera R., Candal M.V., « Polypropylene/wood flour composites », *Composite Structures*, vol. 54, 2001, pp. 207–214.
- [79] Rahman M.R., Huque M.M., Islam M.N., Hasan M., « Mechanical properties of polypropylene composites », *Composites Part A*, vol. 41, 2010, pp. 588–593.
- [80] Saha P. et al., « Luffa fiber reinforced thermoplastic composites », *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 137, 2020, pp. 48976–48988.
- [81] Brydson J.A., *Plastics Materials*, 7^e éd., Butterworth-Heinemann, 1999.
- [82] Young R.J., Lovell P.A., *Introduction to Polymers*, 3^e éd., CRC Press, 2011.
- [83] Faruk O., Bledzki A.K., Fink H.-P., Sain M., « Biocomposites reinforced with natural fibers », *Progress in Polymer Science*, vol. 37, 2012, pp. 1552–1596.
- [84] Bledzki A.K., Gassan J., *Progress in Polymer Science*, vol. 24, 1999, pp. 221–274.
- [85] John M.J., Thomas S., *Carbohydrate Polymers*, vol. 71, 2008, pp. 343–364.
- [86] Keener T., Mohanty A.K., Misra M., « Polyolefin composites with natural fibers », *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, vol. 17, 2004, pp. 245–259.
- [87] Ashori A., « Wood–plastic composites as promising green-composites », *Bioresource Technology*, vol. 99, 2008, pp. 4661–4667.
- [88] Wambua P., Ivens J., Verpoest I., « Natural fibres: can they replace glass? », *Composites Science and Technology*, vol. 63, 2003, pp. 1259–1264.
- [89] Fu S.Y., Lauke B., Mäder E., « Effects of hybrid reinforcement on polymer composites », *Composites Science and Technology*, vol. 62, 2002, pp. 1165–1178.



CHAPITRE II : Comparaison entre les fibres naturelles et minérales





CHAPITRE II : Comparaison entre les fibres naturelles et minérales

I) Matériaux composites à matrice polymère

1. Définition et classification

Un matériau composite est défini comme un système constitué de deux ou plusieurs phases distinctes et non miscibles, dont les propriétés se complètent afin de générer un matériau final présentant des performances supérieures à celles de chaque constituant pris isolément [1]. Ces matériaux reposent sur le principe de synergie, selon lequel les propriétés globales du composite ne résultent pas d'une simple moyenne pondérée de celles des composants, mais émergent d'interactions structurales, mécaniques et physico-chimiques complexes à l'interface entre les différentes phases [2]. Cette interface joue ainsi un rôle déterminant dans le transfert des contraintes et dans la cohésion du matériau.

La structure d'un composite s'articule autour de trois constituants fondamentaux : la matrice, le renfort et l'interface [3].

- **La matrice** constitue la phase continue du composite. Elle a pour rôle de lier les renforts, d'assurer la cohésion du matériau, de transmettre et répartir les charges mécaniques et de protéger les renforts contre les agressions environnementales telles que l'humidité, les rayonnements ultraviolets ou les agents chimiques. Selon la nature de l'application, la matrice peut être polymérique (thermoplastique ou thermodurcissable), métallique, céramique ou carbonée.
- **Le renfort**, ou phase dispersée, est l'élément porteur du composite. Il supporte la majeure partie des charges mécaniques, augmente la rigidité, la résistance et améliore souvent la stabilité thermique du matériau. Les renforts peuvent être constitués de fibres (continues ou discontinues), de particules, de charges minérales, de whiskers ou de nanotubes, et leur orientation (unidirectionnelle, bidirectionnelle, tridimensionnelle ou aléatoire) influence directement les propriétés mécaniques globales du composite.
- **L'interface** représente la région de transition entre la matrice et le renfort. Elle assure un transfert efficace des contraintes entre les deux phases. Une adhésion interfaciale solide est essentielle pour exploiter pleinement le potentiel mécanique du renfort. Pour améliorer cette liaison, diverses techniques sont employées, telles que les traitements



de surface des renforts, l'utilisation d'agents de couplage (comme les silanes) ou encore de compatibilisants chimiques adaptés à la matrice.

La classification des composites repose principalement sur la nature du renfort et sa configuration au sein de la matrice. On distingue d'une part les **composites à renfort particulaire**, où des particules solides sont dispersées dans une matrice pour améliorer la rigidité, la stabilité dimensionnelle ou la résistance à l'usure, et d'autre part les **composites à renfort fibreux**, beaucoup plus utilisés dans les applications structurales. Ces derniers peuvent être constitués de fibres continues (unidirectionnelles ou bidirectionnelles) ou de fibres discontinues (alignées ou aléatoirement orientées), chaque configuration offrant un compromis spécifique entre résistance mécanique directionnelle, isotropie et facilité de mise en œuvre.

Classification des composites

1. Selon la nature de la matrice :

Les composites à matrice polymère (CMP ou PMC) représentent la famille la plus répandue dans les applications industrielles. Leurs matrices peuvent être thermodurcissables (résines époxy, polyesters insaturés, phénoliques, vinylesters) ou thermoplastiques (polypropylène, polyamides, PEEK, PPS). Ces matériaux sont renforcés par divers agents tels que des fibres de verre, de carbone, d'aramide ou naturelles, ainsi que par des particules minérales. Leur succès réside dans leur légèreté, leur facilité de mise en œuvre, leur coût modéré et leur résistance à la corrosion, tout en permettant la réalisation de formes complexes. Néanmoins, leur température d'utilisation reste limitée (généralement inférieure à 200–300 °C selon la matrice), et ils présentent une résistance variable aux solvants ainsi qu'une inflammabilité inhérente aux matrices organiques. Ces composites sont largement utilisés dans les secteurs de l'aéronautique, de l'automobile, du sport, de la construction, de l'énergie éolienne et du domaine maritime [4].

Les composites à matrice métallique (CMM ou MMC) et céramique (CMC) se distinguent par leurs performances à haute température. Les CMM utilisent des alliages d'aluminium, de magnésium, de titane ou de cuivre comme matrices, renforcés par des fibres de carbone, du carbure de silicium (SiC), de l'alumine (Al_2O_3) ou d'autres particules céramiques. Ils offrent



une excellente conductivité thermique et électrique, une bonne ductilité et une stabilité mécanique à haute température, bien que leur densité élevée, leur coût et la complexité de mise en œuvre (frittage, infiltration ou pulvérometallurgie) limitent leur utilisation. Quant aux composites à matrice céramique (CMC), ils intègrent des matrices à base de SiC , Al_2O_3 , Si_3N_4 ou verre-céramique, combinées à des renforts similaires. Ces matériaux présentent une résistance exceptionnelle à l'oxydation, à l'usure et aux températures extrêmes ($>1000^\circ\text{C}$), associée à une grande légèreté. Leur principal inconvénient demeure leur fragilité, leur coût très élevé et une mise en œuvre complexe nécessitant des procédés de frittage haute température ou d'infiltration chimique en phase vapeur (CVI).

2. Selon la géométrie du renfort et l'architecture structurale :

La classification des matériaux composites repose principalement sur la nature géométrique du renfort et sur l'architecture structurale de l'assemblage. La géométrie du renfort détermine de manière significative l'anisotropie, la mise en œuvre et les domaines d'application du composite [5].

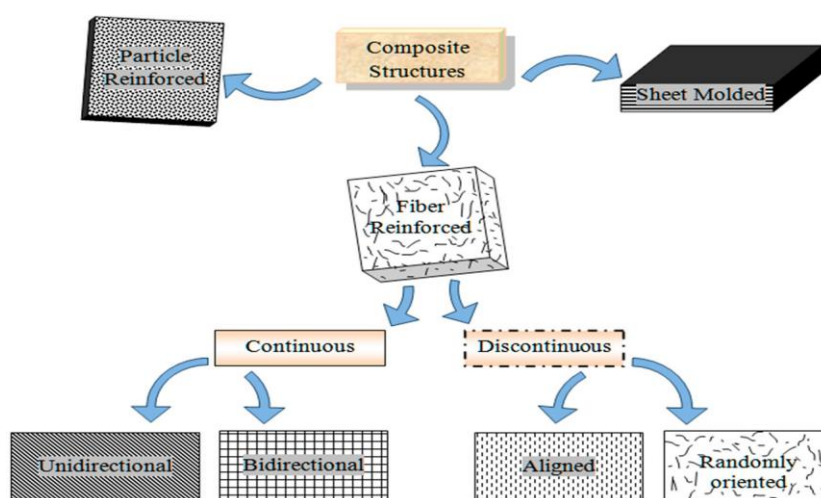


Figure 1. Classification des composites.

Les composites à fibres continuent unidirectionnelles constituent la forme la plus performante en termes de propriétés mécaniques directionnelles. Ils sont composés de fibres longues et alignées dans une seule direction privilégiée, ce qui confère au matériau une forte anisotropie : les propriétés mécaniques sont excellentes dans le sens des fibres, mais beaucoup plus



faibles transversalement. Ce type de composite est couramment utilisé dans les applications structurales hautement sollicitées dans une direction donnée, telles que les pales d'éoliennes, les coques de bateaux ou les structures aéronautiques.

Les composites à fibres courtes ou discontinues se distinguent, quant à eux, par la présence de fibres de longueur limitée (généralement de quelques millimètres à quelques centimètres), orientées de manière aléatoire ou partiellement alignée. Cette configuration leur confère un comportement quasi-isotrope lorsque l'orientation est aléatoire, tout en facilitant considérablement les procédés de mise en œuvre tels que l'injection ou l'extrusion. Ces matériaux sont donc particulièrement adaptés à la fabrication de pièces automobiles injectées ou de biens de consommation, où la simplicité de transformation et la reproductibilité sont essentielles.

Les composites à fibres tissées, comprenant des tissus, mats ou tresses, associent des fibres continues organisées en architectures textiles bidimensionnelles ou tridimensionnelles. Ce type de renfort permet d'obtenir un équilibre des propriétés mécaniques dans plusieurs directions, offrant une résistance accrue aux contraintes multiaxiales. De tels composites sont employés dans des secteurs où la rigidité et la stabilité dimensionnelle sont requises, comme les carrosseries, coques de véhicules ou réservoirs pressurisés.

Parallèlement, les composites à particules reposent sur l'incorporation de charges de forme sphérique, angulaire ou lamellaire, dont la taille varie de l'échelle micrométrique à nanométrique. Ces composites présentent des propriétés isotropes et sont principalement utilisés pour améliorer la rigidité, la dureté, la stabilité dimensionnelle, la résistance à l'usure ou encore la conductivité thermique du matériau. Les exemples typiques incluent les polymères chargés au talc, au carbonate de calcium ou à l'alumine, ainsi que divers revêtements techniques.

Enfin, les composites hybrides combinent plusieurs types de renforts — tels que fibres et particules ou encore fibres naturelles et synthétiques — afin de tirer parti des effets synergiques et d'optimiser le compromis performance/coût. Ces combinaisons permettent de développer des matériaux à propriétés ajustables selon les besoins de l'application. Des exemples courants incluent les systèmes verre/carbone, lin/verre, ou encore Luffa/alumine, étudié dans le cadre de la présente recherche pour exploiter les complémentarités entre renforts naturels et charges inorganiques.



Du point de vue architectural, la classification des composites s'étend au-delà de la géométrie du renfort pour inclure l'organisation des couches et des volumes internes [6]. Les composites stratifiés (laminates) consistent en un empilement de couches unidirectionnelles ou tissées, orientées selon différents angles, afin d'optimiser la résistance mécanique et la rigidité dans plusieurs directions. Les structures sandwiches associent quant à elles deux peaux rigides en matériau composite à une âme légère, souvent alvéolaire ou mousseuse, permettant d'obtenir un rapport rigidité/masse exceptionnel en flexion. Enfin, les composites tridimensionnels englobent des architectures complexes tissées ou tressées en 3D, qui assurent une continuité structurelle et une résistance accrue à la délamination, tout en favorisant une meilleure dissipation des contraintes internes.

Importance des fibres de renfort dans les composites

Les fibres constituent le renfort le plus efficace pour améliorer les propriétés mécaniques des composites polymères en raison de leur géométrie élancée (rapport longueur/diamètre ou facteur de forme élevé, typiquement >100) et de leurs excellentes propriétés mécaniques spécifiques (résistance et module rapportés à la masse volumique) [7].

II) Fibres naturelles Cas des fibres de Luffa

1. Définition et origine

Les fibres de Luffa sont des fibres lignocellulosiques d'origine végétale extraites du réseau vasculaire fibreux du fruit mature de plantes du genre *Luffa* (famille des Cucurbitacées), principalement *Luffa cylindrica* et, dans une moindre mesure, *Luffa acutangula*. [8] Ces plantes sont des lianes grimpantes annuelles cultivées dans les régions tropicales et subtropicales du monde entier pour leurs fruits aux usages multiples [9].

Le fruit de *Luffa cylindrica* est une courge cylindrique allongée (20–60 cm de longueur, 6–10 cm de diamètre) dont la chair verte immature est comestible et consommée comme légume dans de nombreux pays asiatiques [10]. Lorsque le fruit arrive à maturité complète, la peau extérieure sèche et la chair se déshydrate, révélant un réseau fibreux squelettique tridimensionnel très résistant et interconnecté, constitué du système vasculaire lignifié de la plante. Ce réseau fibreux, une fois séparé de la peau et des graines, constitue la « éponge de Luffa » ou « loofah », traditionnellement utilisée comme éponge végétale pour le bain, la toilette, ou le nettoyage domestique depuis des siècles.



2. Propriétés physico-chimiques et mécaniques

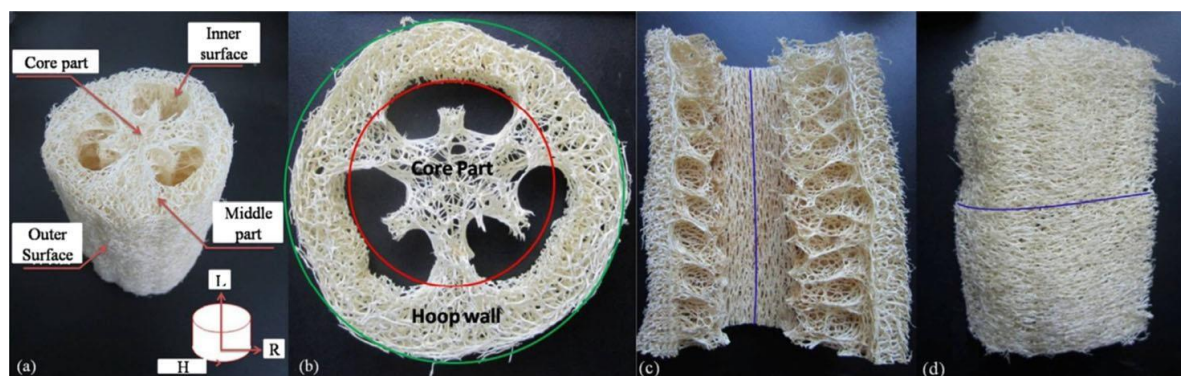
Composition chimique

Les fibres de *Luffa cylindrica*, à l'instar de la plupart des fibres lignocellulosiques d'origine végétale, présentent une structure chimique complexe constituée majoritairement de trois polymères naturels : la cellulose, l'hémicellulose et la lignine, auxquels s'ajoutent des constituants mineurs tels que les extractibles, les cendres minérales et l'humidité.⁵ La composition moyenne, exprimée en pourcentage de masse sèche, varie généralement entre 55–65 % de cellulose, 15–25 % d'hémicellulose, 10–15 % de lignine, 2–5 % d'extractibles, 8–12% d'humidité et 1–3 % de cendres. Cette proportion est comparable à celle d'autres fibres naturelles telles que le jute, le sisal ou le lin, mais la Luffa se distingue par une teneur relativement élevée en cellulose et une fraction modérée en lignine, indiquant un potentiel intéressant comme renfort pour les composites polymères [11].

Structure du faisceau fibreux de la *Luffa cylindrica*

Chen et al. ont décrit la structure hiérarchique des fibres de *Luffa cylindrica*, constituée de quatre sections distinctes : la section externe, la section intermédiaire, la section interne et la section centrale. La paroi annulaire (ou hoop wall) est formée des trois premières couches et comprend les couches externes, interne et intermédiaire [12].

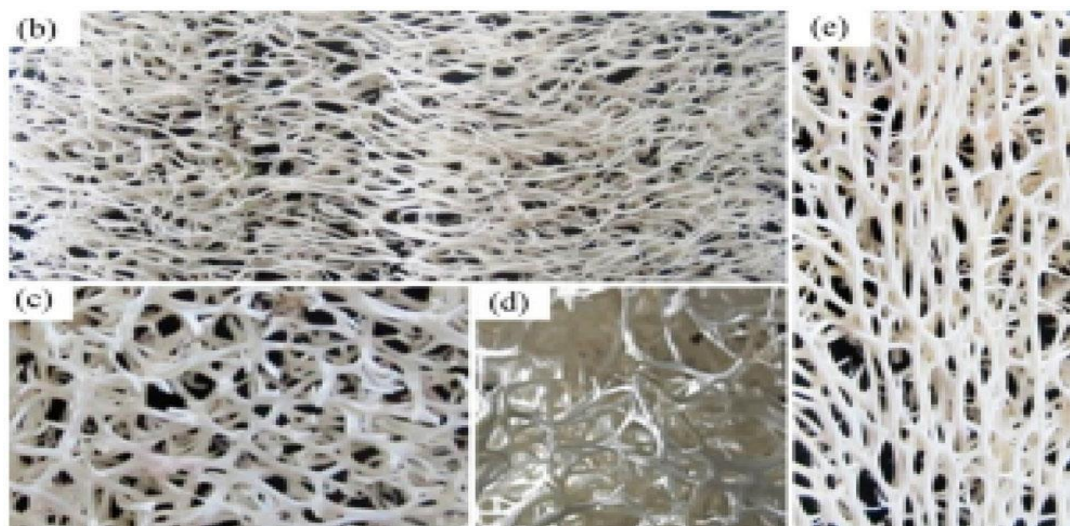
Dans une étude complémentaire, Chen et al. ont proposé une autre classification des fibres de Luffa en fonction de leur densité, distinguant les fibres de faible densité (LD) et celles de haute densité (HD). Pour les fibres de Luffa à faible densité, les diamètres moyens des faisceaux fibreux dans les couches externe, intermédiaire, interne et médiane sont respectivement de 353,3 μm , 288,7 μm , 451,3 μm et 481,3 μm [13].



**Figure 02 :** Structure de *Luffa cylindrica*

Les fibres de Luffa à haute densité (HD-LCF) présentent, quant à elles, des diamètres variables selon la couche : 550,3 μm pour la couche externe, 457,0 μm pour la couche intermédiaire, 634,3 μm pour la couche interne et 535,3 μm pour la couche médiane. Il est intéressant de noter que la couche interne possède le diamètre de faisceau le plus important. Par ailleurs, la paroi annulaire des fibres à faible densité est environ 200 μm plus large que celle des fibres à haute densité.

Chaque couche des fibres de Luffa présente des caractéristiques morphologiques distinctes. La couche externe est principalement constituée de fibres fines disposées circulairement autour de la structure spongieuse. La couche interne, en revanche, se compose de faisceaux fibreux droits orientés selon l'axe longitudinal, tandis que la couche intermédiaire forme un réseau complexe de fibres entrecroisées. Enfin, la distinction entre la paroi annulaire et le cœur est bien marquée : la zone centrale renferme des fibres faiblement connectées, au sein desquelles se trouve une fibre unique s'étendant sur tout l'axe longitudinal de la *Luffa cylindrica* (Figure 4).

**Figure 03 :** structure en faisceau des fibres de *luffa cylindrica*

Caractéristiques morphologiques

Les fibres naturelles issues du *Luffa cylindrica* se distinguent par une structure tridimensionnelle légère, poreuse et réticulée, conférant au matériau un excellent rapport résistance/masse. L'observation en coupe longitudinale révèle une organisation alvéolaire de



type nid-d'abeilles, tandis que la coupe transversale met en évidence des faisceaux vasculaires polygonaux entourés de tissus parenchymateux. Cette architecture interne complexe favorise à la fois la flexibilité et la rigidité du réseau fibreux. Les analyses réalisées par microscopie électronique à balayage (MEB), rapportées dans des travaux récents, confirment la présence de canaux creux longitudinaux et d'une rugosité de surface marquée, comportant des irrégularités, des microcavités et des aspérités [15,16]. Ces particularités morphologiques contribuent à améliorer l'adhérence interfaciale entre les fibres et les matrices polymères, un paramètre essentiel pour le transfert de contrainte et les performances mécaniques globales des composites à base de *Luffa*.

La structure interne des fibres présente une porosité hiérarchisée à plusieurs échelles, influençant de manière significative leurs propriétés physiques et fonctionnelles [17]. On distingue une macroporosité correspondant aux cellules ouvertes du réseau fibreux (de l'ordre du millimètre), une mésoporosité liée aux espaces inter-faisceaux et aux lumens cellulaires (10–100 μm), ainsi qu'une microporosité correspondant à la porosité interne des parois cellulaires et aux interstices submicroniques ($< 1 \mu\text{m}$). Cette porosité multi-échelle, combinée à la nature lignocellulosique du matériau, explique sa faible densité, sa forte capacité d'absorption d'eau et ses bonnes propriétés d'isolation thermique et acoustique [18]. Ces caractéristiques confèrent aux fibres de *Luffa cylindrica* un potentiel intéressant pour la conception de composites légers et écologiques destinés à des applications d'isolation, d'absorption d'énergie et de réduction de masse structurelle.

Composition chimique de la fibre de *Luffa cylindrica* :

1. Composition chimique :

Cellulose

La cellulose constitue le principal composant structural de la fibre et joue un rôle déterminant dans la rigidité, la résistance à la traction et la stabilité dimensionnelle. Il s'agit d'un polymère linéaire de D-glucopyranose, dont les unités sont liées par des liaisons β -(1 $\rightarrow$ 4)-glucosidiques, selon la formule générale $(\text{C}_6\text{H}_{10}\text{O}_5)_n$. Ce polymère, synthétisé à la membrane plasmique par un complexe enzymatique de cellulose synthase, s'assemble en microfibrilles cristallines orientées parallèlement à l'axe de la fibre. Chacune de ces microfibrilles, formée d'environ 36 chaînes de β -(1,4)-glucanes, s'agrége en fibrilles mesurant entre 3 et 5 nm de



diamètre et pouvant atteindre plusieurs micromètres de longueur. Ces fibrilles, liées entre elles par des liaisons hydrogène, forment une structure cristalline hautement ordonnée qui confère à la fibre sa résistance mécanique et sa rigidité directionnelle [19].

Hémicellulose

L'hémicellulose, deuxième constituant majeur des fibres de Luffa (15–25 %), est un polysaccharide amorphe et ramifié formant une matrice inter-fibrillaire entre la cellulose et la lignine. Contrairement à la cellulose, sa structure est non cristalline et se compose de résidus pyranosiques de glucose, mannose, xylose ou galactose, liés principalement par des liaisons (1→4). Ces polymères sont classés en xylanes, mannans, galactomannans, xyloglucanes et glucuronomannans, selon leur composition monosaccharidique et leur origine botanique. L'hémicellulose joue un rôle essentiel dans la cohésion et la flexibilité des parois cellulaires, tout en conférant aux fibres une forte hydrophilie en raison de la présence de groupes hydroxyles. Cette hydrophilie, favorable à la rétention d'eau, constitue toutefois un facteur limitant pour la compatibilité avec les matrices polymères hydrophobes, nécessitant souvent un traitement de surface alcalin (NaOH) pour réduire sa proportion ou modifier ses propriétés de surface [20].

Lignine

La lignine, qui représente environ 10 à 15 % de la masse totale des fibres, est un polymère tridimensionnel complexe formé d'unités de phénylpropane interconnectées par des liaisons éther et C–C. Elle confère aux fibres une rigidité structurelle, une résistance à la compression, et une protection contre les dégradations biologiques et chimiques. Sa nature partiellement hydrophobe améliore la résistance à l'humidité et la stabilité thermique, contribuant ainsi à la durabilité des fibres lignocellulosiques. Cependant, une teneur trop élevée en lignine peut réduire la flexibilité des fibres et nuire à la qualité de l'adhésion interfaciale dans les composites [21].

Extractibles

Les extractibles (2–5 %) comprennent diverses substances organiques telles que les cires, pectines, glycosides, protéines et polypeptides, généralement éliminées lors des traitements de purification. Ces composés influencent la mouillabilité et la réactivité chimique de la surface fibreuse. Les cendres minérales (1–3 %) correspondent à la fraction inorganique, constituée



principalement de silice, oxydes métalliques et sels minéraux, qui peut contribuer à la conductivité thermique et à la résistance à l'usure. Enfin, la teneur en humidité, variant entre 8 et 12 % à l'équilibre hygroscopique, est liée à la présence de groupes hydroxyles hydrophiles et dépend fortement des conditions environnementales [22].

2. Propriétés physiques :

Les fibres de *Luffa cylindrica* présentent des propriétés physiques remarquablement distinctes, principalement liées à leur structure interne poreuse et réticulée. Leur densité extrêmement faible (0,40–0,55 g/cm³) les distingue nettement des autres fibres végétales (1,3–1,5 g/cm³) et des fibres de verre (2,54 g/cm³), cette légèreté étant directement attribuable à leur architecture tridimensionnelle alvéolaire [23].

Leur porosité élevée (85–90 %) et leurs canaux interconnectés (50–500 µm) favorisent une grande perméabilité et une absorption d'eau pouvant atteindre 200–400 % de la masse sèche après immersion prolongée [24]. Les fibres élémentaires, d'un diamètre variable (50–200 µm), se présentent sous forme de faisceaux vasculaires entrelacés, difficiles à isoler sans altération structurale [25].

Ces caractéristiques expliquent à la fois leur faible densité, leur forte capacité d'imbibition, et leurs bonnes performances d'isolation thermique et acoustique, mais posent également des défis d'adhésion interfaciale dans les matrices polymères hydrophobes [26].

3. Propriétés mécaniques :

Sur le plan mécanique, les fibres de *Luffa cylindrica* présentent des performances modestes comparées à celles d'autres fibres végétales plus rigides telles que le jute ou le lin. Le module d'Young des fibres varie entre 0,2 et 2,0 GPa, tandis que la résistance à la traction se situe généralement entre 5 et 30 MPa, soit plusieurs ordres de grandeur inférieurs aux valeurs observées pour les fibres techniques naturelles ou minérales [27].

En revanche, leur allongement à la rupture compris entre 5 et 25 % traduit une ductilité modérée et une bonne capacité d'absorption d'énergie, conférant aux structures à base de *Luffa* un comportement pseudo-élastique proche de celui des mousses végétales [28]. Bien que ces fibres ne soient pas adaptées à des applications structurales exigeantes, leur structure poreuse, légère et compressible leur confère un intérêt considérable pour des usages



d'amortissement, d'isolation phonique et d'allègement dans les composites polymères[29]. Le Tableau 04 présente les principales propriétés mécaniques rapportées dans la littérature, illustrant la variabilité des résultats selon la morphologie des fibres, les traitements chimiques appliqués et les conditions expérimentales[30].

Travaux de recherche antérieurs sur l'incorporation des fibres de *Luffa cylindrica* dans des matrices polymères

Bien que les fibres de *Luffa cylindrica* aient été utilisées comme éponges naturelles depuis longtemps, leur intégration dans des composites à matrice polymère n'a réellement émergé que durant les deux dernières décennies [31]. Comparées à des fibres végétales plus étudiées telles que le lin, le jute ou le chanvre, les recherches sur la *Luffa* restent plus limitées, mais elles reflètent un intérêt croissant pour cette bio-ressource renouvelable [32].

Les premières études ont porté principalement sur des matrices thermodurcissables, comme les résines polyesters ou époxydes. Par exemple, dans des composites *Luffa*/polyester insaturé, l'ajout de 10 à 40 % en masse de fragments de réseau de *Luffa* a permis une augmentation modérée du module d'Young (+20 à +50 %), bien que la résistance à la traction reste faible en raison d'une adhésion interfaciale limitée [33]. Ces matériaux se distinguent néanmoins par leur faible densité, leur bonne absorption d'énergie et leurs propriétés acoustiques, ce qui les rend intéressants pour des applications d'isolation phonique ou d'emballage durable.

Concernant les matrices thermoplastiques, les travaux sont moins nombreux, notamment en raison des défis liés à la structure volumique de la *Luffa*. Dans les composites *Luffa*/PP, on note des problèmes de dispersion des fibres, d'agglomération et de dégradation thermique des fibres végétales à des températures $> 180^{\circ}\text{C}$. L'utilisation d'agents de couplage comme le MAPP a permis d'améliorer la compatibilité interfaciale et le module d'élasticité (+10 à +40 %). Plus récemment, l'association de fibres de *Luffa* à des matrices biodégradables comme le PLA a suscité un vif intérêt pour des composites entièrement écologiques, adaptés à l'emballage et à l'agriculture verte [34].

Dans l'ensemble, les études antérieures convergent vers des applications non-structurelles, tirant parti de la légèreté, de la porosité et de la capacité d'absorption de la *Luffa* : matériaux d'amortissement, panneaux acoustiques, structures sandwich légères, filtres, substrats de



culture. Toutefois, plusieurs limitations persistent : faible résistance mécanique, forte hydrophilie, variabilité naturelle des propriétés selon l'origine de la fibre, et disponibilité industrielle encore réduite, ce qui freine une exploitation à grande échelle [35].

Les performances des composites renforcés par des fibres de Luffa dépendent surtout des traitements de surface appliqués pour améliorer l'adhésion interfaciale. Les fibres brutes, riches en hémicellulose, lignine, cires et pectines, présentent une forte hydrophilie qui réduit leur compatibilité avec des matrices polymères apolaires [36]. Parmi les traitements chimiques, l'alcalinisation (NaOH) demeure la méthode la plus courante : elle élimine les composants amorphes, expose les microfibrilles cellulaires et accroît la rugosité de surface, améliorant ainsi notablement les propriétés mécaniques et diminuant l'absorption d'eau [37]. Des études récentes ont aussi confirmé l'efficacité de la silanisation, créant des liaisons covalentes entre les groupements hydroxyles des fibres et les chaînes polymères, ce qui renforce la cristallinité et la résistance à l'impact.

III) Fibres minérales – Cas de l'alumine (Al_2O_3)

1. Définition et caractéristiques

Structure et propriétés fondamentales de l'alumine

L'alumine (oxyde d'aluminium, Al_2O_3) est une céramique technique minérale d'importance majeure dans le domaine des matériaux avancés, en raison de ses propriétés exceptionnelles. Elle se distingue par une dureté élevée, une stabilité chimique et thermique remarquable, ainsi qu'une résistance notable à l'usure et à l'abrasion. De plus, son coût relativement modéré comparé à d'autres céramiques telles que le carbure de silicium (SiC), le nitrure de silicium (Si_3N_4) ou la zircone (ZrO_2) en fait un matériau de choix pour les applications industrielles exigeantes [38]. Ces propriétés font de l'alumine un composant essentiel dans les céramiques techniques, les revêtements de surface, les matériaux abrasifs, et les composites polymères renforcés.

Phases cristallines et intérêt dans les matériaux composites

Sur le plan structural, l'alumine existe sous plusieurs phases cristallographiques dont la stabilité dépend de la température [39]. La phase α -alumine (corindon) est la forme thermodynamiquement stable au-delà de 1000 °C. Elle adopte une structure cristalline



rhomboédrique (groupe d'espace $R\bar{3}c$) constituée d'un réseau compact d'ions O^{2-} , dans lequel les ions Al^{3+} occupent des sites octaédriques, comme illustré dans la figure ci-dessous. Cette configuration confère à la phase $\alpha-Al_2O_3$ une dureté Vickers comprise entre 2000 et 2200 kg/mm², un module d'Young d'environ 400 GPa et une température de fusion proche de 2050 °C, ce qui justifie son usage dominant dans les céramiques techniques et les abrasifs.

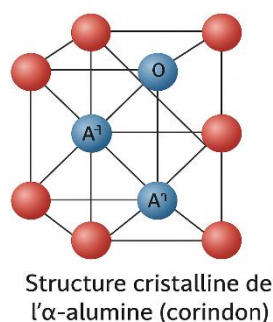


Figure 4 L'alumine (oxyde d'aluminium, Al_2O_3), La phase α -alumine (corindon)

Les alumines de transition, telles que γ -, δ -, θ - ou κ - Al_2O_3 , sont des phases métastables obtenues par déshydratation thermique des hydroxydes d'aluminium (boehmite, gibbsite) dans une plage de températures comprises entre 200 °C et 1000 °C¹. Parmi elles, la γ -alumine, présentant une structure de type spinelle déficiente, se caractérise par une très grande surface spécifique (100–300 m²/g), ce qui la rend particulièrement adaptée aux applications en tant que support catalytique ou matériau adsorbant [40].

Pour les applications de renforcement dans les composites polymères, la phase α -alumine est préférée en raison de ses propriétés mécaniques supérieures et de sa stabilité thermique élevée [41]. Cette phase, connue sous le nom de corindon, adopte une structure cristalline rhomboédrique (groupe d'espace $R\bar{3}c$) dans laquelle les ions Al^{3+} occupent des sites octaédriques au sein d'un réseau compact d'ions O^{2-} , conférant à la phase α - Al_2O_3 une dureté et un module d'Young remarquables.

La morphologie et la taille des particules jouent un rôle déterminant sur l'efficacité du renforcement. Pour les matrices thermoplastiques à température modérée, comme le polypropylène (PP) ou le polyéthylène haute densité (PEHD), on privilégie généralement des particules sphériques ou angulaires de taille micronique (1–20 μ m) [42]. Ce choix repose sur plusieurs facteurs : disponibilité commerciale, coût économique, facilité de dispersion dans la



matrice polymère, et sécurité lors de la manipulation industrielle.

Dans le contexte du génie des matériaux modernes, la recherche vise à développer des composites plus légers, plus rigides et plus performants, en maximisant le rapport résistance/poids tout en optimisant la résistance à la corrosion et aux conditions thermiques⁴. L'utilisation de l'aluminium comme matrice ou élément de structure bénéficie de son excellent rapport résistance/poids et de sa bonne résistance à la corrosion, mais ses limites mécaniques (module élastique modéré et faible résistance à l'usure) imposent souvent un renforcement par des phases céramiques comme l'alumine pour améliorer significativement ses performances mécaniques et thermiques [43].

3. Applications dans les composites polymères

L'intégration de particules d'alumine dans les matrices polymères thermoplastiques ou thermodurcissables constitue une stratégie éprouvée pour améliorer simultanément les propriétés mécaniques, thermiques et fonctionnelles des composites [44]. Grâce à son module d'Young très élevé (~ 400 GPa), l'alumine agit comme une charge de renforcement efficace, permettant d'accroître la rigidité, la dureté et la résistance à l'usure des polymères. Selon la teneur en charge (10–40 % en poids), des gains significatifs peuvent être observés, allant de +50 % jusqu'à +300 % en module et résistance mécanique [45].

La stabilité thermique exceptionnelle de l'alumine (>1700 °C) confère aux composites une résistance accrue aux hautes températures et réduit le fluage, ce qui les rend adaptés à des applications exigeantes telles que les composants automobiles soumis à des charges thermomécaniques, les pièces moteur ou les substrats électroniques [46]. En outre, l'alumine améliore la conductivité thermique (20–35 W/m·K contre 0,1–0,5 W/m·K pour les polymères purs), contribue à la résistance au feu grâce à son caractère incombustible et endothermique, et stabilise dimensionnellement le composite en réduisant le coefficient de dilatation thermique [47]. Ces propriétés font de l'alumine un choix privilégié pour les boîtiers électriques et électroniques, où rigidité diélectrique et isolation thermique sont requises.

3.1 Inconvénients et limites d'utilisation

Malgré ses nombreux avantages, l'incorporation de l'alumine dans les polymères présente certaines contraintes techniques et mécaniques qu'il convient de maîtriser [48]. La présence de particules rigides et fragiles peut réduire la ductilité et la résistance aux chocs, en



favorisant la formation de zones de concentration de contraintes susceptibles d'amorcer des fissures. De plus, la densité élevée de l'alumine ($3,95 \text{ g/cm}^3$) entraîne un accroissement du poids du composite, limitant son utilisation dans des applications où la légèreté est cruciale, comme dans les secteurs automobile ou aéronautique.

Sur le plan du traitement, l'augmentation de la viscosité du polymère fondu complique les procédés d'extrusion et d'injection, et l'abrasivité des particules accélère l'usure des équipements [49]. Enfin, la faible compatibilité interfaciale entre les surfaces polaires de l'alumine et les matrices apolaires (PP, PE, PEHD) peut compromettre le transfert de charge et favoriser la formation de vides, entraînant une diminution des performances mécaniques. Pour pallier ces limitations, des agents de couplage (silane, titanate) ou des traitements de surface de l'alumine sont souvent appliqués, afin d'améliorer l'adhésion matrice-particule et d'optimiser les propriétés finales du composite.

3.2 Perspectives et optimisations

Les recherches récentes mettent l'accent sur l'optimisation de la dispersion des particules et la modification chimique des surfaces pour maximiser l'efficacité du renforcement. Les particules nano-structurées ou micro-whiskers offrent un meilleur transfert de charge et une plus grande résistance à l'usure, tandis que les traitements hybrides combinant silanisation et greffage de chaînes polymères améliorent la compatibilité avec des matrices apolaires. De plus, l'utilisation de systèmes hybrides (alumine + fibres naturelles ou nanotubes de carbone) permet de combiner rigidité, résistance thermique et ténacité, ouvrant de nouvelles perspectives pour les applications automobiles, aéronautiques et électroniques.

4. Travaux antérieurs sur l'utilisation de l'alumine comme renfort

L'utilisation de particules d'alumine (Al_2O_3) comme charge de renforcement dans les matrices polymères est une pratique bien établie depuis plusieurs décennies, soutenue par une abondante littérature scientifique et de nombreuses applications industrielles¹. Ces recherches démontrent que l'ajout d'alumine améliore significativement la rigidité, la résistance à l'usure et les propriétés thermiques des composites en agissant comme phase porteuse et en optimisant le transfert de contraintes au sein de l'interface matrice-charge [50].

L'alumine existe sous différentes formes cristallines, principalement α - et γ - Al_2O_3 , chacune offrant des avantages distincts pour le renforcement. Les fibres d' α - Al_2O_3 présentent une



excellente résistance à la traction et une stabilité thermique élevée, ce qui les rend adaptées aux applications exigeantes à haute performance [51]. En revanche, les nanoparticules de γ - Al_2O_3 , caractérisées par leur grande surface spécifique, sont préférées lorsqu'une forte interaction interfaciale avec les chaînes polymères est recherchée [52].

Dans les composites à base d'époxy, l'incorporation de nanoparticules d'alumine a montré des améliorations notables de la dureté, de la résistance à la traction et de la stabilité thermique [53]. Pour maximiser ces effets, des traitements de surface tels que la silanisation sont largement employés pour réduire l'agglomération et améliorer la compatibilité chimique avec la matrice. Par exemple, les agents de couplage silanés (aminopropyl- ou glycidoxysilanes) permettent une meilleure affinité avec les réseaux époxy, améliorent la dispersion et augmentent significativement la ténacité à la fracture ainsi que la résistance au cisaillement interfacial [54]. D'autres méthodes de fonctionnalisation — greffage de chaînes polymères, traitements à l'acide phosphonique ou gras, et traitements plasma — ont également été utilisées pour diminuer l'attraction interparticulaire et créer une interphase favorisant le transfert de charge [55].

Les matrices polyoléfiniques (LDPE, HDPE, PP) posent un défi supplémentaire en raison de leur faible polarité et de leur compatibilité limitée avec les surfaces céramiques. Les composites polyéthylène-alumine montrent néanmoins des gains significatifs en propriétés mécaniques, thermiques et diélectriques [56]. La distribution uniforme des nanoparticules, obtenue par des procédés tels que le mélange thermo-cinétique, améliore le module de traction, réduit le taux d'usure et renforce la résistance au fluage à haute température [57].

Dans les composites à base de polypropylène, l'alumine constitue également un renfort efficace, particulièrement lorsqu'elle est combinée à des traitements de surface ou à des charges hybrides. Des systèmes hybrides intégrant fibres naturelles et nanoparticules d'alumine ont démontré des effets synergiques : les fibres contribuent à la ténacité tandis que l'alumine renforce la résistance thermique et la dureté [58]. Ces systèmes sont particulièrement adaptés aux secteurs automobile et aéronautique où des propriétés mécaniques et thermiques équilibrées sont requises.

D'autres polymères haute performance, tels que le nylon et le PEEK, bénéficient également de l'ajout d'alumine. Les composites nylon-alumine présentent des coefficients de frottement réduits et une meilleure résistance à l'usure, ce qui les rend attractifs pour des applications



tribologiques [59]. Dans les matrices PEEK, les nanoparticules d'alumine améliorent significativement le module et la conductivité thermique, renforçant ainsi leur aptitude pour des composants exposés à des environnements extrêmes [60].

L'efficacité des charges d'alumine dépend fortement de la taille des particules, du traitement de surface et de la technique de mise en œuvre [61]. Les nanoparticules offrent un plus grand effet interfacial et un meilleur renforcement par unité de masse, mais elles nécessitent une modification de surface adéquate pour éviter l'agglomération et les concentrations de contraintes qui détérioreraient les performances mécaniques [62].

L'ensemble des recherches sur les composites polymères renforcés par l'alumine démontre de manière constante que cette charge céramique améliore significativement les propriétés mécaniques, thermiques et morphologiques des matériaux, à condition que la dispersion des particules et leur compatibilité avec la matrice soient correctement maîtrisées [63]. Ces résultats confirment le potentiel de l'alumine comme renfort polyvalent, notamment dans des secteurs exigeant des matériaux légers, durables et stables thermiquement, tels que l'aéronautique, l'automobile et l'électronique [64].

Au-delà du renforcement mécanique, l'alumine confère également des avantages fonctionnels aux composites. Elle accroît la conductivité thermique des polymères à des charges modérées ou élevées et améliore la stabilité thermique en agissant comme barrière à la diffusion de l'oxygène et comme puits thermique retardant la décomposition [65]. Cette propriété rend les composites Al_2O_3 particulièrement attractifs pour des applications de gestion thermique et des composants soumis à des températures élevées. Dans les applications électriques et diélectriques, l'oxyde d'aluminium est un matériau isolant avec une grande rigidité diélectrique ; la dispersion d'alumine permet ainsi de maintenir ou d'améliorer les propriétés diélectriques tout en renforçant mécaniquement le composite [66]. Sur le plan tribologique, les polymères chargés en alumine présentent généralement une réduction du coefficient de frottement et une résistance accrue à l'usure ; les études sur le nylon et d'autres plastiques techniques indiquent que l'ajout de particules dures Al_2O_3 réduit l'usure adhésive et fournit une couche de surface plus dure et résistante à l'abrasion [67].

La littérature souligne de manière récurrente que la région interfaciale et l'état de dispersion gouvernent la performance finale des composites. Les études comparatives montrent que l'alumine non traitée, lorsqu'elle est introduite sous forme de nanoparticules, induit des gains



de propriétés uniquement jusqu'à un certain seuil de chargement ; au-delà, l'agglomération et la faible liaison interfaciale dégradent la ténacité et peuvent même réduire le module en raison de la formation de vides [68]. La modification de surface s'avère donc essentielle : la silanisation améliore la liaison chimique avec les matrices polaires telles que les époxy ; le greffage de polymères et l'emploi de compatibilisants rendent la surface céramique plus organophile pour les polyoléfinés ; enfin, les traitements thermiques peuvent modifier la composition de phase (transition $\gamma \rightarrow \alpha$) et l'état d'hydroxylation de surface, influençant à la fois la chimie d'adhésion et la stabilité thermique [69].

L'adoption de stratégies de renfort hybrides — combinant alumine avec des charges carbonées (graphène, nanotubes de carbone) ou des fibres naturelles — produit fréquemment des effets synergiques. Les particules céramiques apportent dureté, stabilité thermique et résistance à l'usure, tandis que les fibres ou charges carbonées améliorent la ténacité et les chemins de percolation thermique ou électrique [70]. Ces systèmes hybrides se révèlent particulièrement efficaces dans les matrices polypropylène et époxy destinées à des composants structuraux pour l'automobile et l'aéronautique.

Les méthodes de transformation jouent également un rôle déterminant. Le mélange à cisaillement élevé et les procédés avancés de transformation à l'état fondu (extrusion à vis double avec éléments de vis adaptés, mélangeurs thermo-cinétiques) permettent une meilleure dispersion des nanoparticules et réduisent la formation d'agglomérats comparativement au simple mélange à l'état fondu [71]. Le mélange en solution et la polymérisation in situ sont des alternatives utiles pour les systèmes thermodurcissables ou solubles, favorisant un mouillage optimal des particules et un ancrage covalent lorsque des monomères réactifs ou des chimies de couplage sont employés [72]. Les nanofibres d'alumine électrofilées et les nanoparticules obtenues par sol-gel sont particulièrement efficaces lorsque des renforts à haut rapport d'aspect ou des charges à grande surface spécifique sont requis pour le renforcement thermique ou structural [73].

Un thème récurrent dans les thèses et articles scientifiques est la dépendance quantitative des propriétés du composite à la charge en particules, à leur taille et à leur traitement de surface. Des charges faibles (< 5 wt % pour les nanoparticules) produisent souvent des améliorations optimales du module et de la conductivité thermique sans compromettre excessivement la ténacité ou la transformabilité. Des charges plus élevées (10–30 wt %) permettent d'obtenir une plus grande rigidité et des bénéfices thermiques supérieurs, mais nécessitent une adhésion



interfaciale renforcée et un contrôle du procédé pour éviter l'agglomération et l'augmentation de la viscosité du fondu [74]. La taille des particules exerce une double influence : les nanoparticules fournissent une surface spécifique et un effet interfacial élevés par unité de masse mais sont sujettes à l'agglomération, tandis que les particules microniques sont plus faciles à traiter mais requièrent des concentrations plus importantes pour obtenir des gains comparables [75].

Les travaux expérimentaux récents soulignent l'importance d'une optimisation basée sur les applications finales. Dans le domaine aéronautique et pour les composants de moteurs à haute température, l'emploi de fibres continues d'alumine dans des composites à matrice céramique ou métallique demeure la référence pour les environnements les plus extrêmes. Ces fibres conservent leur résistance à haute température et offrent une excellente résistance au fluage, permettant des performances durables sous contraintes thermomécaniques sévères [76].

Pour les applications polymériques, où la légèreté et la processabilité sont prioritaires — par exemple, les panneaux intérieurs et extérieurs automobiles, les boîtiers électroniques et les pièces d'usure — les stratégies à base de particules et de nano-remplisseurs prédominent. L'utilisation de particules d'alumine correctement traitées en surface et dosées de manière contrôlée permet de concilier rigidité, résistance thermique et facilité de transformation industrielle. Dans les applications tribologiques et les revêtements composites, la dureté et la robustesse chimique de l'alumine en font un choix privilégié pour prolonger la durée de vie tout en maintenant des coûts de production modérés par rapport à certaines céramiques avancées comme les carbures ou les nitrures.

Cependant, plusieurs défis persistent et constituent l'objet de recherches récentes : obtenir une dispersion homogène à l'échelle industrielle, garantir une liaison interfaciale durable sous charges cycliques et thermiques, contrôler l'augmentation de la viscosité du polymère fondu à des charges élevées et éviter la dégradation de la résistance aux chocs. Des stratégies innovantes incluent l'élaboration de couches superficielles nano-ingénieries offrant à la fois une stabilisation stérique et des groupes réactifs pour un ancrage covalent, ainsi que des séquences de traitement adaptées (masterbatches de particules d'alumine modifiées, pré-mélanges avec compatibilisants) pour concilier dispersion et viabilité économique.

Les perspectives de recherche récentes mettent en avant des systèmes hybrides combinant l'alumine avec des nanocarbonés (graphène, nanotubes de carbone) ou des fibres naturelles, le



développement de filaments polymères renforcés par l'alumine pour l'impression 3D, ainsi que l'exploration du rôle de l'alumine dans les composites polymères destinés à la gestion thermique et au stockage d'énergie². De plus, le traitement thermique des fibres continues d'alumine influence la cristallinité, la densité de défauts et la chimie de surface, modulant ainsi les performances mécaniques et thermiques finales des composites.

En résumé, l'ensemble des études expérimentales et des revues de la littérature démontre que la charge d'alumine constitue un renfort robuste et polyvalent pour les matrices polymères, à condition que la morphologie, la chimie de surface et le procédé de mise en œuvre soient adaptés à l'application ciblée. L'avantage comparatif de l'alumine se manifeste dans les contextes nécessitant une stabilité à haute température, une résistance à l'usure et des performances diélectriques élevées. Pour atteindre une performance composite optimale, il est indispensable de combiner une fonctionnalisation de surface appropriée, une taille de particule adéquate et un traitement de dispersion efficace, afin d'obtenir une interphase stable favorisant le transfert de charge plutôt que le délaminage.

Synthèse comparative entre fibres naturelles et minérales

Le tableau suivant synthétise les caractéristiques comparées des fibres de Luffa et des particules d'alumine comme renforts de composites polymères :

Tableau 02 : les caractéristiques comparées des fibres de Luffa et des particules d'alumine

Critère	Fibres de Luffa	Particules d'Alumine
Origine	Naturelle, végétale, renouvelable	Minérale, synthétique (procédé Bayer), non-renouvelable
Densité	Très faible (0,4-0,5 g/cm ³)	Élevée (3,95 g/cm ³)
Module d'Young	Très faible (0,2-2 GPa)	Très élevé (380-420 GPa)
Résistance traction	Faible (5-30 MPa)	Modérée (300-400 MPa) mais fragile
Allongement rupture	Modéré à élevé (5-25%)	Très faible (<1%, fragile)
Dureté	Faible	Exceptionnelle (2000-2200 HV)
Structure	Tridimensionnelle réticulée poreuse	Particules sphériques/angulaires isotropes



Stabilité thermique	Limitée (<200-220°C)	Excellente (>1700°C)
Résistance chimique	Modérée (sensible humidité, UV, biodégradation)	Excellente (inerte)
Absorption d'eau	Très élevée (200-400%)	Nulle
Conductivité thermique	Faible (isolant)	Modérée à élevée (20-35 W/m·K)
Coût	Très faible (<0,1 \$/kg)	Modéré (2-10 \$/kg selon qualité)
Impact environnemental	Très faible (biosourcé, biodégradable, séquestre CO ₂)	Modéré à élevé (énergie production, non-biodégradable mais recyclable)
Reproductibilité propriétés	Faible (variabilité naturelle)	Élevée (contrôle industriel)
Effet renforcement mécanique	Modeste (rigidité), bon (absorption énergie)	Excellent (rigidité, dureté)
Effet densité composite	Réduction significative	Augmentation significative
Compatibilité PP/PEHD	Mauvaise (hydrophile/hydrophobe), nécessite agents couplage	Mauvaise (polaire/apolaire), nécessite agents couplage
Applications visées	Isolation, absorption chocs/son, allègement, bioproducts	Rigidité, usure, thermique, haute température

Conclusion du cadre théorique

Ce cadre théorique a établi les fondements scientifiques nécessaires à la compréhension et à l'étude des composites à renforts hybrides Luffa/alumine dans des matrices polymères semi-cristallines (PP et PEHD).

Le Chapitre I a détaillé les caractéristiques structurales et propriétés des polymères semi-cristallins, en particulier du polypropylène et du polyéthylène haute densité, soulignant l'influence déterminante de la cristallinité sur leurs performances mécaniques, thermiques, et physico-chimiques. La revue des travaux sur le renforcement de ces matrices par des fibres végétales a révélé des améliorations significatives de la rigidité et de la stabilité dimensionnelle, mais également des limitations importantes (mauvaise compatibilité



interfaciale, absorption d'eau, propriétés mécaniques modestes, fragilisation) nécessitant des stratégies d'optimisation via agents de couplage et traitements de surface.

Le Chapitre II a établi une analyse comparative approfondie entre deux types de renforts aux propriétés radicalement différentes et complémentaires : les fibres naturelles de Luffa (organiques, légères, poreuses, structure tridimensionnelle unique, biosourcées mais propriétés mécaniques faibles et sensibilité à l'humidité) et les particules d'alumine (minérales, denses, rigides, dures, stables thermiquement et chimiquement mais fragiles et coûteuses). Cette complémentarité structurale et fonctionnelle constitue la justification scientifique principale de l'approche d'hybridation explorée dans cette étude.

L'analyse de l'état de l'art sur les composites hybrides a démontré que la combinaison judicieuse de différents types de renforts permet fréquemment d'obtenir des synergies où les propriétés du composite hybride surpassent celles des composites à renfort unique, tout en compensant les limitations respectives de chaque renfort. Cependant, l'absence totale de travaux publiés sur la combinaison spécifique Luffa/alumine représente une lacune scientifique que la présente étude ambitionne de combler.

La partie expérimentale qui suit mettra en œuvre cette approche d'hybridation en élaborant et caractérisant systématiquement des composites PP/Luffa/alumine et PEHD/Luffa/alumine selon différentes formulations, dans le but de :

- Évaluer l'effet individuel et combiné des deux types de renforts sur les propriétés mécaniques, thermiques, et morphologiques
- Identifier d'éventuels effets synergiques
- Optimiser les formulations pour applications ciblées
- Établir des relations structure-propriétés spécifiques à ces systèmes hybrides innovants

Cette recherche contribuera ainsi à l'avancement des connaissances fondamentales sur les matériaux composites hybrides bio/minéraux et ouvrira potentiellement la voie au développement de nouveaux matériaux performants, économiques, et plus respectueux de l'environnement pour des applications industrielles diversifiées.

**Liste des références bibliographiques (sélection)**

- [1] Chawla K. K., *Composite Materials: Science and Engineering*, 4^e éd., Springer, 2019, pp. 1–25.
- [2] Gay D., *Composite Materials: Design and Applications*, CRC Press, 2015, pp. 15–45.
- [3] Zweben C., *Introduction to Composite Materials*, Cambridge University Press, 2022, pp. 50–70.
- [4] Mallick P. K., *Fiber-Reinforced Composites: Materials, Manufacturing, and Design*, 4^e éd., CRC Press, 2021, pp. 15–35.
- [5] Chawla K. K., *Composite Materials: Science and Engineering*, 4^e éd., Springer, 2019, pp. 35–65.
- [6] Gay D., *Composite Materials: Design and Applications*, 3^e éd., CRC Press, 2015, pp. 65–95.
- [7] Mallick P. K., *Fiber-Reinforced Composites: Materials, Manufacturing, and Design*, 3^e éd., CRC Press, 2021, pp. 45–78.
- [8] Demir M., Gokmen M., « Luffa Fibers: Properties and Applications », *Journal of Natural Fibers*, 2008, pp. 123–138.
- [9] Oboh G., Aluyor E., « Cultivation and Uses of Luffa Plants », *African Journal of Agricultural Research*, 2009, pp. 45–52.
- [10] Porterfield D., *Vegetable Crops of the World*, 1955 ; Tanobe T. et al., 2005.
- [11] Siqueira G. et al., « Chemical Composition and Properties of Luffa Fibers », *Industrial Crops and Products*, 2010.
- [12] John M., Thomas S., « Biofibers and Biocomposites », *Carbohydrate Polymers*, 2008, pp. 345–353.
- [13] Chen Y. et al., « Hierarchical Structure and Classification of Luffa Fibers », *Composites Part A*, 2017–2018.
- [14] Sustainability, « Morphological and Structural Analysis of Natural Luffa Fibers for Bio-Based Composites », *Sustainability*, 2023.
- [15] Halashi K. et al., « Microstructural and Mechanical Characterization of Luffa Cylindrica Reinforced Biocomposites », *Journal of Natural Fibers*, 2024.
- [16] Siqueira G., Bras J., Dufresne A., « Cellulosic Bionanocomposites: Preparation, Properties and Applications », *Polymers*, 2010, pp. 1–36.
- [17] Boynard C. A., D’Almeida J. R. M., « Morphological Characterization and Mechanical Behavior of Natural Luffa Fiber and Polymeric Composites », *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 31, 2000, pp. 639–647.
- [18] Siqueira G., Bras J., Dufresne A., « Cellulosic Bionanocomposites », *Polymers*, 2010, pp. 1–36.
- [19] Tanobe V. O. A., Sydenstricker T. H. D., Munaro M., Amico S. C., « Chemically Treated Brazilian Sponge-Gourds: Comprehensive Characterization », *Polymer Testing*, vol. 24, 2005, pp. 474–482.
- [20] Boynard C. A., D’Almeida J. R. M., « Mechanical Behavior of Sponge Gourd (*Luffa cylindrica*)–Polyester Composite Materials », *Polymer–Plastics Technology and Engineering*, vol. 39, n° 3, 2000, pp. 489–499.
- [21] Rosa M. F., Chiou B.-S., Medeiros E. S. et al., « Cellulose Nanowhiskers from Luffa Sponge Fibers », *Carbohydrate Polymers*, vol. 87, 2012, pp. 113–120.



- [22] Guimarães J. L., Frollini E., da Silva C. G., « Characterization of Luffa Cylindrica Fibers for Polymer Composites », *Polymer Testing*, vol. 28, 2009, pp. 619–627.
- [23] Bozaci E., « Chemical Surface Modification of Luffa Fibers », *Fibers and Polymers*, 2013.
- [24] Zhou Y. et al., « Structure–Property Relationship of Natural Luffa Fiber », *Materials Letters*, 2018.
- [25] Mishra D. K., Tripathy P. P., « Mechanical Properties of Alkali-Treated Luffa Composites », *Composite Interfaces*, 2017.
- [26] Faruk O., Bledzki A. K., Fink H. P., Sain M., « Biocomposites Reinforced with Natural Fibers », *Progress in Polymer Science*, 2012.
- [27] Li X., Tabil L. G., Panigrahi S., « Chemical Treatments of Natural Fiber for Use in Natural Fiber-Reinforced Composites », *Journal of Polymers and the Environment*, 2007.
- [28] Pickering K. L., Efendy M. G. A., Le T. M., « A Review of Manufacturing Methods for Natural Fiber Composites », *Composites Part A*, 2016.
- [29] Wong K. J., et al., « Tensile and Morphological Properties of Luffa Fiber Reinforced Polyester Composites », *Materials Today*, 2015.
- [30] Yang B., « Dependence of Impact Strength of Polypropylene on Temperature, Weight Average Molecular Weight and Molecular Weight Distribution », *Chinese Journal of Polymer Science*, vol. 20, n° 4, 1997, pp. 345–351.
- [31] Karger-Kocsis J., *Polypropylene: Structure, Blends and Composites*, Chapman & Hall, 1995.
- [32] Moore E. P., *Polypropylene Handbook: Polymerization, Characterization, Properties, Processing, Applications*, Hanser Publishers, 1996.
- [33] Bezazi A., *Polypropylène: Propriétés et Applications*, Éditions Techniques de l'Ingénieur, 2011.
- [34] Aït Hocine N., « Étude du Vieillissement Thermique du Polypropylène », Thèse de doctorat, Université de Lyon, 2010.
- [35] Frounchi M., Dadbin S., « Thermal Behavior of Polypropylene Composites », *Polymer Degradation and Stability*, 2005.
- [36] PlasticsEurope, « Polypropylene (PP) – Material Properties and Uses », PlasticsEurope Publications, 2018.
- [37] Al-Salem S., « Processing and Recycling of Polypropylene », *Waste Management*, 2010.
- [38] Maier C., Calafut T., *Polypropylene*, 2^e éd., Hanser Publishers, 1998.
- [39] Osswald T., *Polymer Processing: Principles and Design*, Hanser Publishers, 2015.
- [40] Maddah H. A., « Polypropylene as a Promising Plastic: A Review », *American Journal of Polymer Science*, vol. 6, 2016, pp. 1–11.
- [41] Brydson J. A., *Plastics Materials*, 7^e éd., Butterworth-Heinemann, 1999.
- [42] Vasile C., Pascu M., *Polymer Blends and Composites*, Marcel Dekker, 2005.
- [43] Fu S. Y., Feng X. Q., Lauke B., Mai Y. W., « Effects of Particle Size, Interface Adhesion and Loading on Mechanical Properties of Particulate Polymer Composites », *Composites Part B*, 2002.
- [44] Thomason J. L., « The Influence of Fibre Properties on the Performance of Polypropylene–Glass Composites », *Composites Part A*, 2005.
- [45] Koo J. H., *Polymer Nanocomposites: Processing, Characterization, and Applications*, McGraw-Hill,



2006.

- [46] Callister W. D., Rethwisch D., *Materials Science and Engineering*, 10^e éd., Wiley, 2018.
- [47] Shackelford J. F., *Introduction to Materials Science for Engineers*, 8^e éd., Pearson, 2014.
- [48] Strong A. B., *Plastics: Materials and Processing*, 3^e éd., Pearson, 2006.
- [49] Oksman K., Skrifvars M., Selin J.-F., « Natural Fibers as Reinforcement in Polylactic Acid Composites », *Composites Science and Technology*, 2003.
- [50] Mohanty A. K., Misra M., Hinrichsen G., « Biofibres, Biodegradable Polymers and Biocomposites », *Macromolecular Materials and Engineering*, 2000.
- [51] George J., Sreekala M. S., Thomas S., « A Review on Interface Modification and Characterization of Natural Fiber Reinforced Composites », *Composites Interfaces*, 2001.
- [52] Ashori A., « Wood–Plastic Composites as Promising Green Composites », *Bioresource Technology*, 2008.
- [53] Satyanarayana K. G., Arizaga G. G., « Biodegradable Composites Based on Lignocellulosic Fibers », *Progress in Polymer Science*, 2009.
- [54] Jawaid M., Abdul Khalil H. P. S., « Cellulosic/Synthetic Fibre Reinforced Polymer Composites », *Carbohydrate Polymers*, 2011.
- [55] Faruk O., Bledzki A. K., Fink H. P., Sain M., « Biocomposites Reinforced with Natural Fibers », *Progress in Polymer Science*, 2012.
- [56] Puglia D., Biagiotti J., Kenny J. M., « A Review on Natural Fibre-Based Composites », *Journal of Natural Fibers*, 2004.
- [57] Mohammed L., Ansari M. N. M., « A Review on Coconut and Other Natural Fibers », *Materials & Design*, 2015.
- [58] Li Y., Mai Y. W., Ye L., « Natural Fibre Composites: Recent Advances », *Composites Science and Technology*, 2000.
- [59] Ku H., Wang H., Pattarachaiyakoo N., Trada M., « A Review on Tensile Properties of Natural Fiber Reinforced Composites », *Composites Part B*, 2011.
- [60] La Mantia F. P., Morreale M., « Green Composites: A Brief Review », *Composites Part A*, 2011.
- [61] Reddy K. S., *Alumina-Reinforced Polymer Composites*, Elsevier, 2024.
- [62] Reddy K. S., « Thermo-Kinetic Mixing of Al₂O₃ in HDPE Composites », *Materials Today Communications*, 2020.
- [63] Suresh K., Chandrasekaran P., Kumar R., « Tribological Behavior of Nylon–Alumina Composites », *Wear*, 2015.
- [64] Navas J., « Influence of Particle Size and Surface Treatment on Ceramic–Polymer Composites », *Polymer Composites*, 2019.
- [65] Cifuentes S., García D., Abad M. J., « Effect of Silane Coupling on Alumina Nanoparticle Dispersion in Epoxy Composites », *Journal of Applied Polymer Science*, 2015.
- [66] Kumar R., Singh T., Gupta N., « Hybrid Natural Fiber–Alumina Reinforced Polypropylene Composites », *Composites Science and Technology*, 2014.
- [67] Navas J., « Surface Modification Techniques for Alumina–Polymer Interfaces », *Polymer Composites*,



2019.

[68] Navas J., « Advances in Ceramic–Polymer Hybrid Materials », *Polymer Composites*, 2019.

[69] Reddy K. S., « Thermal Stability of Alumina-Enhanced Polymer Composites », *Journal of Materials Science*, 2024.

[70] Al-Ameery F., Hassan A., Faraj A., « Mechanical and Thermal Behavior of α -Alumina Reinforced Epoxy Composites », *Materials Science and Engineering A*, 2013.

[71] Benabid F., Khodja A., Boudiaf A., « Functionalization of Alumina Nanoparticles for Polyolefin Composites », *Composites Part B*, 2018.

[72] Jia L., Zhang Y., Li H., « High-Temperature Performance of Continuous Alumina Fiber Reinforced Composites », *Journal of Advanced Materials*, 2023.

[73] Radhakrishnan P., Kumar V., Shenoy V., « Surface-Modified Alumina Nanoparticles for Polymer Composites », *Polymer Engineering and Science*, 2025.

[74] Suresh S., Reddy P., Gupta M., « Tribological Performance of Alumina-Reinforced Polymer Composites », *Wear*, 2015.

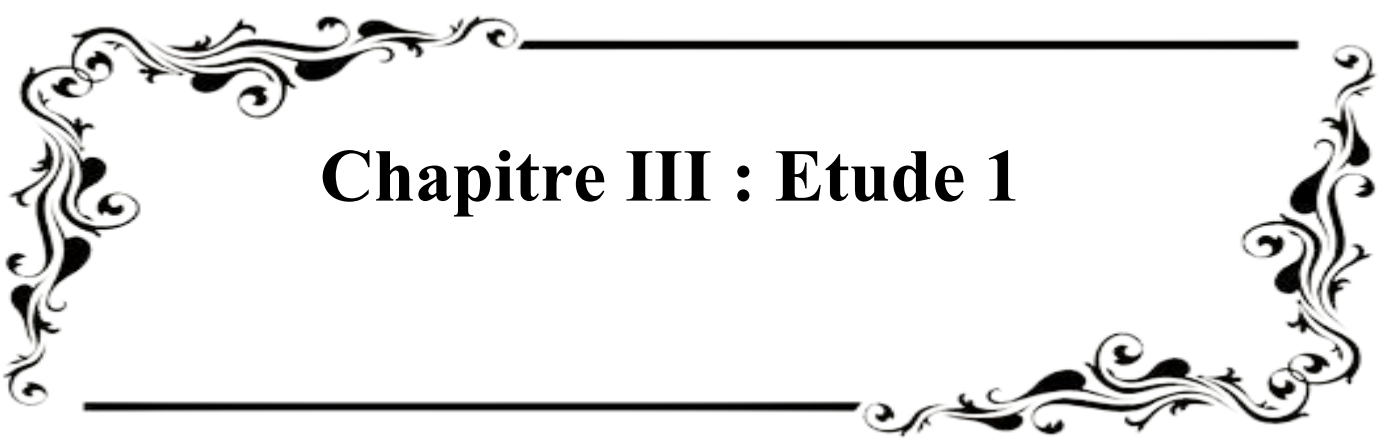
[75] Pinto Deesy F., Silva R., Oliveira M., « Nano-Engineered Surface Treatments for Alumina in Polymeric Matrices », *Composites Science and Technology*, 2015.

[76] Gruber M., « Thermal Treatment Effects on Continuous Alumina Fibers for High-Performance Composites », *Ceramics International*, 2024.



PARTIE EXPRIMENTALE





Chapitre III : Etude 1



Amélioration thermique et mécanique des composites de polypropylène par l'utilisation de fibres de luffa traitées à l'acide stéarique et de charges d'alumine

1. Introduction

Les préoccupations environnementales liées à la durabilité des ressources ont conduit à un intérêt croissant pour le développement de matériaux innovants, plus respectueux de l'environnement et moins dépendants des ressources fossiles. Dans ce contexte, les bio-composites représentent une alternative prometteuse aux matériaux synthétiques traditionnels [1], [2]. Ces matériaux attirent aujourd'hui une attention mondiale pour des applications variées, allant de l'emballage aux pièces automobiles, grâce à leur potentiel de réduction de l'empreinte écologique tout en maintenant de bonnes performances mécaniques et thermiques [3].

Les recherches récentes se sont particulièrement orientées vers l'utilisation de fibres naturelles telles que la bagasse de canne à sucre, le lin, le chanvre ou encore le jute, en remplacement des fibres synthétiques comme le verre ou le carbone [3]. Ces fibres végétales se distinguent par leurs propriétés mécaniques intéressantes (haute résistance spécifique, légèreté, faible densité), leur résistance à la corrosion et à la fatigue, ainsi que leur biodégradabilité [4], [5]. Parmi elles, la *Luffa cylindrica* suscite un intérêt croissant en raison de sa faible densité, de sa disponibilité et de son caractère renouvelable, ce qui en fait un candidat privilégié pour l'élaboration de composites biodégradables dotés de bonnes performances mécaniques et thermiques [6].

Cependant, malgré ce potentiel, les fibres de *Luffa* présentent certaines limites. Lorsqu'elles sont traitées uniquement par des solutions alcalines, elles affichent souvent des propriétés inférieures à celles d'autres fibres végétales, principalement en raison de leur forte densité et de leur adhésion interfaciale difficile avec les matrices polymériques. De plus, leur caractère hydrophile limite la compatibilité avec les matrices polymères hydrophobes, comme le polypropylène, réduisant ainsi leur efficacité comme renfort [7], [8], [9]. Pour surmonter ces contraintes, diverses méthodes de traitement ont été étudiées. Par exemple, Dharmalingam et



al. [10] ont combiné un traitement cryogénique et alcalin afin d'améliorer la rugosité de surface et la réactivité des fibres. La fonctionnalisation par amines a par ailleurs montré une meilleure compatibilité avec la résine époxy, induisant une amélioration significative des propriétés thermiques et mécaniques [11]. D'autres approches, telles que les traitements thermochimiques écologiques [4] et la silanisation [3], ont également permis d'obtenir des renforcements efficaces dans les matrices de polyester. De plus, Souza Campos et al. [12] ont démontré que l'utilisation de l'anhydride maléique comme agent de couplage favorise l'adhésion des fibres de Luffa au polypropylène. Ces travaux confirment le potentiel des fibres de Luffa comme renfort durable pour les bioplastiques.

Une autre stratégie prometteuse repose sur l'utilisation de l'acide stéarique pour modifier la surface des fibres. Ce traitement permet d'introduire des groupes hydrophobes, réduisant l'absorption d'humidité et améliorant la compatibilité avec les matrices polymères hydrophobes comme le polypropylène [13], [14]. Plusieurs études ont montré que cette modification améliore la dispersion des fibres naturelles dans la matrice polymère, conduisant à des composites aux propriétés mécaniques et thermiques supérieures [15], [16]. L'association d'un traitement alcalin suivi d'un traitement à l'acide stéarique représente ainsi une approche innovante qui accroît la diffusion, l'adhésion interfaciale et la compatibilité des fibres de Luffa avec la matrice de polypropylène.

Au-delà de l'utilisation exclusive des fibres naturelles, l'incorporation de charges minérales, notamment les oxydes métalliques comme l'alumine, a été largement explorée pour conférer aux composites des propriétés additionnelles : conductivité électrique, conductivité thermique et amélioration de la résistance mécanique [17], [18]. L'association synergique de fibres naturelles et de charges minérales dans une matrice polymère ouvre la voie à des matériaux composites multifonctionnels [19], [20], [21]. Toutefois, la dispersion homogène des charges métalliques et la création de liaisons interfaciales solides avec la matrice polymère demeurent des défis majeurs [22].

Dans ce cadre, la présente recherche vise à étudier l'effet combiné de traitements avancés



appliqués aux fibres de Luffa et de l'incorporation d'alumine fonctionnalisée à l'acide stéarique dans des composites à base de polypropylène. L'objectif principal est d'améliorer la réactivité et la diffusivité des fibres végétales au sein de la matrice polymère, tout en optimisant la dispersion et l'adhésion des charges minérales. Pour ce faire, plusieurs techniques analytiques ont été mobilisées, notamment la calorimétrie différentielle à balayage (DSC), la diffraction des rayons X (XRD), l'analyse thermogravimétrique (TGA) et la microscopie électronique à balayage (SEM), afin de comprendre les mécanismes d'amélioration mis en jeu.

L'originalité de ce travail réside dans l'intégration, pour la première fois, de fibres de Luffa et d'alumine dans une matrice de polypropylène, en combinant des traitements de surface destinés à prévenir l'agglomération des charges et à renforcer les interactions interfaciales. Cette approche a conduit à l'obtention de composites caractérisés par :

- Une amélioration significative des propriétés mécaniques,
- Une meilleure résistance thermique,
- Un coût de fabrication réduit,
- Et un profil environnemental plus durable.

Ces résultats contribuent au développement de matériaux composites à haute performance et écoresponsables, destinés à des applications industrielles variées, allant du secteur automobile à l'emballage, en passant par les dispositifs techniques nécessitant à la fois robustesse et durabilité.

2. Matériaux et méthodes

2.1. Réactifs chimiques

Le polypropylène (PP) utilisé dans cette étude a été fourni par SABIC Arabie Saoudite, avec une densité de 0,90 g/cm³. L'alumine (Al₂O₃) a été fournie par Sigma-Aldrich ; elle présente une masse molaire de 101,96 g/mol et une taille de particules d'environ 100 µm.

Les fibres de luffa utilisées proviennent de *Luffa aegyptiaca*, également appelée luffa égyptien (*Luffa aegyptiaca* Mill.), une plante grimpante appartenant à la famille des Cucurbitacées,



largement cultivée en Algérie. Ces fibres présentent un diamètre moyen d'environ 270 μm et un angle microfibrillaire de l'ordre de 12° .

L'acide stéarique a été fourni par Merck (Taufkirchen, Allemagne), avec une densité apparente comprise entre 400 et 500 kg/m^3 . L'hydroxyde de sodium (NaOH) en pastilles (pureté $\geq 98\%$) a été acquis auprès de Sigma-Aldrich. L'acide acétique (pureté $\geq 99,7\%$, glacial) a été fourni par Fisher Scientific, tandis que l'éthanol (pureté $\geq 99,5\%$) a été obtenu auprès de VWR Chemicals.

2.2. Traitement de surface des charges

2.2.1. Modification des fibres de luffa (procédé humide)

Les fibres de luffa ont d'abord été lavées à l'eau distillée afin d'éliminer les impuretés, puis séchées à l'air libre pendant plusieurs jours afin de réduire leur teneur en humidité. Elles ont ensuite été découpées en petits fragments et soumises à un traitement thermique à 100°C pendant 4 heures. Après ce traitement thermique, les fibres ont subi un traitement chimique en deux étapes destinées à améliorer leurs propriétés.

Première étape : Les fibres ont été immergées dans une solution aqueuse de NaOH à 7% (m/m) sous agitation, à 70°C pendant 6 heures. Après traitement, elles ont été soigneusement rincées à l'eau distillée pour éliminer les résidus de soude, puis immergées dans une solution aqueuse d'acide acétique à 2% (m/m) sous agitation pendant 3 minutes. Trois rinçages successifs à l'eau bidistillée ont ensuite été effectués. Les fibres ainsi traitées ont été séchées à l'air libre, puis placées dans une étuve à 100°C pendant 24 heures.

Deuxième étape : Les fibres ont été traitées à l'acide stéarique. Pour cela, une solution à 2% d'acide stéarique a été préparée en utilisant l'éthanol comme solvant. Les fibres ont été immergées dans cette solution et maintenues sous agitation pendant 6 heures, avec un rapport massique de 40 g de fibres pour 500 ml de solution. Après traitement, les fibres ont été lavées puis séchées dans une étuve à 60°C pendant 24 heures.

2.2.2. Traitement mécanique de l'alumine (procédé sec)

Afin d'assurer une dispersion homogène de l'alumine, il est nécessaire de rendre sa surface



organophile avant son incorporation dans la matrice polymère. À cette fin, une méthode de co-mélange à sec avec l'acide stéarique a été mise en œuvre. Cette méthode a permis de rendre la surface de la charge organophile, d'éviter l'agglomération des particules et d'améliorer leur compatibilité avec la matrice de PP.

L'alumine a d'abord été broyée afin de réduire la taille des particules et d'augmenter la surface spécifique. L'acide stéarique, utilisé comme agent modificateur de surface, a ensuite été ajouté à la poudre d'alumine broyée selon la méthode du co-mélange à sec. Au cours du broyage, la chaleur générée par les forces de cisaillement a provoqué la fusion de l'acide stéarique (point de fusion : 69 °C), permettant ainsi un enrobage efficace des particules de charge.

2.2.3. Composites preparation

PP/Luffa, PP/alumina and PP/Luffa/alumina composite samples (with treated and untreated fillers) using 2 and 5 wt% of filler contents were synthesized in a Brabender plastograph (screw speed of 30 rpm for 10 min) at 190°C. The different synthesized composites are shown in Table 1.

Tableau 1 : Différentes compositions PP/charges.

Échantillon	Composition
PP/NT-Al -2%	PP + 2% of - alumina non traité
PP/T-SA-Al -2%	PP + 2% alumina traité avec l'acide stéarique
PP/NT-Luffa-2%	PP + 2% of Luffa non traité
PP/T-NaOH-Luffa-2%	PP + 2% of Luffa traité avec NaOH
PP/T-NaOH-SA-Luffa-2%	PP + 2% Luffa traité avec NaOH suivie par traitement d'acide stéarique traitement
PP/NT-[Al+Luffa] -2%	PP + 2% (Alumina et fibre de Luffa) non traité
PP/T-SA-[Al+Luffa] -2%	PP + 2% (Alumina et fibre de Luffa) mélange traité avec acide stéarique



PP/NT-[Al+Luffa] - 5%	PP + 5% (Alumina et fibre de Luffa) non traité
PP/T-SA-[Al+Luffa]- 5%	PP + 5% (Alumina et fibre de Luffa) mélange traité avec acide stéarique

2.3. Caractérisations

2.3.1. Analyse par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR)

La spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) constitue une technique de spectroscopie vibrationnelle largement utilisée pour l'étude des matériaux polymériques. Elle permet d'obtenir des informations essentielles concernant la nature chimique, les groupements fonctionnels et les liaisons présentes dans une matrice donnée, grâce à l'analyse des vibrations moléculaires caractéristiques. Cette approche offre ainsi une méthode fiable pour identifier les modifications structurales liées aux traitements appliqués ou à l'incorporation de charges et de fibres dans le polymère.

Dans le cadre de ce travail, les mesures ont été effectuées à l'aide d'un spectrophotomètre FTIR de type IRAffinity-1S, un appareil compact et performant, particulièrement adapté pour l'analyse des matériaux solides. Les échantillons ont été préparés sous forme de films minces obtenus par compression, ce qui favorise une bonne transmission du rayonnement infrarouge et permet une détection plus précise des bandes caractéristiques.

Les spectres ont été enregistrés dans la gamme de 4000 à 400 cm^{-1} , couvrant ainsi les principales régions d'absorption des liaisons chimiques organiques et inorganiques. La résolution spectrale choisie était de 4 cm^{-1} , ce qui permet de distinguer de manière adéquate les différents pics associés aux vibrations d'élongation et de déformation des groupements fonctionnels présents. L'interprétation de ces spectres permet de confirmer la présence et la nature des liaisons chimiques, d'évaluer l'impact des traitements de surface appliqués aux fibres, ainsi que de suivre les éventuelles interactions entre la matrice polymère et les charges introduites.

2.3.2. Microscopie Électronique à Balayage (MEB)

La morphologie de surface des composites a été examinée à l'aide de la microscopie



électronique à balayage (MEB). Des micrographies à différents grossissements ont été obtenues à l'aide d'un microscope électronique à balayage de marque FEI, modèle Inspect-S50, fonctionnant sous une tension d'accélération de 20 kV. Avant l'observation, les échantillons ont été fixés sur un ruban de carbone afin de réduire les effets de charge susceptibles d'altérer la qualité de l'analyse.

2.3.3. Analyse par diffraction des rayons X (DRX)

Dans cette étude, les diffractogrammes de rayons X ont été enregistrés à l'aide d'un diffractomètre Empyrean, équipé d'une source de rayonnement Cu K α ($\lambda = 1,58 \text{ \AA}$), 40 kV, 30 mA. Les mesures ont été réalisées dans l'intervalle angulaire de 10 à 70°, avec une vitesse de balayage de 1,2°/min.

Pour l'analyse du degré de cristallinité des échantillons synthétisés, la méthode de Segal [23] est couramment employée pour évaluer la cristallinité de la cellulose. Elle a été utilisée dans cette étude pour calculer l'indice de cristallinité C_i (%), déterminé selon l'équation suivante :

$$C_i (\%) = \left(\frac{I_{002} - I_{am}}{I_{002}} \right) \times 100 \quad \text{Eq.01}$$

Où:

I_{002} : intensité du pic cristallin 002

I_{am} : intensité du pic amorphe.

2.3.4. Analyse thermique

L'étude des propriétés thermiques des matériaux composites préparés a été approfondie à l'aide de deux techniques complémentaires, à savoir l'analyse thermogravimétrique (TGA) et la calorimétrie différentielle à balayage (DSC). Ces analyses ont été réalisées de manière simultanée à l'aide d'un appareil SETARAM Labsys Evo, reconnu pour sa précision et sa sensibilité dans la détection des transitions thermiques et des phénomènes de dégradation.

Les essais ont été conduits sous atmosphère inerte d'azote (N_2) avec un débit de 40 mL/min, condition essentielle pour empêcher l'oxydation ainsi que toute réaction secondaire



susceptible de perturber l'interprétation des mécanismes de décomposition thermique. Le programme de chauffage a été fixé à une vitesse contrôlée de 10 °C/min, dans un domaine de température s'étendant de 30 °C à 800 °C, couvrant ainsi l'ensemble des transitions thermiques et des étapes de dégradation susceptibles de se produire dans la matrice polymère et les charges incorporées.

L'utilisation combinée de la TGA et de la DSC permet non seulement de suivre la perte de masse des échantillons en fonction de la température, mais également d'identifier les transformations énergétiques associées, telles que les transitions vitreuses, la fusion, la cristallisation et les réactions de décomposition. Ces données croisées offrent une vision plus complète de la stabilité thermique et de la structure interne des composites étudiés, et constituent une base essentielle pour établir la corrélation entre les modifications apportées par les traitements des fibres ou des charges minérales et les performances finales du matériau.

2.3.5. Résistance à impact (Izod)

L'évaluation de la résistance aux chocs des composites polymères a été réalisée par l'essai de choc Izod, une méthode reconnue pour sa fiabilité dans l'évaluation de la ténacité des matériaux soumis à des charges dynamiques soudaines. Les éprouvettes, sous forme de films, ont été fabriquées dans des conditions de traitement identiques afin de garantir la comparabilité des résultats et de minimiser la variabilité expérimentale. Un moule unique a été utilisé pour la préparation de toutes les éprouvettes, conformément aux exigences géométriques normalisées de la norme ASTM D256-73. Les échantillons obtenus présentaient des dimensions de $63 \times 12,7 \times 3 \text{ mm}^3$, avec une entaille de 1 mm de profondeur, précisément réalisée pour créer une zone de concentration de contraintes essentielle à l'amorçage des fissures lors de l'impact.

Le moulage a été effectué à l'aide d'une presse hydraulique de laboratoire manuelle DAVENPORT d'une capacité de compression maximale de 25 tonnes, garantissant ainsi la



constance et la reproductibilité des échantillons. Une fois préparés, les échantillons ont été soumis à un essai de choc à l'aide d'un impacteur CEAST Resil fonctionnant avec une énergie de marteau de 7,5 J, valeur choisie pour garantir une sensibilité suffisante à la détection des différences de ténacité entre les formulations étudiées.

Cette méthodologie permet de quantifier l'énergie d'impact absorbée, reflétant la capacité du composite à résister à la propagation des fissures et à la rupture brutale. Par conséquent, l'essai Izod fournit des informations essentielles sur la ténacité et l'intégrité structurale des composites, paramètres primordiaux pour les applications où les matériaux sont exposés à des chocs ou à des charges d'impact.

3. Résultats et discussion

3.1. Analyse FTIR

Les résultats de l'analyse FTIR des fibres de luffa non traitées et traitées sont présentés dans la Figure 1. Il est observé que les liaisons fondamentales les plus importantes des deux échantillons présentent des pics marqués à 3424 cm^{-1} , correspondant à la bande d'élongation O-H [24], révélatrice de la présence de groupes hydroxyles liés à la surface des fibres de luffa [25]. La bande présente à 2920 cm^{-1} correspond aux vibrations d'élongation symétriques –CH₂ et –CH, associées aux fragments aliphatiques de la cellulose [26]. Le bande à 1458 cm^{-1} est attribué à la vibration de flexion C–H de la syringyle de la lignine ainsi qu'à l'élongation –CH₂ de la cellulose [27].

Les bandes situées entre 1733 et 1756 cm^{-1} sont attribuées au groupe carboxyle C=O, tandis que la bande observée entre 1650 et 1630 cm^{-1} peut être associée à la liaison C=C dans les cycles aromatiques [26]. De plus, les apparitions de liaisons dans la gamme 1000 - 1300 cm^{-1} et à 1245 cm^{-1} correspondent respectivement aux vibrations d'élongation C–C et C–O.

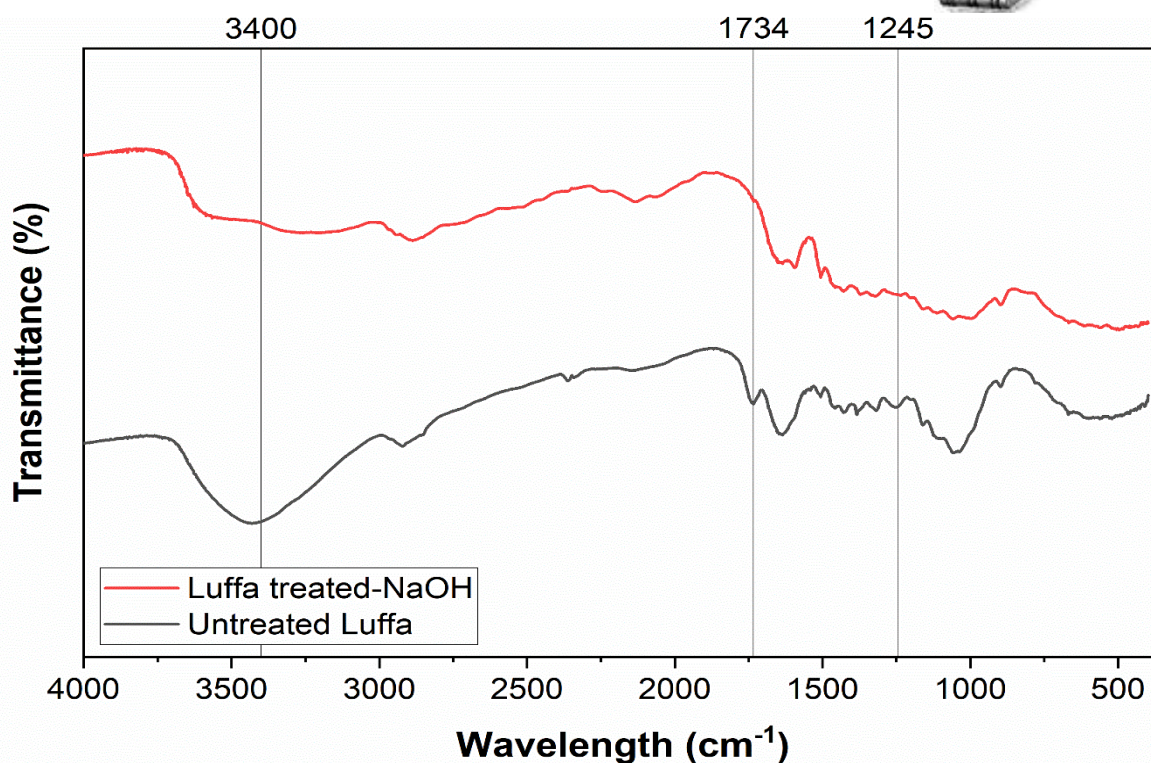


Figure 1 : Spectres FTIR du luffa non traité et du luffa traité au NaOH.

Après traitement alcalin avec NaOH (voir Figure 2), le changement le plus significatif observé dans le spectre infrarouge est l'absence de la bande d'absorption élevée à 1734 cm^{-1} , correspondant à l'élongation C=O du groupe carboxyle présent dans les hémicelluloses et la lignine, ainsi que la disparition de la bande autour de 1245 cm^{-1} , associée à l'élongation C–H. Ces modifications, illustrées à la Figure 1, indiquent l'élimination effective de ces composants amorphes par le NaOH. Cette observation est en accord avec des travaux antérieurs [4], [24], [26], [28], qui rapportent également la disparition de ces bandes après traitement à l'hydroxyde de sodium.

L'absence de la bande C–O à 1245 cm^{-1} dans le spectre infrarouge suggère une modification chimique des groupes fonctionnels contenant de l'oxygène, probablement due à des réactions telles que l'hydrolyse des esters ou la rupture des liaisons éther. Ces résultats mettent en évidence l'efficacité du traitement au NaOH dans l'élimination des fractions amorphes de lignine et d'hémicellulose, conduisant ainsi à une structure matérielle plus cristalline.

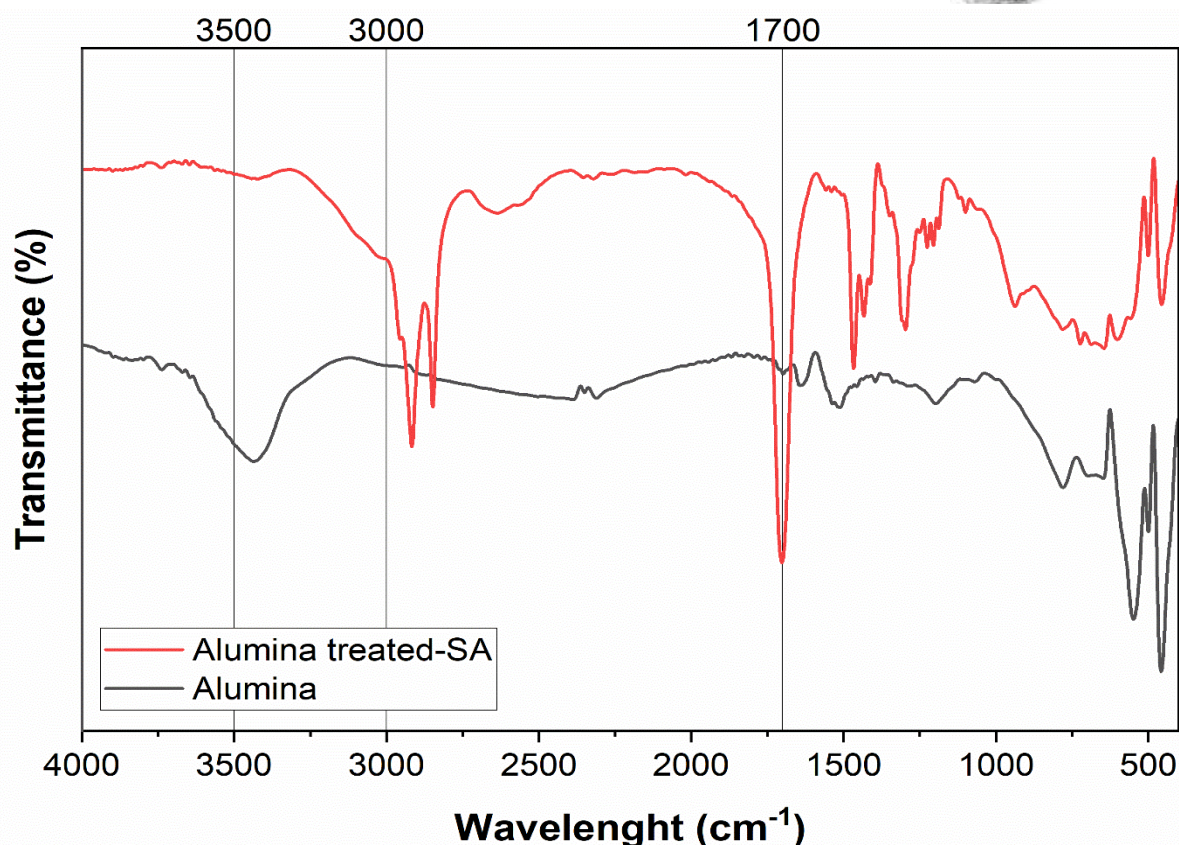


Figure 2 : Spectres FTIR de l'alumine et de l'alumine traitée à l'acide stéarique (SA).

La Figure 3 illustre le spectre infrarouge de l'alumine, où l'on peut observer des bandes d'absorption caractéristiques liées à la liaison Al–O. Celles-ci apparaissent typiquement dans la gamme de 400 à 1000 cm^{-1} . La large bande autour de 3435 cm^{-1} est attribuée à l'absorption de l'élongation vibratoire Al–OH [29]. On note également une bande pour Al–O autour de 1300 à 1600 cm^{-1} . Les bandes à 2919 cm^{-1} et 2850,13 cm^{-1} dans l'alumine modifiée avec l'acide stéarique sont associés aux vibrations d'élongation des liaisons C–H des groupes méthyle et méthylène [30]. Dans les deux composites PP/T-SA [Al + Luffa] à 2 % et 5 %, les bandes à 1703 cm^{-1} et 921 cm^{-1} pourraient être attribués respectivement à l'acide carboxylique dimérique et à l'acide carboxylique saturé [29]. L'apparition de ces nouvelles bandes et la disparition de la bande de flexion OH indiquent le dépôt ou la liaison réussie des molécules d'acide stéarique à la surface des particules d'alumine.

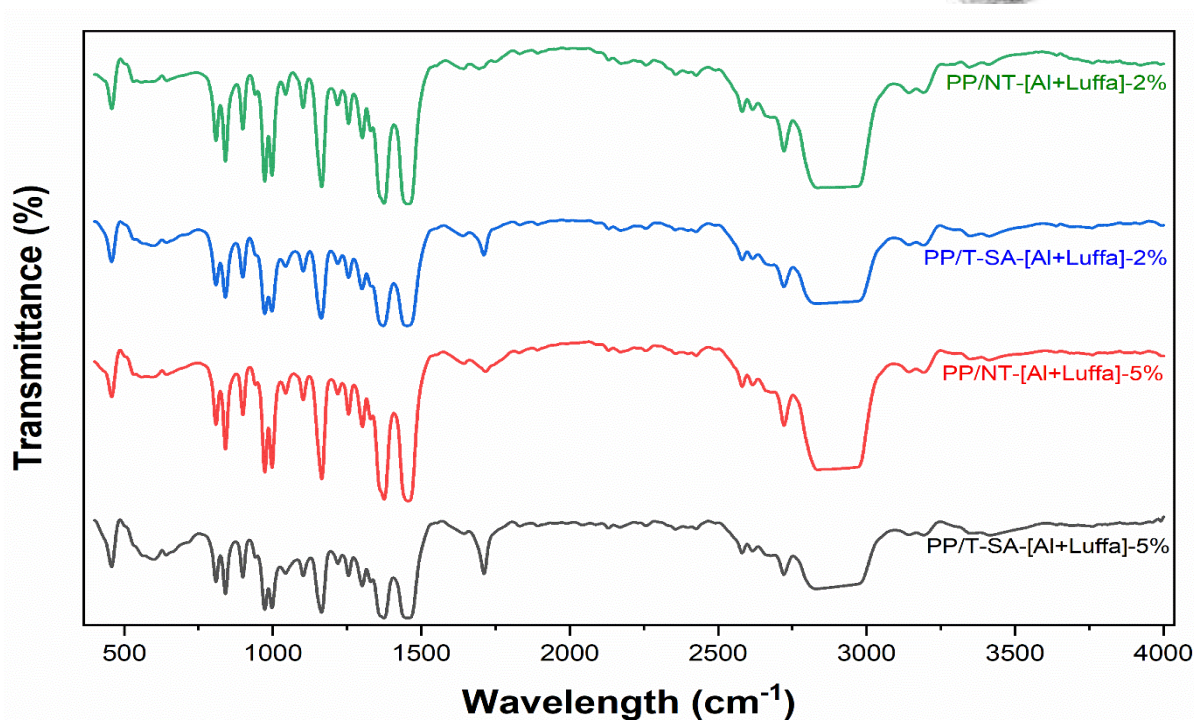


Figure 3 : Spectres FTIR des échantillons composites de charges de polypropylène synthétisées.

Comme le montrent les spectres de la Figure 3, la fonctionnalisation du polypropylène (PP) avec les fibres de luffa traitées à l'acide stéarique (SA) et l'alumine (Al-SA) est mise en évidence par l'apparition de nouvelles bandes d'absorption, absentes dans le PP pur mais caractéristiques du système SA-luffa/Al-SA. L'analyse FTIR du PP révèle de nouvelles bandes caractéristiques associées aux charges Luffa/Al₂O₃. Plus précisément, les bandes à 2950 et 2916 cm⁻¹ peuvent être attribués respectivement aux vibrations asymétriques νCH_3 et νCH_2 , tandis que les pics à 2865 et 2836 cm⁻¹ correspondent aux vibrations symétriques νCH_2 [31]. De plus, les bandes observées à 1453, 1374 et 1358 cm⁻¹ sont liées à diverses vibrations δCH_3 asymétrique, δCH_2 , δCH_3 symétrique, ωCH_2 , δCH et $\nu\text{C}-\text{C}$ [32]. Une large bande observée entre 500 et 900 cm⁻¹, distincte de la liaison Al-O, indique probablement la présence des fibres de luffa.

L'apparition d'une bande à 1712 cm⁻¹, correspondant à l'élongation C=O, dans le composite traité à l'acide stéarique suggère l'efficacité du traitement. En revanche, on constate une diminution notable de l'intensité des vibrations des groupes alkyles (-CH, CH₂, CH₃) situées entre 2900-3000 cm⁻¹, 1380 cm⁻¹ et 1420 cm⁻¹, ce qui constitue une observation nouvelle, non



encore rapportée dans la littérature. Cette variation d'intensité traduit une interaction possible entre l'acide stéarique et les groupes CH, entraînant des modifications de la structure moléculaire à la fois de la matrice de polypropylène et des fibres de luffa.

3.2. Analyse microstructurale (MEB)

De nombreuses études antérieures ont montré que les fibres végétales non traitées contiennent des quantités importantes de cire, de lignine et d'autres impuretés, généralement visibles à leur surface. La présence d'hémicelluloses et de cires engendre l'apparition de taches blanches, ce qui limite fortement la capacité d'adhésion des fibres dans une matrice polymérique [33]. Par ailleurs, il a été démontré qu'une fine couche de lignine recouvre les fibrilles de cellulose, reliées entre elles par des substances pectiques et des hémicelluloses [34]. Ce phénomène explique pourquoi les fibres de Luffa non traitées présentent une surface lisse, liée à la présence de composants amorphes comme les hémicelluloses et la lignine [11].

Les observations réalisées dans le cadre de ce travail s'inscrivent dans la continuité de ces résultats. Les faisceaux de cellulose apparaissent sous forme de filaments réguliers et homogènes, traduisant l'hétérogénéité naturelle de la Luffa. Une porosité caractéristique, associée à la présence de canaux vasculaires, reste identifiable, tandis que les parois cellulaires demeurent intactes, compactes et préservent leur composition initiale. Ces caractéristiques confirment la structure particulière de la fibre naturelle, qui joue un rôle déterminant dans sa réactivité avec la matrice polymérique.

L'application d'un traitement alcalin à base de soude (NaOH 5 %) a profondément modifié la morphologie de surface des fibres. Comme l'illustrent les micrographies MEB (Figure 4b), la surface des fibres est devenue rugueuse, avec l'apparition de fissures et de discontinuités. Ces résultats rejoignent ceux rapportés par d'autres chercheurs [33], qui ont mis en évidence une dégradation significative des surfaces en présence de concentrations élevées en hydroxyde de sodium. Toutefois, contrairement à certaines études, les résultats obtenus n'indiquent pas une déstructuration totale de la fibre, ce qui suggère que des concentrations modérées permettent d'éliminer une partie des composants non cellulosiques tout en préservant la trame



cellulosique. Il est donc essentiel d'ajuster la concentration de NaOH afin de favoriser l'élimination des impuretés sans induire de dommages irréversibles.

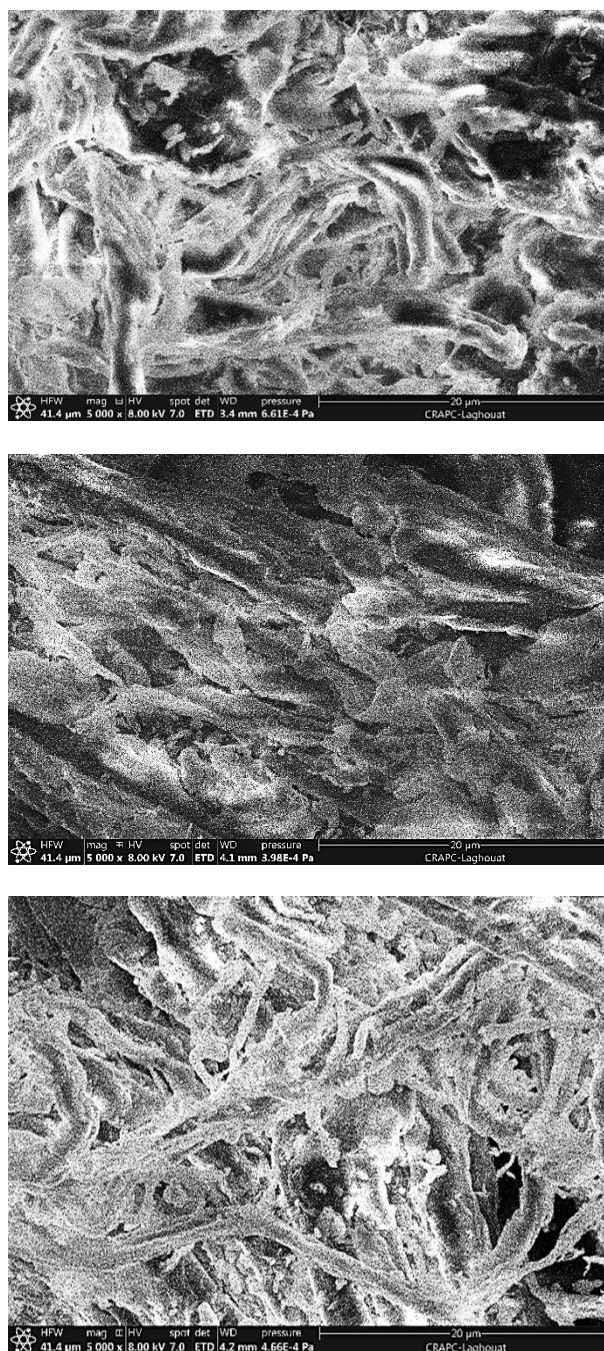


Figure 4 : Images de microscopie électronique à balayage (MEB) de (a) Luffa non traité, (b) Luffa traité au NaOH, (c) Luffa traité au SA.

Le traitement à l'acide stéarique entraîne une surface plus lisse avec une couche hydrophobe, augmentant légèrement le diamètre apparent des fibres par rapport à celles traitées uniquement à l'alcali. Cela indique la formation d'un revêtement à base d'acide stéarique, qui



réduit la porosité de surface et forme un film continu sur les fibres.

Malgré cette modification, la structure cellulaire demeure intacte et protégée, préservant ainsi l'intégrité interne des fibres. Les fibres traitées à l'acide stéarique présentent moins de dommages que celles traitées uniquement à l'alcali (Figure 4c contre Figure 4b), ce qui suggère un effet protecteur de l'acide stéarique [13].

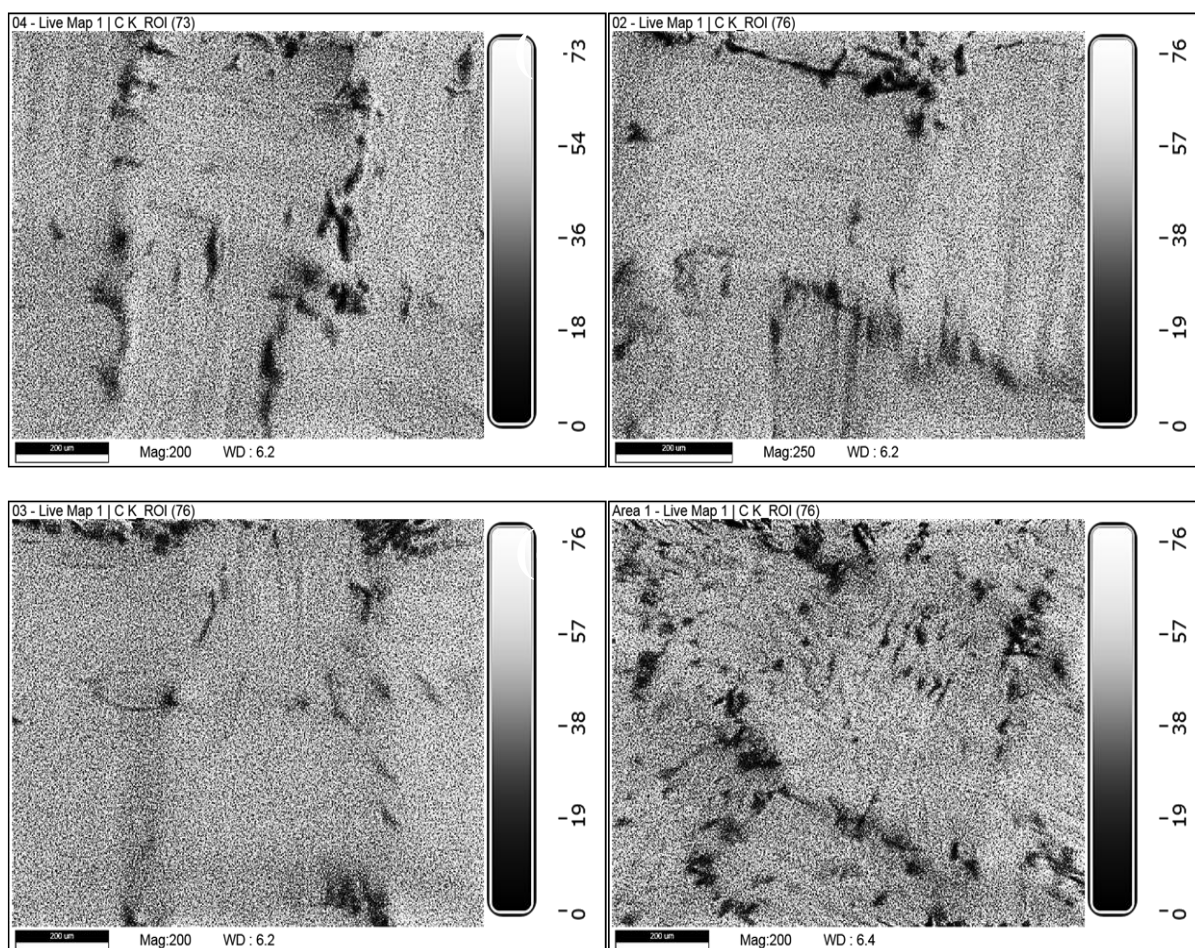


Figure 5 : Images micrographiques de (a) PP/NT-Al -2%, (b) PP/T-NaOH-Luffa-2%, (c) PP/T-NaOH-SA-Luffa-2% et (d) PP/T-SA-[Al+Luffa] -2%.

L'analyse par microscopie électronique à balayage a également permis d'étudier la structure des composites à base de polypropylène renforcés de différentes charges (PP/NT-Al-2 %, PP/T-NaOH-Luffa-2 %, PP/T-NaOH-SA-Luffa-2 % et PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 % ; Figure 5). Les résultats révèlent que l'incorporation d'aluminium préalablement traité à l'acide dans la matrice polypropylène contenant des fibres de Luffa favorise une meilleure dispersion des charges. Par ailleurs, le traitement alcalin améliore la diffusion des fibres dans la matrice, effet encore renforcé par le revêtement stéarique. Celui-ci, en réduisant les forces



intermoléculaires et les phénomènes d'agglomération, favorise une répartition homogène des fibres et de la charge minérale. Cette homogénéité est essentielle pour obtenir un transfert de contraintes efficace au sein du matériau composite. Les observations corroborent ainsi les travaux antérieurs [35], qui rapportaient une distribution uniforme des charges dans des composites hybrides, avec une intégration équilibrée des fibres et des charges minérales dans la matrice polymérique.

En résumé, ces résultats démontrent l'intérêt combiné des traitements alcalins et à l'acide stéarique pour optimiser la compatibilité interfaciale entre les fibres de Luffa, les charges d'alumine et la matrice polypropylène. Ils mettent en évidence la nécessité d'un équilibre dans les conditions de traitement afin de préserver l'intégrité structurale des fibres tout en maximisant leur fonctionnalisation, garantissant ainsi une meilleure performance mécanique et thermique des composites obtenus.

3.3. Analyse DRX

L'analyse des spectres de diffraction des rayons X révèle des changements distincts de cristallinité entre les fibres de luffa non traitées, traitées à l'alcali et traitées à l'acide stéarique. Les fibres de luffa non traitées présentent un pic cristallin principal à $22,5^\circ 2\theta$ avec une intensité de 995 cts et un pic amorphe à $15,34^\circ 2\theta$ avec une intensité de 309 cts, ce qui donne un indice de cristallinité (C_i) d'environ 68,87 %. Pour les fibres de luffa traitées à l'alcali, le pic cristallin principal se décale légèrement à $22,32^\circ 2\theta$ avec une intensité plus élevée de 1098 cts, tandis que le pic amorphe apparaît à $15,57^\circ 2\theta$ avec une intensité plus faible de 152 cts, conduisant à un C_i d'environ 86,10 %. Cette augmentation de la cristallinité est attribuée à l'élimination des composants non cellulotiques, ce qui accroît la proportion de cellulose cristalline et perturbe les liaisons hydrogène dans les régions amorphes, permettant ainsi aux chaînes de cellulose de former des structures plus ordonnées [33], [36].

En revanche, les fibres de luffa traitées à l'acide stéarique présentent un pic cristallin principal à $22,46^\circ 2\theta$ avec une intensité plus faible de 901 cts et un pic amorphe à $15,49^\circ 2\theta$ avec une intensité de 228 cts, ce qui donne un indice de cristallinité (C_i) d'environ 74,70 %. Cette



diminution de la cristallinité est probablement due à la formation d'un revêtement acide qui recouvre certaines régions cristallines, limitant la mobilité des molécules de cellulose et empêchant leur agencement optimal. Le revêtement hydrophobe réduit également le gonflement des fibres et inhibe la perturbation des régions cristallines, affectant ainsi la cristallinité globale [37].

L'application de l'acide stéarique peut également réorganiser la structure moléculaire au sein des fibres, car la couche hydrophobe induit des modifications dans le compactage des chaînes de cellulose. Selon la nature de ces alignements moléculaires, cela peut conduire soit à une augmentation, soit à une diminution de la cristallinité [38]. De plus, la couche hydrophobe réduit les forces intermoléculaires entre les molécules des fibres, ce qui peut empêcher la formation de régions cristallines fortement compactes et réduire davantage la cristallinité [39]. La présence du revêtement à l'acide stéarique inhibe également la nucléation et la croissance de nouvelles régions cristallines en agissant comme une barrière physique, limitant la mobilité et l'alignement des chaînes de cellulose nécessaires à la cristallisation [40].

Bien que le traitement à l'acide stéarique réduise légèrement la cristallinité, cette modification confère des propriétés de surface bénéfiques aux fibres. Ces changements peuvent améliorer l'interaction entre les fibres et la matrice de polypropylène, car la surface modifiée par l'acide stéarique accroît la compatibilité avec le polymère, renforçant ainsi l'adhésion entre la fibre et la matrice.

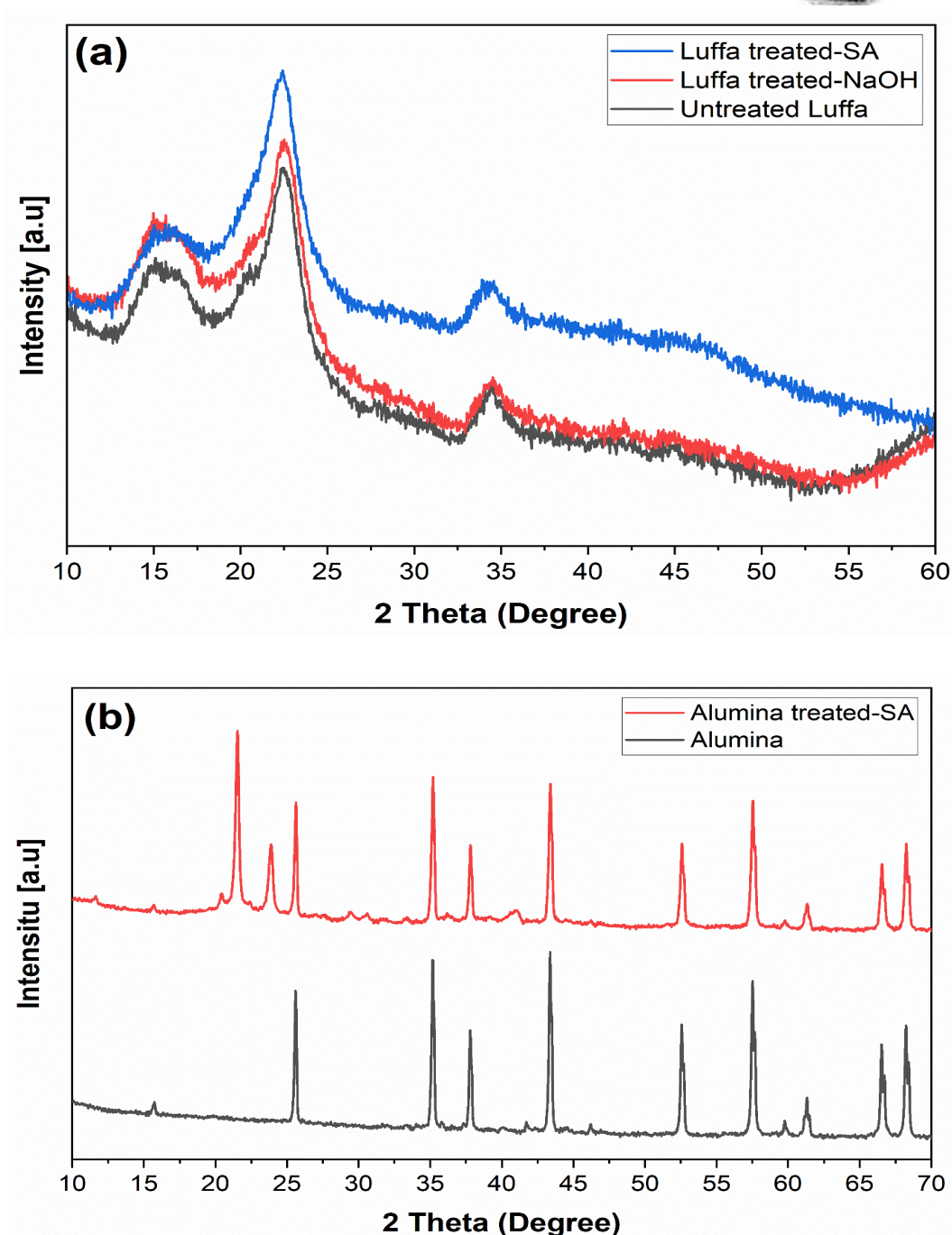


Figure 6 : Diagrammes XRD de (a) Luffa non traité, Luffa traité avec NaOH et Luffa traité avec de l'acide stéarique (SA), (b) Alumine et Alumine traité avec de l'acide stéarique (SA).

La figure 7 présente les diffractogrammes de l'alumine et de l'alumine traitée à l'acide stéarique. Pour l'alumine non traitée, le diffractogramme révèle plusieurs pics, indiquant une structure polycristalline. Le pic principal, situé à un angle de diffraction de $2\theta = 25,5^\circ$, correspond à la structure cristalline de l' Al_2O_3 , comme le rapportent plusieurs études [41], [42]. En revanche, le diffractogramme de l'alumine traitée à l'acide stéarique montre deux nouveaux pics à $2\theta = 21,65^\circ$ et $2\theta = 24^\circ$, attribués à l'acide stéarique [43]. Ces nouveaux pics



confirment que la surface des charges est recouverte d'acide stéarique. L'intensité des pics de l' Al_2O_3 diminue après le traitement à l'acide stéarique, traduisant une réduction de la cristallinité. Cette diminution est attribuée au traitement de surface par broyage, pouvant entraîner une perte progressive de cristallinité, voire l'apparition d'une structure amorphe [44]. De plus, le traitement à l'acide stéarique modifie la chimie de surface et la morphologie de l'alumine.

Dans l'étude des composites à base de polypropylène (PP), les diffractogrammes révèlent cinq pics distincts dans la plage 15 à 30° en 2 θ , caractéristiques de la phase cristalline du polypropylène [45]. Le traitement alcalin initial des fibres de luffa conduit à un indice de cristallinité de 66,57 %, traduisant une organisation et un alignement accrus des chaînes de cellulose. Toutefois, le traitement ultérieur à l'acide stéarique induit une couche d'acide gras autour des fibres, perturbant la structure ordonnée de la cellulose et réduisant la cristallinité à 61,46 %, ce qui altère l'arrangement cellulosique. À l'inverse, l'incorporation d'alumine traitée à l'acide stéarique, combinée à des fibres de luffa également traitées à l'acide stéarique, dans la matrice de PP entraîne une augmentation significative de la cristallinité du composite (effet synergique). Les résultats de la DRX montrent des pics plus intenses correspondant aux zones cristallines du polypropylène, avec une cristallinité portée à 75,18 % pour le composite PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 %. Cela suggère que l'alumine traitée mécaniquement agit comme agent nucléant, favorisant la cristallinité.

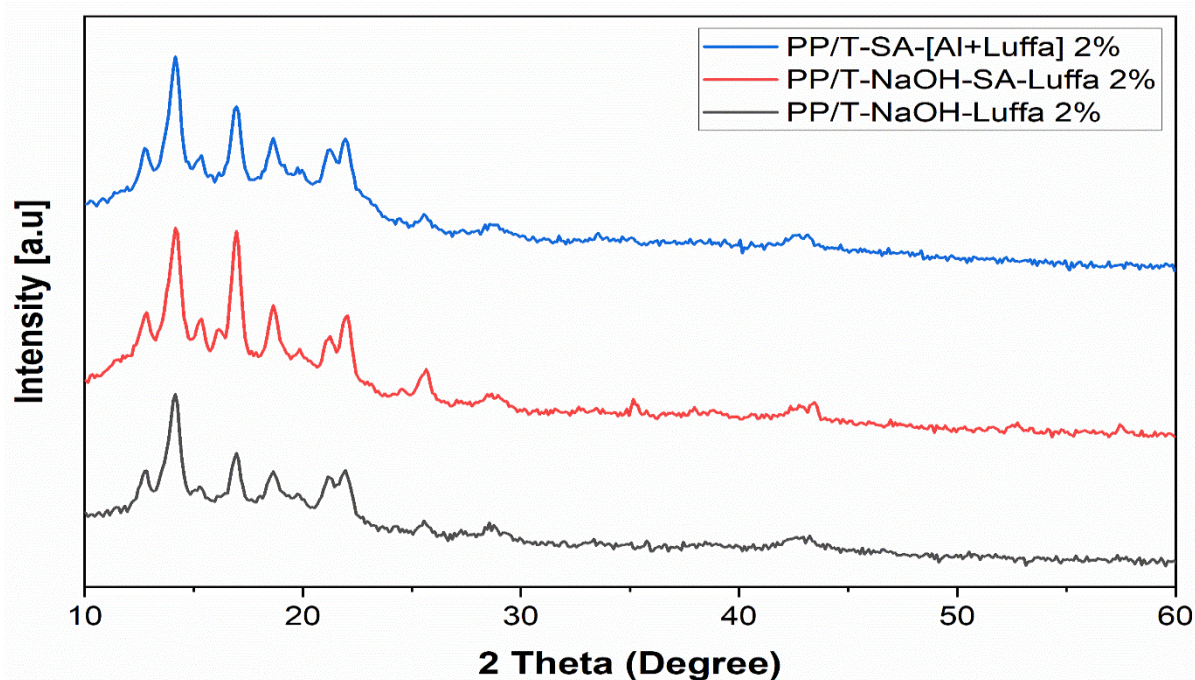


Figure 7 : Résultats XRD de PP/T-NaOH-Luffa-2%, PP/T-NaOH-SA-Luffa-2% et PP/T-SA-[Al+Luffa] -2%.

Le revêtement à l'acide stéarique sur les particules de charge facilite leur dispersion au sein de la matrice, conduisant ainsi à un composite plus homogène. Les particules de charge bien dispersées, grâce à leur effet nucléant, contribuent à une amélioration de la cristallinité dans le composite.

Le tableau 2 présente un résumé comparatif des principales bandes d'absorption FTIR et des pics de diffraction XRD observés pour les fibres de luffa non traitées, traitées à la soude (NaOH) et traitées à l'acide stéarique (AS), ainsi que pour les charges d'alumine, et leur incorporation dans le composite à base de PP. Le tableau met en évidence les principaux groupes fonctionnels chimiques identifiés par FTIR, la disparition ou le décalage de pics caractéristiques après modifications de surface, ainsi que les changements correspondants des indices de cristallinité obtenus par analyse XRD. L'ensemble de ces résultats confirme l'élimination effective des composants non cellulotiques et la greffe réussie de l'AS, ce qui a contribué à une meilleure compatibilité charge-matrice et à une organisation structurale renforcée dans le bio-composite.



Bas du formulaire

Tableau 2 : résumé des principales bandes FTIR et des pics XRD pour différents traitements.

Échantillons	FTIR bande (cm ⁻¹)	Groupes Fonctionnel / Notes	XRD Peaks (2θ)	Cristallinité Index (%)
Luffa non traite	3424, 2920, 1733, 1458, 1245	O–H, –CH ₂ , C=O (hemicellulose), lignin	22.5°, 15.34°	68.87%
NaOH-Luffa traité	3424, 2920, 1733, 1245	Elimination d'hémicellulose et la lignine	22.32°, 15.57°	86.10%
SA- Luffa traité	3435, 2920, 2850, 1712	CH groups (from SA), C=O (SA)	22.46°, 15.49°	74.70%
Alumina (non traité)	400–1000, 3435	Al–O, Al–OH	25.5°	—
SA-Alumina traité	2919, 2850, 1300–1600	CH ₃ /CH ₂ from SA, Al–O shift	21.65°, 24° (SA peaks)	Base intensité
PP/T-SA-[Al+Luffa] 2%	2950, 2916, 1712, 921	New C=O (SA), acide carboxylique	Multiplé (15–30°)	75.18%

3.4. Analyse thermique

L'analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC) a été réalisée afin d'étudier les modifications induites dans la microstructure du polypropylène (PP) et ses transitions thermiques suite à l'incorporation d'un mélange de charges traitées par la soude (NaOH) et l'acide stéarique (SA). Les thermogrammes DSC des différentes formulations sont présentés à



la Figure 8 et concernent les composites PP/T-NaOH-Luffa-2 %, PP/T-NaOH-SA-Luffa-2 % et PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 %. Les données numériques correspondantes sont regroupées dans le Tableau 3.

L'évaluation thermique a porté sur trois échantillons représentatifs, révélant un comportement complexe lié aux effets combinés des traitements alcalin et stéarique. Les résultats indiquent que les échantillons PP/T-NaOH-Luffa-2 % et PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 % présentent deux pics exothermiques distincts : le premier correspondant à la température de fusion (T_m) et le second à la température de décomposition (T^d). Comme l'indiquent les valeurs reportées dans le Tableau 3, les températures de fusion des composites à base de PP sont situées aux alentours de 165 °C, ce qui reflète la stabilité des liaisons cristallines caractéristiques de cette matrice polymère semi-cristalline.

Par ailleurs, l'échantillon PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 % se distingue par une énergie de fusion plus élevée (98,913 J/g) et par une température de décomposition accrue ($T^d = 446$ °C), traduisant une amélioration notable de la stabilité thermique du matériau. Cette évolution peut être attribuée à l'action synergique du traitement à l'acide stéarique, qui favorise une meilleure compatibilité interfaciale entre les fibres de luffa, l'alumine et la matrice polypropylène, renforçant ainsi la cohésion structurale et limitant les mécanismes de dégradation thermique.

Ces observations rejoignent les résultats de l'analyse par diffraction des rayons X (XRD) présentés à la Figure 7, lesquels mettent en évidence une cristallinité accrue des composites traités. L'accroissement du degré de cristallinité est en effet connu pour améliorer les propriétés thermiques et mécaniques des polymères, en raison de la formation de zones ordonnées plus résistantes à la diffusion thermique et à la rupture moléculaire [46].

Ainsi, les résultats de l'étude DSC confirment l'importance des traitements de surface appliqués aux fibres naturelles et aux charges minérales dans la maîtrise des propriétés thermiques des composites à base de polypropylène. Ces améliorations offrent des perspectives intéressantes pour l'optimisation des formulations en vue d'applications



nécessitant une meilleure stabilité thermique, telles que les pièces automobiles, les dispositifs électriques isolants ou encore certains composants de l'industrie de l'emballage soumis à des températures élevées.

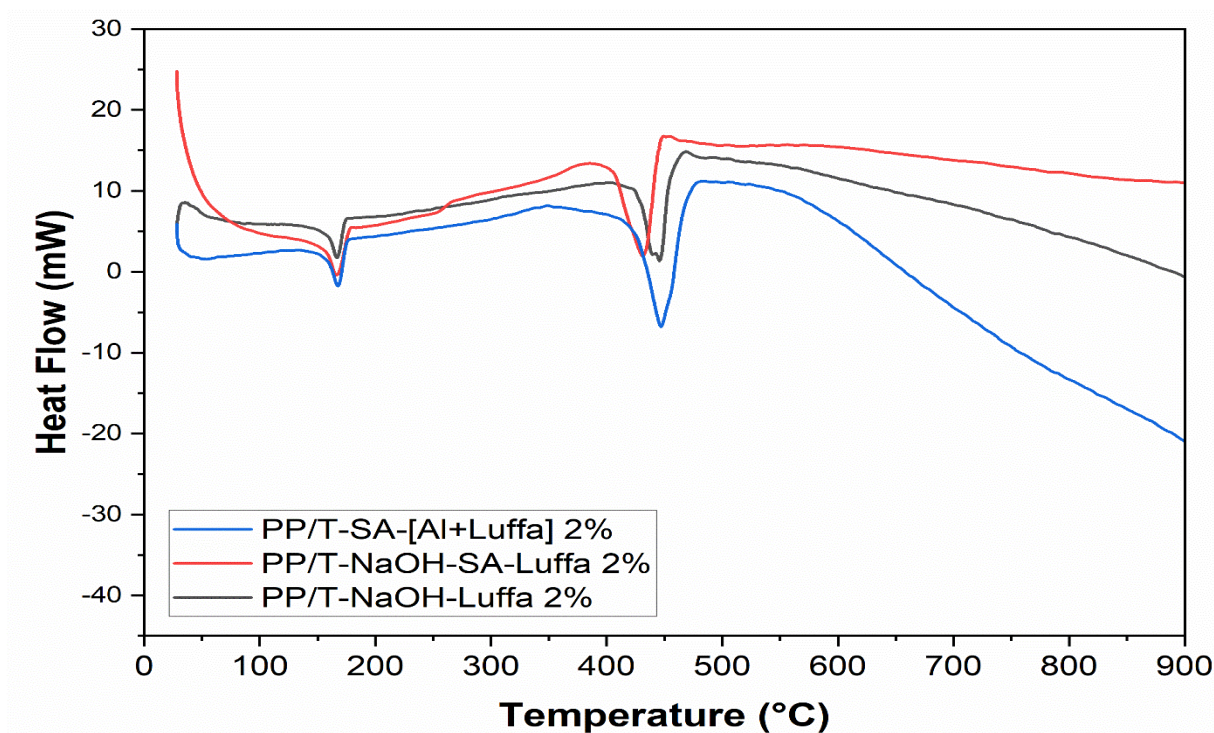


Figure 8 : Thermogrammes DSC de PP/T-NaOH-Luffa-2 %, PP/T-NaOH-SA-Luffa-2 % et PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 %.

Tableau 3 : Transitions thermiques obtenues à partir des thermogrammes DSC de PP/T-NaOH-Luffa-2 %, PP/T-NaOH-SA-Luffa-2 % et PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 %.

Sample	T _m (C°)	Heat release	T _d (C°)
PP/T-NaOH-Luffa-2%	165	59.837 J/g	443
PP/T-NaOH-SA-Luffa-2%	164	97.142 J/g	431
PP/T-SA-[Al+Luffa] -2%	167	98.913 J/g	446

L'analyse thermogravimétrique (TGA) a été employée afin d'évaluer la stabilité thermique des composites synthétisés. Cette technique fournit des informations précieuses sur les phénomènes de dégradation thermique en fonction de la température et permet ainsi de comparer le comportement des différentes formulations étudiées. Les caractéristiques de



dégradation sont rapportées dans le Tableau 4. L'examen conjoint de la Figure 9 et du Tableau 3 met clairement en évidence que l'utilisation de charges traitées à l'acide stéarique induit une amélioration notable de la stabilité thermique du polypropylène (PP). Cette amélioration se traduit par une élévation significative des températures de dégradation maximale (T_{max}), ce qui reflète une meilleure résistance thermique globale et donc une performance accrue du matériau.

Plus en détail, le Tableau 4 montre que l'incorporation de charges traitées entraîne un décalage de la température de perte de masse vers des valeurs plus élevées. Les résultats révèlent ainsi des différences marquées entre les échantillons. Par exemple, le composite PP renforcé par des fibres de Luffa traitées en solution alcaline commence à se décomposer à une température de 237 °C, traduisant une certaine amélioration par rapport au PP vierge. En revanche, le composite contenant des fibres non traitées associées à l'alumine présente la résistance la plus élevée vis-à-vis du début de la dégradation, soit une température initiale de 247 °C. Ce résultat met en évidence un effet synergique dû à la combinaison des deux types de charges, confirmant le rôle structurant et stabilisant de l'alumine dans la matrice polymérique.

La Figure 9 illustre de manière explicite que le composite PP/T-SA-[Al+Luffa] -2 % affiche une amélioration substantielle de la stabilité thermique du polymère, atteignant une température maximale de dégradation (T_{max}) de 450 °C. Ce résultat est particulièrement remarquable si l'on considère la faible teneur en charges utilisée (2 %), démontrant qu'une quantité réduite de charges fonctionnalisées peut suffire à conférer une stabilité thermique accrue au PP. Ces observations sont en accord avec les travaux de Zhu et al. [47], qui ont rapporté que l'introduction de charges à l'échelle nanométrique dans une matrice polymérique favorise une nette augmentation de la stabilité thermique des matériaux composites.

L'amélioration obtenue peut être attribuée à plusieurs mécanismes concomitants. D'une part, la présence de charges traitées (fibres de Luffa et alumine) favorise une dispersion homogène au sein de la matrice polymérique, limitant ainsi la formation de zones de faiblesse



thermiquement vulnérables. D'autre part, les interactions interfaciales renforcées entre le PP et les charges, résultant du traitement de surface à l'acide stéarique, contribuent à une meilleure cohésion de l'ensemble, retardant le processus de dégradation thermique. En conséquence, les composites traités présentent non seulement une perte de masse réduite, mais également une masse résiduelle plus importante après la pyrolyse.

Ces constats concordent étroitement avec les résultats obtenus par calorimétrie différentielle à balayage (DSC), qui montrent que le composite PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 % présente une stabilité thermique supérieure, corrélée à une augmentation du taux de cristallinité et à un relèvement de la température de fusion. L'association entre une cristallinité accrue et une température de fusion plus élevée confirme l'effet bénéfique des traitements chimiques et de la dispersion des charges sur la résistance thermique du polymère.

En définitive, les résultats de l'analyse TGA démontrent que la modification des charges et leur intégration synergique dans le PP permettent d'optimiser la stabilité thermique des composites. Ces matériaux présentent ainsi un potentiel intéressant pour des applications soumises à des températures plus élevées, ouvrant la voie à une valorisation accrue du polypropylène dans des domaines où la performance thermique est un critère déterminant.

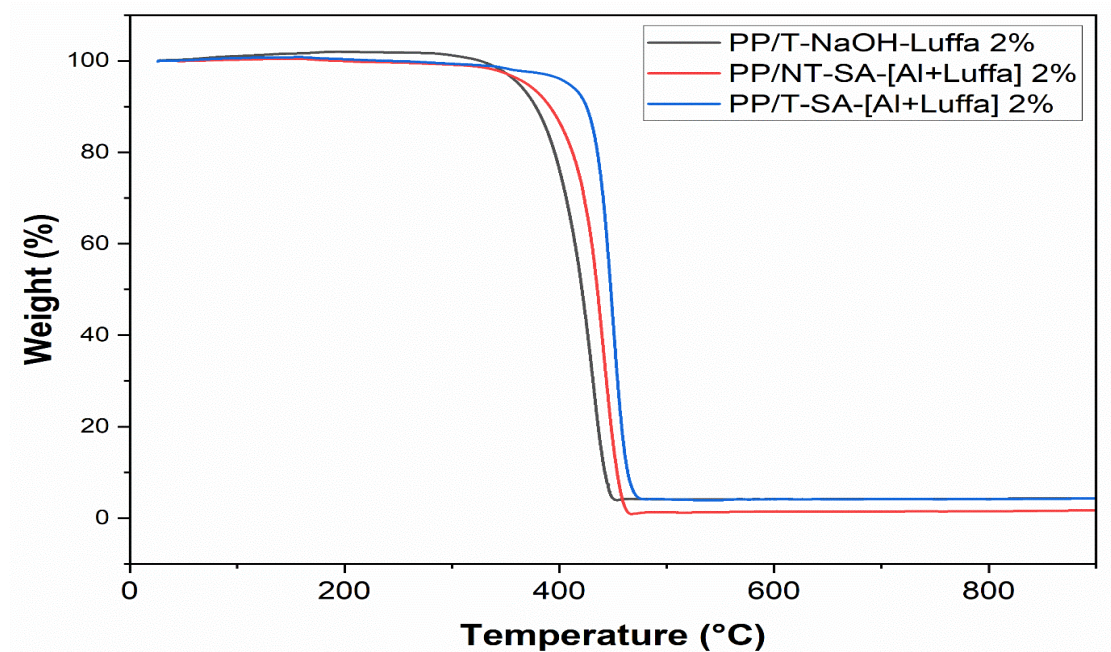


Figure 9 : Graphiques comparatifs de l'analyse thermogravimétrique des composites.



Tableau 4 : Température de dégradation maximale (Tmax) obtenue par ATG des composites synthétisés.

Sample	Tmax
PP/T-NaOH-Luffa -2%	350°C
PP/NT-[Al+Luffa] -2%	440°C
PP/T-SA-[Al+Luffa] -2%	450°C

3.5. Izod impact resistance

La Figure 10 illustre, sous forme d'histogramme, la résistance à l'impact du polypropylène (PP) et de ses composites élaborés avec l'alumine brute et l'alumine traitée à l'acide stéarique, déterminée par le test Izod. Trois types d'échantillons ont été étudiés : le polypropylène pur, le composite contenant 2 % d'alumine non traitée (PP/NT-Al-2 %) et le composite renfermant 2 % d'alumine traitée à l'acide stéarique (PP/T-SA-Al-2 %).

Le PP pur présente une résistance à l'impact de 35,38 kJ/m², servant de référence pour la comparaison. L'introduction de 2 % d'alumine non traitée entraîne une légère diminution de cette valeur, qui descend à 32,74 kJ/m². Cette réduction peut être attribuée à une adhésion interfaciale limitée entre les particules de charge et la matrice polymère, ce qui engendre une mauvaise transmission des contraintes et favorise la création de zones de fragilité.

À l'inverse, l'incorporation de 2 % d'alumine traitée à l'acide stéarique améliore considérablement les performances mécaniques, avec une résistance à l'impact atteignant 47,18 kJ/m². Cette augmentation notable est le résultat d'une meilleure compatibilité interfaciale entre les particules d'alumine traitées et la matrice polypropylène. Le traitement de surface, associé au broyage mécanique, permet non seulement de réduire la taille des particules, mais aussi d'améliorer leur dispersion dans la matrice. Cela limite la formation de zones de concentration des contraintes et favorise une dissipation plus homogène de l'énergie lors de la sollicitation en impact. Ainsi, l'amélioration significative des propriétés mécaniques



démontre l'efficacité du traitement de surface par acide stéarique [48].

Ces résultats mettent en évidence le rôle déterminant des modifications de surface des charges minérales dans l'optimisation des propriétés mécaniques des composites à matrice polymère. Ils confirment que l'amélioration de l'adhésion interfaciale constitue un paramètre clé pour renforcer la ténacité et la résistance à l'impact. Dans une perspective de recherche avancée, il serait pertinent d'élargir l'étude en variant la teneur en alumine traitée, afin d'identifier la concentration optimale, et en explorant d'autres agents de couplage ou méthodes de fonctionnalisation de surface. De telles investigations contribueraient à développer des composites à hautes performances, répondant aux exigences d'applications structurales et industrielles où la résistance aux chocs constitue un critère essentiel.

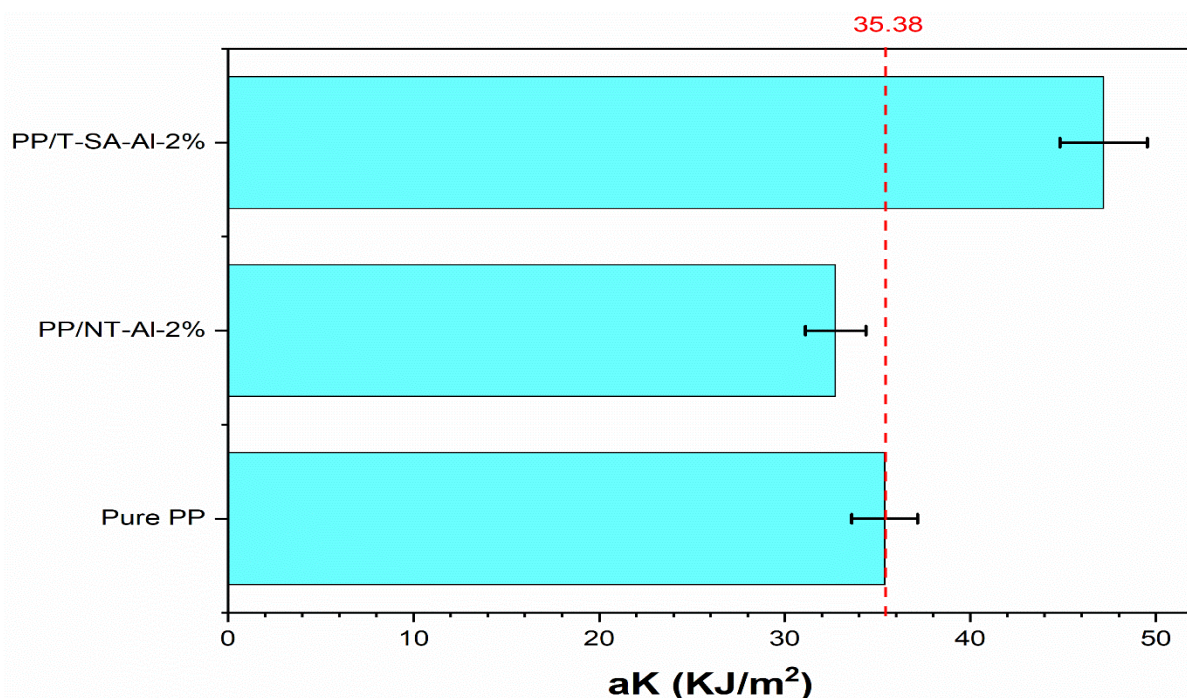


Figure 10 : Résistance aux chocs Izod des échantillons de PP pur, (PP/NT-Al-2%) et (PP/T-SA-Al-2%).

La Figure 11 illustre les résultats relatifs à la résistance à l'impact (Izod) du polypropylène (PP) pur et de ses composites renforcés. Cette étude a permis d'évaluer la capacité de différents systèmes composites à dissiper l'énergie lors d'un choc, paramètre essentiel pour les applications nécessitant de bonnes propriétés de ténacité et de durabilité. Les échantillons analysés comprenaient le PP vierge, pris comme référence, ainsi que plusieurs formulations



composites à base de fibres de luffa traitées à la soude (NaOH), ou combinées avec l'alumine, cette dernière ayant été introduite aussi bien avec des fibres non traitées qu'avec des fibres modifiées à l'acide stéarique. Deux taux de charge ont été considérés, à savoir 2 % et 5 %, afin d'examiner l'influence de la concentration en charges sur le comportement à l'impact.

Le PP pur a présenté une valeur de ténacité à l'impact Izod de 35,38 kJ/m², constituant ainsi la valeur de base. L'introduction de fibres de luffa traitées à la soude (PP/T-NaOH-SA-Luffa-2 %) a conduit à une légère diminution de cette résistance, traduisant une compatibilité limitée entre la matrice et les fibres en l'absence de traitement supplémentaire. En revanche, la formulation PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 % a enregistré la valeur la plus élevée, soit 37,46 kJ/m², indiquant que le traitement de surface à l'acide stéarique favorise une meilleure dispersion des charges hybrides alumine/luffa et améliore leur adhésion à la matrice polymère. Ce mécanisme de compatibilisation se traduit par une absorption accrue de l'énergie lors de l'impact, renforçant ainsi la ténacité du composite.

Cependant, l'augmentation de la teneur en charges à 5 % a conduit à une dégradation significative de la résistance à l'impact. Les composites PP/NT-[Al+Luffa]-5 % et PP/T-SA-[Al+Luffa]-5 % ont respectivement affiché des valeurs de 25,09 kJ/m² et 27,19 kJ/m². Cette réduction est attribuée à la tendance accrue des charges à s'agglomérer lorsque leur concentration devient élevée, phénomène qui engendre des zones de concentration de contraintes et, par conséquent, une diminution de la ténacité du matériau [49].

Dans l'ensemble, ces résultats mettent en évidence un effet synergique des charges binaires (fibres de luffa/alumine), qui combinent les avantages mécaniques offerts par chacune. Ils soulignent également le rôle déterminant des traitements de surface et des taux de charge dans la maîtrise des propriétés mécaniques finales. En particulier, le traitement à l'acide stéarique, appliqué avec une faible teneur de 2 %, s'avère particulièrement efficace pour améliorer la résistance aux chocs. Ces observations fournissent des indications précieuses pour l'optimisation des formulations de composites à matrice polypropylène, notamment dans des applications industrielles où la résistance à l'impact constitue un critère de performance



essentiel, comme dans les secteurs de l'emballage, de l'automobile et des biens de consommation.

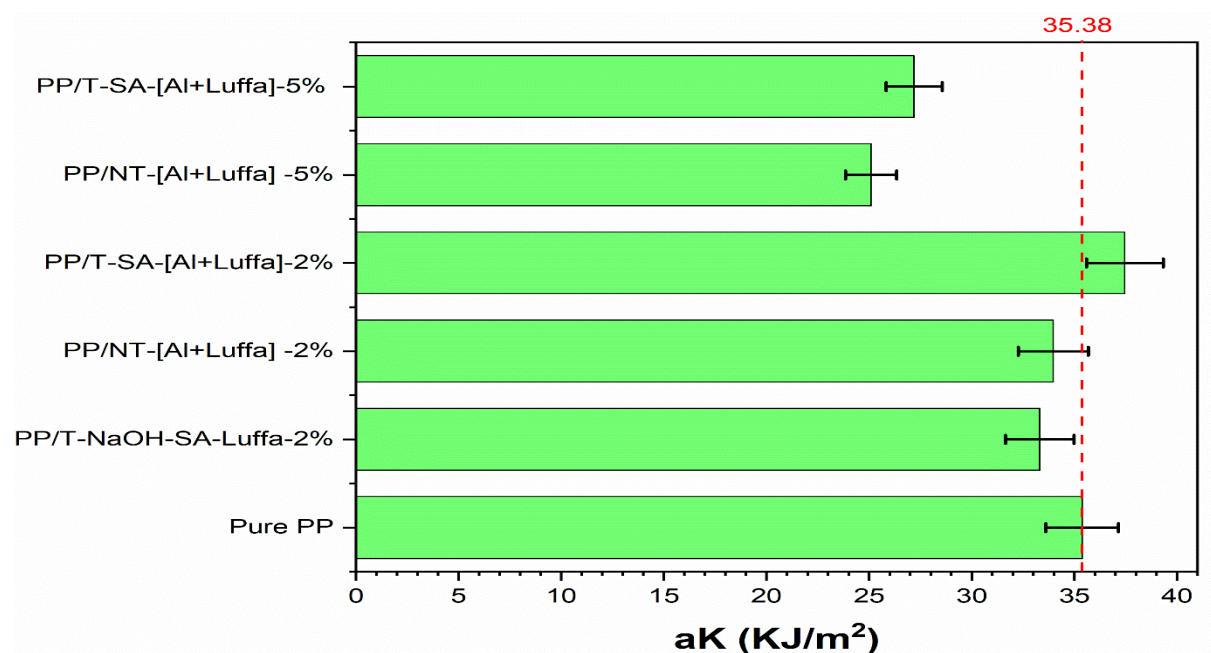


Figure 11 : Résistance aux chocs Izod des échantillons selon la matrice expérimentale.

4. Conclusion

Cette étude a permis d'incorporer avec succès des fibres de *Luffa aegyptiaca* non traitées et traitées ainsi que de l'alumine (Al_2O_3), à la fois individuellement et en combinaison, dans une matrice de polypropylène (PP) afin d'améliorer ses performances thermiques et mécaniques de manière économique et respectueuse de l'environnement. L'acide stéarique a été utilisé comme agent de traitement de surface sûr et abordable afin d'améliorer la compatibilité charge-matrice. Les composites préparés ont été caractérisés par FTIR, MEB, DRX, DSC, ATG et essais mécaniques. Les principaux résultats sont résumés comme suit :

- L'analyse FTIR a confirmé l'efficacité des traitements alcalin et à l'acide stéarique. Le traitement alcalin a permis d'éliminer les impuretés non cellulosiques et d'améliorer l'exposition de la cellulose, tandis que l'acide stéarique a introduit de nouveaux groupes fonctionnels tels que la bande $\text{C}=\text{O}$ à 1712 cm^{-1} , renforçant l'adhésion interfaciale avec la matrice PP.
- L'analyse MEB a révélé une meilleure dispersion et une adhésion interfaciale accrue dans le composite PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 %. La cristallinité est passée de 61,46 %



(avec le luffa traité à l'acide stéarique) et 66,57 % (avec le luffa traité à la soude) à 75,18 % dans la formulation hybride, ce qui met en évidence un effet nucléant des particules d'alumine.

- c) Les résultats DSC ont montré que le composite PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 % présentait une température de fusion (T_m) de 166,66 °C et une chaleur de fusion de 98,91 J/g, confirmant une meilleure stabilité thermique par rapport aux autres formulations.
- d) L'analyse ATG a mis en évidence une résistance accrue à la dégradation thermique. La température maximale de dégradation (T_{max}) est passée de 350 °C dans le PP/T-NaOH-Luffa-2 % à 450 °C dans le PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 %, soulignant l'effet synergique de stabilisation thermique des charges traitées.
- e) Les essais mécaniques ont confirmé l'amélioration de la résistance à l'impact. Le composite PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 % a atteint une résistance maximale de 37,46 kJ/m², nettement supérieure à celle des composites non traités et du PP pur, en raison d'une meilleure dispersion des charges et d'une interface charge-matrice améliorée.

Ces résultats confirment que les charges hybrides traitées à l'acide stéarique améliorent non seulement la cristallinité et la résistance thermique, mais renforcent également de manière significative la résistance à l'impact, la ductilité et la ténacité du polypropylène.

Par conséquent, le composite PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 % développé représente un candidat prometteur pour diverses applications industrielles nécessitant des propriétés mécaniques et thermiques améliorées. Par exemple :

- a) Dans l'industrie automobile, ce matériau pourrait être utilisé pour les panneaux intérieurs, les pare-chocs et les composants sous capot qui exigent une haute résistance à l'impact, une bonne stabilité thermique et des performances allégées. La ductilité et la ténacité accrues du composite réduisent la fragilité et renforcent la résistance aux chocs, des caractéristiques essentielles pour la sécurité des passagers et la durabilité des pièces.
- b) Dans le secteur de l'emballage, en particulier pour les conditionnements



thermosensibles et à usage intensif, la température de fusion élevée (166,66 °C) et la température de décomposition thermique (450 °C) offrent une meilleure résistance lors des procédés de remplissage à chaud, de stérilisation et de transport longue distance dans des conditions climatiques variables.

- c) Dans l'industrie du bâtiment, la grande résistance à l'impact et la résistance à la dégradation thermique du composite le rendent adapté à une utilisation dans les panneaux isolants, les plaques de toiture et les panneaux composites exposés aux charges mécaniques et aux environnements extérieurs.
- d) Dans les boîtiers électriques et électroniques, la résistance thermique accrue du composite peut aider à prévenir les déformations ou défaillances à des températures élevées, ce qui en fait une alternative viable aux polymères traditionnels d'origine pétrochimique.
- e) Pour les produits de consommation et les appareils électroménagers, sa résistance à la biodégradation, sa solidité mécanique et sa durabilité thermique ouvrent des perspectives d'utilisation dans les poignées d'outils, les récipients ou les pièces structurales exposées à l'usure et aux fluctuations de température.

Ces applications potentielles s'inscrivent dans la dynamique croissante de la demande pour des matériaux écologiques, économiques et performants, en accord avec les Objectifs de Développement Durable (ODD 9 : Industrie, innovation et infrastructures ; et ODD 12 : Consommation et production responsables). L'incorporation de fibres naturelles traitées et de charges inorganiques améliore non seulement les performances, mais contribue également à la durabilité en réduisant la dépendance aux polymères synthétiques purs et en valorisant les ressources renouvelables.



References

- [1] Nunes, F. M., et al., “Classifications and applications of biocomposites: a bibliometric review and analysis,” *Concilium*, vol. 23, no. 17, 2023, pp. 438–465.
- [2] Mitra, B., “Environment Friendly Composite Materials: Biocomposites and Green Composites,” *Def. Sci. J.*, vol. 64, no. 3, 2014, pp. 244–261.
- [3] de Melo, E. C. R., et al., “Influence of Silanization Treatment of Sponge Gourd (*Luffa cylindrica*) Fibers on the Reinforcement of Polyester Composites: A Brief Report,” *Polymers (Basel)*, vol. 14, no. 16, 2022, p. 3311.
- [4] Martinez-Pavetti, M.-B., Medina, L., Espínola, M., & Monteiro, M., “Study on two eco-friendly surface treatments on *Luffa cylindrica* for development of reinforcement and processing materials,” *J. Mater. Res. Technol.*, vol. 14, 2021, pp. 2420–2427.
- [5] Gurunathan, T., Mohanty, S., & Nayak, S. K., “A review of the recent developments in biocomposites based on natural fibres and their application perspectives,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 77, 2015, pp. 1–25.
- [6] Tripathy, S., Jali, P., Parida, C., & Pradhan, C., “Study on biodegradability and thermal behaviour of composites using poly lactic acid and gamma-irradiated fibres of *Luffa cylindrica*,” *Chemosphere*, vol. 261, 2020, p. 127684.
- [7] Grabi, M., Chellil, A., Habibi, M., & Laperriere, L., “Alkaline Treatment’s Effect on Mechanical Properties and Damage Assessment Through Acoustic Emission of *Luffa* Fiber Composite,” *Fibers Polym.*, vol. 23, no. 10, 2022, pp. 2855–2865.
- [8] Alhijazi, M., Safaei, B., Zeeshan, Q., Asmael, M., Eyvazian, A., & Qin, Z., “Recent Developments in *Luffa* Natural Fiber Composites: Review,” *Sustainability*, vol. 12, no. 18, 2020, p. 7683.
- [9] Chen, Y., et al., “In-Depth Analysis of the Structure and Properties of Two Varieties of Natural *Luffa* Sponge Fibers,” *Materials (Basel)*, vol. 10, no. 5, 2017, p. 479.
- [10] Ravikumar, D. K., Ragavan, S., & Dharmalingam, S., “Analysis of Mechanical and Thermal Properties of Aluminum-Chromium-Nitride-Coated Stainless Steel 316L Micrometal Lattice Fabricated by Selective Laser Sintering,” *J. Mater. Eng. Perform.*, vol. 29, no. 11, 2020, pp. 7396–7407.
- [11] Dharmalingam, S., Meenakshisundaram, O., Elumalai, V., & Boopathy, R. S., “An Investigation



on the Interfacial Adhesion between Amine Functionalized Luffa Fiber and Epoxy Resin and Its Effect on Thermal and Mechanical Properties of Their Composites,” *J. Nat. Fibers*, vol. 18, no. 12, 2021, pp. 2254–2269.

[12] de Souza Campos, R., Furtado de Sousa, A. M., Zawadzki, S. F., & Corrêa, H. L., “Analysis of mechanical and thermal properties of polypropylene composite reinforced with *Luffa cylindrica*,” *Eng. Res. Express*, vol. 4, no. 4, 2022, p. 045003.

[13] Pickering, K. L., & Sunny, T., “Effect of stearic acid treatment on the properties of aligned short hemp fibre mats and their potential use as reinforcement in polypropylene matrix composites,” *Cellulose*, vol. 28, no. 9, 2021, pp. 5611–5624.

[14] Salem, I. A. S., Rozyanty, A. R., Betar, B. O., Adam, T., Mohammed, M., & Mohammed, A. M., “Study of the effect of surface treatment of kenaf fiber on chemical structure and water absorption of kenaf filled unsaturated polyester composite,” *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 908, 2017, p. 012001.

[15] Manaia, J. P., & Manaia, A., “Interface Modification, Water Absorption Behaviour and Mechanical Properties of Injection Moulded Short Hemp Fiber-Reinforced Thermoplastic Composites,” *Polymers (Basel)*, vol. 13, no. 10, 2021, p. 1638.

[16] Palanisamy, S., Murugesan, T. M., Palaniappan, M., Santulli, C., & Ayrimis, N., “Fostering sustainability: The environmental advantages of natural fiber composite materials – a mini review,” *Environ. Res. Technol.*, vol. 7, no. 2, 2024, pp. 256–269.

[17] Alhamidi, A., Anis, A., Bashir, Z., Alam, M. A., & Al-Zahrani, S. M., “Studies on the Effect of the Addition of Nano-Spherical Particles of Aluminum on the Thermal, Mechanical, and Morphological Properties of PBT–PET Blend Composites,” *Polymers (Basel)*, vol. 15, no. 17, 2023, p. 3625.

[18] Ramesh, M., Rajeshkumar, L. N., Srinivasan, N., Kumar, D. V., & Balaji, D., “Influence of filler material on properties of fiber-reinforced polymer composites: A review,” *e-Polymers*, vol. 22, no. 1, 2022, pp. 898–916.

[19] Kaczmar, J. W., Pach, J., & Kozłowski, R., “Use of Natural Fibres as Fillers for Polymer Composites,” *Int. Polym. Sci. Technol.*, vol. 34, no. 6, 2007, pp. 45–50.

[20] Gbadeyan, O. J., Sarp, A., Glen, B., & Sithole, B., “Nanofiller/Natural Fiber Filled Polymer Hybrid Composite: A Review,” *J. Eng. Sci. Technol. Rev.*, vol. 14, no. 5, 2021, pp. 61–74.



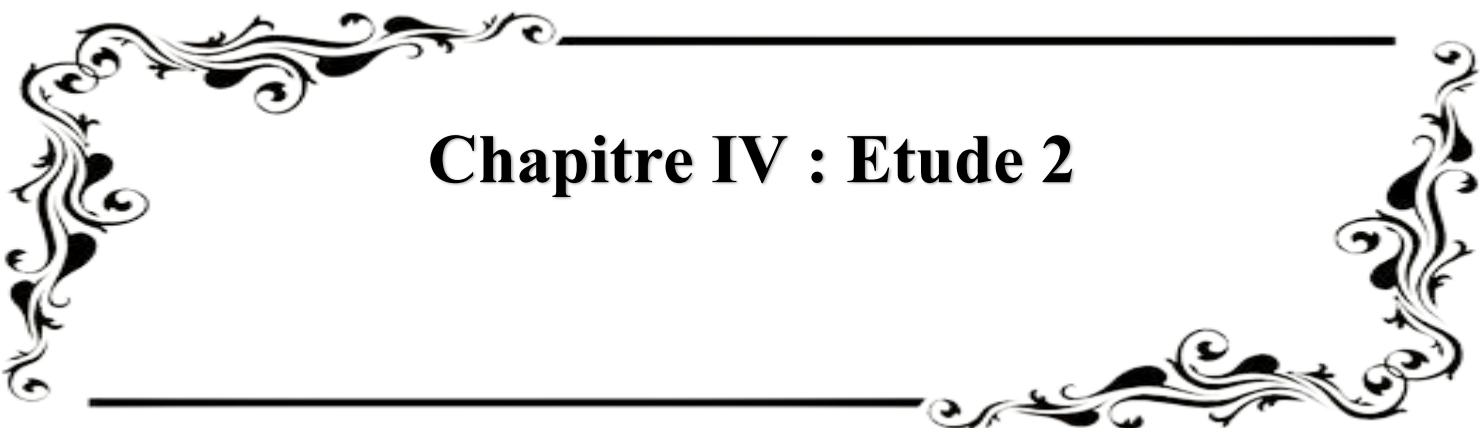
- [21] Feni, F., Jahan, M., Zhao, R., Li, G., Zhao, G.-L., & Mensah, P. F., “Multifunctional composite with hybrid carbon fiber and carbonaceous coconut particle reinforcement,” *Front. Mater.*, vol. 10, 2023.
- [22] Ghodrati, H., & Ghomashchi, R., “Effect of graphene dispersion and interfacial bonding on the mechanical properties of metal matrix composites: An overview,” *FlatChem*, vol. 16, 2019, p. 100113.
- [23] Nam, S., French, A. D., Condon, B. D., & Concha, M., “Segal crystallinity index revisited by the simulation of X-ray diffraction patterns of cotton cellulose I β and cellulose II,” *Carbohydr. Polym.*, vol. 135, 2016, pp. 1–9.
- [24] Kharrati, K., Salhi, M., Sliman, J., & Abdeljabar, R., “An Investigation of Thermomechanical Behavior of Tunisian Luffa Sponges’ Fibers,” *Mater. Sci. Appl.*, vol. 13, no. 10, 2022, pp. 519–531.
- [25] Esan, O. S., Abiola, O. N., Owoyomi, O., Aboluwoye, C. O., & Osundiya, M. O., “Adsorption of Brilliant Green onto Luffa Cylindrical Sponge: Equilibrium, Kinetics, and Thermodynamic Studies,” *ISRN Phys. Chem.*, vol. 2014, 2014, pp. 1–12.
- [26] Kesraoui, A., Bouzaabia, S., & Seffen, M., “The combination of Luffa cylindrical fibers and metal oxides offers a highly performing hybrid fiber material in water decontamination,” *Environ. Sci. Pollut. Res.*, vol. 26, no. 12, 2019, pp. 11524–11534.
- [27] Ighalo, J. O., Adeniyi, A. G., Eletta, O. A. A., Ojetimi, N. I., & Ajala, O. J., “Evaluation of Luffa cylindrica fibres in a biomass packed bed for the treatment of fish pond effluent before environmental release,” *Sustain. Water Resour. Manag.*, vol. 6, no. 6, 2020, p. 120.
- [28] Anastopoulos, I., & Pashalidis, I., “Environmental applications of Luffa cylindrica-based adsorbents,” *J. Mol. Liq.*, vol. 319, 2020, p. 114127.
- [29] Li, R., et al., “Fabrication and Characterization of Superhydrophobic Al-Based Surface Used for Finned-Tube Heat Exchangers,” *Materials (Basel)*, vol. 15, no. 9, 2022, p. 3060.
- [30] Liu, G., Zhou, B., Li, Y., Qi, T., & Li, X., “Surface properties of superfine alumina trihydrate after surface modification with stearic acid,” *Int. J. Miner. Metall. Mater.*, vol. 22, no. 5, 2015, pp. 537–542.
- [31] Linares Veliz, A. B., Jiménez, J. C., López, P., & De Gáscue, B. R., “Biodegradability Study by FTIR and DSC of Polymers Films Based on Polypropylene and Cassava Starch,” *Orbital Electron. J. Chem.*, vol. 11, no. 2, 2019.



- [32] Boronat, C., Correcher, V., García-Guinea, J., & Bravo-Yagüe, J. C., “Ultraviolet C radiation on polypropylene: A potential way to reduce plastic pollution,” *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 225, 2024, p. 110784.
- [33] Kamaruddin, Z., Jumaidin, R., Ilyas, R., Selamat, M., Alamjuri, R., & Yusof, F., “Influence of Alkali Treatment on the Mechanical, Thermal, Water Absorption, and Biodegradation Properties of Cymbopogon citratus Fiber-Reinforced, Thermoplastic Cassava Starch–Palm Wax Composites,” *Polymers (Basel)*, vol. 14, no. 14, 2022, p. 2769.
- [34] Ghali, L., Aloui, M., Zidi, M., Bendaly, H., M’sahli, S., & Sakli, F., “Effect of chemical modification of Luffa cylindrica fibers on the mechanical and hygrothermal behaviours of polyester/luffa composites,” *BioResources*, vol. 6, no. 4, 2011, pp. 3836–3849.
- [35] Mohana Krishnu, D., Sreeramulu, D., Reddy, P. V., & Rajendra Prasad, P., “Influence of Filler on Mechanical and Di-electric Properties of Coir and Luffa Cylindrica Fiber Reinforced Epoxy Hybrid Composites,” *J. Nat. Fibers*, vol. 19, no. 1, 2022, pp. 339–348.
- [36] Kathiresan, S., & Meenakshisundaram, O., “Effect of alkali treated and untreated cellulose fibers and human hair on FTIR and tensile properties for composite material applications,” *SN Appl. Sci.*, vol. 4, no. 3, 2022, p. 74.
- [37] Börjesson, M., & Westman, G., “Crystalline Nanocellulose — Preparation, Modification, and Properties,” in *Cellulose - Fundamental Aspects and Current Trends*, InTech, 2015.
- [38] Kohjiya, S., Tosaka, M., Furutani, M., Ikeda, Y., Toki, S., & Hsiao, B. S., “Role of stearic acid in the strain-induced crystallization of crosslinked natural rubber and synthetic cis-1,4-polyisoprene,” *Polymer (Guildf.)*, vol. 48, no. 13, 2007, pp. 3801–3808.
- [39] Santiago, R., et al., “The effect of stearic acid and different loading treated and untreated EFB fiber on the tensile, structural and chemical properties of polypropylene/recycled acrylonitrile butadiene rubber/empty fruit bunch composites,” *IOP Conf. Ser. Earth Environ. Sci.*, vol. 765, no. 1, 2021, p. 012037.
- [40] Costa, V. L. D., & Simões, R. M. S., “Hydrophobicity improvement of cellulose nanofibrils films by stearic acid and modified precipitated calcium carbonate coating,” *J. Mater. Sci.*, vol. 57, no. 24, 2022, pp. 11443–11459.
- [41] Ansari, S. A., & Husain, Q., “Immobilization of Kluyveromyces lactis β galactosidase on



- concanavalin A layered aluminium oxide nanoparticles—Its future aspects in biosensor applications,” *J. Mol. Catal. B Enzym.*, vol. 70, no. 3–4, 2011, pp. 119–126.
- [42] Ramogayana, B., Santos-Carballal, D., Maenetja, K. P., de Leeuw, N. H., & Ngoepe, P. E., “Density Functional Theory Study of Ethylene Carbonate Adsorption on the (0001) Surface of Aluminum Oxide α -Al₂O₃,” *ACS Omega*, vol. 6, no. 44, 2021, pp. 29577–29587.
- [43] Chen, Y., Zhang, X., Wang, B., Lv, M., Zhu, Y., & Gao, J., “Fabrication and characterization of novel shape-stabilized stearic acid composite phase change materials with tannic-acid-templated mesoporous silica nanoparticles for thermal energy storage,” *RSC Adv.*, vol. 7, no. 26, 2017, pp. 15625–15631.
- [44] Yousfi, M., et al., “Use of new synthetic talc as reinforcing nanofillers for polypropylene and polyamide 6 systems: Thermal and mechanical properties,” *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 403, 2013, pp. 29–42.
- [45] da Silveira, P. H. P. M., et al., “Characterization of Thermo-Mechanical and Chemical Properties of Polypropylene/Hemp Fiber Biocomposites: Impact of Maleic Anhydride Compatibilizer and Fiber Content,” *Polymers (Basel)*, vol. 15, no. 15, 2023, p. 3271.
- [46] Zaki, N. S., & Salih, T. W., “The effect of crystallinity on the thermal conductivity of polymers,” *J. Eng. Sustain. Dev.*, vol. 25, no. Special, 2021, pp. 2–25–2–32.
- [47] Zhu, Z.-K., Yang, Y., Yin, J., Wang, X.-Y., Ke, Y.-C., & Qi, Z.-N., “Preparation and properties of organosoluble montmorillonite/polyimide hybrid materials,” *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 73, no. 11, 1999, pp. 2063–2068.
- [48] Nguyen, T. T., Nguyen, V. K., Pham, T. T. H., Pham, T. T., & Nguyen, T. D., “Effects of Surface Modification with Stearic Acid on the Dispersion of Some Inorganic Fillers in PE Matrix,” *J. Compos. Sci.*, vol. 5, no. 10, 2021, p. 270.
- [49] Fu, S.-Y., Feng, X.-Q., Lauke, B., & Mai, Y.-W., “Effects of particle size, particle/matrix interface adhesion and particle loading on mechanical properties of particulate–polymer composites,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 39, no. 6, 2008, pp. 933–961.



Chapitre IV : Etude 2



Étude des effets de la modification de surface des fibres sur les propriétés physico-mécaniques des composites luffa/PEHD bio-renforcés

1.Introduction

Depuis des siècles, les fibres naturelles sont utilisées dans une grande variété d'applications, notamment pour la construction, le textile et la fabrication d'outils. Issues de sources minérales, végétales ou animales, ces fibres ont récemment suscité un regain d'intérêt en raison des préoccupations environnementales croissantes et du mouvement mondial en faveur de matériaux durables comme alternatives aux polymères synthétiques [1]. Parmi ces fibres, celles d'origine végétale présentent des avantages distincts : elles sont abondantes, biodégradables, économiques et possèdent une empreinte écologique relativement faible lors de leur production. De plus, leur faible densité et leurs propriétés mécaniques satisfaisantes en font des candidats particulièrement attrayants pour le renforcement de matériaux composites légers [2, 3].

Au cours des dernières décennies, les matériaux composites en particulier ceux à matrice polymérique ont connu une expansion considérable dans de nombreux secteurs industriels, grâce à leur combinaison de légèreté, de résistance mécanique et de propriétés thermiques ajustables [4]. Parmi eux, les composites à base de fibres naturelles se sont imposés comme une alternative écologique aux renforts conventionnels tels que les fibres de verre ou de carbone, tout en réduisant la dépendance vis-à-vis des ressources fossiles [5, 6].

Les fibres de *Luffa cylindrica* se distinguent par leur rigidité, leur résistance et leur ténacité, comparables à celles observées pour certains métaux de densité similaire [7]. Leur structure lignocellulosique interconnectée, caractérisée par une surface rugueuse et une forte porosité, favorise un bon ancrage mécanique avec les matrices polymériques. Toutefois, la nature hydrophile de ces fibres entraîne une adhésion insuffisante avec les matrices thermoplastiques hydrophobes, notamment les polyoléfines, comme c'est le cas pour la plupart des fibres lignocellulosiques. Cette incompatibilité se traduit généralement par un transfert de contrainte



limité, un arrachement des fibres et une dégradation des performances mécaniques du composite [8].

Pour pallier ces limitations, des stratégies d'ingénierie d'interface telles que l'ajout d'agent compatibilisant ou la modification chimique de la surface des fibres sont nécessaires [9].

Le polyéthylène (PE), et plus particulièrement le polyéthylène haute densité (PEHD), est l'un des thermoplastiques les plus utilisés en raison de sa grande facilité de mise en œuvre, de sa résistance aux chocs, de son inertie chimique et de sa bonne résistance mécanique [10, 11]. Cependant, le principal défi dans l'élaboration de composites PEHD renforcés par des fibres naturelles réside dans l'incompatibilité entre la nature hydrophile des fibres végétales et le caractère hydrophobe de la matrice polymérique [8]. Cette différence de polarité conduit souvent à une mauvaise dispersion des fibres, une faible adhésion interfaciale et, par conséquent, une réduction des performances mécaniques globales du matériau [9].

Bien que les fibres naturelles présentent des propriétés intéressantes, leur hydrophilie constitue un inconvénient majeur. Cependant, plusieurs approches telles que le traitement chimique des fibres ou l'utilisation d'agents de couplage permettent d'atténuer ces effets. Grâce à leur structure polyporeuse, leur abondance, leur faible coût et leur morphologie de surface favorisant une bonne adhésion, les fibres issues du fruit de *Luffa cylindrica* représentent un renfort naturel prometteur pour les composites légers.

Le composite PEHD–*Luffa* est un biocomposite élaboré par incorporation de fibres naturelles de luffa dans une matrice de polyéthylène haute densité. Ce dernier est largement employé dans les domaines de l'emballage, des canalisations et des contenants, en raison de sa robustesse, de sa résistance aux chocs et de sa stabilité chimique. L'intégration des fibres de luffa confère au composite des caractéristiques de durabilité, de biodégradabilité et de faible impact environnemental. Ces fibres, issues du réseau vasculaire séché du fruit de luffa, sont légères, poreuses et riches en cellulose, ce qui les rend particulièrement efficaces comme renfort dans les matrices polymériques.

Selon la teneur en fibres et le type de traitement de surface appliqué, l'incorporation de luffa



dans le PEHD permet non seulement de réduire la quantité de plastique utilisée, mais également d'améliorer certaines propriétés mécaniques spécifiques telles que la rigidité et la résistance à l'impact. Plusieurs études antérieures ont démontré l'efficacité de ces approches dans les matrices thermodurcissables et thermoplastiques.

Ainsi, Sabarinathan et al. [12] ont montré que des composites hybrides renforcés par des fibres de lin et de luffa présentaient une meilleure résistance à la traction et à l'impact, notamment lorsque la fraction volumique et l'orientation des fibres étaient optimisées. Anbukarasi et Kalaiselvam [13] ont observé qu'une diminution du diamètre des fibres de luffa augmentait leur surface spécifique, améliorant ainsi leur mouillabilité et leur adhésion dans les composites à base d'époxy. Tanobe et al. [14] ont mis en évidence qu'un traitement alcalin (NaOH) appliqué à la *Luffa cylindrica* augmentait notablement sa résistance à la traction tout en réduisant son absorption d'eau dans les composites polyester. De même, Boynard et al. [15] ont confirmé que l'élimination partielle de la lignine et de l'hémicellulose par traitement alcalin améliorait les propriétés en flexion des composites polyester, en favorisant une meilleure exposition de la cellulose, propice au collage.

D'après les travaux de Khanam et AlMaadeed [9], l'ajout de polyéthylène greffé à l'anhydride maléique (PE-g-MA) améliore considérablement l'adhésion interfaciale et les propriétés mécaniques des composites polyoléfiniques renforcés par des fibres naturelles, grâce à la formation de liaisons covalentes et d'interactions secondaires.

Dans cette optique, deux approches complémentaires sont généralement employées : la modification de surface des fibres et l'utilisation d'agents compatibilisants. Dans la présente étude, *Luffa cylindrica* a été choisie comme renfort biosourcé en raison de sa structure fibreuse légère, de sa disponibilité et de ses propriétés mécaniques favorables. Les fibres ont été traitées chimiquement à la soude (NaOH) par un procédé de mercerisation standard afin d'éliminer les impuretés de surface et d'améliorer l'adhésion fibre-matrice. Par ailleurs, un agent compatibilisant commercial, le PE-g-MA (commercialisé sous le nom de FUSABOND), a été incorporé pour renforcer les interactions interfaciales entre la matrice PEHD et les fibres



de luffa.

Cette recherche vise à évaluer les effets individuels et combinés du traitement alcalin et de l'ajout de PE-g-MA sur les propriétés structurales, mécaniques, thermiques et d'absorption d'eau des composites PEHD/Luffa cylindrica. Les résultats obtenus devraient permettre de mieux comprendre l'influence des modifications de surface et de la compatibilisation sur les performances globales des biocomposites thermoplastiques, ouvrant ainsi la voie à la conception de matériaux durables à haute performance.

2. Matériaux et méthodes

➤ Polyéthylène haute densité (PEHD)

La matrice polymérique utilisée dans cette étude est un polyéthylène haute densité (PEHD, grade DMDA-8810), fourni par la société DOW Chemical Company. Ce polymère se présente sous forme de granulés translucides, caractérisés par un indice de fluidité à chaud (MFI) de 12 g/10 min et une densité de 0,922 g/cm³.

➤ Préparation des fibres de Luffa cylindrica

Nettoyage et séchage

Les fibres brutes de Luffa cylindrica ont d'abord été lavées à l'eau du robinet additionnée de quelques gouttes de détergent neutre, afin d'éliminer les impuretés et la poussière présentes à la surface. Elles ont ensuite été soigneusement rincées à l'eau distillée, puis séchées à l'air libre à température ambiante pendant 96 heures.

➤ Préparation et traitement alcalin des fibres

Après séchage, les fibres ont été découpées, broyées puis tamisées afin d'obtenir une granulométrie uniforme. Le traitement alcalin a été réalisé par immersion des fibres dans une solution aqueuse d'hydroxyde de sodium (NaOH) de concentration et de rapport fibre/solution prédéterminés pendant deux heures. Ce traitement permet l'élimination efficace de la lignine, de l'hémicellulose et des impuretés superficielles présentes dans la structure fibreuse.

À l'issue du traitement, les fibres ont été soigneusement rincées à l'eau distillée jusqu'à l'obtention d'un pH neutre, puis neutralisées à l'aide de quelques gouttes d'acide acétique afin



d'éliminer toute trace résiduelle de soude. Enfin, elles ont été séchées dans une étuve à 70 °C jusqu'à masse constante, garantissant ainsi l'élimination complète de l'humidité.

Cette modification chimique confère aux fibres une meilleure flexibilité, réduit les impuretés de surface et améliore significativement l'adhésion interfaciale avec la matrice en polyéthylène haute densité (PEHD).

➤ Réactifs et additifs

L'hydroxyde de sodium (NaOH) est couramment utilisé comme agent alcalin principal lors de la mercerisation des fibres végétales. Son rôle consiste à extraire la lignine, l'hémicellulose et les impuretés de surface, contribuant ainsi à une meilleure compatibilité fibre-matrice. L'efficacité du traitement à la soude dans l'amélioration de la microstructure des fibres de *Luffa cylindrica* par modification de leur composition chimique et élimination des contaminants a été largement démontrée dans la littérature [12–15, 16–18].

L'acide acétique (CH_3COOH) est appliqué après le traitement alcalin afin de neutraliser les fibres, assurant leur stabilité chimique et réduisant le risque de dégradation. Plusieurs travaux ont montré que la combinaison du NaOH et de l'acide acétique permet de diminuer considérablement l'absorption d'eau des composites à base de fibres naturelles de *Luffa cylindrica* (LNFC), tout en améliorant leurs propriétés mécaniques [19].

Le polyéthylène greffé à l'anhydride maléique (PE-g-MA), commercialisé sous la dénomination FUSABOND™ M603, a été utilisé sous forme de granulés comme agent de compatibilisation. Ce copolymère, d'une densité d'environ 0,94 g/cm³, favorise le renforcement de l'adhésion interfaciale entre la matrice PEHD et les fibres de *Luffa cylindrica*, contribuant ainsi à une meilleure cohésion du composite final.

➤ Préparation des composites

Les composites HDPE/luffa ont été élaborés à l'aide d'un mélangeur à deux cylindres (type SCHWABENTHAN 150), opéré à 160 °C, afin d'assurer une dispersion homogène des fibres et des additifs au sein de la matrice polymérique. Les matériaux obtenus ont ensuite été granulés, puis moulés par compression à 190 °C pour obtenir des éprouvettes normalisées



destinées aux essais. Ce procédé a permis de garantir un mélange homogène à l'état fondu, une imprégnation efficace des fibres et une formation régulière des plaques, créant ainsi des conditions optimales pour l'évaluation mécanique, thermique et morphologique des composites.

➤ Formulations composites

Le Tableau 1 résume les cinq formulations composites élaborées dans le cadre de cette étude. Le matériau de base est le polyéthylène haute densité (PEHD) vierge, renforcé par 3 % en poids de fibres de *Luffa cylindrica*, soit non traitées, soit traitées par voie alcaline. De plus, certaines formulations incluent 5 % en poids de polyéthylène greffé à l'anhydride maléique (PE-g-MA), utilisé comme agent compatibilisant afin d'améliorer l'adhésion interfaciale entre la matrice polymérique et les fibres naturelles.

Tableau 1. Description des formulations composites testées.

Code de formulation	PEHD (en % massique)	Description de la composition
A	100	Virgin HDPE
B	97	HDPE + 3 wt% luffa non traite
C	97	HDPE + 3 wt% luffa traité
D	92	HDPE + 3 wt% luffa non traite + 5 wt% PE-g-MA
E	92	HDPE + 3 wt% luffa traité + 5 wt% PE-g-MA

➤ Préparation des films d'essai

Les films d'essai normalisés, destinés aux caractérisations mécaniques et thermiques, ont été élaborés par moulage par compression à partir de granulés composites préalablement broyés. Le moulage a été réalisé à l'aide d'une presse hydraulique fonctionnant à une température de 190 °C, sous une pression adaptée afin d'assurer une épaisseur homogène et une consolidation



optimale du matériau. Cette étape visait à garantir la cohésion interne et la régularité dimensionnelle des échantillons obtenus.

➤ Préparation des éprouvettes d'essai

Les éprouvettes destinées aux essais de traction et de choc ont été fabriquées à l'aide d'une presse hydraulique DAVENPORT, d'une capacité maximale de 25 tonnes. Un moule unique en acier, conçu conformément aux normes ASTM, a été employé afin d'assurer une uniformité géométrique entre les différentes formulations composites. Le cycle de moulage par compression s'est déroulé en plusieurs étapes :

- Préchauffage du matériau pendant 8 minutes à 190 °C, sans application de pression ;
- Dégazage du matériau pendant 1 minute par pressions intermittentes afin d'éliminer les bulles d'air ;
- Compression finale durant 5 minutes à température constante.

Après démoulage, les éprouvettes ont été refroidies naturellement à température ambiante à l'air libre. Ce protocole rigoureux a permis d'obtenir des échantillons géométriquement homogènes et hautement reproductibles, assurant ainsi la fiabilité des mesures mécaniques ultérieures.

3. Techniques de caractérisation

➤ Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR)

L'analyse FTIR a été réalisée à l'aide d'un spectromètre AFFINITY-1S afin d'identifier les groupements fonctionnels et la structure chimique des composites à base de polyéthylène haute densité (HDPE). Des films minces ont été scannés dans le domaine spectral compris entre 4000 et 400 cm^{-1} , avec une résolution de 4 cm^{-1} et une moyenne de quatre balayages par échantillon.

Cette technique a permis de repérer les vibrations moléculaires caractéristiques ainsi que les liaisons chimiques spécifiques, fournissant ainsi des informations précieuses sur le degré de cristallinité des matériaux. De plus, l'analyse FTIR s'est révélée essentielle pour détecter les modifications structurales induites par le traitement de surface des fibres et par l'incorporation



de l'agent compatibilisant, mettant ainsi en évidence les interactions interfaciales et l'évolution chimique au sein des formulations composites.

➤ **Spectroscopie UV–Visible (UV–Vis)**

La spectroscopie UV–Visible a été effectuée à l'aide d'un spectrophotomètre UV-1900i dans le but d'examiner les propriétés optiques, la présence de pigments naturels ainsi que les transitions électroniques au sein de la phase fibreuse. Les spectres d'absorbance ont été enregistrés dans les domaines ultraviolet (100–400 nm), visible (400–750 nm) et proche UV, afin d'identifier la présence de chromophores et d'évaluer le degré de conjugaison dans la structure moléculaire des fibres.

Ces observations permettent d'apprécier la nature électronique et pigmentaire des renforts, paramètres influençant potentiellement les propriétés photochimiques et la stabilité des composites.

➤ **Analyse thermogravimétrique (TGA)**

L'analyse thermogravimétrique (TGA) a été réalisée à l'aide d'un calorimètre DSC-LINSEIS, dans le but d'évaluer la stabilité thermique ainsi que le taux de résidu carbonneux des échantillons étudiés. Les essais ont été conduits sous atmosphère d'azote inerte, afin d'éliminer toute influence oxydative susceptible d'altérer la décomposition thermique. Les échantillons ont été soumis à une montée en température contrôlée de 20 °C à 700 °C, avec une vitesse de chauffage de 10 °C/min.

Les courbes de perte de masse ainsi obtenues ont permis d'identifier les différentes étapes de dégradation thermique des composites, ainsi que d'estimer la fraction de matière stable subsistant à haute température. Ce paramètre constitue un indicateur essentiel pour la compréhension du comportement thermique global des formulations étudiées et de la résistance du matériau aux processus de pyrolyse ou de combustion.

➤ **Analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC)**

Les mesures de calorimétrie différentielle à balayage (DSC) ont été effectuées à l'aide du même appareil DSC-LINSEIS, afin de déterminer la température de fusion (T_m) et le degré



de cristallinité du polyéthylène haute densité (HDPE) ainsi que de ses formulations composites.

Les échantillons ont été chauffés de 30 °C à 200 °C à une vitesse de 10 °C/min, sous atmosphère d'azote, de manière à prévenir toute dégradation oxydative. L'analyse des thermogrammes obtenus a permis d'évaluer les transitions thermiques caractéristiques du polymère et d'apprécier l'influence des charges ou des fibres introduites sur la structure cristalline du matériau.

Ces résultats fournissent des informations fondamentales sur la relation entre la morphologie du composite et ses propriétés thermiques, contribuant ainsi à une meilleure compréhension de la stabilité et du comportement thermique des matériaux élaborés.

➤ Analyse mécanique dynamique (DMA)

Dynamic Mechanical Analysis (DMA) was conducted to evaluate the storage modulus (E'), loss modulus (E''), and damping factor ($\tan \delta$) of the composites over a temperature range of 30–130 °C. This analysis provided valuable insight into the viscoelastic behavior and thermomechanical performance of each formulation.

Essais mécaniques

Les propriétés mécaniques des composites ont été évaluées à l'aide d'essais normalisés de traction et de résistance à l'impact, afin de garantir la reproductibilité et la précision des résultats. L'essai de traction a été réalisé sur une machine universelle Zwick/Roell, conformément à la norme ASTM D638-73, sur des éprouvettes de dimensions $165 \times 15 \times 3$ mm³, soumises à une traction uniaxiale avec une vitesse de 15 mm/min. Ces essais ont permis de déterminer la résistance mécanique, le comportement plastique, ainsi que la relation contrainte-déformation sous sollicitation en traction.

La résistance à l'impact a été mesurée selon la méthode Izod (norme ASTM D256-73), sur des éprouvettes entaillées de $63 \times 12,7 \times 3$ mm³, à l'aide d'un Ceast RESIL IMPACTOR fonctionnant à une énergie de 7,5 J. L'entaillage contrôlé de 1 mm a permis une initiation précise de la fissure et une propagation maîtrisée, assurant ainsi une évaluation fiable de la



capacité d'absorption d'énergie du matériau. L'ensemble de ces tests mécaniques fournit une vision complète de la tenue structurale et de la durabilité des composites à base de HDPE, tout en mettant en évidence l'influence notable du renforcement fibreux, du traitement de surface et de l'agent compatibilisant sur leurs performances globales.

Absorption d'eau

L'absorption d'eau a été déterminée par immersion des échantillons dans de l'eau distillée à température ambiante pendant 24 heures. L'augmentation relative de la masse a ensuite été calculée afin d'évaluer la hydrophilicité de chaque formulation composite. Ce test permet d'apprécier la sensibilité à l'humidité et la qualité de l'interface matrice-fibre, paramètres déterminants pour la stabilité dimensionnelle et la durabilité à long terme des composites.

4. Résultats et discussion

➤ Analyse spectroscopique FTIR des composites à base de HDPE

Les spectres infrarouges à transformée de Fourier (FTIR) des échantillons de HDPE vierge et des différentes formulations composites sont présentés dans les Figures 11 à 14. Le spectre du HDPE vierge (Formulation A) met en évidence les bandes d'absorption caractéristiques situées à 2915 cm^{-1} et 2848 cm^{-1} , attribuées respectivement aux vibrations d'élongation asymétrique et symétrique des groupes $-\text{CH}_2$, ainsi qu'à 1470 cm^{-1} et 718 cm^{-1} , correspondant aux vibrations de flexion de ces mêmes groupes méthylène. Ces bandes traduisent la structure moléculaire typique du HDPE, constituée de longues chaînes saturées à caractère linéaire.

L'incorporation de fibres de luffa non traitées dans la matrice polymère (Formulation B) induit l'apparition de nouvelles bandes d'absorption, notamment une large bande vers 3330 cm^{-1} associée à l'élongation des liaisons O-H, ainsi qu'un pic autour de 2900 cm^{-1} correspondant à l'élongation des liaisons C-H. De plus, la présence de bandes à 1732 cm^{-1} (élongation du C=O) et à 1045 cm^{-1} (élongation du C-O) révèle la contribution des constituants lignocellulosiques des fibres de luffa, en particulier la lignine, l'hémicellulose et la cellulose.

Après traitement alcalin à la soude (NaOH) des fibres (Formulation C), on observe un



affinement du pic O–H et une réduction notable de l'intensité des bandes attribuées aux vibrations C=O et C–O, indiquant une élimination partielle de la lignine et de l'hémicellulose. Cette modification traduit un nettoyage chimique de la surface fibreuse, entraînant une meilleure exposition des groupements hydroxyles et donc une augmentation de la réactivité des fibres vis-à-vis de la matrice polymère.

Les spectres FTIR des formulations D et E, contenant l'agent de compatibilisation polyéthylène greffé à l'anhydride maléique (PE-g-MA), présentent de nouvelles bandes autour de 1720 cm^{-1} , attribuées aux vibrations carbonyles (C=O) de l'anhydride maléique. Cette signature spectrale confirme l'intégration effective du compatibilisant dans le système composite. Par ailleurs, l'accentuation et la netteté des bandes d'élongation O–H et C–H suggèrent une amélioration des interactions interfaciales entre les fibres et la matrice polymère.

Dans le cas des formulations incorporant des fibres de luffa traitées, la largeur accrue de la bande O–H (vers 3380 cm^{-1}) et les variations d'intensité des bandes C–H (2900 cm^{-1}) et C–O–C (1100 cm^{-1}) témoignent de la formation de nouvelles liaisons carbonyles et éther entre les groupements hydroxyles des fibres et les fonctions anhydrides du compatibilisant. La diminution, voire le déplacement, de la bande située à 1735 cm^{-1} indique une dégradation partielle des hémicelluloses ou une réorganisation chimique de la surface fibreuse.

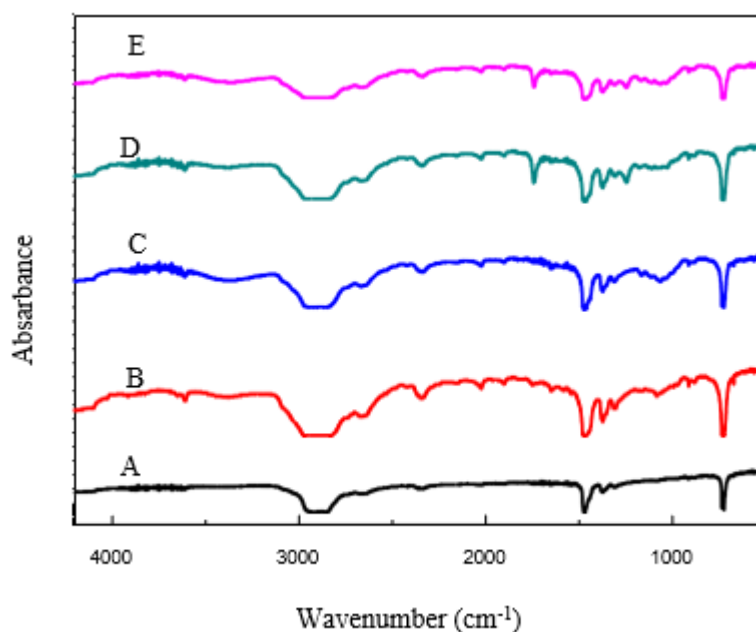


Figure1. Spectre FTIR des formulations A, B, C, D et E

Ces modifications spectrales traduisent un renforcement de l'adhésion interfaciale et une meilleure compatibilité fibre-matrice, confirmant l'efficacité combinée du traitement alcalin et de la compatibilisation par PE-g-MA dans l'amélioration des performances des composites HDPE/luffa. Ces résultats démontrent l'importance des stratégies de fonctionnalisation des fibres naturelles pour optimiser les propriétés chimiques et mécaniques des composites polymériques.

UV-VIS Spectroscopy

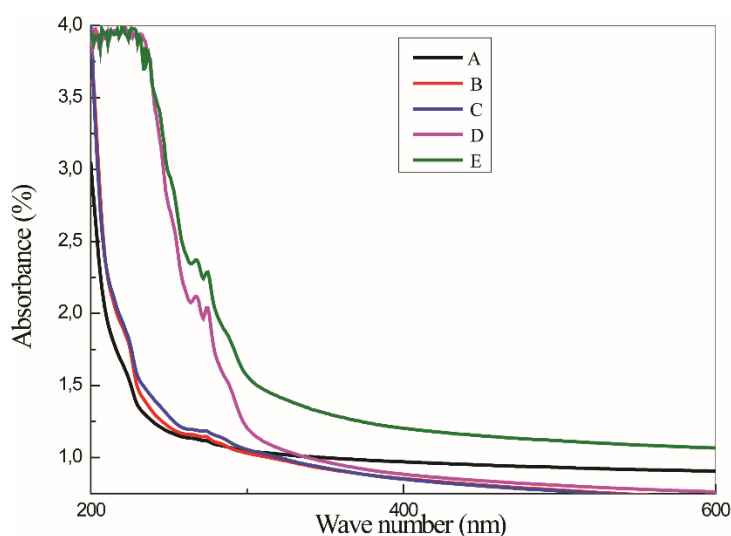


Figure 2. les spectres d'absorption UV-Visible des formulations A, B, C, D et E

La Figure 2 illustre les spectres d'absorption UV-Visible des cinq formulations (A à E),



mettant en évidence des comportements d'absorption distincts attribuables à la fois à la matrice polymère et aux composants de renfort. Pour la formulation A, correspondant au HDPE vierge, le spectre UV-VIS révèle une absorption initiale autour de 278 nm, suivie d'une chute marquée de l'absorbance avec l'augmentation de la longueur d'onde. Cette diminution indique une faible absorption du HDPE dans la zone visible, traduisant l'absence d'irrégularités structurales ou d'additifs antioxydants dans la matrice polymère.

Pour les formulations B et C, l'incorporation des fibres de luffa modifie notablement le comportement d'absorption. Les spectres obtenus suggèrent la présence de pigments naturels tels que les caroténoïdes, anthocyanes et chlorophylles, responsables de l'absorption observée dans la région 230–280 nm. Les fibres non traitées présentent une absorption plus intense, ce qui témoigne de la contribution directe de ces composés pigmentaires. Cette absorption accrue dans l'ultraviolet peut influencer les propriétés optiques des composites, notamment leur capacité à absorber ou diffuser la lumière, aspect pertinent pour des applications exposées à la radiation UV.

Concernant les formulations D et E, intégrant le compatibilisant PE-g-MA, une légère augmentation de l'absorbance est observée dans la région inférieure de l'UV, autour de 230 nm. Cette amélioration peut être attribuée à des interactions chimiques entre le compatibilisant et les composants fibreux, ou encore à des modifications microstructurales liées à une meilleure dispersion des fibres et à une interface matrice-renfort plus homogène. Ces changements traduisent un renforcement des interactions interfaciales, facteur déterminant pour la performance globale des composites.

➤ Differential Scanning Calorimetric (DSC) Analysis

Les thermogrammes obtenus par calorimétrie différentielle à balayage (DSC), présentés à la Figure 3, illustrent les transitions thermiques, principalement le comportement de fusion et le degré de cristallinité des formulations composites à base de HDPE lors du second cycle de chauffage.

L'ensemble des échantillons présente un pic endothermique net dans l'intervalle de 130 à 140



°C, correspondant à la transition de fusion des domaines cristallins du HDPE, confirmant ainsi que ce dernier demeure la phase majoritaire dans toutes les formulations étudiées.

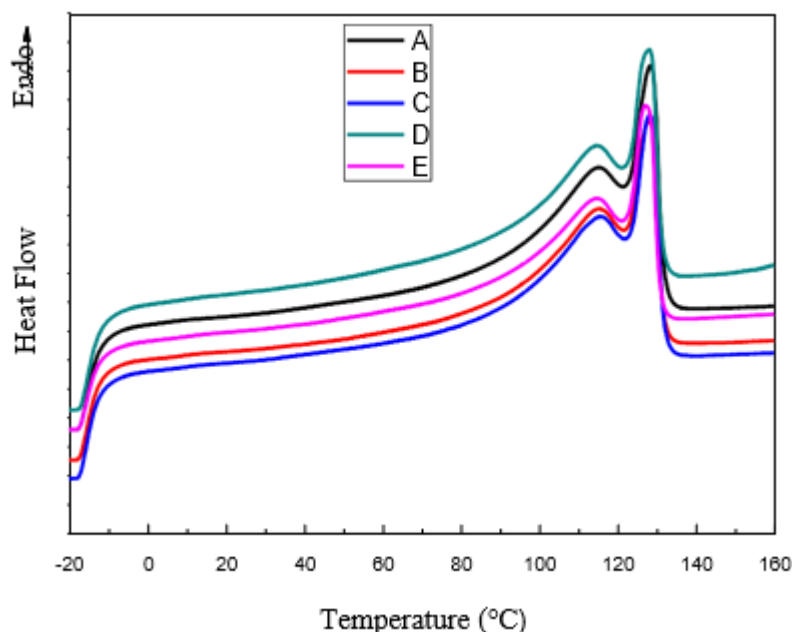


Figure 3. Thermogrammes DSC des formulations à base de PEHD (A à E)

L'échantillon de HDPE vierge (échantillon A) montre un pic de fusion intense et bien défini, caractéristique d'un polymère hautement cristallin et non modifié. En revanche, l'incorporation de 3 % en masse de fibres de luffa non traitées (échantillon B) conduit à une légère diminution de l'intensité du pic ainsi qu'à un léger décalage de la température de fusion. Cette évolution traduit une réduction modérée du degré de cristallinité, attribuée à l'interférence physique des fibres avec la structure cristalline du HDPE.

Lorsque les fibres de luffa sont soumises à un traitement alcalin à la soude (échantillon C), l'enthalpie de fusion diminue davantage, indiquant que le traitement modifie les caractéristiques de surface des fibres. Cette modification favorise une meilleure dispersion dans la matrice, tout en agissant comme un agent de nucléation susceptible de perturber partiellement l'organisation cristalline du polymère.

L'introduction de 5 % en masse de compatibilisant PE-g-MA en présence de fibres de luffa non traitées (échantillon D) se traduit par un pic de fusion plus large et moins intense que celui de l'échantillon B. Cette observation suggère une perturbation accrue de la structure cristalline, liée à une meilleure interaction interfaciale entre les phases et à une mobilité



réduite des chaînes macromoléculaires induite par le compatibilisant.

Enfin, l'échantillon E, combinant des fibres de luffa traitées et le compatibilisant PE-g-MA, présente le pic de fusion le plus large et le moins intense parmi toutes les formulations. Ce comportement traduit une réduction marquée de la cristallinité, résultant de l'effet synergique entre le traitement des fibres et l'ajout du compatibilisant. Cette combinaison entrave fortement la cristallisation du HDPE et conduit à une morphologie plus amorphe du composite.

Ces résultats mettent en évidence l'influence significative du traitement des fibres et de la compatibilisation sur les propriétés thermiques et structurales des biocomposites à base de HDPE, soulignant le rôle déterminant de ces paramètres dans le contrôle de la cristallinité et de la stabilité thermique du matériau final.

➤ Études mécaniques

Résistance au choc Izod

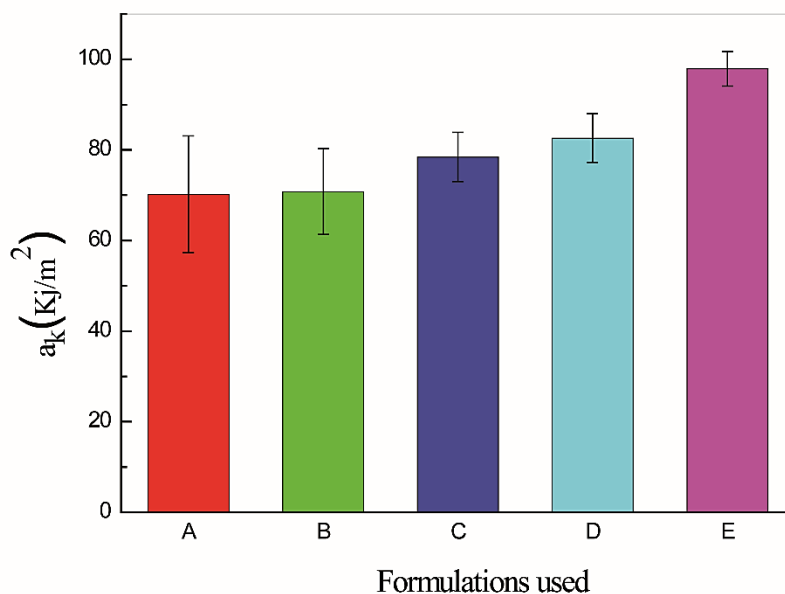


Figure 4. Izod impact strength of virgin HDPE (A), untreated HDPE/Luffa (B), treated HDPE/Luffa (C), untreated HDPE/Luffa with compatibilizer (D), and treated HDPE/Luffa without compatibilizer (E).

L'évolution de la résistance à l'impact Izod des formulations A à E est illustrée à la Figure 4.

Le polyéthylène haute densité vierge (formulation A) présente une résistance de base de 70



kJ/m^2 . Aucun des échantillons testés, toutes formulations confondues, n'a subi de rupture ni de pliage lors des essais, traduisant ainsi une bonne ténacité globale du matériau. L'incorporation de fibres de luffa non traitées (formulation B) induit une légère amélioration de la résistance à l'impact par rapport au HDPE pur. Cette augmentation modeste suggère une interaction mécanique limitée, résultant d'un enchevêtrement physique partiel entre la fibre et la matrice, malgré l'absence de traitement de surface. La formulation C, contenant des fibres de luffa traitées à la soude (NaOH), révèle une augmentation plus marquée de la résistance à l'impact. Cette amélioration est attribuée à une adhésion interfaciale renforcée, conséquence du nettoyage de la surface et de la délignification partielle des fibres durant le traitement alcalin. L'ajout du compatibilisant PE-g-MA (FUSABOND) dans la formulation D conduit également à une hausse notable de la résistance à l'impact, même en présence de fibres non traitées. Ce gain est lié à une meilleure compatibilité chimique entre la matrice polymère et les fibres, favorisée par la présence des groupes anhydride maléique greffés sur la chaîne du polyéthylène.

Enfin, la formulation E, combinant les fibres alcalino-traitées et le compatibilisant PE-g-MA, atteint la valeur maximale de 89 kJ/m^2 , soit une amélioration de 27 % par rapport au HDPE vierge. Ce comportement synergique met en évidence l'importance conjointe des modifications chimiques et améliorations physiques de l'interface dans le renforcement de la résistance à l'impact des composites à base de HDPE.

➤ Résistance à la traction

Afin d'évaluer l'effet du traitement alcalin à la soude (NaOH) et de l'ajout d'un agent compatibilisant sur les propriétés mécaniques, les résultats des essais de traction — incluant la résistance à la rupture (contrainte maximale), l'allongement à la rupture et le module de Young — ont été comparés pour les cinq formulations étudiées. La Figure 5 illustre la variation de la résistance à la traction pour chaque formulation.

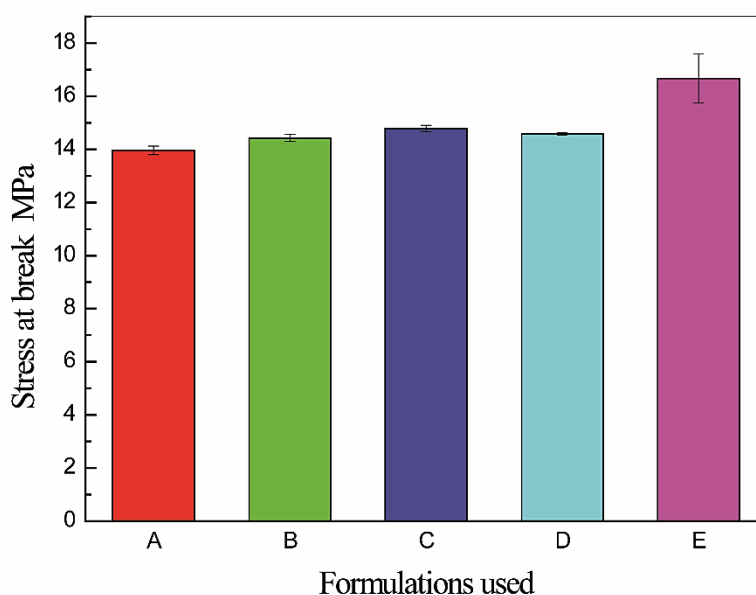


Figure 5. Contrainte de traction à la rupture du PEHD vierge (A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).

Le HDPE vierge (Formulation A) présente une résistance à la traction de 14 MPa, valeur conforme aux données de la littérature. L'incorporation de fibres cylindriques de luffa dans la matrice de HDPE modifie sensiblement les propriétés mécaniques du composite. Le traitement alcalin des fibres de luffa par la soude (NaOH), base fortement réactive et corrosive, provoque une élimination partielle de l'hémicellulose et de la lignine. Ce procédé entraîne une augmentation de la rugosité de surface et de la réactivité chimique des fibres, favorisant ainsi une adhésion interfaciale renforcée entre les fibres et la matrice polymère.

En conséquence, on observe une amélioration notable de la résistance à la traction pour les composites contenant des fibres traitées. L'amélioration la plus marquée est obtenue pour la Formulation E, qui associe les fibres traitées à la NaOH à un agent compatibilisant PE-g-MA. Dans ce cas, la résistance à la traction atteint 16 MPa, démontrant que la synergie entre l'ancrage physique (dû à la rugosité accrue des fibres) et la compatibilisation chimique (liée au greffage de l'anhydride maléique) renforce considérablement la cohésion interfaciale et la résistance à la rupture du composite soumis à une contrainte uniaxiale.



Allongement à la rupture

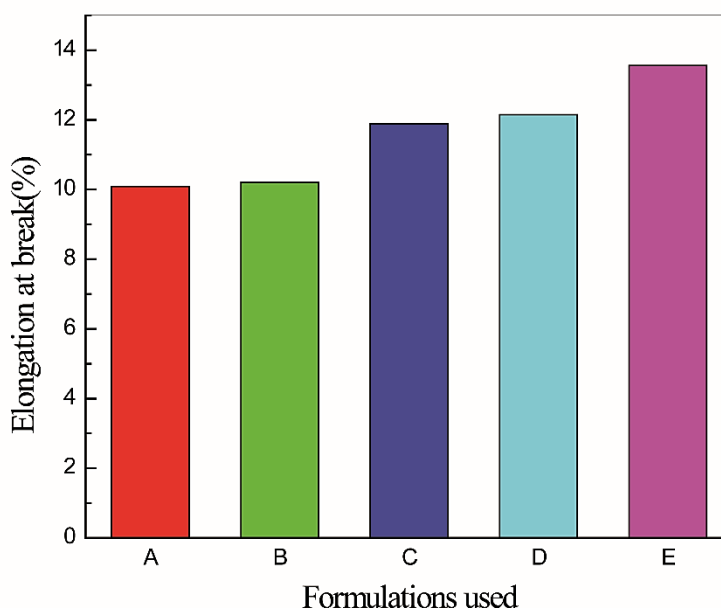


Figure 6. Allongement à la rupture du PEHD vierge (A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).

La Figure 6 illustre la variation de l'allongement à la rupture pour les cinq formulations étudiées. Pour le HDPE vierge (Formulation A), la déformation à la rupture avoisine 10 %, traduisant la ductilité typique du polyéthylène haute densité non modifié. L'introduction des fibres cylindriques de luffa, en particulier après traitement alcalin (NaOH), influence notablement la ductilité du matériau. En effet, le processus de mércerisation améliore la qualité des fibres en éliminant les impuretés superficielles et les constituants non celluloses, tels que la lignine et les hémicelluloses. Ce traitement confère aux fibres une surface plus propre et plus rugueuse, favorisant ainsi une meilleure interaction interfaciale avec la matrice polymère de HDPE. Par conséquent, les fibres de luffa traitées assurent un transfert de contraintes plus efficace, améliorant la capacité du composite à se déformer avant la rupture.

De plus, l'incorporation d'un agent compatibilisant (PE-g-MA) dans la Formulation E renforce considérablement l'affinité entre la fibre et la matrice grâce à la formation de liaisons chimiques. Cette double action de renforcement physique (par les fibres) et chimique (par le



compatibilisant) se traduit par une augmentation notable de la ductilité. L'allongement à la rupture de cette formulation dépasse 14 %, représentant la valeur la plus élevée parmi l'ensemble des formulations. Cette amélioration met en évidence l'efficacité synergique du traitement alcalin des fibres et de l'ajout du PE-g-MA, qui favorisent ensemble une meilleure répartition des charges et une dissipation accrue de l'énergie au sein du composite lors de la déformation en traction.

Effet sur le module d'élasticité

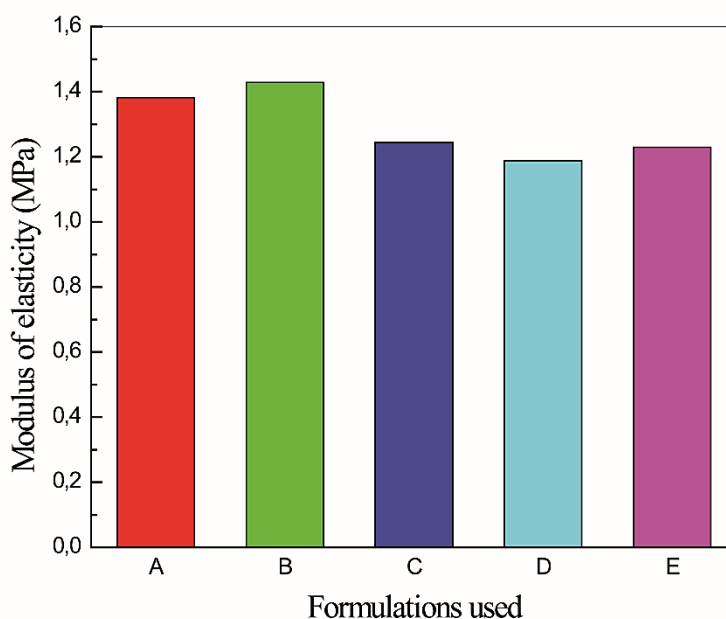


Figure 7. Module d'élasticité du PEHD vierge (A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).

La Figure 7 illustre la variation du module d'élasticité pour les cinq formulations étudiées. Pour le HDPE vierge (Formulation A), la valeur du module d'élasticité est d'environ 1,4 MPa, traduisant la rigidité caractéristique et la faible dureté du polyéthylène haute densité pur. L'incorporation des fibres de luffa traitées à la soude (NaOH) dans la matrice polymère induit une légère augmentation de la rigidité, bien que cette variation demeure marginale. Ce comportement suggère que, bien que le renforcement par des fibres naturelles tende généralement à accroître le module des composites, la faible teneur en fibres (3 %) ainsi que la souplesse intrinsèque des fibres de luffa ne permettent pas de modifier de manière



significative la réponse élastique du matériau.

L'introduction du compatibilisant PE-g-MA, que ce soit avec des fibres traitées ou non traitées, n'influence pas notablement le module d'élasticité. Le rôle principal de ce compatibilisant réside dans l'amélioration de l'adhésion interfaciale et de la résistance mécanique plutôt que dans l'accroissement de la rigidité du composite.

En conclusion, le module d'élasticité demeure quasi constant pour l'ensemble des formulations, indiquant que la rigidité globale du composite est préservée, tandis que les améliorations en résistance et en ductilité résultent principalement des traitements appliqués aux fibres et de l'utilisation du compatibilisant.

Propriétés thermiques

La stabilité thermique du polyéthylène haute densité (HDPE) vierge et de ses composites a été évaluée par analyse thermogravimétrique (TGA). L'étude a porté sur des composites HDPE/luffa bruts et traités, avec et sans compatibilisant PE-g-MA, afin d'examiner l'influence du traitement des fibres et de l'adhésion interfaciale sur le comportement thermique des matériaux. Les courbes TGA des cinq formulations sont présentées à la Figure 8.

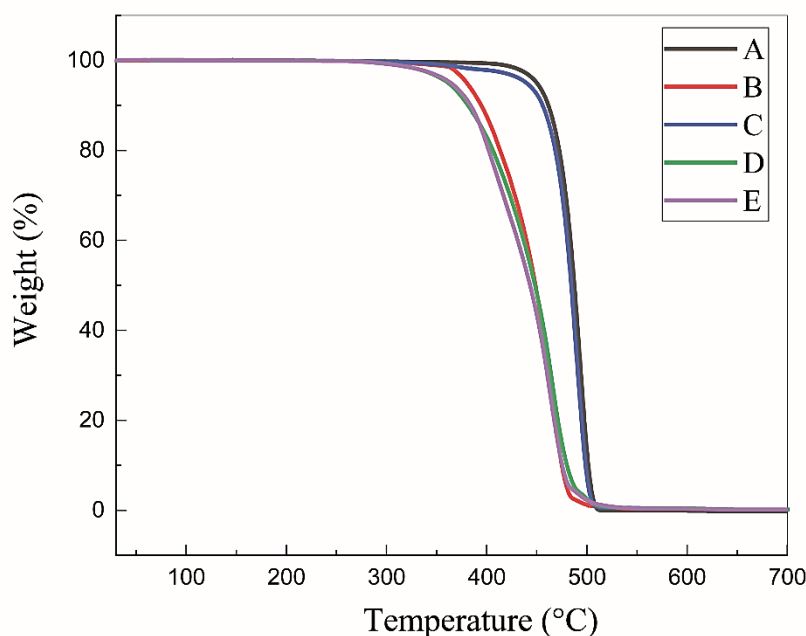


Figure 8. Courbes d'analyse thermogravimétrique (ATG) du PEHD vierge (A), du



PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).

L'analyse thermogravimétrique met en évidence plusieurs tendances significatives. Le HDPE vierge présente une unique étape de décomposition nette, débutant aux environs de 450 °C, caractéristique des polyoléfines et révélatrice de sa grande stabilité thermique. En revanche, les composites contenant des fibres de luffa montrent un début de dégradation plus précoce, généralement entre 250 et 300 °C. Cette diminution de la température d'amorçage s'explique par la présence de constituants lignocellulosiques naturels (hémicellulose, cellulose et lignine) dont la décomposition intervient à des températures inférieures à celles de la matrice polymère. Il convient de rappeler que la dégradation de l'hémicellulose se produit typiquement entre 160 et 250 °C [20].

Tableau 2. Paramètres thermogravimétriques sous N₂ (10°C min⁻¹).

Échantillon	T ₅₀ (°C) (température à 50 % de perte de masse)	Résidu à 500 °C (%)
A	476	0.77
B	476	1.34
C	474	0.78
D	472	1.05
E	474	1.85

Cependant, les composites renforcés par des fibres de luffa traitées présentent une stabilité thermique supérieure à celle des composites non traités. Cette amélioration est attribuée à l'élimination des constituants thermiquement instables, tels que l'hémicellulose, lors du traitement alcalin. Par ailleurs, l'introduction du compatibilisant PE-g-MA contribue également à une meilleure stabilité thermique, en favorisant une adhésion accrue entre la fibre et la matrice polymère. Cet effet se manifeste par un léger déplacement du début de dégradation vers des températures plus élevées, traduisant une réduction des défauts



interfaciaux et une meilleure intégration thermique des phases.

Dans l'ensemble, les résultats de la TGA confirment que le traitement alcalin des fibres de luffa, combiné à l'incorporation du PE-g-MA, améliore sensiblement la performance thermique des composites HDPE/luffa, rendant ces matériaux plus adaptés à des applications soumises à des contraintes thermiques modérées.

Le HDPE vierge présente une décomposition thermique en une seule étape, amorcée à environ 392 °C, avec une perte de masse totale de 99,34 %. Ce phénomène est attribué à la rupture thermique des liaisons C–C au sein de la chaîne polymère (voir Tableau 2). En revanche, les composites contenant du PE-g-MA montrent une décomposition thermique en deux étapes : la première correspond à la dégradation de la matrice HDPE, tandis que la seconde, observée aux alentours de 550 °C, est associée à la décomposition du polyéthylène greffé à l'anhydride maléique (PE-g-MA), entraînant une perte de masse minimale d'environ 0,1 %. À faible teneur en fibres, aucune épaulement distincte à basse température ($\approx 250\text{--}300$ °C) liée aux constituants fibreux n'est observée, ce qui est attendu lorsque la matrice domine largement la réponse thermique.

De manière intéressante, l'incorporation des fibres de luffa, qu'elles soient traitées ou non, n'affecte pas significativement la stabilité thermique globale du composite. Cela s'explique principalement par la faible teneur en fibres (3 % en masse), insuffisante pour modifier de façon notable le comportement global de dégradation du matériau.

Analyse mécanique dynamique

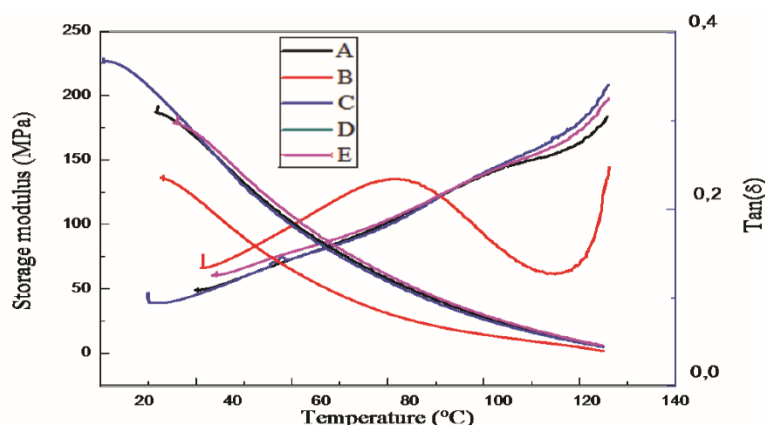


Figure 9. Variation du module de stockage (E') et du facteur de perte ($\tan \delta$) du PEHD vierge



(A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).

L'analyse mécanique dynamique (DMA) fournit des informations précieuses sur le comportement viscoélastique et la qualité interfaciale des composites à base de HDPE, en mettant en évidence l'influence du traitement des fibres et de la compatibilisation.

L'échantillon de HDPE vierge (Échantillon A) présente un module de stockage élevé (~200 MPa à basse température), lequel diminue progressivement avec l'élévation de la température. Parallèlement, la courbe du facteur de perte ($\tan \delta$) demeure très basse et pratiquement plate, traduisant une faible dissipation d'énergie et confirmant la nature hautement élastique et rigide du polymère. Cet échantillon sert ainsi de référence thermoplastique pour la comparaison.

L'incorporation de fibres de luffa non traitées (Échantillon B) entraîne une diminution notable du module de stockage (~145 MPa) accompagnée d'une légère augmentation du $\tan \delta$. Ce comportement traduit une faible adhésion interfaciale entre la matrice et les fibres, un transfert de contrainte limité et une friction interne accrue due à l'arrachement des fibres.

En revanche, l'échantillon C, contenant des fibres de luffa traitées à la soude (NaOH), montre une nette amélioration, avec un module de stockage plus élevé (~225 MPa) et une augmentation modérée du $\tan \delta$ (~0,18). Ces résultats indiquent que le traitement alcalin améliore la compatibilité chimique entre la fibre et la matrice, renforce la rigidité du composite et favorise une répartition plus homogène des contraintes, tout en préservant une certaine élasticité.

La performance mécanique et viscoélastique la plus équilibrée est observée pour l'échantillon E, associant des fibres de luffa traitées à un agent compatibilisant (PE-g-MA). Cette formulation présente un module de stockage élevé (~185 MPa), un module de perte stable sur l'ensemble de la plage de température, ainsi qu'un $\tan \delta$ relativement faible (~0,15). Ces caractéristiques traduisent une forte adhésion interfaciale et une dispersion homogène des fibres au sein de la matrice. L'effet synergique du traitement chimique des fibres et du



compatibilisant conduit ainsi à la formation d'un composite à la fois rigide, élastique et capable d'absorber efficacement l'énergie mécanique, tout en assurant une bonne intégrité structurale sur une large fenêtre thermique.

Ces résultats soulignent le rôle déterminant de la modification de surface et de la compatibilisation dans la conception de biocomposites à hautes performances, permettant d'optimiser la résilience mécanique et la durabilité des matériaux. Comme l'illustre la Figure 9, l'échantillon B (HDPE + fibres de luffa non traitées) présente un pic marqué de $\tan \delta$ vers 72 °C, signe d'une relaxation interfaciale liée à une faible cohésion entre phases. À l'inverse, les échantillons C et D montrent une diminution progressive de $\tan \delta$ avec la température, confirmant une meilleure adhésion interfaciale. L'échantillon A (HDPE vierge) affiche également une décroissance régulière du $\tan \delta$, indiquant l'absence de relaxation interfaciale.

➤ **Études physiques :**

Absorption d'eau

La Figure 10 illustre le comportement à l'absorption d'eau des différents composites HDPE/luffa, comprenant des fibres brutes et des fibres traitées à la soude (NaOH), avec ou sans agent compatibilisant PE-g-MA. On observe une diminution significative de l'absorption d'eau dans les composites renforcés par des fibres traitées à la soude, comparativement à ceux contenant des fibres non traitées. Cette amélioration s'explique par l'élimination partielle de l'hémicellulose et de la lignine lors du traitement alcalin, ce qui réduit la nature hydrophile des fibres et favorise une meilleure adhésion fibre-matrice.

De plus, l'incorporation du compatibilisant PE-g-MA contribue à réduire davantage l'absorption d'humidité, en renforçant les liaisons interfaciales et en diminuant la présence de vides à l'interface fibre-matrice, limitant ainsi la pénétration de l'eau. Parmi l'ensemble des formulations étudiées, l'échantillon E, contenant des fibres de luffa traitées à la soude et le compatibilisant PE-g-MA, présente la plus faible absorption d'eau (~0,0019 %). Ce résultat met en évidence un effet synergique entre le traitement alcalin des fibres et la compatibilisation, traduisant une amélioration notable de la résistance à l'humidité du



composite.

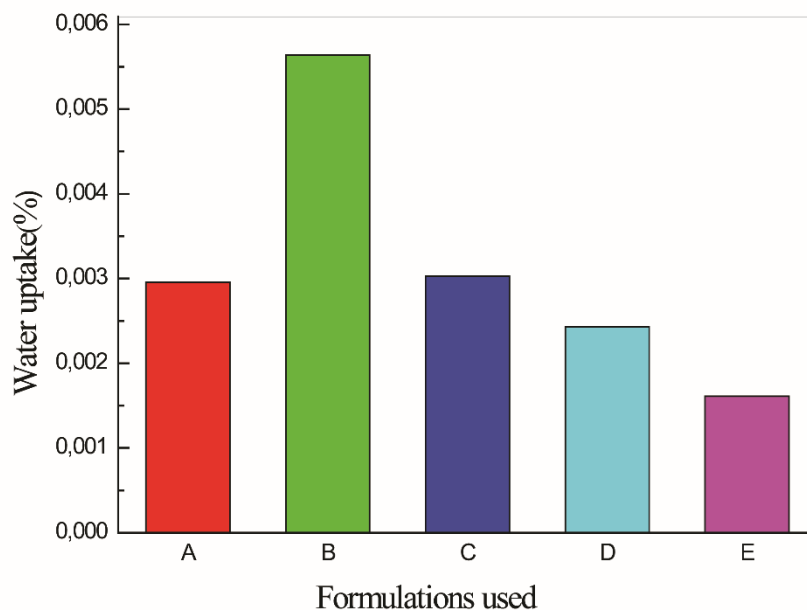


Figure 10. Absorption d'eau du PEHD vierge (A), du PEHD/Luffa non traité (B), du PEHD/Luffa traité (C), du PEHD/Luffa non traité avec compatibilisant (D) et du PEHD/Luffa traité sans compatibilisant (E).

5.Conclusion :

Les résultats obtenus mettent en évidence une réduction progressive du degré de cristallinité des échantillons, allant de la formulation A à la formulation E. Cette évolution traduit une complexification structurelle croissante ainsi qu'une amélioration notable des interactions fibre-matrice. L'action combinée des fibres de luffa traitées à la soude (NaOH) et du compatibilisant PE-g-MA perturbe les domaines cristallins du HDPE, phénomène susceptible d'entraîner une amélioration de la ténacité et de la résistance aux chocs du matériau.

Cette étude démontre que le renforcement du HDPE par des fibres de Luffa cylindrica, en particulier lorsqu'elles sont modifiées chimiquement et compatibilisées, conduit à une amélioration significative des propriétés mécaniques, notamment la résistance à la traction et à l'impact, sans altérer la stabilité thermique de la matrice polymérique.

L'analyse spectroscopique (FTIR) a confirmé la modification chimique effective des fibres, tandis que les analyses thermogravimétriques (TGA) et UV-Visible ont mis en évidence une meilleure résistance thermique ainsi qu'une réduction de la sensibilité à l'humidité des



composites.

Dans l'ensemble, ces résultats soulignent le potentiel élevé des fibres de luffa traitées comme renforts biodégradables, économiques et performants pour les matrices thermoplastiques. Cette approche ouvre des perspectives prometteuses pour le développement de composites polymériques durables à haute performance, conciliant efficacité mécanique et respect de l'environnement.



References

- [1] Mitra, B. C., “Environment friendly composite materials: Biocomposites and green composites,” *Def. Sci. J.*, vol. 64, no. 3, 2014, pp. 244–261.
- [2] Mohd, A., Bahiyah Baba, N., Umor, M. Z., & Mohamed, R. M., “Composites of polymer blends and their applications using natural fibers: A review,” *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, vol. 1068, no. 1, 2021, p. 012006.
- [3] Ho, M. P., Wang, H., Lee, J. H., Ho, C. K., Lau, K. T., Leng, J., & Hui, D., “Critical factors on manufacturing processes of natural fiber composites,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 43, no. 8, 2012, pp. 3549–3562.
- [4] Phiri, R., Mavinkere Rangappa, S., Siengchin, S., Oladijo, O. P., & Ozbakkaloglu, T., “Advances in lightweight composite structures and manufacturing technologies: A comprehensive review,” *Heliyon*, vol. 10, no. 21, 2024, p. e39661.
- [5] Kumar, S., & Sahoo, S. K., “Eco-sustainability of the textile production: Waste recovery and current recycling in the composites world,” *Dogo Rangsang Res. J. UGC Care Group I*, 2021.
- [6] Mittal, G., Rhee, K. Y., Mišković-Stanković, V., & Hui, D., “Reinforcements in multi-scale polymer composites: Processing, properties, and applications,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 138, 2018, pp. 122–139.
- [7] Jino, R., Pugazhenthir, R., Ashok, K. G., Ilango, T., & Chakravarthy, P. R. K., “Enhancement of Mechanical Properties of Luffa Fiber/Epoxy Composite Using B4C,” *J. Adv. Microsc. Res.*, vol. 12, 2017, pp. 89–91.
- [8] Patel, K., Chikkali, S. H., & Sivaram, S., “Ultrahigh molecular weight polyethylene: Catalysis, structure, properties, processing and applications,” *Prog. Polym. Sci.*, vol. 109, 2020, p. 101290.
- [9] Khanam, P. N., & AlMaadeed, M. A. A., “Processing and characterization of polyethylene-based composites,” *Adv. Manuf. Polym. Compos. Sci.*, vol. 1, no. 2, 2015, pp. 63–79.
- [10] Sabarinathan, P., Rajkumar, K., & Gnanavelbabu, A., “Investigation of mechanical properties of Luffa cylindrical and flax reinforced hybrid polymer composite,” *J. Adv. Eng. Res.*,

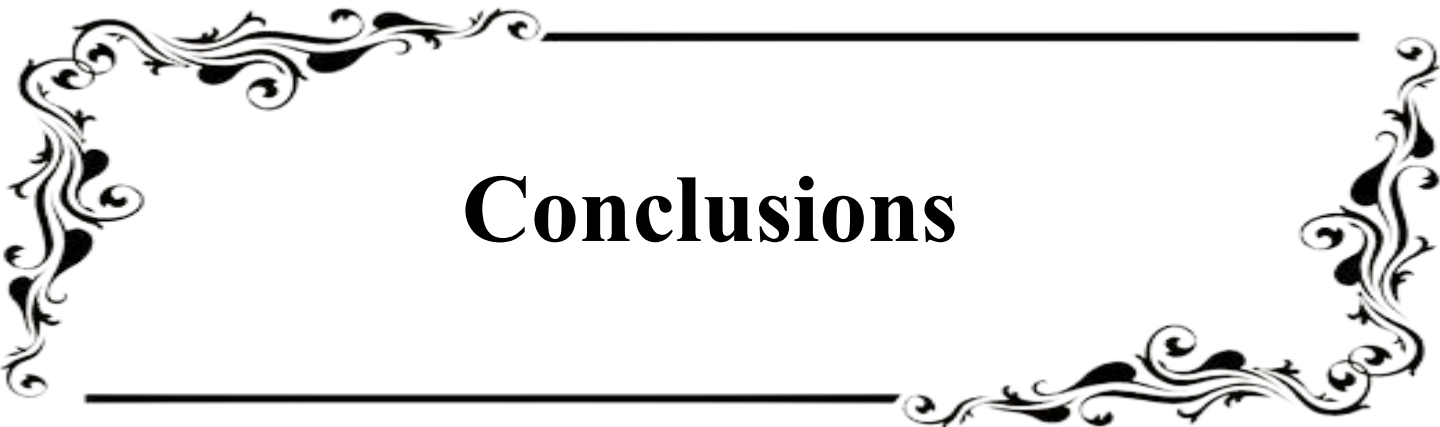


vol. 3, 2016, pp. 124–127.

- [11] Anbukarasi, K., & Kalaiselvam, S., “Study of effect of fiber volume and dimension on mechanical, thermal, and water absorption behaviour of luffa reinforced epoxy composites,” *Mater. Des.*, vol. 66, 2015, pp. 321–330.
- [12] Tanobe, V., Flores-Sahagun, T., Amico, S., Muniz, G., & Satyanarayana, K., “Sponge gourd (*Luffa cylindrica*) reinforced polyester composites: Preparation and properties,” *Def. Sci. J.*, vol. 64, 2014, pp. 273–280.
- [13] Boynard, C., Monteiro, S., & d’Almeida, J., “Aspects of alkali treatment of sponge gourd (*Luffa cylindrica*) fibers on the flexural properties of polyester matrix composites,” *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 87, 2003, pp. 1927–1932.
- [14] Akdoğan, E., “The effects of high-density polyethylene addition to low density polyethylene polymer on mechanical, impact and physical properties,” *Eur. J. Technic*, 2020, pp. 25–37.
- [15] Ronca, S., “Polyethylene,” in *Brydson’s Plastics Materials*, 8th ed., Elsevier, 2017, pp. 247–278.
- [16] Srinivasan, C., Sathish, S., & Vignesh, K., “Mechanical properties of chemically treated *Luffa aegyptiaca* fiber reinforced epoxy matrix composites,” *Int. J. Sci. Res. Manag.*, vol. 2, 2014, pp. 1515–1524.
- [17] Panneerdhass, R., Gnanavelbabu, A., & Rajkumar, K., “Mechanical properties of *Luffa* fiber and ground nut reinforced epoxy polymer hybrid composites,” *Procedia Eng.*, vol. 97, 2014, pp. 2042–2051.
- [18] Panneerdhass, R., Baskaran, R., Rajkumar, K., & Gnanavelbabu, A., “Mechanical properties of chopped randomly oriented epoxy-luffa fiber reinforced polymer composite,” *Appl. Mech. Mater.*, vol. 591, 2014, pp. 103–107.
- [19] Chen, Y., Su, N., Zhang, K., Zhu, S., Zhu, Z., Qin, W., Yang, Y., Shi, Y., Fan, S., Wang, Z., et al., “Effect of fiber surface treatment on structure, moisture absorption and mechanical properties of luffa sponge fiber bundles,” *Ind. Crops Prod.*, vol. 123, 2018, pp. 341–352.
- [20] Nagaraja Ganesh, B., & Muralikannan, R., “Extraction and characterization of



lignocellulosic fibers from *Luffa cylindrica* fruit,” *Int. J. Polym. Anal. Charact.*, vol. 21, 2016, pp. 259–266.



Conclusions



V Conclusions

Le travail présenté dans cette thèse s'inscrit dans la dynamique actuelle visant à développer des matériaux composites plus durables, plus performants et mieux adaptés aux exigences environnementales et industrielles contemporaines. En combinant deux matrices polymères semi-cristallines largement utilisées, le polypropylène (PP) et le polyéthylène haute densité (PEHD), avec des renforts d'origines naturelle et minérale les fibres de Luffa et l'alumine cette recherche a permis d'explorer en profondeur les mécanismes d'interaction, de compatibilité et de synergie entre ces constituants.

Les résultats obtenus démontrent tout d'abord l'importance déterminante de l'ingénierie interfaciale dans les biocomposites à matrice polyoléfinique semi-cristalline. Les traitements alcalins et au stéarate appliqués aux fibres de Luffa, ainsi que la fonctionnalisation de l'alumine, ont permis d'améliorer l'adhésion fibre-matrice, de réduire les défauts de dispersion et d'augmenter la qualité des interfaces, reflétés par des microstructures plus homogènes et une meilleure stabilité des phases. Les analyses FTIR, MEB, DRX et DSC ont confirmé les modifications structurales recherchées, ainsi que l'effet nucléant notable de certains traitements sur le comportement thermique des matrices.

D'un point de vue mécanique et thermique, l'étude révèle que l'introduction de renforts naturels, bien qu'améliorant significativement la rigidité et certaines propriétés thermiques, s'accompagne d'une baisse intrinsèque de la ductilité et de la résistance au choc. L'hybridation Luffa-alumine constitue toutefois une voie particulièrement prometteuse : elle permet de tirer parti de la légèreté et de la structure singulière des fibres végétales tout en bénéficiant de la résistance thermique et de la stabilité dimensionnelle de la charge minérale. Cette combinaison engendre des effets synergiques remarquables, notamment sur la cristallinité, l'énergie d'impact et l'intégrité morphologique du composite.

L'étude comparative entre PP et PEHD souligne également que le choix de la matrice influence largement la performance finale. Le PP, plus rigide et doté d'une fenêtre de

Conclusions



transformation plus large, se prête mieux aux applications nécessitant une stabilité dimensionnelle et une tenue en température élevée. Le PEHD, plus ductile et chimiquement plus résistant, s'avère mieux adapté aux environnements sévères et aux applications outdoor. Dans les deux cas, l'intégration de fibres de Luffa traitées et de charges minérales ouvre la voie à de nouvelles formulations offrant un compromis intéressant entre performance mécanique, coût, recyclabilité et impact environnemental.

En définitive, cette thèse apporte une contribution significative à la compréhension des composites polymères renforcés par fibres naturelles et charges hybrides. Elle met en évidence les effets bénéfiques des traitements chimiques, explore les interactions fines entre renforts et matrices, et propose des pistes concrètes pour l'optimisation de matériaux innovants destinés à des usage semi-structuraux ou techniques.

Les travaux réalisés constituent ainsi une base solide pour le développement futur de biocomposites plus performants, plus durables et potentiellement industrialisables, répondant aux enjeux de transition écologique et de valorisation des ressources naturelles locales.

Résumé : Cette thèse explore le développement de biocomposites à matrices polyoléfiniques semi-cristallines (PP et PEHD) renforcés par des fibres naturelles de Luffa et des charges minérales d'alumine (Al_2O_3), combinées à des traitements chimiques destinés à améliorer l'adhésion interfaciale. Les fibres ont été modifiées par NaOH et acide stéarique, tandis que l'alumine a été fonctionnalisée au stéarate afin d'optimiser leur compatibilité avec les matrices polymères.

Les analyses FTIR, SEM, XRD, DSC, TGA et DMA ont révélé une dispersion plus homogène des renforts, une interfacialité nettement améliorée et, dans certains cas, une augmentation de la cristallinité. Le composite PP/T-SA-[Al+Luffa]-2 % a présenté les performances les plus élevées, avec une résistance à l'impact de 37,46 kJ/m², une température de fusion de 166,66 °C et une stabilité thermique maximale de 450 °C. Pour le PEHD, la combinaison du traitement alcalin et du compatibilisant PE-g-MA a permis d'améliorer la résistance mécanique (de 14 à 16 MPa), l'impact (de 70 à 89 kJ/m²) et de réduire fortement l'absorption d'eau (0,002 %).

Ces résultats démontrent l'effet synergique des modifications de surface et positionnent ces biocomposites comme des matériaux légers, durables et économiquement viables pour des applications industrielles telles que les intérieurs automobiles, les emballages résistants à la chaleur et les composants de construction durables.

Mot clé : Composites de polypropylène, fibres de luffa, alumine, acide stéarique, amélioration des propriétés thermiques et mécaniques. PEHD, PE-gMA

Abstract: This thesis investigates the development of polyolefin-based biocomposites (PP and HDPE) reinforced with natural Luffa fibers and alumina (Al_2O_3) fillers, enhanced through chemical surface modifications to improve interfacial bonding. Luffa fibers were treated with NaOH and stearic acid, while alumina was coated with stearate to increase compatibility with the polymer matrices. FTIR, SEM, XRD, DSC, TGA and DMA analyses revealed improved filler dispersion, stronger fiber-matrix adhesion, and in some cases increased crystallinity. The PP/T-SA-[Al+Luffa]-2% composite exhibited the best performance, with an impact strength of 37.46 kJ/m², a melting temperature of 166.66 °C, and a maximum thermal stability of 450 °C. For HDPE, the combination of alkaline treatment and PE-g-MA compatibilizer improved tensile strength (14 → 16 MPa), impact resistance (70 → 89 kJ/m²), and drastically reduced water absorption (0.002%). These findings confirm the synergistic effect of dual reinforcement and surface modification, positioning these lightweight and durable biocomposites as promising candidates for automotive interiors, heat-resistant packaging, and long-lasting construction components.

Key Word: Polypropylene composites, Luffa fibers, Alumina, Stearic acid, Thermal and Mechanical improvement. PEHD, PE-gMA

ملخص: تتناول هذه الأطروحة تطوير متراكبات حيوية معتمدة على البوليمرات الأوليفينية (PP و HDPE) مدعمة بألياف اللوفا الطبيعية وحبيبات الألومينا (Al_2O_3)، مع تحسينات كيميائية تهدف إلى تعزيز التماسك البيني داخل المادة المركبة. خضعت ألياف اللوفا لمعالجة بهيدروكسيد الصوديوم وحمض الستريك، في حين تم تغليف الألومينا بالستياريات لرفع توافقها مع المصفوفة البوليمرية. أكدت تحاليل FTIR و SEM و XRD و DSC و TGA و DMA تحسّن تجانس التوزيع وارتفاع قوة الارتباط البيني وزيادة البلورية في بعض التركيبات. وقد أظهر مركّب PP/T-SA-[Al+Luffa]-2% أفضل أداء ببلوغ مقاومة صدم 37.46 kJ/m² ودرجة انصهار 166.66 °C وثبات حراري يصل إلى 450 °C. وبالنسبة لـ HDPE، أدّت المعالجة القلوية مع المضاف PE-g-MA إلى تحسين المقاومة الميكانيكية (من 14 إلى 16 MPa) وزيادة مقاومة الصدم (من 70 إلى 89 kJ/m²) وتقليل امتصاص الماء إلى 0.002%. وتؤكد هذه النتائج الفعالية التأزيرية للمعالجات السطحية، مما يجعل هذه المتراكبات الحيوية خفيفة الوزن ومتينة وذات جدوى اقتصادية مناسبة لتطبيقات صناعية مثل مكونات السيارات الداخلية والتغليف المقاوم للحرارة ومواد البناء المستدامة.

الكلمات المفتاحية: مركبات البولي بروبيلين، ألياف اللوف، الألومينا، حمض الستريك، التحسين الحراري والميكانيكي. PE-gMA، PEHD.