

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



UNIVERSITE A. MIRA DE BEJAIA

FACULTE DE TECHNOLOGIE



DEPARTEMENT DE GENIE DES PROCÉDES

Mémoire de fin de cycle

Pour l'obtention du diplôme de Master

Filière : Génie des Procédés

Option : Génie des polymères

Thème

Elaboration et caractérisation de biocomposites à base de polyesters bactériens renforcés de fibres d'Aloe Vera

Réalisé par :

Celia IDRES

Soutenu le 03/07/2019 devant un jury composé de :

Dr Idris ZEMBOUAI
Dr Lynda ZAIDI
Pr Mustapha KACI
Dr Nadjat DEHOUCHE

Président
Examinatrice
Encadrant
Co-encadrant

Promotion 2019

Remerciements

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

Je tiens d'abord à exprimer ma profonde reconnaissance à mon encadrant, le Professeur KACI, pour m'avoir confié ce travail mais également pour ses directives et son encadrement si enrichissants.

Mes sincères remerciements vont aussi à ma co-encadrante, le Dr Nadjat DEGOUCHE, pour sa disponibilité, ses conseils et son soutien moral dont je n'aurai su me passer.

Je tiens aussi à remercier les membres du jury pour me faire l'honneur de juger mon travail.

J'adresse mes vifs remerciements au professeur BRUZAUD de l'Institut de Recherche Dupuy de Lôme (IRDL) de L'Université de Bretagne Sud qui a permis la réalisation de certains tests de caractérisation, au professeur Christelle DELAITE du laboratoire de Photochimie et d'Ingénierie Macromoléculaires (LPIM) de l'université de Haute Alsace de Mulhouse et à l'école des mines d'Alès pour leurs différentes aides, sans oublier le professeur REZGUI du laboratoire des matériaux organiques (LMO) de l'université de Bejaia qui a permis de réaliser la mise en œuvre des biocomposites.

Je remercie particulièrement l'ingénieur du laboratoire Katia ALLOUI qui me fut d'une précieuse aide.

Merci à tous les membres du laboratoire LMPA pour les différentes aides qu'ils m'ont prodigué. Notamment pour le Dr I. ZEMBOUAI qui a effectué les différents tests à l'IRDL.

En dernier mais pas des moindres, un grand merci à ma famille et mes amis qui ont supporté tous mes sauts d'humeurs et qui m'ont accompagné tout le long de ce semestre.

Liste des abréviations

PLA : Poly (acide lactique)

PHA : Polyhydroxyalkanoate

PHB : Polyhydroxybutyrate

PHBV : Poly (3-Hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalerate)

PP : Polypropylène

PEBD : Polyéthylène basse densité

MEB : Microscopie électronique à balayage.

ATG : Analyse thermogravimétrique

DTG : Differential thermal analysis (analyse thermogravimétrique différentielle)

PHBHHx : Poly (3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyhexanoate)

TMOS : Triméthoxysilane d'octadécyle (trimethoxy octadecyl) silane

FAVNT : Fibre d'Aloe Vera non traitée

FAVTNa : Fibre d'Aloe Vera traitée au NaOH

FAVTSI : Fibre d'Aloe Vera traitée aux silanes

FAVTNaSI : Fibre d'Aloe Vera traitée au NaOH + Silanes

ATR: Attenuated total reflection

DSC : Differential scanning calorimetry (calorimétrie différentielle à balayage)

Tr: Temperature de fusion

Tg: Temperature de transition vitreuse

ΔH_f : Enthalpie de fusion

χ_c : Taux de cristallinité

Table des matières

Introduction générale.....	1
Chapitre I : Notions fondamentales sur les biocomposites	4
I.1. Définitions.....	4
I.2. Matrice naturelle	5
I.3. Renfort naturel	11
I.3.1. Composition des fibres naturelles :.....	12
I.3.2. Structure des fibres naturelles :.....	14
I.4. Performances des biocomposites	16
I.4.1. Facteur de forme, orientation et dispersion des fibres :.....	16
I.4.2. Interface fibre-matrice :	17
I.5. Applications	17
Chapitre II : Elaboration des biocomposites	20
II.1. Techniques d'extraction des fibres végétales	20
II.1.1. Rouissage microbiologique :	21
II.1.2. Rouissage enzymatique :	22
II.1.3. Rouissage mécanique :	22
II.1.4. Rouissage chimique :.....	23
II.2. Démarches de compatibilisation.....	23
II.2.1. Traitements physiques :	23
II.2.2. Traitements chimiques :.....	24
II.3. Mise en œuvre des biocomposites	27
II.4. Rappels bibliographiques	28
Chapitre III : Matériels et méthodes.....	33
III.1. Matériaux utilisés	33
III.2. Modes opératoires	37

III.2.1. Traitement des fibres au NaOH :	37
III.2.2. Fonctionnalisation de la surface de la fibre au TMOS :	37
III.3. Mise en œuvre des biocomposites.....	38
III.4. Techniques de caractérisation	39
III.4.1. Microscopie électronique à balayage (MEB) :	39
III.4.2. Spectroscopie IR-ATR :	39
III.4.3. Analyse thermogravimétrique (ATG) :	39
III.4.4. Analyse calorimétrique différentielle (DSC) :	39
III.4.5. Absorption d'eau :	40
III.4.6. Mesures d'angle de contact :	40
III.4.7. Mesures rhéologiques :	40
Chapitre IV : Résultats et discussion.....	41
IV.1. Caractérisation des fibres d'Aloe Vera	41
IV.1.1. Analyse morphologique au microscope électronique à balayage (MEB) :	41
IV.1.2. Analyse structurale par spectroscopie infra-rouge (IR-ATR) :	41
IV.1.3. Détermination de la composition chimique :	43
IV.1.4. Analyse thermogravimétrique :	43
IV.1.5. Détermination de la densité :	45
IV.2. Caractérisation des biocomposites	46
IV.2.1. Microscopie électronique à balayage (MEB).....	46
IV.2.2. Analyse structurale par spectroscopie infra-rouge (IR-ATR).....	47
IV.2.3. Absorption d'eau :	48
IV.2.4. Angle de contact.....	49
IV.2.5. Analyse thermogravimétrique.....	50
IV.2.6. Analyse calorimétrique différentielle (DSC)	52
IV.2.7. Mesures rhéologiques	53
Conclusion générale	55

Bibliographie.....I

Liste des tableaux

Tableau I.1: Comparaison entre les propriétés physiques de certains PHA avec celles du PP et PEBD. [16].....	11
Tableau III. 1: Principale propriétés physico-chimique du PHBHHx.[48].....	33
Tableau III. 2: Principales propriétés physico-chimiques du TMOS.[51].....	37
Tableau III. 3: Codes des différentes formulations.	38
Tableau IV. 1: composition de l'FAVNT et d'autres fibres tirées de la littérature.[43].....	43
Tableau IV. 2: Propriétés thermiques de la fibre non traitée et traitée déterminées par ATG. 45	
Tableau IV. 3: Résultats de la détermination de la densité de la fibre d'Aloe Vera.....	46
Tableau IV. 4: résultats du test de l'angle de contact des biocomposites avec l'eau :	50
Tableau IV. 5: propriétés thermiques des biocomposites déterminées par ATG et DTG.....	52
Tableau IV. 6: Caractéristiques thermiques des biocomposites déterminées par DSC.	53

Liste des figures

Figure I. 1: Classification des biocomposites. [8].....	5
Figure I. 2: Classification des biopolymères selon la voie d'obtention. [9].....	6
Figure I. 3: Chaines macromoléculaires de (a) l'amylose et (b) l'amylopectine.[12].....	7
Figure I. 4: Structure des deux isomères de l'acide lactique.[13].....	8
Figure I. 5: Structure des 03 isomères du lactide.[13]	8
Figure I. 6: Motif du PLA. [14].....	9
Figure I. 7: Photo montrant la formation du PHB par des micro-organismes durant la fermentation.[8].....	9
Figure I. 8: Structure générale des PHA.[14].....	10
Figure I. 9: Classification des fibres lignocellulosiques selon l'organe de la plante duquel elles sont extraites.[14].....	12
Figure I. 10: Structure chimique de la cellulose. [19].....	13
Figure I. 11: Structure chimique de l'hémicellulose.[20].....	13
Figure I. 12: Monomères et unités constituant la lignine.[23].....	14
Figure I. 13: Structure de la lignine isolée d'un peuplier, prédite par RMN.[24]	14
Figure I. 14: Schéma représentatif de la structure d'une fibre naturelle.[27].....	15
Figure I. 15: relation entre l'angle microfibrillaire et le module de Young de certaines fibres naturelles.[25].....	16
Figure I. 16: Exemples d'applications des biocomposites, (a) : emballage alimentaire, (b) : valise, (c) : lunettes, (d) : panneaux de portières de voitures, (e) : lavabo. [3].....	17
Figure II. 1: Techniques de rouissage.[32].....	20
Figure II. 2: Rouissage à l'eau, effectué dans: (a) une rivière, (b) une cuve.[32]	21
Figure II. 3: Rouissage au champ des fibres de lin.[31].....	22
Figure II. 4: extraction des fibres de sisal (a) et séchage (b). [34].....	23
Figure II. 5: Les différentes méthodes de modification chimiques des fibres naturelles.[14] .	24
Figure II. 6: Schématisation du mercerisage de la fibre naturelle.[38].....	25
Figure II. 7: Acétylation de fibres naturelles avec et sans catalyseur acide.[37]	25
Figure II. 8: Fonctionnalisation des fibres naturelles par aux silanes.[40]	26
Figure II. 9: Compatibilisation de fibres naturelles et d'une matrice hydrophobe par anhydride maléique.[39].....	27
Figure III. 1: Structure chimique du PHBHHx.	33

Figure III. 2: Illustration des feuilles d'Aloe Vera.	34
Figure III. 3: Illustration du protocole d'extraction des fibres.	34
Figure III. 4: Schéma du protocole de détermination de la densité de la fibre.	36
Figure III. 5: Mini extrudeuse bi-vis.	38
Figure IV. 1: Clichés MEB: (a) fibre non traitée, (b) fibre traitée au NaOH.	41
Figure IV. 4: Evolution de la viscosité complexe des biocomposites.....	54
Figure IV. 5: Evolution du module de conservation des biocomposites.	Erreur ! Signet non défini.

Introduction générale

Depuis l'avènement des matières plastiques leur marché n'a cessé de prendre de l'ampleur. En effet, leurs divers propriétés intéressantes et modulables ont fait qu'ils trouvent des applications dans d'innombrables secteurs allant de l'emballage jusqu'à l'aéronautique. Toutefois, la prise de conscience environnementale quant à leur persistance dans la nature ainsi que la raréfaction des énergies fossiles dont ils dépendent, ont orienté les chercheurs vers des matériaux plus respectueux de la nature. Ceux-ci étant issus d'origines naturelles et biodégradables. Ils présentent un bilan carbone positif.

En parallèle le développement des matériaux composites, par soucis d'amélioration des performances des matériaux déjà existants, connu également un fort engouement. Celui-ci étant réalisé grâce aux avancées technologiques dans les domaines de la mise en œuvre et des fibres synthétiques.

C'est au croisement de ces deux concepts que sont apparus les biocomposites. Effectivement, la volonté de produire mieux et surtout « Bio » a lancé cette nouvelle classe de matériaux aux devants de la scène internationale. Néanmoins, Leur croissance rencontre beaucoup d'entraves. En effet, les natures différentes des polymères hydrophobes et des renforts hydrophiles, induisent à des interfaces aux propriétés réduites. Ainsi, élaborer des biocomposites ayant une bonne adhésion interfaciale est d'un intérêt majeur.

C'est dans ce cadre que s'inscrit le présent travail. Ce dernier, visant à élaborer un biocomposite à base de polyesters bactériens (représentant une classe de polymères de dernière génération) renforcés aux fibres d'Aloe Vera qui est issue d'une source abondante et renouvelable.

Le manuscrit s'organise sous forme de 04 chapitres :

- Le premier, couvre les aspects théoriques nécessaires à la bonne compréhension de ces matériaux.
- Le deuxième, traite les facteurs clés de l'élaboration des biocomposites. A savoir, l'extraction du renfort naturel, les techniques de compatibilisation fibre- matrice ainsi que la mise en œuvre.
- Le troisième, regroupe l'ensemble des matériaux et protocoles mis en œuvre pour la réalisation de la démarche expérimentale envisagée.

Introduction générale

- Le dernier, présente les résultats obtenus avec une discussion.

Chapitre I : Notions fondamentales sur les biocomposites

Depuis quelques décennies maintenant, la cause environnementale ne cesse de prendre de l'ampleur. En effet, l'accroissement des problèmes de pollution en tout genre (pollution des océans, accumulation des déchets solides...) mettent les communautés scientifique et industrielle dans l'urgence d'apporter des solutions. Le domaine des matériaux n'en est pas épargné et l'élaboration de ces dernières à partir de ressources renouvelables est la démarche adoptée. On parle alors de biocomposites. Dans le présent chapitre, des notions théoriques se rapportant à cette classe de matériaux en plein essor seront énoncées.

I.1. Définitions

- Les matériaux composites sont définis selon Lee [1] comme des matériaux multiphasés, formés d'une combinaison de matériaux, différents par leurs compositions ou formes, restants liés ensemble tout en gardant leurs identités et propriétés respectives. Les composites maintiennent une interface entre les différentes phases et agissent de telle sorte à développer des caractéristiques spécifiques ou synergiques améliorées qu'il n'aurait pas été possible d'obtenir par chacun des matériaux pris seul. De manière plus courte et concise, les composites sont des matériaux constitués d'au moins deux phases. La première est dite renfort, et apporte de meilleures propriétés mécaniques (résistance à la traction, rigidité...). Tandis que la deuxième est dite matrice et assure la répartition des sollicitations sur le renfort, sa protection des éventuelles agressions environnementales ainsi que la réalisation du composite sous différentes géométries.[2,3]

Ces matériaux sont classés suivant plusieurs critères, à savoir : la taille du renfort (particules ou fibres), le type de matrice (céramique, métallique ou organique), le marché (composites de grande diffusion ou de hautes performances) et enfin selon la nature de leurs constituants. Ce dernier critère donne lieu à une classe particulière de composites définie ci-après. [4]

- Les biocomposites : sont des composites dont au moins une des phases est d'origine biologique. Si traditionnellement le renfort est à base de silice, carbonate de calcium, argiles, fibres de verre etc. Dans ce cas, il est généralement en fibres naturelles, en bois recyclé ou encore en déchets de papiers. De l'autre côté la matrice peut être d'origine naturelle (Biopolymère) ou synthétique. A cet effet, 03 catégories de biocomposites sont à distinguer :
 - i. Biocomposites à matrice synthétique et renfort naturel.

- ii. Biocomposites à matrice naturelle et renfort synthétique.
- iii. Biocomposites à matrice et renfort naturels.

La dernière catégorie est aussi dénommée biocomposites verts (Green biocomposites). En effet, elle permet de s'affranchir de l'utilisation des énergies fossiles tout en évitant l'accumulation des déchets via son caractère biodégradable. Ce type de matériaux est donc entièrement respectueux de l'environnement. Par ailleurs, lorsque le biocomposite est obtenu par mélange de plusieurs biopolymères ou de types de fibres, il est qualifié comme étant hybride. [5–7] Le schéma ci-dessous résume la classification des biocomposites.

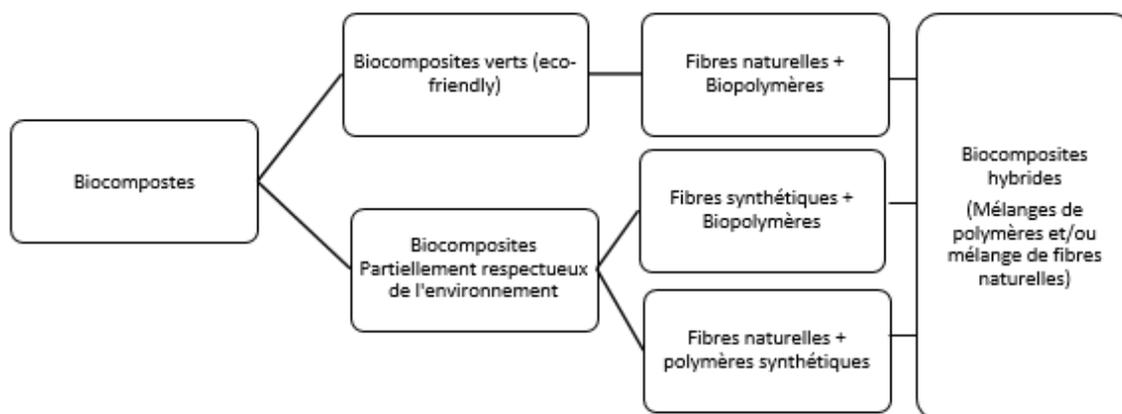


Figure I. 1: Classification des biocomposites. [8]

Le contexte de ce présent travail étant d'élaborer des biocomposites à base de polyesters bactériens renforcés aux fibres d'Aloe vera. Dans ce qui suit, des notions théoriques relatives aux matrices à base de biopolymères ainsi qu'aux charges naturelles seront énoncées. Attention faite aux matériaux utilisés i.e., les polyhydroxyalkanoates et les fibres végétales.

I.2. Matrice naturelle

Les biocomposites à base de fibres lignocellulosiques furent exploités depuis le début des années 1900. Cependant, les matrices utilisées ont toujours été pétro-sourcées (Polypropylène, polyéthylène, résines époxy ou phénoliques...). Ce n'est que vers les années 80, en raison des différentes crises pétrolières, de la prise de conscience environnementale et grâce aux innovations apportées dans le domaine des biomatériaux et de leur processabilité que les biopolymères connurent une forte émergence. Ces derniers étant définis comme tout polymère directement synthétisé par des organismes vivants ou dont le monomère est issu de ressources renouvelables. [8,9]

Le schéma ci-dessous propose une classification des biopolymères selon la voie d'obtention.

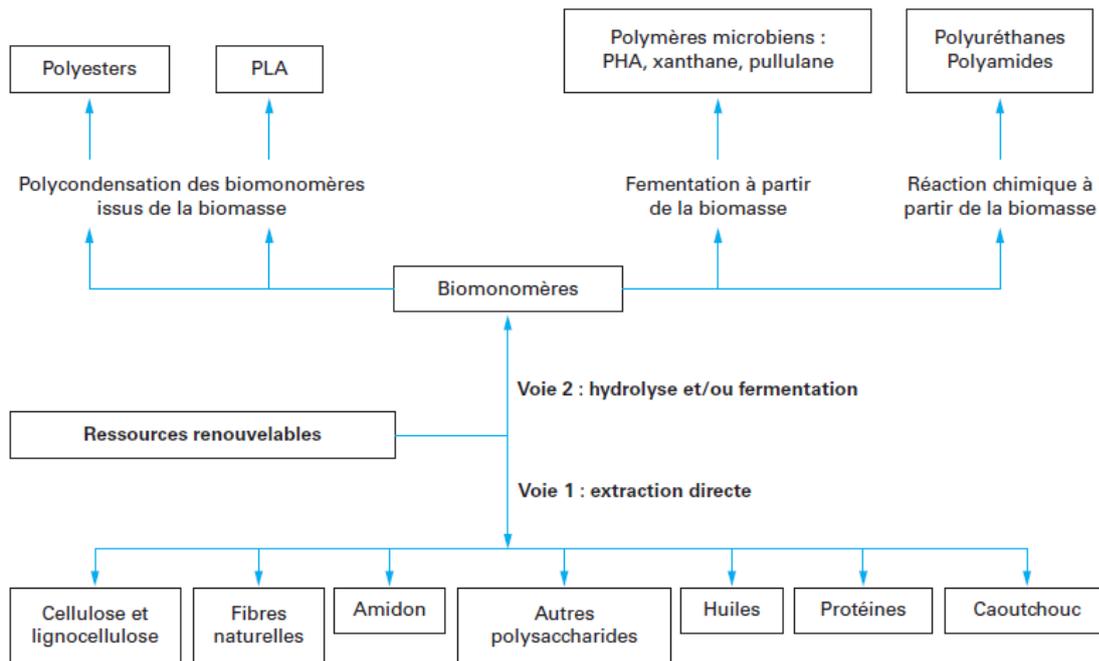


Figure IO. 2: Classification des biopolymères selon la voie d'obtention. [9]

Une autre classification est souvent rencontrée dans la littérature. Celle-ci étant faite en fonction de la source du polymère. Par conséquent, les biopolymères se partageraient en 03 catégories :

- i. Biopolymères naturels, retrouvés directement dans la nature en tant que tels. L'amidon, les protéines et le collagène en sont des exemples.
- ii. Biopolymères synthétisés, le monomère est issu de la biomasse puis soumis à une réaction de polymérisation par les procédés classiques. Le biopolymère phare de cette catégorie étant le poly acide lactique (PLA).
- iii. Biopolymères microbiens, synthétisés par des micro-organismes à partir de différentes sources de sucre. La famille des polyhydroxyalkanoates (PHA) en est la plus répandue. [6]

En outre, des résines issues d'huiles végétales, telle que l'huile de soja, sont aussi classées parmi les biopolymères. Cependant, leur production nécessite en général la présence de catalyseurs ou d'agents de réticulation tels que les anhydrides (additifs synthétiques). Cela pourrait donc altérer le caractère « bio » du composite qui en résulterait. A cet effet, les matrices sont généralement faites de bio-thermoplastiques. Les plus rencontrées dans la littérature étant, l'amidon, le PLA et les PHA. [10]

1) L'amidon :

L'amidon appartient à la famille des polysaccharides et est le glucide le plus important de la biomasse mondiale. On le retrouve dans les plantes à tubercules telles que la pomme de terre ou dans les céréales telles que le maïs, le blé et le riz. Des molécules de D-glucose, synthétisées suite à la photosynthèse, subissent une biosynthèse par voie enzymatique pour produire deux homopolymères, l'amylose et l'amylopectine (schématisés ci-dessous). Ceux-ci vont s'organiser sous forme d'une structure lamellaire et s'intercaler dans le sens radial pour donner des granules d'amidon insolubles dans l'eau froide. Ce biopolymère présente une nature semi-cristalline avec un taux de cristallinité variant de 20% à 45%. Par ailleurs, l'expérience a montré que sous l'effet combiné d'un cisaillement et de la température (90°C à 180°C) et en présence d'un plastifiant, l'amidon présente un caractère thermoplastique. Ce qui fait de lui un bon candidat pour les matrices de biocomposites. [11,12]

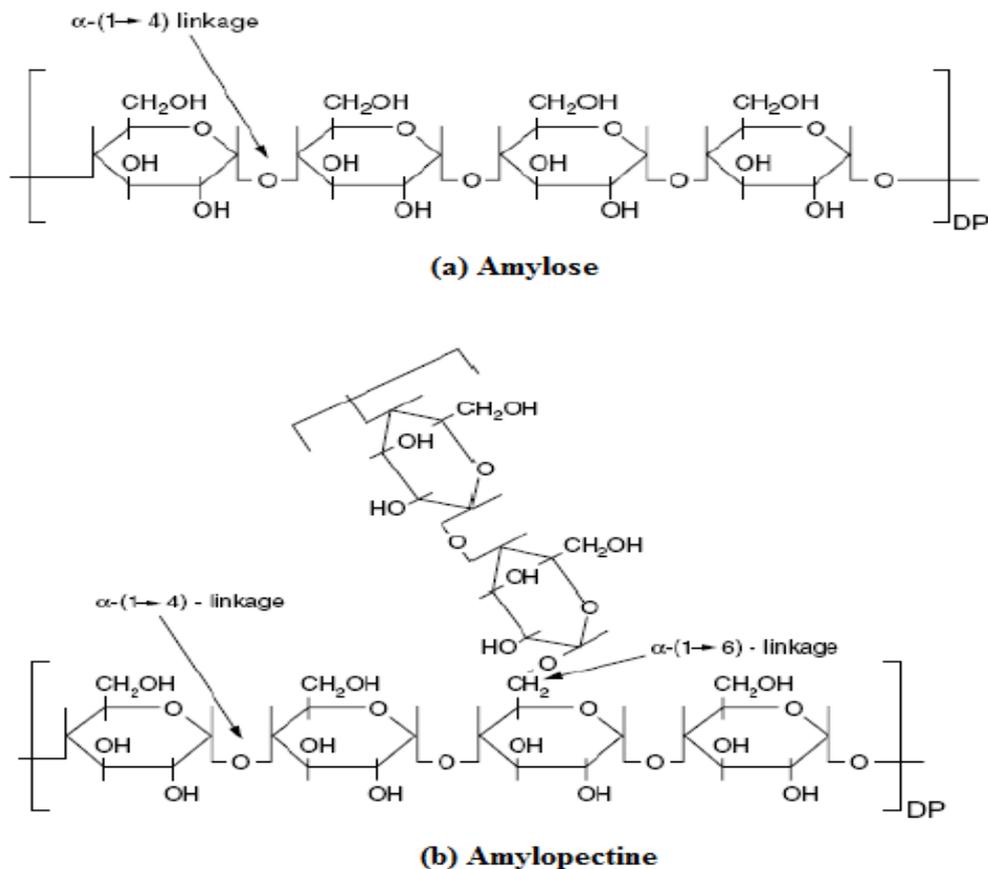


Figure I. 3: Chaines macromoléculaires de (a) l'amylose et (b) l'amylopectine.[12]

2) Le poly acide lactique (PLA) :

Le PLA est le biopolymère le plus consommé au monde. Il appartient à la famille des polyesters aliphatiques. Sa biodégradabilité, sa biocompatibilité ainsi que son potentiel à remplacer les polymères conventionnels font qu'il suscite beaucoup de recherches. Son monomère, l'acide lactique, est issu de la fermentation microbienne des saccharides. C'est l'une des molécules chirales les plus simples et est retrouvée dans la nature sous forme de deux isomères (**Figure I. 4**). L'obtention du PLA se fait alors soit par polycondensation, soit par ouverture de cycle du lactide (dimère cyclique) qui est lui-même formé par l'acide lactique en présence d'un catalyseur organométallique (octoate d'étain). 03 isomères du lactide sont dénombrés, le L-lactide, le D-lactide et le mésolactide (**figure I. 5**). Ainsi le PLA, dont le motif est schématisé sur la **figure I. 6**, existe sous 03 formes : le D-PLA, le L-PLA et le D, L-PLA. Ce qui engendre une différence de nature telle que le L-PLA est semi-cristallin et le D, L-PLA est amorphe. Par ailleurs, la voie de synthèse aussi impacte les propriétés du polymère. En effet, la polycondensation conduite à une masse molaire limitée tandis que l'ouverture de cycle permet d'obtenir des masses molaires plus élevées. Par conséquent, les principales limites que connaît le PLA sont sa fragilité et sa faible dureté (élongation à la rupture inférieure à 10%). [13,14]

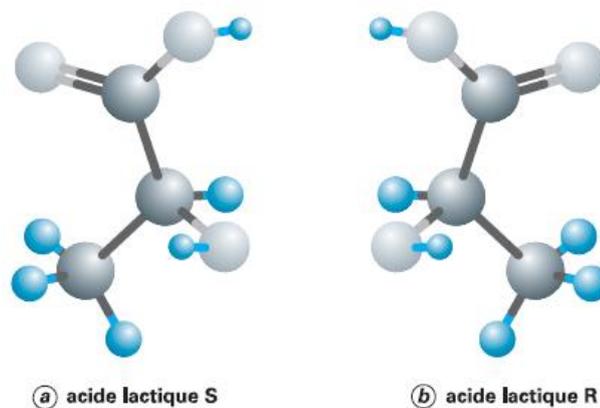


Figure 0I. 4: Structure des deux isomères de l'acide lactique.[13]

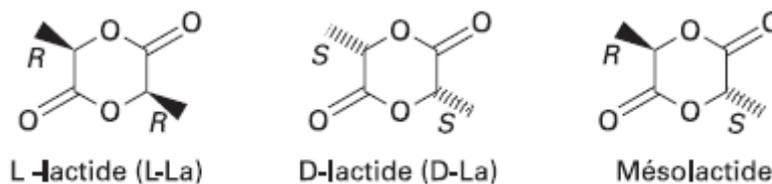


Figure I. 5: Structure des 03 isomères du lactide.[13]

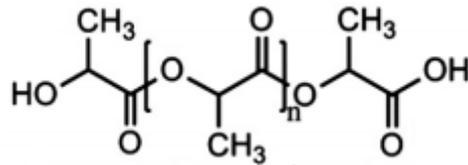


Figure I. 6: Motif du PLA. [14]

3) Les polyhydroxyalkanoates (PHA) :

Les PHA sont des polyesters linéaires produits par plus de 90 types de bactéries. Ils sont synthétisés suite à une fermentation dans des conditions particulières (manques de nutriments). Ils sont stockés au sein du cytoplasme des cellules sous forme d'inclusions de diamètre compris entre 0.2 et 0.5 μ m (**figure I. 7**). Leur rôle étant de servir de réserve de carbone et de source potentielle d'énergie. [15]

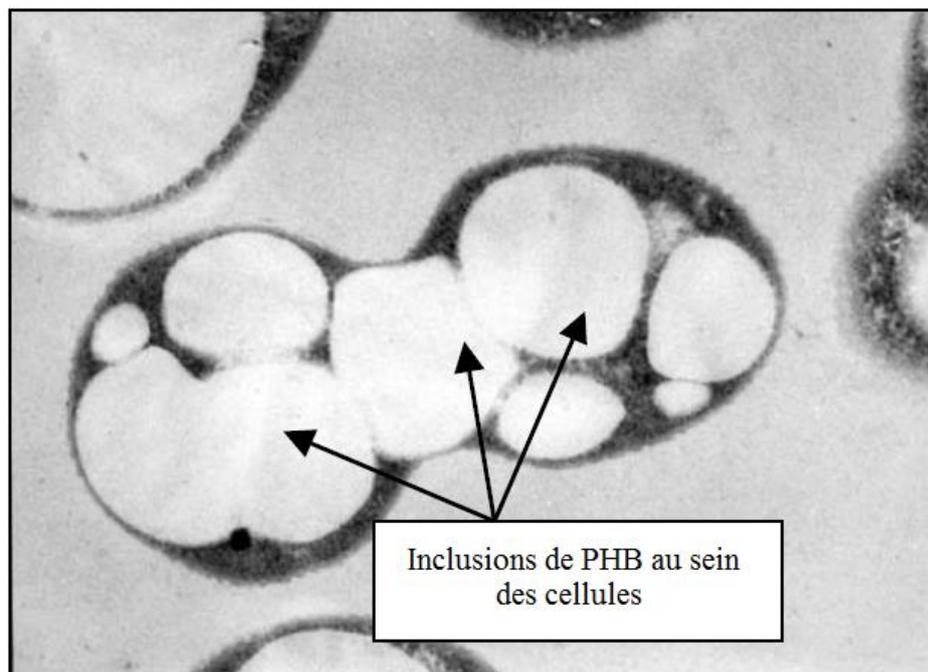


Figure I. 7: Photo montrant la formation du PHB par des micro-organismes durant la fermentation.[8]

Ces polymères peuvent être obtenus par plus de 150 types de monomères différents. Ceux-ci conduisant à la structure générale schématisée ci-dessous (**figure I. 8**). En fonction du nombre de carbones contenus dans la chaîne latérale (R), les PHA peuvent être classés en 03 catégories :

- PHA à courte longueur de chaîne (Short Chain Length) : nombre de carbones inférieur à 5.
- PHA à longueur de chaîne moyenne (Medium Chain Length) : nombre de carbone compris entre 6 et 14.
- PHA de longue chaîne (Long Chain Length) : nombre de carbone supérieur à 14.

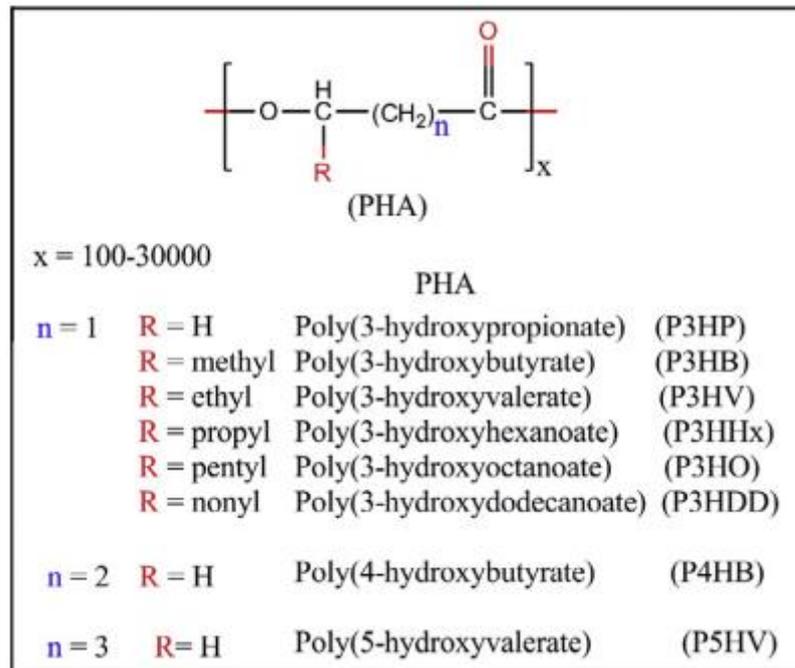


Figure I. 8: Structure générale des PHA.[14]

De cette structure découlent des propriétés intéressantes faisant leur succès. En effet, en fonction des bactéries impliquées, des conditions de la synthèse ainsi que de la méthode d'extraction, la masse molaire peut varier de 2×10^5 à $3 \times 10^6 \text{ g.mol}^{-1}$. Ils présentent une nature semi-cristalline avec des sphérules de large taille et un taux de cristallinité pouvant atteindre les 80%. Similaires au polypropylène (PP), ils possèdent de bonnes propriétés barrières aux gaz et à l'humidité et résistent aux rayons UV. Insolubles dans l'eau et n'en absorbent que peu, leur hydrolyse se fait difficilement mais reste quand même à surveiller. Toutefois, ils sont solubles dans les solvants chlorés tels que le Chloroforme. Le premier polymère découvert et étudié de cette famille est le poly (3-hydroxybutyrate) (PHB) qui en raison de son taux de cristallinité d'environ 50% est très cassant et fragile. La température de fusion quant à elle est corrélée à la masse moléculaire. Puisqu'elles augmentent de manière proportionnelle jusqu'à atteindre la valeur de 180°C . Sachant que les PHA sont susceptibles aux dégradations thermiques. Leur fenêtre de processabilité se retrouve donc limitée. Pour pallier à ces problèmes, l'ajout de plastifiants tels que le citrate de triéthyle ou le recours à une

copolymérisation avec des monomères tels que l'hydroxy valérate (HV) ou l'hydroxy hexanoate (HH) sont couramment réalisés. Le tableau ci-après dénote les différentes propriétés physiques de certains PHA et propose une comparaison avec le polypropylène et le polyéthylène basse densité. [8, 14, 16]

Tableau 0I.1: Comparaison entre les propriétés physiques de certains PHA avec celles du PP et PEBD. [16]

	PHB	PHBV (20%HV)	P(3-HB-co-3HA)	PP	PEBD
T_{fus.} (°C)	175	145	133	170	110
T_g (°C)	4	-1	-8	-10	-110
χ_c (%)	60	-	-	50	50
E (GPa)	3.5	0.8	0.2	1.5	0.2
σ (MPa)	4	20	17	38	10
ε_r (%)	5	50	680	400	600

Il est à noter que le caractère légèrement polaire des PHA leur confère une meilleure adhésion aux fibres lignocellulosiques comparé aux polyoléfinés. La présence de la cellulose accélère la vitesse de cristallisation même si le taux de cristallinité reste inchangé. Enfin leur meilleur atout est leur biodégradabilité par voie enzymatique qui se fait dans divers milieux via une scission de chaînes aléatoire. [15, 16]

I.3. Renfort naturel

Comme cité précédemment, le renfort des biocomposites est généralement fait de fibres naturelles. Celles-ci étant classées selon leur nature en fibres minérales (telles que l'amiante), fibres animales (principalement constituées de protéines) et fibres végétales. Les deux premières étant respectivement nocives pour la santé et limitées du point de vue performance. Ce sont les fibres végétales qui suscitent un fort engouement. [17] Ces dernières se subdivisent à leur tour en deux catégories, en fonction de leur origine :

- i. Fibres ligneuses, issues du bois, qu'il soit résineux ou feuillu. Elles confèrent au composite de très bonnes propriétés mécaniques. Cependant, leur utilisation reviendrait à causer un phénomène de déforestation. Ce qui irait à l'encontre du concept de la bio-conception.

- ii. Fibres non ligneuses, issues de plantes herbacées. Elles représentent une excellente alternative aux fibres synthétiques. Suivant l'organe de la plante duquel elles sont extraites, on peut distinguer : fibres de racines, feuilles, graines, tiges, fruits ou encore herbes. Le schéma ci-dessous représente cette classification avec quelques exemples.

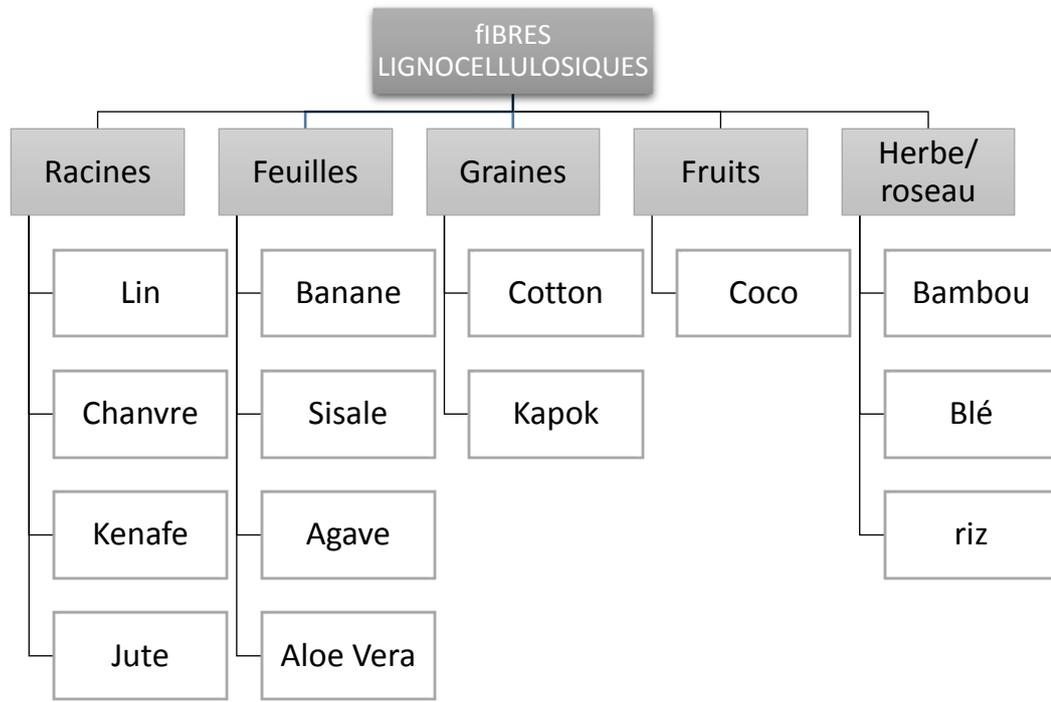


Figure I. 9: Classification des fibres lignocellulosiques selon l'organe de la plante duquel elles sont extraites.[14]

I.3.1. Composition des fibres naturelles :

Ces fibres sont principalement constituées de 03 polymères, à savoir la cellulose, la lignine et les hémicelluloses et à moindre mesure d'extractibles comprenant des cires, de la pectine ainsi que des sels inorganiques. Les proportions de ces constituants sont très variables. Effectivement, elles diffèrent d'une plante à une autre et dépendent des conditions de croissance. [3, 18]

- a. La cellulose : considérée comme le biopolymère le plus répandu sur terre. elle est synthétisée par voie enzymatique au sein des cellules végétales. Ce polymère est linéaire et a pour unité le β – D-Glucopyranose avec un degré de polymérisation d'environ 10000. Ses unités sont liées entre elles par des liaisons glycosidiques de type β – (1,4) comme schématisé ci-après (**figure I. 10**). Chaque monomère possède 03 groupements hydroxyle, ce qui fait que des liaisons de type hydrogène inter et intramoléculaire sont à même de s'établir en causant un caractère fortement hydrophile. [19,20]

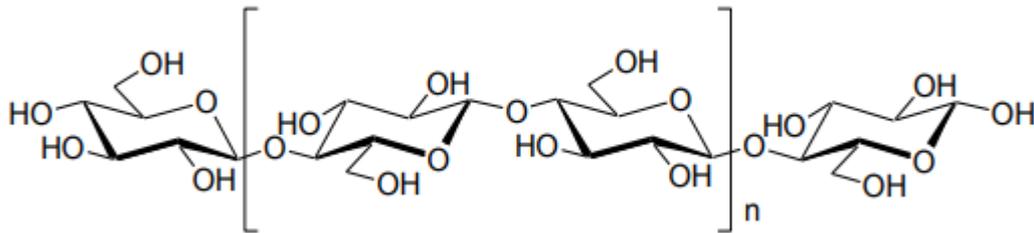


Figure 0I. 10: Structure chimique de la cellulose. [19]

- b. Les hémicelluloses : sont une classe de polymères représentant 25 à 30% de la biomasse lignocellulosique (**figure I. 11**). Ce sont un ensemble de polysaccharides résultant de la polymérisation de divers sucres tels que : la xylose, l'arabinose, le galactose, le glucose, le mannose ainsi que de l'acide glucuronique et galaturonique. Elles sont similaires à la cellulose. Néanmoins, elles possèdent un degré de polymérisation 10 à 100 fois plus bas et un fort taux de ramification. Elles présentent aussi un caractère hydrophile et une solubilité dans les solutions alcalines. [20,21]

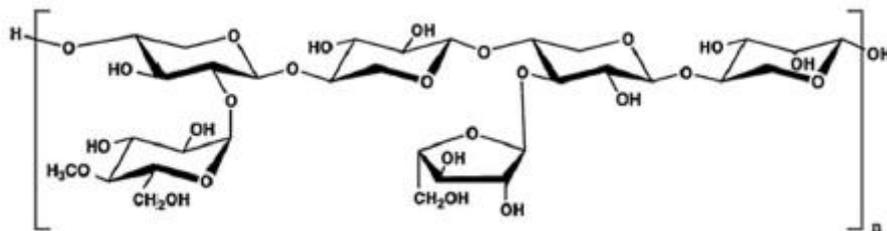


Figure I. 11: Structure chimique de l'hémicellulose.[20]

- c. La lignine : représente un groupe de biopolymères aromatiques. Sa synthèse se fait par polymérisation radicalaire des alcools p- coumarylique, coniférylique et sinapylique. Ce qui conduit à la formation d'unités p- hydroxyphenyl (H), Guaiacyl (G) et Syringyl (S) respectivement (**figure I. 12**). Ces dernières vont se lier entre elles via des liaisons éthers ou carbone—carbone de manières aléatoires. Il en résulte une structure tridimensionnelle et amorphe difficile à déterminer. [20–22] La figure 13 schématise une représentation de la lignine, isolée d'un peuplier, telle qu'elle a été prédite par analyse RMN.

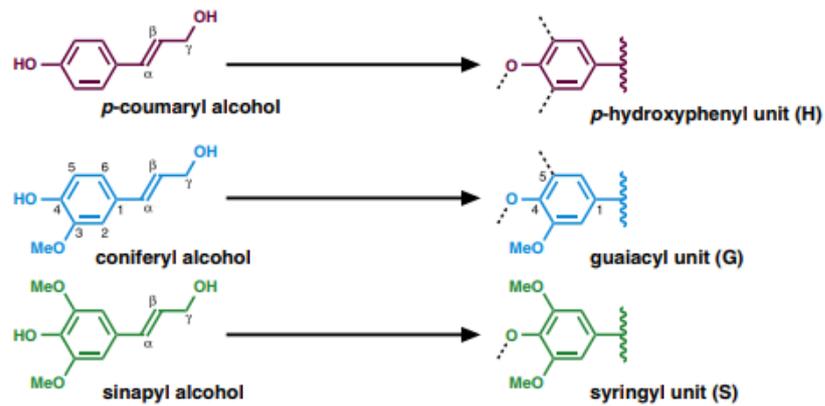


Figure 0I. 12: Monomères et unités constituant la lignine.[23]

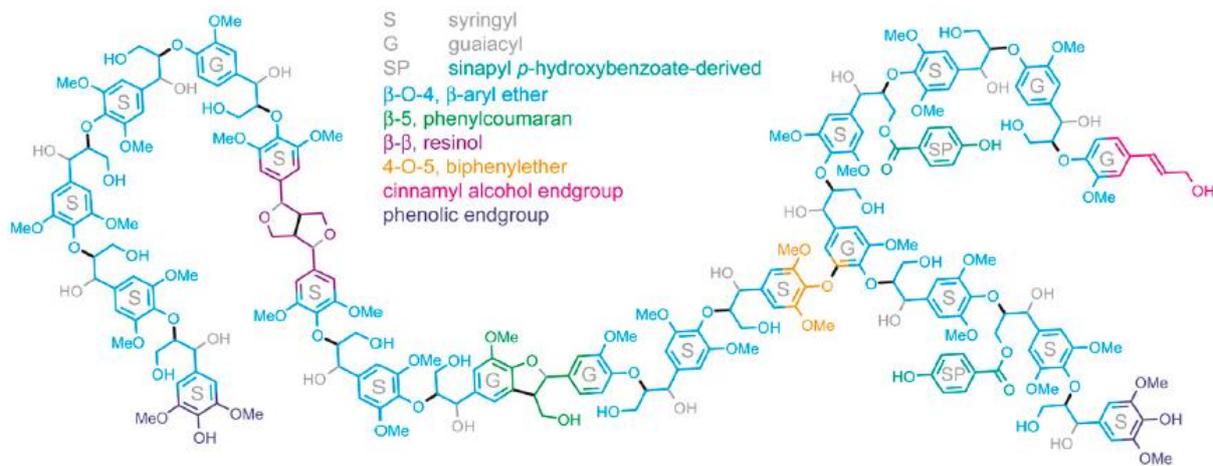


Figure I. 13: Structure de la lignine isolée d'un peuplier, prédite par RMN.[24]

I.3.2. Structure des fibres naturelles :

La structure des fibres naturelles est assez complexe. En effet, en raison du grand nombre de groupements hydroxyles et donc de liaisons hydrogène, les chaînes de cellulose s'organisent de façon parfaitement ordonnée et parallèles les unes aux autres en formant des microfibrilles. Ces dernières, accompagnées d'hémicellulose, vont être imprégnées dans la lignine et former des faisceaux de fibres (fibres perçues à l'œil nu). Ainsi, les fibres naturelles sont assimilées à un composite, où la lignine joue le rôle de la matrice, la cellulose celui du renfort et l'hémicellulose le rôle d'un agent de pontage. Tout cela va se structurer sous forme de paroi et de couches. La première paroi à se former durant la croissance est appelée paroi primaire (Pp). Celle-ci va envelopper la deuxième paroi dite secondaire qui est elle-même constituée de 03 couches concentriques, couche externe S₁, couche centrale S₂ et couche interne S₃. Au centre de ces couches, se trouve une cavité vide appelée le lumen (**figure I. 14**). [25, 26]

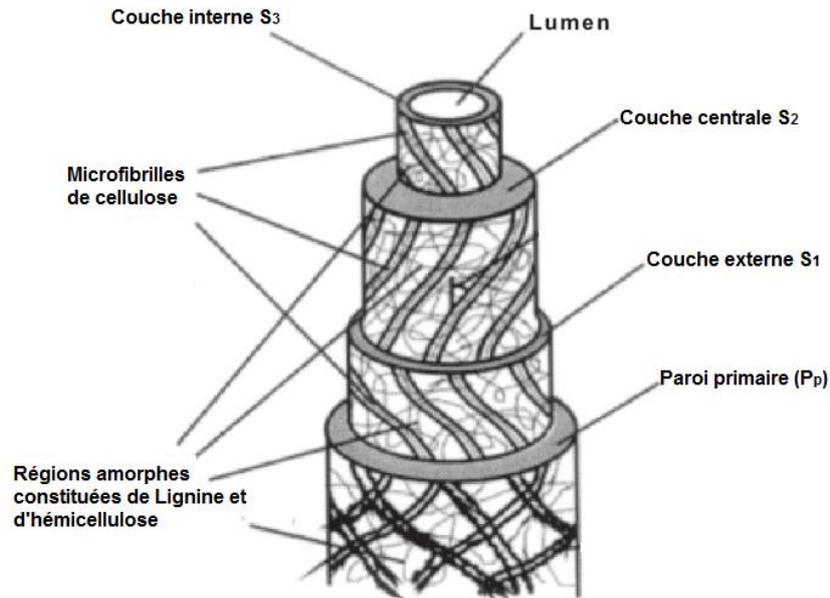


Figure I. 14: Schéma représentatif de la structure d'une fibre naturelle.[27]

Il est à noter que les microfibrilles de cellulose prennent une orientation différente au sein de chaque couche. Ce qui forme avec l'axe de la fibre un angle microfibrillaire. Ce dernier est inversement proportionnel au module de Young et directement proportionnel à l'élongation à la rupture. [25] **La figure I. 15** met en évidence la relation établie entre l'angle microfibrillaire et le module de Young de certaines fibres naturelles.

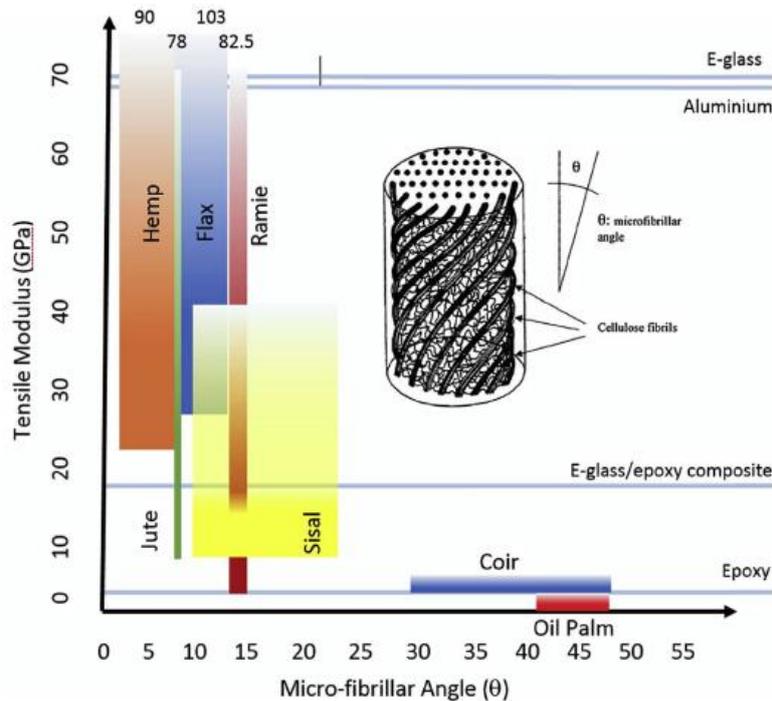


Figure I. 15: relation entre l'angle microfibrillaire et le module de Young de certaines fibres naturelles.[25]

I.4. Performances des biocomposites

Les performances des biocomposites sont régies par la synergie de plusieurs facteurs. En effet, les fibres naturelles constituant l'armature du biocomposite, leur facteur de forme, orientation et dispersion vont gouverner le comportement du matériau lors des différentes sollicitations. De plus, la différence entre la nature hydrophile de ces fibres et de celle hydrophobe de la matrice va impliquer des problèmes à l'interface fibre-matrice qu'il faut inéluctablement prendre en compte lors de la conception. [3]

I.4.1. Facteur de forme, orientation et dispersion des fibres :

Le facteur de forme des fibres naturelles dépend directement de la technique d'extraction ainsi que du procédé de mise en œuvre. Celui-ci, améliore les propriétés mécaniques du biocomposites d'autant qu'il est grand. Quant à l'orientation, elle va générer une anisotropie du matériau. Ce qui permet de déterminer des axes forts, pour le matériau, selon lesquels les fibres seront sollicitées longitudinalement (direction la plus résistante de la fibre). Enfin, une bonne dispersion des fibres assure un mélange plus homogène et donc une continuité dans la répartition de la contrainte. [28, 29]

I.4.2. Interface fibre-matrice :

L'interface fibre-matrice sert à transférer les charges appliquées au matériau sur le renfort. Ainsi, pour que ce dernier puisse conférer une bonne résistance mécanique, il est nécessaire de contrôler l'adhésion de la fibre à la matrice. Une mauvaise adhésion est due à de faibles interactions entre les deux phases. Pour y remédier, différentes méthodes de compatibilisation, visant à diminuer le caractère hydrophile de la fibre, sont dénombrées dans la littérature. Celles-ci seront traitées dans le prochain chapitre. [7]

I.5. Applications

Les biocomposites présentent de nombreux avantages faisant d'eux des matériaux innovants de choix. En effet, au de-là de leur caractères bio-sourcés et biodégradables, leur légèreté, faible coût de production ainsi que leurs propriétés mécaniques modulables leur permettent de conquérir plusieurs secteurs d'application. Le bâtiment, le biomédical, l'automobile ou encore l'industrie de l'emballage en sont des exemples (**figure I. 16**). [3]



Figure IO. 16: Exemples d'applications des biocomposites, (a) : emballage alimentaire, (b) : valise, (c) : lunettes, (d) : panneaux de portières de voitures, (e) : lavabo. [3]

Toutefois, plusieurs défis restent encore à relever afin d'assurer une utilisation optimale des biocomposites. La grande variabilité des propriétés des fibres, la difficulté d'assurer une bonne

orientation et dispersion et les problèmes liés à l'interface fibre-matrice sont entre autres des problématiques qui suscitent beaucoup d'intérêt de la part des chercheurs. [30]

Chapitre II : Elaboration des biocomposites

L'élaboration de biocomposites nécessite la synergie de plusieurs paramètres. En effet, le choix des matières premières (fibres et polymères), les techniques entreprises pour compatibiliser leurs interfaces ainsi que les procédés sélectionnés pour leur mise en œuvre vont directement influencer les propriétés fonctionnelles du matériau obtenu. Ce chapitre a donc pour objet de traiter ces trois aspects.

II.1. Techniques d'extraction des fibres végétales

On désigne par le mot rouissage tout technique visant à séparer les faisceaux de fibres du reste des constituants des plantes (pectine, lignine...). Ceci représentant la première étape du processus naturel de leur biodégradation. Plusieurs types de rouissage existent. Le plus ancien étant le rouissage microbiologique. D'autres types ont également été mis au point dont on peut citer : le rouissage mécanique, le rouissage chimique ou encore le rouissage enzymatique. Ce dernier représente une approche très prometteuse mais assez limitée.[31,32] Le schéma ci-dessous regroupe ces différents types.

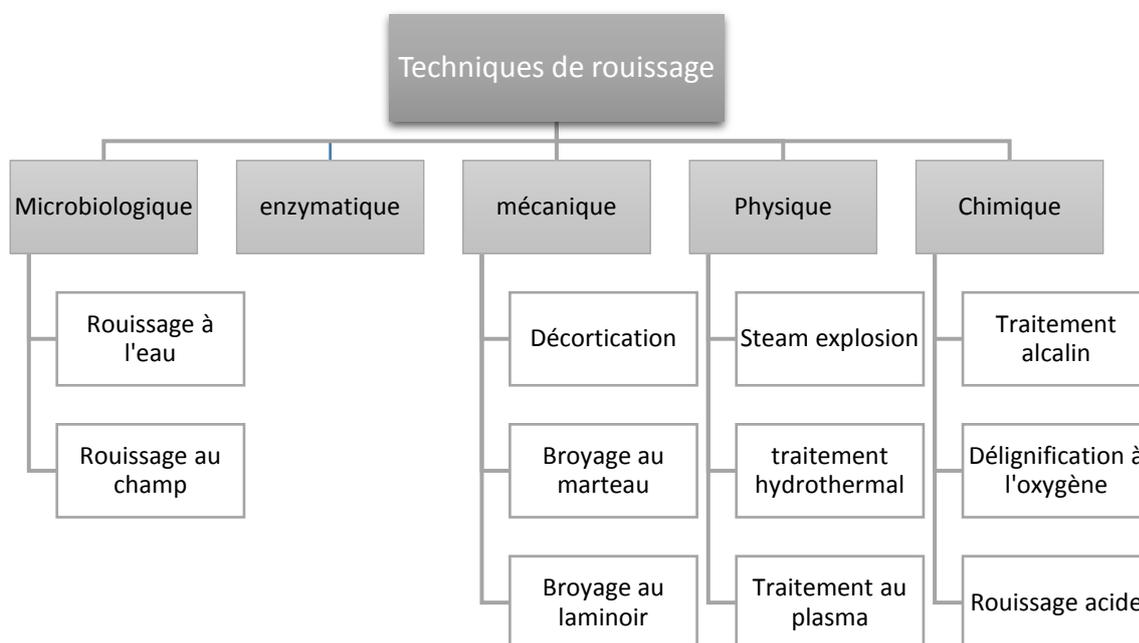


Figure II. 1: Techniques de rouissage.[32]

Dans ce qui suit, certaines de ces techniques seront brièvement développées.

II.1.1. Rouissage microbiologique :

Cette technique consiste à utiliser les bactéries et champignons présents dans l'environnement afin de dégrader les extractibles et libérer les faisceaux de fibres. En fonction de l'environnement dans lequel est placée la plante, on distingue les deux types de rouissage suivants :

- i. Rouissage à l'eau : réalisé traditionnellement au sein des rivières et étangs, cette technique a ensuite été développée. Elle est réalisée à présent dans de larges cuves où le contrôle des conditions du rouissage est plus aisé (**figure II. 2**). Ainsi, l'eau pénètre à l'intérieur de la fibre et une prolifération de micro-organismes a lieu. On est alors en présence d'une première phase effectuée dans des conditions aérobies. S'en suit une deuxième phase sous des conditions anaérobies caractérisée par une fermentation et une production d'acides organiques. Ces deux phases durent entre 7 et 14 jours au bout desquels des fibres de bonnes qualités sont produites. Cependant, les grandes quantités d'eau utilisées et la pollution engendrée limitent l'utilisation de cette technique. [31,32]



Figure II. 2: Rouissage à l'eau, effectué dans: (a) une rivière, (b) une cuve.[32]

- ii. Rouissage au champ : cette approche se fait après la récolte des plantes. Telle que, ces dernières vont être dispersées en fines couches sur les champs pour une durée de 2 à 10 semaines (**figure II. 3**). Durant ce temps, les effets alternés de la pluie, l'humidité, le soleil et la chaleur vont induire la croissance d'un grand nombre de micro-organismes très variés. Il est donc nécessaire de retourner ces plantes de temps à autres pour assurer un rouissage homogène. La qualité des fibres produites est moins bonne que celle des fibres produites par rouissage à l'eau. Néanmoins, c'est la méthode la plus utilisée sur le plan industrielle. Elle a comme principal inconvénient, la limitation des zones

géographiques où le climat serait propice au bon développement des micro-organismes.
[31,32]



Figure II. 3: Rouissage au champ des fibres de lin.[31]

II.1.2. Rouissage enzymatique :

L'extraction des fibres par cette méthode repose sur l'utilisation d'enzymes spécialisées. A la différence du rouissage microbiologique, ici les plantes sont directement mises en contact avec les enzymes au sein de cuves ou de bioréacteurs. Cela dure de 8 à 24h et permet donc de réaliser un gain de temps considérable. De plus, elle ne génère aucune pollution. Toutefois, l'énergie nécessaire pour le contrôle des conditions adéquates à son bon fonctionnement fait que son coût est trop important. [32,33]

II.1.3. Rouissage mécanique :

Cette technique consiste à séparer les fibres des autres constituants de la plante à l'aide de diverses machines. Des tambours rotatifs, des rouleaux cannelés ou encore des broyeurs (à marteau ou au laminoir) vont servir à décortiquer la plante. Les fibres sont donc isolées sans pour autant que leur composition ou structure soit altérée. [33] la figure II.4 montre à titre d'exemple l'extraction des fibres de sisal par voie mécanique.



Figure II. 4: extraction des fibres de sisal (a) et séchage (b). [34]

II.1.4. Rouissage chimique :

Au moyen de cette méthode, les fibres sont extraites par immersion des plantes dans des solutions aqueuses. Le plus souvent ce sont des solutions alcalines, solution de soude concentrée à 1%- 25% par exemple. Des solutions d'acides doux (sulfurique ou oxalique) peuvent aussi être utilisées. Même si les fibres obtenues présentent de meilleures propriétés de surface, les résultats restent controversés car certaines propriétés mécaniques et la stabilité thermique se retrouvent amoindries. [32, 34]

II.2. Démarches de compatibilisation

Le traitement de la surface des fibres végétales permet d'atteindre une meilleure adhésion fibre-matrice. Ce qui induit donc à de meilleures performances des biocomposites qui en résultent. Pour ce faire, divers méthodes sont répertoriées dans la littérature. Celles-ci étant classées en deux catégories, traitements physiques et traitements chimiques. [14]

II.2.1. Traitements physiques :

Ce type de traitements consiste à modifier la structure et les propriétés de surface des fibres sans influencer leurs compositions chimiques. Par conséquent, l'adhésion à l'interface est améliorée mécaniquement seulement. Les plus utilisés sont le traitement plasma et le traitement corona. [36]

- i. Le traitement plasma : au cours de ce traitement la fibre est sujette à une pulvérisation plasma qui va induire une altération de la surface. Suivant la nature des gaz utilisés, divers modifications peuvent être observées. A titre d'exemple, sous atmosphère d'oxygène, la fibre est enrichie de fonctions $-C=O$, $-COOH$ et $-CO_2$. Ce qui aura pour effet de faciliter l'adhésion avec la matrice. [35, 36]

- ii. Le traitement corona : celui-ci consiste à soumettre la fibre à une décharge corona qui va produire de nombreux sites actifs sur sa surface. Ces derniers, en réagissant avec l'oxygène vont former des défauts (cavités ou micro-trous). En conséquence, la fibre est plus rugueuse et une meilleure compatibilité avec le polymère. [35, 36]

II.2.2. Traitements chimiques :

Ce traitement vise à améliorer la compatibilité fibre-matrice via des réactions chimiques. Chose qui est effectuée soit à travers l'ajout d'un agent compatibilisant soit par élimination des certains groupements (tels que les hydroxyles). La nature de la surface se retrouve alors modifiée de façon permanente. Généralement, ce type de modifications conduit à une meilleure stabilité dimensionnelle, à une diminution du taux d'absorption de l'eau et à une meilleure résistance à la putréfaction. Le schéma ci-après reprend les différentes méthodes de ce traitement. Sachant que les plus fréquentes sont : les traitements alcalins, l'acétylation, la silanisation et le greffage d'anhydride. [29, 35]

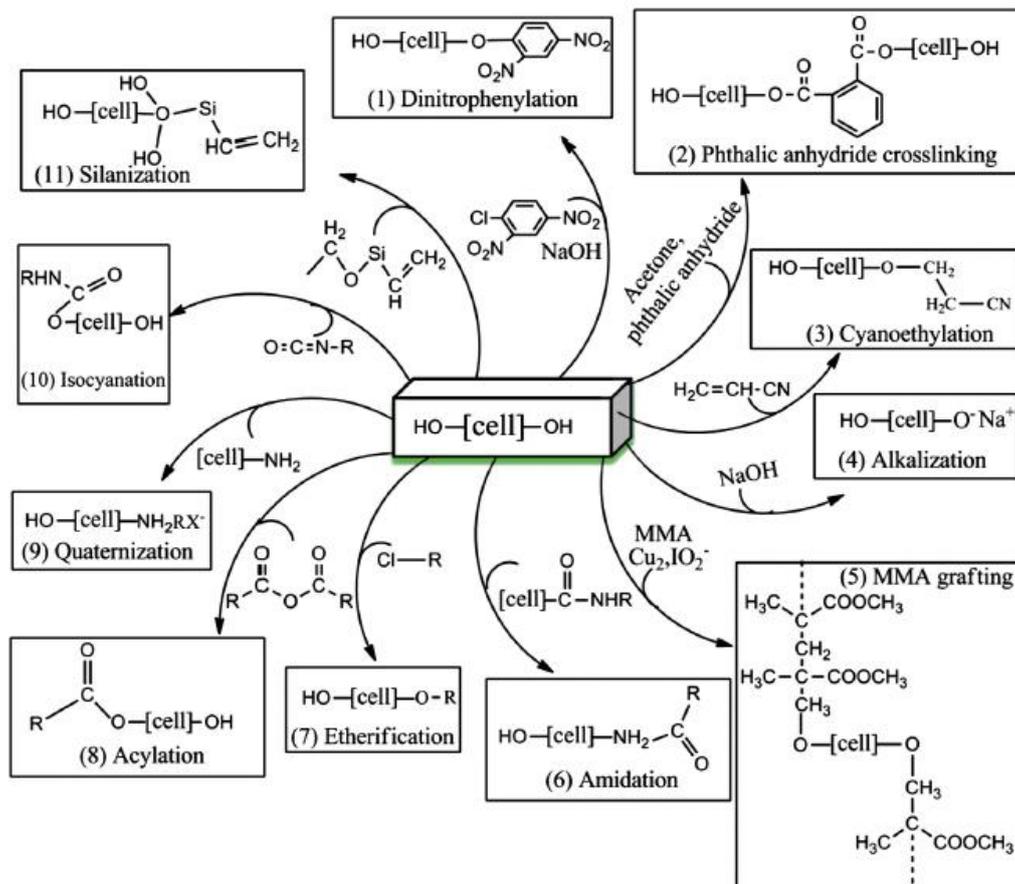


Figure II. 5: Les différentes méthodes de modification chimiques des fibres naturelles.[14]

- i. Traitement alcalin : ce traitement consiste à immerger la fibre dans une solution alcaline telle qu'une solution d'hydroxyde de potassium (KOH), d'hydroxyde de lithium (LiOH) ou encore de soude (NaOH). Cette dernière aussi appelée mercerisage est le traitement le plus courant. Celui-ci permet l'élimination de la pectine, de l'hémicellulose et d'une partie de la lignine. Le principal effet de ce traitement est la diminution des liaisons hydrogène (**figure II. 6**). Par conséquent les microfibrilles se séparent engendrant ainsi une augmentation de la surface de contact et de sa rugosité. Une modification de l'orientation des zones cristallines de la cellulose est aussi causée. Ce qui a pour effet la formation de plus de régions amorphes. Et donc l'augmentation de l'accessibilité des produits chimiques. [38]



Figure II. 6: Schématisation du mercerisage de la fibre naturelle.[38]

- ii. Acétylation : L'acétylation est une technique d'estérification des fibres naturelles. A l'aide de l'acide acétique ou l'anhydride acétique en présence ou non d'un catalyseur acide, des groupements acétyles (CH₃CO) sont greffés sur la cellulose de manière à substituer les groupements hydroxyyles (**Figure II. 7**). Ainsi, la nature hydrophile de la fibre diminue tandis que la stabilité dimensionnelle est améliorée et une meilleure dispersion dans la matrice est acquise. [37]

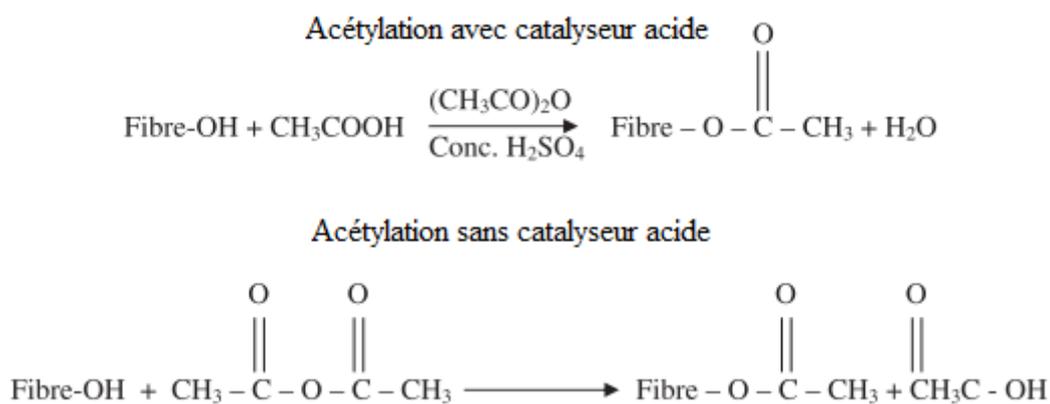


Figure II. 7: Acétylation de fibres naturelles avec et sans catalyseur acide.[37]

- iii. Silanisation : Un alcoxyde de silicium fonctionnalisé appelé à défaut silane, représenté par R'-Si(OR)₃, est l'un des meilleurs agents de couplage, utilisés dans les composites polymère- fibres lignocellulosiques. Ce sont des composés

hydrophiles avec différents groupements associés au silicium tels qu'une extrémité va interagir avec la matrice et l'autre avec la fibre hydrophile, agissant comme un pont entre eux. L'absorption de silane est très dépendante d'un certain nombre de facteurs, comme le temps d'hydrolyse, la fonctionnalité, la température et le pH. Les alcoxydes de silicium sont capables de former des liaisons avec les groupes hydroxyles. Les silanols peuvent former des polysiloxanes par réaction avec les groupes hydroxyles de la fibre. La réaction chimique est décrite dans la figure suivante (**figure II. 8**). [38, 39]

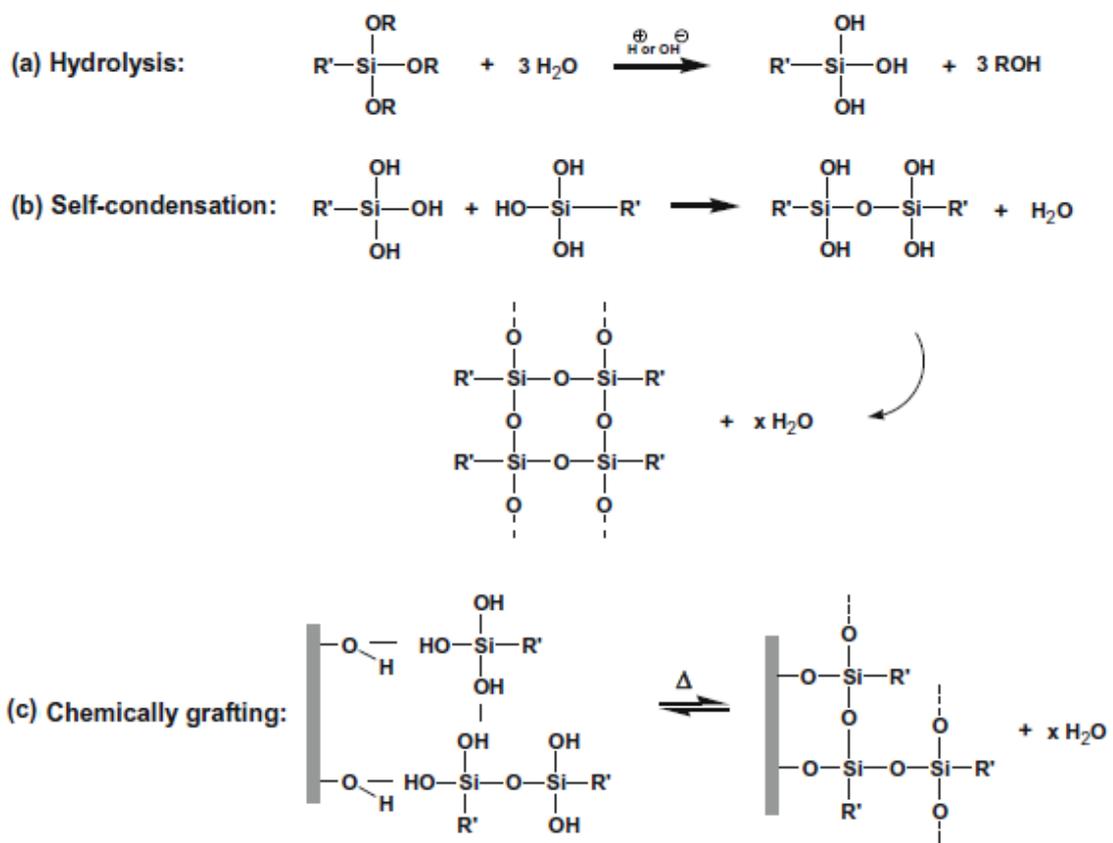


Figure II. 8: Fonctionnalisation des fibres naturelles par aux silanes.[40]

- iv. Greffage d'anhydride : les anhydrides sont des agents de couplage organiques qui se lient aux fibres naturelles par estérification et liaisons hydrogènes. Le plus utilisé d'entre eux est l'anhydride maléique. Celui-ci est un composé carbonyle insaturé contenant une double liaison carbone-carbone (-C = C-) et deux groupements carboxylates (-COO-). Cette structure permet d'établir des liaisons hydrogène avec la fibre et des liaisons covalentes avec la matrice hydrophobe (**figure II. 9**). [39]

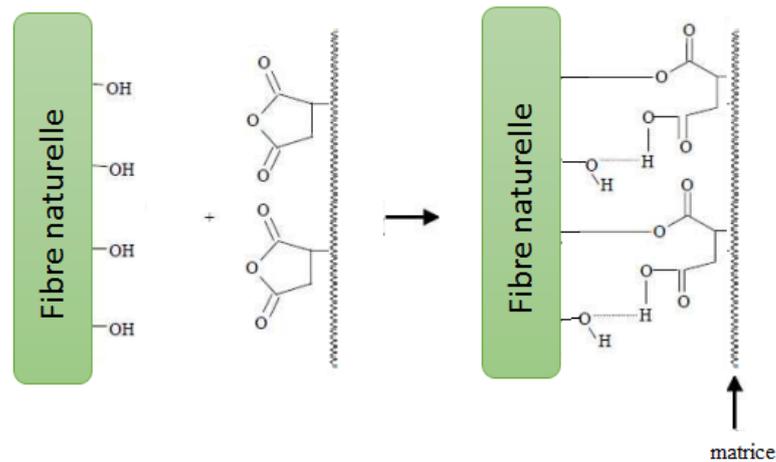


Figure II0. 9: Compatibilisation de fibres naturelles et d'une matrice hydrophobe par anhydride maléique.[39]

II.3. Mise en œuvre des biocomposites

De manière générale, les procédés classiques de mise en œuvre des polymères sont aussi utilisés pour les biocomposites. Parmi ces procédés on retrouve le moulage au contact, la pultrusion, l'enroulement filamentaire, l'extrusion, le moulage par injection etc. Cependant, certaines précautions doivent être prises. Dans le cas de courtes fibres, par exemple, (de 500 microns à 5mm en général) il est nécessaire d'effectuer un pré-mélange afin d'assurer une bonne dispersion. [4,36] Certains des procédés les plus fréquemment rencontrés dans la littérature sont présentés ci-dessous.

L'extrusion d'un mélange de fibres cellulosiques et d'un thermoplastique est une technique qui permet la réalisation complète du biocomposite. Par ailleurs, il est recommandé d'utiliser une extrudeuse bi-vis. Car celle-ci permet d'effectuer un bon mélange grâce à l'important taux de cisaillement qu'elle peut développer. Ce dernier, ne doit pas être trop excessif au risque de réduire le facteur de forme des fibres. [41]

Le moulage au contact consiste à appliquer successivement dans un moule : un agent de démoulage (cire ou feuille de téflon), des couches de renforcement constituées de mat, de tissus ou de fibres coupées et imprégnées de résines. Ce procédé offre l'avantage d'être peu coûteux grâce à la simplicité de son outillage. [4]

RTM- resin transfert molding, par ce procédé des mats de fibre tissés vont être placés au sein d'un moule fermé. Ensuite la résine est y injectée par un ou plusieurs points suivant la taille et la géométrie de la pièce à réaliser. [4]

Il est à noter que plusieurs facteurs peuvent significativement influencer la qualité du biocomposite produit. Le type et propriétés de la fibre, l'humidité qu'elle peut contenir ou encore la température de mise en œuvre sont des paramètres clés à contrôler.

II.4. Rappels bibliographiques

Dans cette section, un bref aperçu de différents articles s'étant intéressés à l'élaboration de biocomposites à base de fibres naturelles et de biopolymères est donné. Plus particulièrement, les travaux ayant utilisé la fibre d'Aloe Vera ont été cités ainsi que quelques articles ayant travaillé sur les PHA.

P. K. BAJPAI et al. [42] ont élaboré 03 biocomposites à base de PLA renforcés de fibres d'ortie, de *Grewia optiva* et de sisal. A des fins de comparaison, les mêmes fibres ont été ajoutées à une matrice en PP. Les propriétés mécaniques ont été suivies par tests de traction, de flexion, de compression ainsi que de choc. Les faciès de rupture ont ensuite été analysés au microscope électronique à balayage. L'ajout de fibres a permis d'améliorer la résistance à la traction et le module de Young de tous les composites avec de meilleures performances atteintes dans le cas des biocomposites. Cela étant dû à la meilleure adhésion fibre-PLA que fibre-PP. De plus, l'amélioration des propriétés de traction et de compression indique que la distribution des sollicitations se fait de manière homogène. Par ailleurs, les composites à base de PP et le biocomposite à base de PLA- fibre d'ortie ont montré une baisse de la résistance au choc. Ce qui est expliqué par l'apparition de zones de concentration de stress autour des fibres. Les clichés MEB ont montré que la rupture se fait via la rupture et l'arrachement des fibres ainsi que des craquelures de la matrice.

A. N. BALAJI et K. J. NAGARAJAN [43] se sont intéressés à la caractérisation de fibres d'Aloe Vera, plante connue jusque-là que pour son gel. Ils ont d'abord procédé à une extraction des fibres par rouissage à l'eau. Ensuite, ils ont déterminé leurs différentes caractéristiques (Composition chimique, diamètre, et densité) et investigué l'effet d'un traitement alcalin sur ses performances. Pour ce faire, ils ont évalué leurs propriétés mécaniques, thermiques et chimiques. Le suivi de la composition et les analyses IRTF ont montré que le traitement alcalin a réussi à éliminer une quantité d'hémicellulose et de cire et par conséquent diminuer

l'hydrophilie des fibres. De plus la résistance à la traction ainsi que la cristallinité des fibres ont augmenté suite au traitement. Il est en de même aussi pour leur stabilité thermique. La comparaison de la composition avec celles d'autres fibres naturelles données par la littérature confirme que ces fibres sont prometteuses pour une éventuelle application dans le secteur des biocomposites.

S. CHAINTYA et I. SINGH [44] ont développé et caractérisé des biocomposites à base de PLA renforcés de fibres d'Aloe Vera et ont réalisé une étude comparative avec des biocomposites PLA- Fibres de sisal. Les deux types de fibres ont été traités au NaOH à 5% et l'effet de ce traitement ainsi que celui de la variation du taux de charge (10%, 20% et 30%) ont été évalués. Les résultats de l'IRTF ainsi que de l'analyse MEB confirment l'élimination de l'hémicellulose. Les résultats de l'ATG vont aussi dans le même sens puisque la stabilité thermique est améliorée avec disparition du pic de l'hémicellulose sur le thermogramme DTG. L'ajout des deux types de fibres a permis d'améliorer les propriétés mécaniques du PLA avec un taux de charge optimale de 30%. Les auteurs signalent qu'au de-là de ce taux, la mise en œuvre des biocomposites par extrusion devient compliquée et une formation d'agglomérats survient. Finalement, ils aboutissent au fait que les propriétés des biocomposites renforcés de fibres d'Aloe vera présentent des propriétés similaires à celles des biocomposites renforcés aux fibres de sisal.

Les mêmes auteurs ont réalisé un traitement chimique des fibres d'Aloe Vera au bicarbonate de sodium pour élaborer un biocomposite à base de PLA. Une durée de 72h a été déterminée comme étant optimale pour le traitement et ce après avoir effectué un balayage de 24, 48, 72, 120 et 168 heures. Les effets de la variation de cette durée ont été suivis par analyse IRTF, ATG et MEB. Les biocomposites ont ensuite été mis en œuvre par extrusion suivie d'injection avec un taux de charge de 30% en poids. Leurs propriétés mécaniques ont été évaluées par tests de traction, de flexion, de compression et de choc. Ils ont conclu que le traitement au bicarbonate de sodium est une alternative plus respectueuse de la nature que le traitement au NaOH. Les résultats IRTF, ATG et MEB confirment l'élimination des constituants non celluloses au fur et à mesure que la durée du traitement augmente. Les propriétés mécaniques sont optimales pour le biocomposite renforcé de fibres traitées pendant 72h sauf pour la résistance au choc qui est optimale dans le cas des fibres traitées pendant 48h. [45]

A.K. Bledzki, et A. Jaszkiwicz [46] se sont proposés dans leur article de suivre les propriétés mécaniques de biocomposites élaborés à base de PLA et de PHBV renforcés de fibres de

cellulose, de jute et d'abaca dans les deux cas. Ils ont comparé leurs résultats avec ceux obtenus dans la littérature pour un biocomposite à base de PP et renforcé aux mêmes fibres. L'évaluation de leurs performances s'est faite par des tests de traction et de choc. Tandis que des micrographies de MEB et de microscope optique ont permis de caractériser l'adhésion à l'interface fibre-matrice ainsi que le facteur de forme et la distribution des fibres. En conclusion, les biocomposites à base de PLA et de PHBV ont présenté des performances similaires à celles du biocomposite à base de PP. En effet, les résistances à la traction et au choc ont été améliorées de plus 50% et 250% respectivement. Les fibres de cellulose ont apporté le meilleur renfort comparées aux autres fibres.

N. M. BARKOULA et al. [47] ont élaboré un biocomposite à base de PHB renforcé de fibre de lin. Ils ont suivi ses propriétés mécaniques ainsi que l'effet des différents procédés de mise en œuvre (moulage par injection et moulage par compression). L'effet des conditions de processabilité (température de refroidissement) a aussi été suivi. Il apparaît que l'ajout des fibres de lin a permis d'augmenter la rigidité du matériau. Cependant, aucun effet sur la résistance à la traction n'a été noté. En ce qui concerne les différents procédés. Les résultats montrent que le moulage par compression permet d'obtenir des matériaux d'une dureté améliorée. Toutefois, le moulage par injection est avantageux en raison des temps de cycles plus bas ainsi qu'à une meilleure reproductibilité des propriétés du biocomposite obtenu. Les conditions de processabilité quant à elles ont permis un meilleur contrôle de la cristallinité. Les auteurs suggèrent que ces propriétés pourraient être optimisées en modifiant la surface de la fibre.

F. VALENTINI et al. [48] ont élaboré un biocomposite à base de PHBHHx renforcé de nanofibrilles de cellulose. Ce matériau étant destiné à la fabrication de filaments à des fins d'utilisations en impression 3D. Les auteurs ont mis en œuvre plusieurs compositions, à savoir 0.5%, 1% et 3% de charge. L'observation au microscope électronique à balayage des spécimens imprimés a montré qu'une bonne dispersion de la charge a été réalisée mais qu'il y avait formation d'agglomérats pour le plus haut taux de charge. Les résultats de l'ATG ont montré qu'il n'y avait aucun effet sur la stabilité thermique. Cependant, le renfort a permis d'améliorer les propriétés mécaniques du matériau avec une contrainte et une élongation à la rupture ayant atteint un optimum pour un taux de charge de 0.5%.

Chapitre II : Elaboration des biocomposites

Les caractéristiques prometteuses du PHBHHx ainsi que de la fibre d'Aloe Vera nous orientent donc à en élaborer un biocomposite. Cela, en se basant sur les différentes méthodes de modifications de surfaces décrites comme avantageuses dans la littérature.

Chapitre III : Matériels et méthodes

Ce chapitre porte sur la présentation des matériaux, protocoles expérimentaux ainsi que les techniques de caractérisations utilisés. Dans un premier lieu une description des différents matériaux sera faite. S'en suivra, une présentation succincte des protocoles d'extractions des fibres d'Aloe Vera, de leur modification et de l'élaboration des biocomposites. Enfin, les différentes techniques utilisées pour évaluer les propriétés des matériaux élaborés seront brièvement décrites.

III.1. Matériaux utilisés

III.1.1. Le poly (3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyhexanoate) (PHBHHx) :

Le PHBHHx est commercialisé par la société Kaneka Corporation (Osaka, Japon). Il se présente sous forme de granulés de couleur blanchâtre. Sa structure chimique est présentée dans la figure ci-dessous (**figure III.1**). Tandis que ses principales propriétés physico-chimiques sont listées dans le tableau ci-après (tableau III.1).

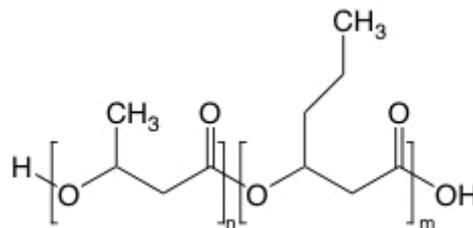


Figure III. 1: Structure chimique du PHBHHx.

Tableau III.0 1: Principale propriétés physico-chimique du PHBHHx.[48]

Propriété	Valeur
$T_{fus.}$ (°C)	130
T_g (°C)	-0.2
d	1.19

III.1.2. La fibre d'Aloe Vera :

Les fibres ont été extraites à partir de feuilles d'Aloe Vera (**figure III. 2**) collectées dans la localité de Bejaia.



Figure III. 2: Illustration des feuilles d'Aloe Vera.

L'extraction s'est faite via un rouissage à l'eau suivant le protocole décrit comme suit :

- Immersion des morceaux d'Aloe vera, lavés et découpés au préalable, dans un bain thermostaté à 90°C pendant 2h.
- Immersion des morceaux récupérés dans un contenant rempli d'eau potable et scellé pendant plusieurs jours.
- Lavages successifs des morceaux jusqu'à élimination de toute la pulpe.
- Séchage à 70°C pendant 24h.

La figure ci-dessous (**figure III.3**) retrace les différentes étapes du protocole.



Figure 0III. 3: Illustration du protocole d'extraction des fibres.

La composition chimique de cette fibre a été déterminée suivant le protocole proposé par **A. K. VARMA et P. MONDAL**. [50] et dont la procédure détaillée est comme suit :

a- Détermination du taux des extractibles :

Un échantillon séché de la fibre brut de masse G_0 a été introduit dans un ballon avec un mélange de benzène/éthanol. Le tout a été porté à une température de 60°C pendant 3h.

L'échantillon a ensuite été filtré puis séché à 105°C jusqu'à stabilisation de la masse. Après refroidissement dans un dessiccateur le résidu est pesé (G_1). Le taux d'extractibles est alors calculé comme suit :

$$W_1(\%) = \frac{G_0 - G_1}{G_0} \times 100 \quad (\text{III.1})$$

b- Détermination du taux de l'hémicellulose :

Le résidu (G_1) est plongé dans une solution de NaOH (20g. l⁻¹) et porté à ébullition pendant 3.5 heures. L'échantillon est ensuite filtré et lavé plusieurs fois. Il est ensuite séché à 105°C jusqu'à atteindre une masse constante. Après refroidissement au dessiccateur, l'échantillon est pesé (G_2). Le taux d'hémicellulose est calculé par la relation suivante :

$$W_2(\%) = \frac{G_1 - G_2}{G_0} \times 100 \quad (\text{III.2})$$

c- Détermination du taux de la lignine :

Un échantillon d'environ 1g est pris du résidu G_1 . Il est mis dans un ballon puis séché jusqu'à stabilisation de la masse. Une fois refroidi dans un dessiccateur, la masse est repesée (G_3). 30 mL d'acide sulfurique à 72% y sont ajoutés. Puis le tout est mis dans un réfrigérateur (entre 8°C et 15°C) pendant 24 heures. Après cela, le contenu du ballon est dilué avec 300 mL d'eau distillée et porté à ébullition pendant 1 heure. Il est ensuite filtré et rincé jusqu'à disparition des ions de sulfates. Après séchage et refroidissement, l'échantillon est de nouveau pesé (G_4). Le taux de lignine est calculé comme suit :

$$W_3(\%) = \frac{G_4(1 - W_1)}{G_3} \times 100 \quad (\text{III.3})$$

d- Détermination du taux de cellulose : par d'éduction le taux de cellulose est donnée comme suit :

$$W_4(\%) = 100 - (W_1 + W_2 + W_3) \quad (\text{III.4})$$

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

- ✓ Poser le pycnomètre sur la balance, faire le zéro.
- ✓ Remplir le pycnomètre de liquide jusqu'au repère
- ✓ Peser le volume de liquide (m_0)
- ✓ Vider le pycnomètre
- ✓ Introduire le lot de matière à tester dans le pycnomètre
- ✓ Peser le lot (m_1)
- ✓ Compléter le remplissage du pycnomètre avec le liquide.
- ✓ Peser l'ensemble eau + matière (m_2)
 $m_2 = m_1$ (masse échantillon) + m_3 (masse d'eau)

- ✓ Répéter l'essai sur 3 échantillons.

Le protocole est schématisé ci-dessous :

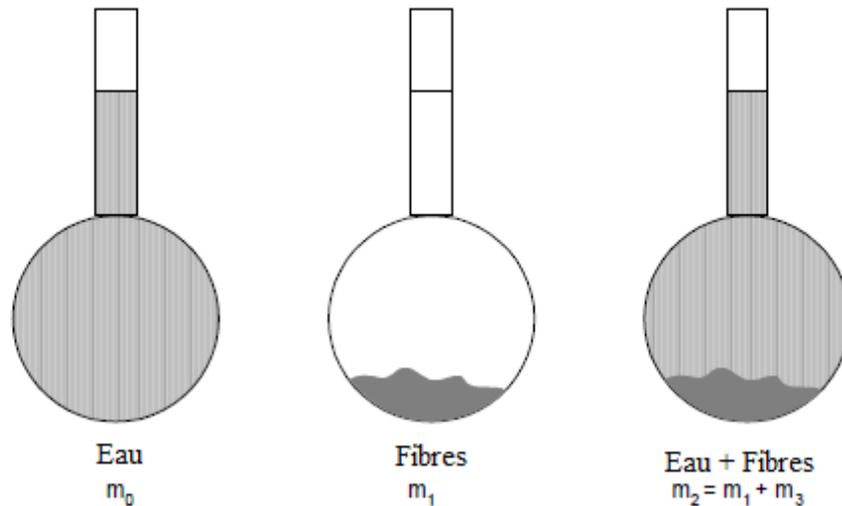


Figure III. 4: Schéma du protocole de détermination de la densité de la fibre.

La densité est alors calculée via l'équation suivante :

$$d_{\text{fibre}} = \frac{m_1}{m_0 - m_3} \quad (\text{III.5})$$

III.1.3. Les produits chimiques :

1. Hydroxy de sodium : commercialisé par la société BIOCHEM Chemopharma. De masse moléculaire de 40 g. mol^{-1} . Ce produit a été utilisé afin d'éliminer l'hémicellulose et des différents extractibles.
2. Acide acétique : commercialisé par la même société. De masse moléculaire de $60.04 \text{ g. mol}^{-1}$. Il a été utilisé pour ajuster le pH lors des différents protocoles.
3. Le triméthoxysilane d'octadécyle (trimethoxy (octadecyl) silane (TMOS)) a été fourni par Sigma Aldrich, ses principales caractéristiques sont répertoriées dans le tableau suivant (**tableau III. 2**) :

Tableau III0. 2: Principales propriétés physico-chimiques du TMOS.[51]

Propriété	Unité
Formule chimique	$\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{17}\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$
Apparence	liquide transparent
Pureté	0,883 à 25 °C
densité	90%

III.2. Modes opératoires

III.2.1. Traitement des fibres au NaOH :

Ce traitement, visant à éliminer l'hémicellulose, la pectine et une certaine quantité de lignine, a été réalisé conformément au protocole proposé par **A. N. BALAJI et K. J. NAGARAJAN** [43] décrit dans ce qui suit :

Les fibres séchées et réduites à une taille de quelques millimètres ont été plongées dans une solution de NaOH concentrée à 5% en masse. La température a été maintenue à 27°C pendant une heure sous une agitation moyenne. Après cela, les fibres ont été filtrées et rincées plusieurs fois à l'eau distillée jusqu'à neutralité du pH. Le séchage a été effectuée à 70°C jusqu'à stabilité de la masse.

III.2.2. Fonctionnalisation de la surface de la fibre au TMOS :

L'objectif de ce traitement et de greffer les molécules de TMOS sur la surface de la fibre afin d'améliorer son adhésion au PHBHHx. Le protocole mis en œuvre a été établi en se référant à celui proposé par **G. PANAYIOTIS et al.** [50]

Celui-ci est décrit comme suit :

Une quantité de 2% de TMOS (pris par rapport à la masse de fibres traitées) ont été dissouts dans une solution d'eau et d'éthanol (70 :30 en volume) pendant 1h sous agitation. Les fibres sont ensuite plongées dans la solution de silane. Le mélange a été mis sous agitation pendant 3h. Elles ont ensuite été filtrées et séchées.

N.B : ce protocole a été réalisé sur des fibres brutes ainsi que des fibres traitées au NaOH. Ces fibres seront respectivement désignées par AVFTSI et AVFTNaSI.

III.3. Mise en œuvre des biocomposites

La mise en œuvre des biocomposites a été réalisée par voie fondue. Le polymère et la charge ont été préalablement séchés à l'étuve à 70°C pendant 12h. Le taux de charge a été fixé à 20%. Le tableau ci-dessous résume les codes attribués aux différentes formulations.

Tableau 0III. 3: Codes des différentes formulations.

Polymère	Charge	Code
PHBHHx	-	PHBHHx
	FAVNT	PHBHHx + FAVNT
	FAVTNA	PHBHHx + FAVTNA
	FAVTSI	PHBHHx + FAVTSI
	FAVTNASI	PHBHHx + FAVTNASI

Cela a été fait au moyen d'une mini extrudeuse bi-vis de type Micro Compounder DSM Xplore (version 1.0 modèle 2005) illustrée par la **figure III. 5**. La vitesse de rotation des vis a été fixée à 50 tours/min et la température à 145°C.



Figure 0III. 5: Mini extrudeuse bi-vis.

III.4. Techniques de caractérisation

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

Cette technique a été utilisée dans le but d'observer la morphologie des échantillons de biocomposite. L'appareillage utilisé est un microscope électronique à balayage de Modèle Joël JSM-6031. La surface fracturée des échantillons dans l'azote liquide est mise dans la position parallèle au faisceau d'électrons.

III.4.2. Spectroscopie IR-ATR :

Les spectres infrarouges des fibres brutes et traitées ainsi que du polymère vierge et des biocomposites ont été obtenus à l'aide d'un spectrophotomètre en mode ATR. L'appareil utilisé est de marque Agilent Technologies. Les spectres ont été enregistrés en mode absorbance dans le domaine 4000 cm^{-1} à 400 cm^{-1} et ce avec une résolution spectrale de 8 cm^{-1} et 64 balayages.

III.4.3. Analyse thermogravimétrique (ATG) :

Cette analyse a été effectuée afin de déterminer la stabilité thermique des fibres avant et après les différents traitements ainsi que celle des différents biocomposites. Deux appareillages ont été utilisés :

- Pour les fibres, l'appareil LINSEIS STA PT 1600, piloté par ordinateur a été utilisé sur une plage de températures allant de 22°C à 800°C avec une vitesse de chauffe de $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$.
- Pour les biocomposites, les thermogrammes ont été enregistrés à l'aide d'un appareil de type SETRAM TG-DTA 92-10, sur une plage de température allant de 20°C à 600°C avec une vitesse de chauffe de $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ en milieu inerte.

III.4.4. Analyse calorimétrique différentielle (DSC) :

Les mesures ont été réalisées à l'aide d'un appareil de marque METTLER de type DSC 822 sous un flux d'azote avec une vitesse de balayage de $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$. Et ce sur une plage de température allant de -40°C à 200°C . Un échantillon de 15mg a été pris de chaque biocomposite. Le protocole expérimental est constitué de deux rampes de chauffage de -40°C à 200°C et d'un refroidissement de 200°C à -40°C . Le taux de cristallinité est calculé par l'équation suivante :

$$\chi_c = \frac{\Delta H_{fus.}}{\Delta H^{\circ}_{fus.} \times f_m} \quad (\text{III.6})$$

Où ΔH_{fus} est l'enthalpie de fusion du polymère, f_m est la fraction massique du PHBHHx et $\Delta H_{\text{fus}}^{\circ}$ est l'enthalpie de fusion du PHBHHx 100% cristallin.

III.4.5. Absorption d'eau :

Dans cette étude, les expériences d'absorption d'eau ont été réalisées selon les conditions de la norme ASTM D570-98(2018). Les échantillons de biocomposites ont été préalablement séchés à 70°C jusqu'à stabilisation de leurs masses, puis refroidis dans un dessiccateur et pesés immédiatement à l'aide d'une balance (PAG OERLIKON AG CH-Zürich modèle 180A max 183gr $d_d=0.0001\text{gr}$). Les différents échantillons ont ensuite été immergés dans des béchers contenant de l'eau distillée. Après 24h, ils ont été retirés, essuyés et pesés. Cette opération a été refaite à intervalles réguliers jusqu'à plafonnement du taux d'absorption. Celui-ci étant calculé par l'équation suivante :

$$W_A = \frac{m_t - m_0}{m_0} \times 100\% \quad (\text{III.7})$$

Où W_A est le taux d'absorption, m_0 et m_t sont respectivement, la masse initiale de l'échantillon et la masse de l'échantillon à l'instant t après immersion.

III.4.6. Mesures d'angle de contact :

Les angles de contact sont mesurés sur un appareil Digidrop (GBX, *Romans*) équipé d'une caméra vidéo, d'une dépose de goutte (0,50 μL) sur la surface à analyser et d'un logiciel d'exploitation. La photographie de la goutte est prise 0.09s après son dépôt. Les mesures ont été réalisées à 23°C en les répétant une quinzaine de fois pour chaque couple eau/échantillon.

III.4.7. Mesures rhéologiques :

Le comportement rhéologique des biocomposites a été étudié en régime dynamique à l'aide d'un rhéomètre dynamique de cisaillement en rotation (Rheometer Anton Paar MCR 301). Les mors présentent une géométrie plan/plan d'un diamètre de 25mm en mode oscillatoire à 150°C, ce qui permet d'évaluer les propriétés viscoélastiques telles que le module de perte, de conservation et la viscosité complexe. La déformation imposée est de 2%. Elle est déterminée de façon à rester dans le domaine linéaire lors du balayage en amplitude. Les échantillons ont été préparés par compression dans un moule à 180°C sous forme de disque d'environ 1.5mm d'épaisseur. Les modules G' et G'' ont été mesurés dans le domaine linéaire, pour des fréquences variant de 100 à 0.01 Hz.

Chapitre IV : Résultats et discussion

IV.1. Caractérisation des fibres d'Aloe Vera

IV.1.1. Analyse morphologique au microscope électronique à balayage (MEB) :

La figure IV. 1 montre les micrographies obtenues lors de l'analyse de la fibre d'Aloe Vera brute (a) et une fois traitée au NaOH (b). La première présente une surface lisse avec des amas de matière (pectine, hémicellulose...) sur les microfibrilles de cellulose. A contrario, sur la deuxième micrographie, on observe une surface rugueuse engendrée par la diminution de la quantité de constituants non cellulosiques. Ce qui est en concordance avec les résultats de **S. Chaitanya et I. Singh** [44] qui ont travaillé sur la même fibre avec un traitement au NaOH similaire.

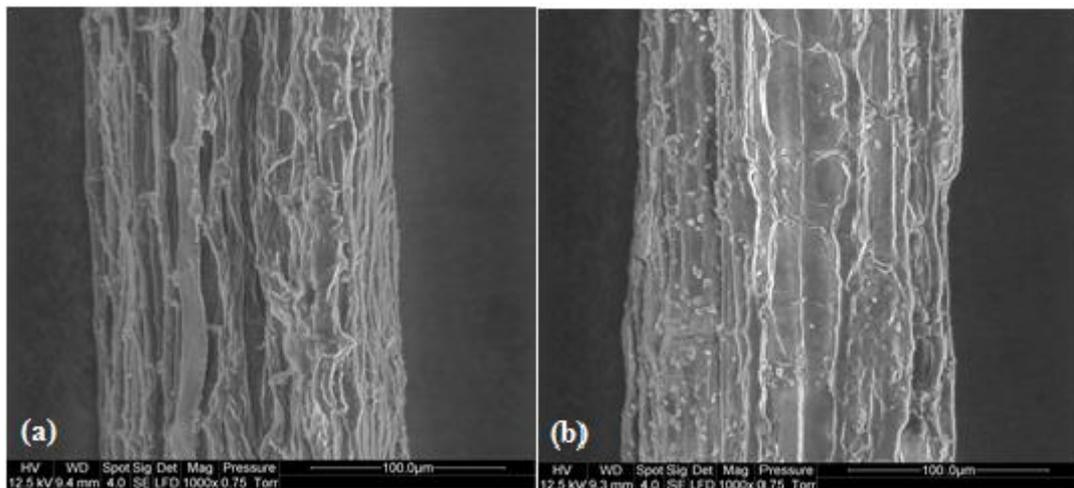


Figure IV. 1: Clichés MEB: (a) fibre non traitée, (b) fibre traitée au NaOH.

IV.1.2. Analyse structurale par spectroscopie infra-rouge (IR-ATR) :

La figure IV. 2 présente les spectres IR-ATR des fibres brutes (FAVNT), traitées au NaOH (FAVTNA), traitées au TMOS (FAVTSI) et traitées au NaOH et TMOS (FAVTNASI). On observe 04 pics caractéristiques qui se distinguent.

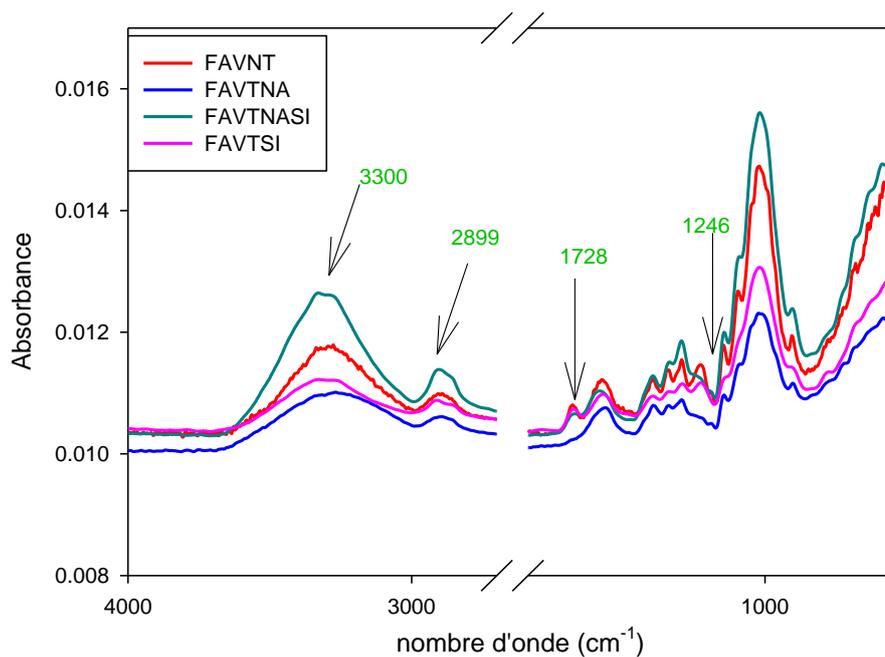


Figure IV. 2 : Spectres IR-ATR des fibres non traitées et traitées.

- Le premier situé à 3300 cm^{-1} correspond aux vibrations d'élongation des groupements hydroxyle contenus dans la cellulose. Son intensité diminue dans le cas de la FAVTNA comparée à l'FAVNT. De plus, la bande s'élargie. Cela indique que le nombre d'OH a diminué après le traitement et que les restants sont libres. Pour la FAVTNASI, le pic regagne en intensité ce qui est dû à la présence de groupements silanol.
- Le deuxième situé à 2889 cm^{-1} est attribué aux vibrations d'élongation des CH aliphatiques contenus dans les composés organiques de la fibre. Toutefois, dans le cas de la FAVTNASI le pic est plus intense. Ce qui est dû à la présence de la chaîne octadecyl du TMOS.
- Le troisième pic est situé à 1728 cm^{-1} et correspond aux vibrations d'élongation des groupements C=O présents dans l'hémicellulose et la pectine. Il disparaît des spectres de la FAVTNA et de la FAVTNASI. Signe de l'élimination de ces deux constituants.
- Le quatrième pic à 1246 cm^{-1} qui correspond aux vibrations d'élongation des groupements C—O de l'hémicellulose. Celui-ci disparaît aussi des spectres de la FAVTNA et de la FAVTNASI.

Ces résultats indiquent l'efficacité des deux traitements combinés et sont en accord avec ceux rapportés dans la littérature notamment par **A.N. Balaji et K.J. Nagarajan** [43] ainsi que **P. Garside et P. Wyeth** [54]

IV.1.3. Détermination de la composition chimique :

Les différents taux des constituants de la fibre d'Aloe Vera obtenus lors du présent travail (FAVNT) ainsi que ceux de certaines autres fibres tirés de la littérature sont regroupés dans le tableau suivant (Tableau IV. 1).

Tableau IV. 1: composition de l'FAVNT et d'autres fibres tirées de la littérature.[43]

Type de fibre	Cellulose (%)	Hémicellulose (%)	Lignine (%)	Extractibles (%)
FAVNT	64.9	25.1	4.1	5.9
Aloe Vera	60.2	14.2	13.7	1.5
Lin	85	9	4	1.7
Jute	58-63	20-24	12-15	0.5

La FAVNT présente une composition en cellulose relativement proche de celles retrouvées dans la littérature. Par contre, les taux d'hémicellulose et de lignine sont significativement différents. La cellulose étant le principal constituant des fibres, la FAVNT pourrait donc se substituer aux autres fibres. Rappelons que la composition des fibres végétales varie en fonction des conditions climatiques, de la zone géographique et des nutriments présents dans le sol lors de leurs croissances. A cet effet, cette comparaison n'est faite qu'à titre indicatif de l'ordre de grandeur de ces taux.

IV.1.4. Analyse thermogravimétrique :

On observe à partir des thermogrammes représentés ci-dessous (**figure IV. 3 et IV. 4**), une légère perte de masse pour une température d'environ 100°C. Celle-ci correspond à l'évaporation de l'eau absorbée par les fibres. La stabilité thermique a été améliorée par les différents traitements puisque la température de début dégradation augmente légèrement en passant de 213°C pour l'FAVNT à 219°C, 221°C et 219°C pour les FAVTNA, FAVTSI et FAVTNASI respectivement. Les différentes phases de dégradation sont plus observables à travers le thermogramme DTG. Tel que celui-ci décrit un premier pic à T= 292°C dans le cas de la FAVNT qui correspond à la dégradation de l'hémicellulose. Ce pic disparaît après

traitement alcalin (FAVTNA) indiquant l'efficacité du traitement. Un deuxième pic est observé, à 352°C pour l'FAVNT et la FAVTNA ainsi qu'à 334°C et 338°C pour la FAVTSI et la FAVTNASI respectivement. Il correspond à la dégradation de la cellulose. Notons qu'après les différents traitements, l'intensité de ces pics a augmenté ce qui signifie que la quantité de cellulose dégradée a augmentée et ce car la quantité de matière organique la protégeant a diminuée. La troisième phase décrivant un pic à 495°C et correspondant à la décomposition de la lignine. Ces résultats coïncident avec ceux de certains travaux recensés dans la littérature. [55,56]

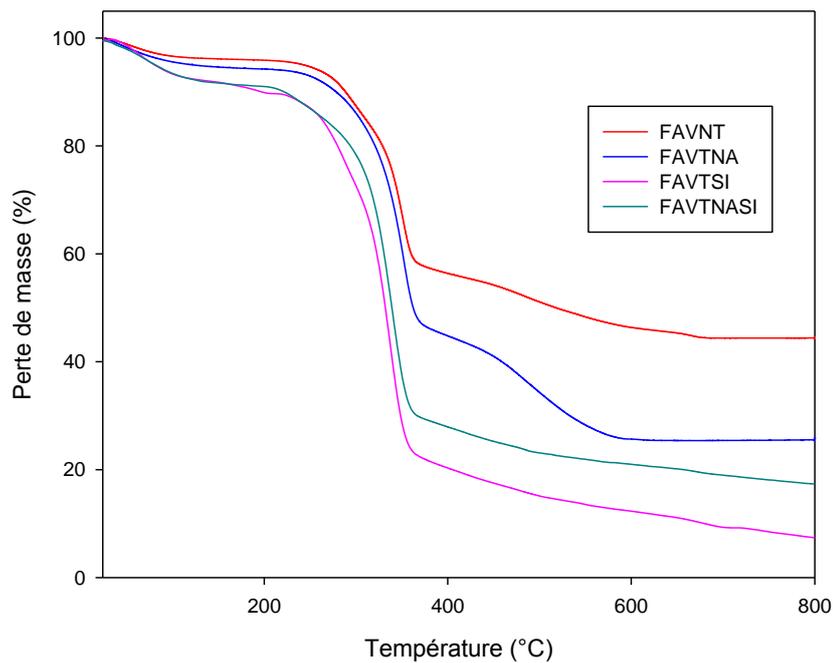


Figure 0IV. 3: Thermogramme ATG des fibres.

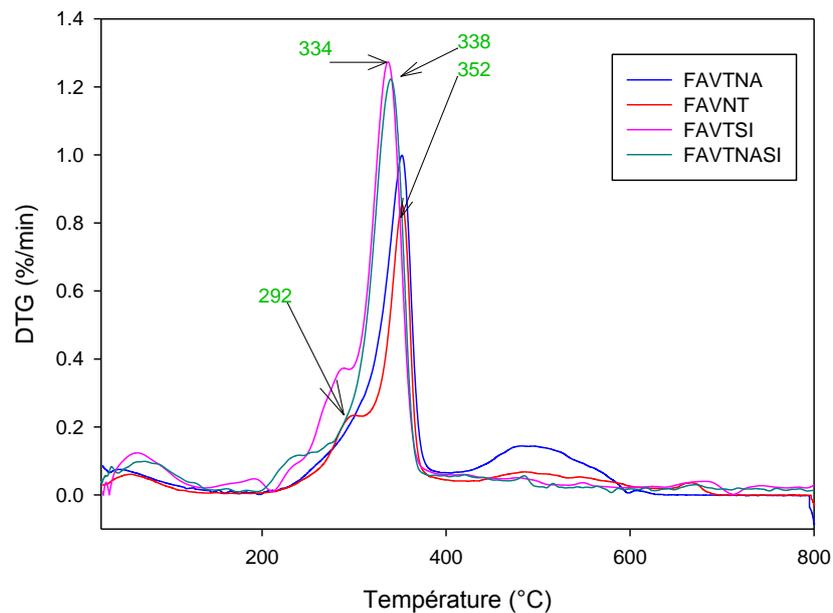


Figure IV. 4: Thermogramme DTG des fibres.

Les propriétés thermiques de la fibre brute et traitée aux différents traitements, tirée des thermogrammes, sont regroupées dans le tableau ci-après :

Tableau 0IV. 2: Propriétés thermiques de la fibre non traitée et traitée déterminées par ATG.

Echantillon	T_d (°C)	T_{10%} (°C)	T_{50%} (°C)	Taux de résidu (%)	T_{Vmax} (°C)
FAVNT	213	288	522	44.20	352
FAVTNA	219	273	364	25.08	352
FAVTSI	221	192	333	7.27	334
FAVTNaSI	219	221	339	17.61	338

IV.1.5. Détermination de la densité :

La densité de la fibre non traitée a été déterminée suite à plusieurs essais au pycnomètre, dont les résultats sont regroupés dans le tableau IV.3.

Tableau IV. 03: Résultats de la détermination de la densité de la fibre d'Aloe Vera.

	Essai 1	Essai 2	Essai 3
Densité	1.4222	1.5127	1.3626

La densité moyenne de la fibre est donnée par la moyenne arithmétique des 03 essais. On obtient : $d = 1.4325$. Cette valeur est relativement porche de celle déterminée par **A. N. BALAJI et K. J. NAGARAJAN** qui trouve une densité de 1.3251. [43]

IV.2. Caractérisation des biocomposites

IV.2.1. Microscopie électronique à balayage (MEB)

Les micrographies ci-dessous (**figure IV.5**) montrent les sections des extrudats coupés après immersion dans de l'azote liquide. On constate la présence de cavités et d'empreintes sur les clichés des trois biocomposite renforcés aux fibres non traitées, traitées au NaOH et traitées au TMOS. Toutefois, le nombre de cavités diminue sur le dernier cliché qui présente une surface plus homogène. Indiquant ainsi, une meilleure adhésion fibre-matrice lorsque la fibre est sujette aux deux traitements combinés. En effet, lors de la mise en œuvre, des liaisons covalentes se forment entre les groupements octadecyl (appartenant aux silanols greffés sur les fibres) et la matrice. Cette réaction est schématisée sur la **figure IV. 6. M. S. HUDA et al.** [55] retrouvent des résultats similaires pour un biocomposite à base de PLA et de fibres d'ananas traitées au NaOH et au 3-aminopropyltriéthoxysilane.

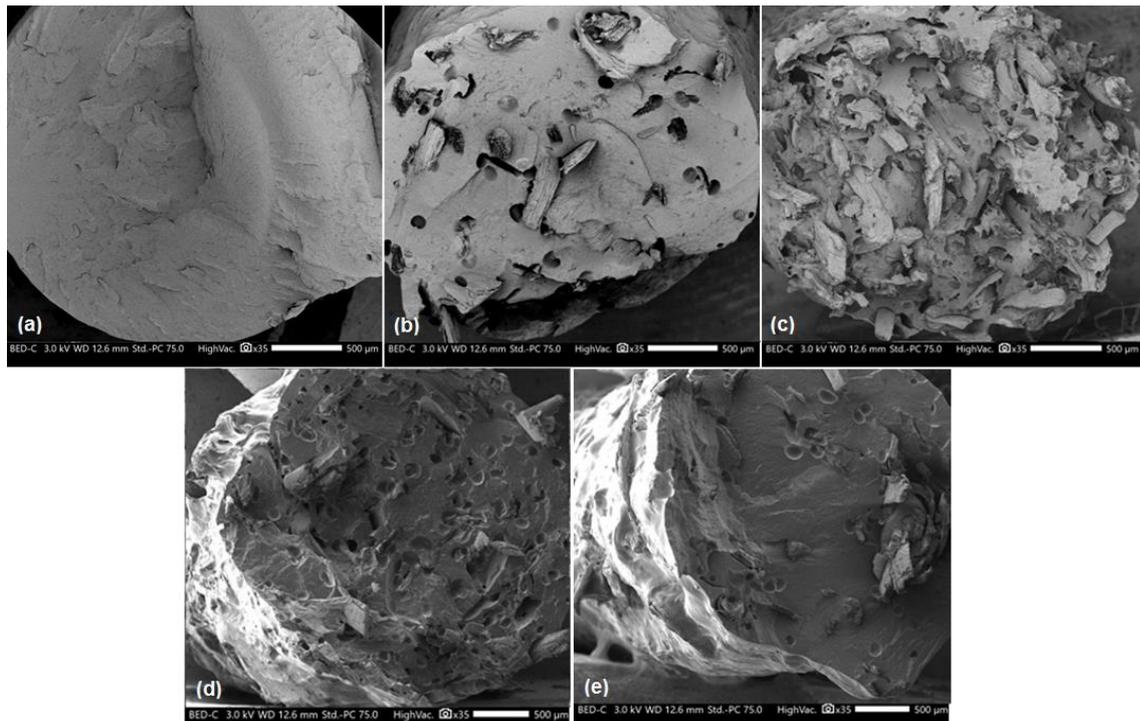


Figure 0IV. 5: Micrographies des biocomposites. (a) : PHBHHx, (b) : PHBHHx + FAVNT, (c) : PHBHHx +FAVTNA, (d) : PHBHHx + FAVTSI, (e) : PHBHHx +FAVTNASI.

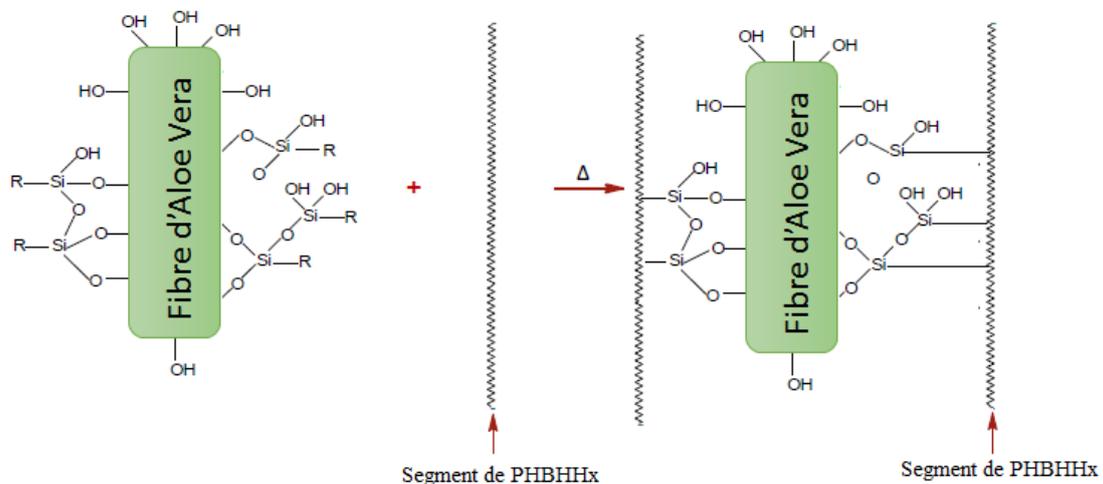


Figure IV. 6: Schéma général du mécanisme de la réaction chimique entre la fibre d'Aloe Vera traitée au TMOS et le PHBHHx. [51]

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

La structure chimique des biocomposites a été étudiée par IR-ATR. Les différents spectres obtenus sont représentés sur la **figure IV. 7**. On remarque que tous les pics caractéristiques se situent dans la région allant de 1800 cm^{-1} à 750 cm^{-1} . Par conséquent, elle est zoomée dans la **figure IV. 8**. L'attribution des pics se fait comme suit :

- Le pic à 1720 cm^{-1} correspond aux vibrations d'élongation des groupements carbonyles contenus dans le PHBHHx
- Les pics à 1275 cm^{-1} , 1261 cm^{-1} et 1227 cm^{-1} correspondent aux vibrations d'élongation des liaisons C—O—C formées entre le PHBHHx et la fibre traitée au TMOS.

Ces résultats indiquent que le traitement au TMOS a induit une meilleure adhésion à l'interface fibre-PHBHHx surtout dans le cas du traitement combiné. Ils sont en parfait accord avec ceux de **J. S. LIM et al.** [57].

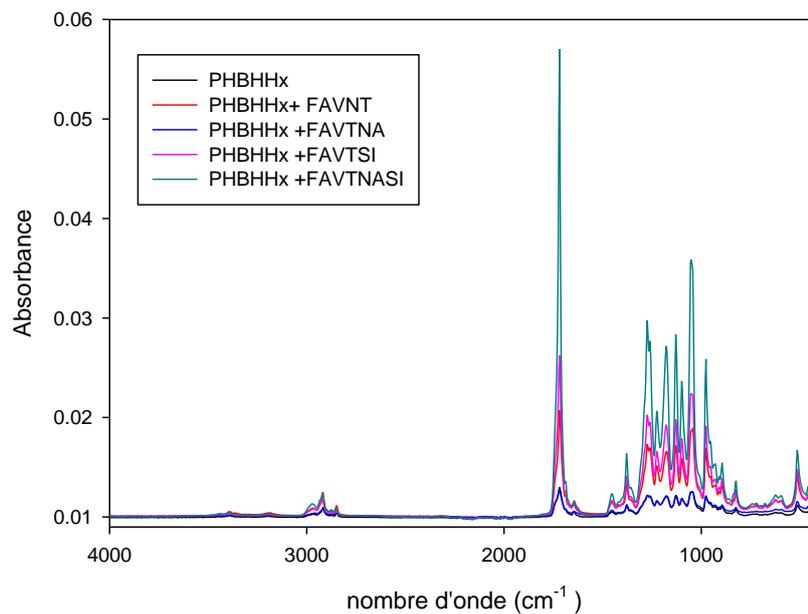


Figure 0IV. 7 : spectres IR-ATR du PHBHHx et des biocomposites.

IV.2.3. Absorption d'eau :

La figure IV.9 présente les résultats des tests d'absorption d'eau. On constate que tous les biocomposites présentent le même profil d'absorption. Le biocomposite à base de fibres traitées au NaOH + TMOS présente le plus faible taux d'absorption. Indiquant que le traitement combiné agit positivement sur l'hydrophilie du matériau comme indiqué par **Sgriccia et al.** [58]. Cependant, on remarque que le biocomposite à base de fibres traitées au NaOH uniquement présente le plus haut taux d'absorption ce qui est dû au fait qu'après l'élimination

des constituants non cellulodiques les groupements hydroxyles des chaînes de cellulose sont devenus libres et présentent donc un caractère hydrophile. [59]

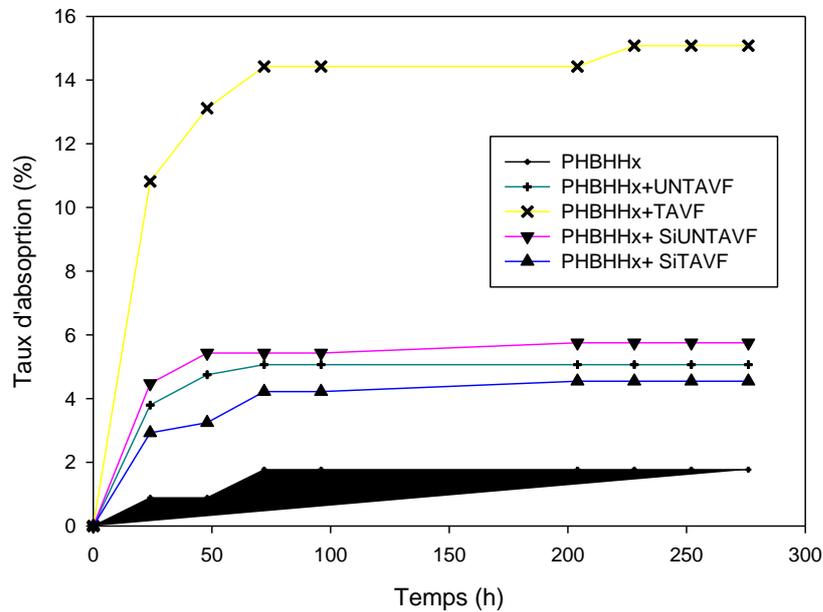


Figure IV. 9 : Taux d'absorption d'eau des biocomposites.

IV.2.4. Angle de contact

Les résultats du test de l'angle de contact des biocomposites avec l'eau sont regroupés dans le tableau IV. 4. On constate que le polymère possède un caractère hydrophobe. Cependant, l'ajout de la fibre non traitée a diminué son hydrophobie. Ce qui est dû au caractère très hydrophile de cette dernière. On remarque aussi que la fibre traitée au NaOH abaisse d'avantage l'angle de contact ce qui est en cohérence avec les résultats du test d'absorption d'eau. L'angle de contact du biocomposite à base de fibres traitées aux silanes est supérieur à celui du biocomposite renforcé de FAVNT. Cela est engendré par la nature hydrophobe des silanes. Par ailleurs, le biocomposite renforcé de fibres ayant subis les deux traitements présente un angle de contact plus faible que celui renforcé de FAVTSI, cela étant dû à la présence de silanol n'ayant pas interagit avec la matrice. Ces résultats sont en accord avec ceux rapportés par **L. BOULOS et al.** [60]

Tableau IV. 04: résultats du test de l'angle de contact des biocomposites avec l'eau :

Biocomposite	Angle de contact
PHBHHx	$90.6^{\circ} \pm 2.57^{\circ}$
PHBHHx + FAVNT	$84.9^{\circ} \pm 2.57^{\circ}$
PHBHHx + FAVTNA	$84.2^{\circ} \pm 2.57^{\circ}$
PHBHHx + FAVTSI	$89.4^{\circ} \pm 2.57^{\circ}$
PHBHHx + FAVTNASI	$88.3^{\circ} \pm 2.57^{\circ}$

IV.2.5. Analyse thermogravimétrique

La stabilité thermique des biocomposites est représentée par les thermogrammes ATG/ DTG (**figures IV. 10 et IV. 11**). On observe que la dégradation thermique du PHBHHx se fait en une seule étape avec une température de début de dégradation de 260°C. Tandis que celle des biocomposites se fait en deux étapes. La première a lieu à 260°C pour tous les biocomposites sauf pour celui renforcé aux fibres traitées au NaOH. Pour celui-ci elle commence à 245°C. Cette étape correspond à la dégradation du polymère. La deuxième quant à elle, débute à 300°C et correspond à la décomposition de la cellulose. Pour le biocomposite à base de FAVTNA, la deuxième étape commence à 287°C. Finalement ceci indique que la stabilité thermique du polymère n'est pas affectée par l'ajout de la fibre sauf dans le cas où elle est traitée au NaOH. Ce qui est dû à une légère altération de la structure des chaînes de cellulose après le traitement alcalin. Cela est en concordance avec les résultats de **A. RACHINI et al.** [61]

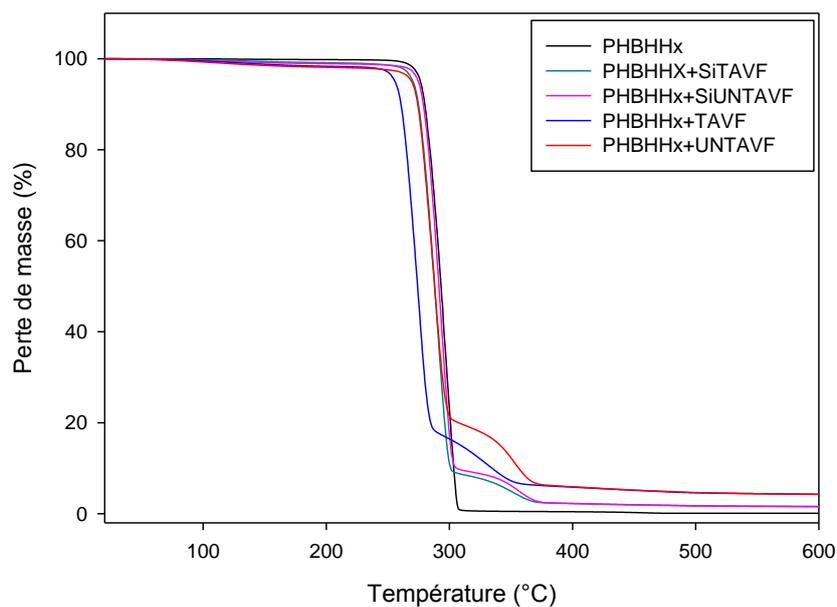


Figure IV.10: Thermogramme ATG du PHBHHx et des biocomposites.

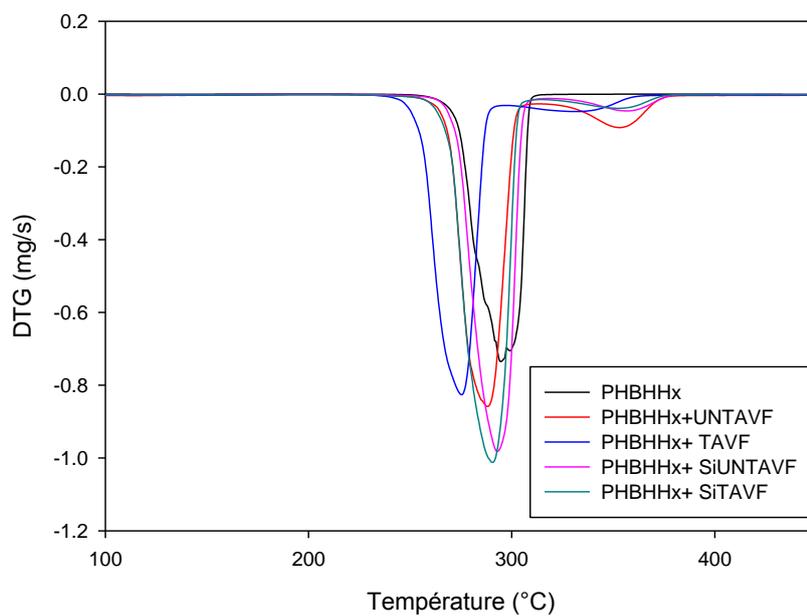


Figure IV.11: Thermogramme DTG du PHBHHx et des biocomposites.

Le tableau IV.5 regroupe les différentes propriétés tirées des deux thermogrammes ci-dessus :

Tableau IV. 05: propriétés thermiques des biocomposites déterminées par ATG et DTG.

Echantillon	T_d (°C)	T_{10%} (°C)	T_{50%} (°C)	Taux de résidu (%)	T_{Vmax} (°C)
PHBHHx	260	280	294	0.24	295
PHBHHx+	260	274	288	4.20	288
FAVNT					
PHBHHx+	245	260	274	4.30	276
FAVTNA					
PHBHHx+	260	278	293	1.89	293
FAVTSI					
PHBHHx+	260	274	288	1.61	291
FAVTNaSI					

IV.2.6. Analyse calorimétrique différentielle (DSC)

L'analyse DSC a été utilisée pour déterminer la température de transition vitreuse (T_g), la température de cristallisation (T_{cr.}), la température de fusion (T_{fus.}), l'enthalpie de fusion ($\Delta H_{fus.}$) ainsi que le taux de cristallinité. Cela pour le polymère seul et tous les biocomposites. Les données tirées sont regroupés dans le tableau ci-dessous.

Les résultats montrent qu'il n'y a pas vraiment d'effet notable dû à l'ajout de la fibre avec différents traitements. En effet, le taux de cristallinité augmente que légèrement. Cela peut être assigné au fait que les fibres jouent un rôle nucléon comme cela a été rapporté par **M. S. HUDA et al.** [55] Cependant dans le cas de la fibre traitée au TMOS uniquement, on constate une légère diminution du taux de cristallinité. Cela est dû à la présence d'impuretés relâchées à l'aide de la solution eau/éthanol et pendant la mise en œuvre ce qui a ralenti le mouvement des chaînes polymères en limitant le phénomène de cristallisation. Un même effet a été constaté par **M. A. BERTHET et al.** [62]

Tableau IV. 6: Caractéristiques thermiques des biocomposites déterminées par DSC.

Echantillon	T_g (°C)	T_{cr.} (°C)	T_{fus.} (°C)	$\Delta H_{fus.}$ J.g⁻¹
PHBHHx	2.21	68	136	25.21
PHBHHx+ FAVNT	2.51	65	137	21.85
PHBHHx+ FAVTNA	1.88	63	136	22.67
PHBHHx+ FAVTSI	2.18	65	136	17.92
PHBHHx+ FAVTNaSI	3.35	67	138	21.75

IV.2.7. Mesures rhéologiques

Le comportement rhéologique du PHBHHx et des différents biocomposites élaborés a été étudié afin d'établir la qualité des interactions entre le polymère et les fibres.

Les **figures IV. 14 et IV. 15** montrent l'évolution de la viscosité complexe et du module de conservation, respectivement, en fonction de la fréquence. On remarque qu'aux basses fréquences (0.01 Hz à 0.1 Hz), Les deux grandeurs prennent des valeurs plus importantes dans le cas des biocomposites que du polymère seul. Plus particulièrement, le biocomposite renforcé aux fibres ayant subi les deux traitements combinés, présente les plus hautes valeurs. Cela peut s'expliquer par la présence d'interactions entre le renfort et la matrice. Cela va dans le même sens que les résultats présentés par **V. A. ALVAREZ et al.** ainsi que **X. ZHOU et al.** [63,64]

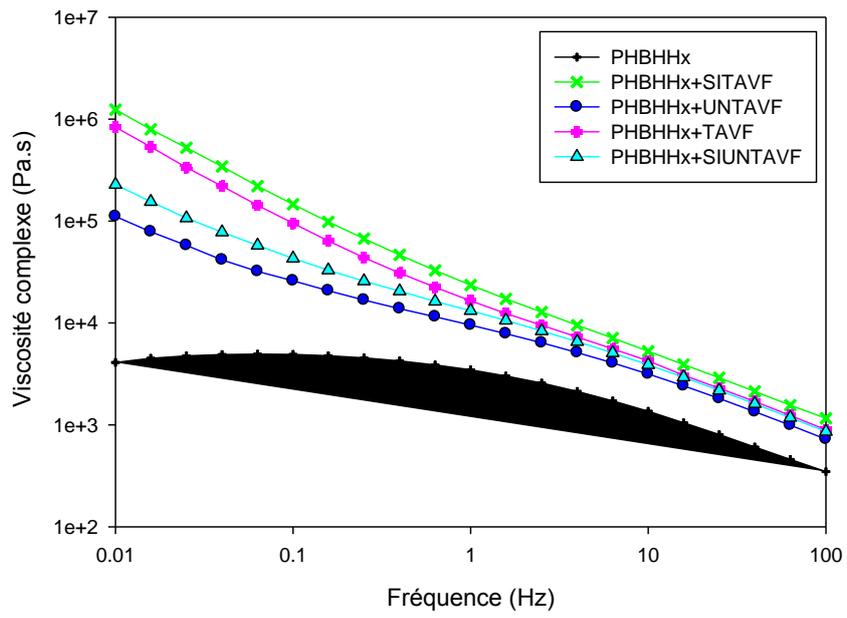


Figure IV. 2: Evolution de la viscosité complexe des biocomposites.

Conclusion générale

L'étude réalisée dans ce travail avait pour objectif d'élaborer des biocomposites à base de polyesters bactériens renforcés aux fibres d'Aloe Vera. Nous nous sommes intéressés particulièrement au problème d'adhésion à l'interface fibre /matrice. Par ailleurs, deux modes de traitement ont été choisis. Le premier est un traitement alcalin par une solution de NaOH. Le deuxième est l'utilisation d'un agent de couplage de type silane TMOS. La mise en évidence de la modification a été examinée par l'analyse IRTF, MEB, et l'impact des traitements sur les propriétés rhéologiques, thermiques des composites ont été de même étudiés.

Compte tenu des résultats obtenus, nous pouvons conclure que :

- Les résultats de la MEB ont montré que le traitement alcalin a permis de réduire la quantité d'hémicellulose et de pectine et de rendre donc la surface rugueuse. Quant aux biocomposites, les micrographies ont montré qu'il y a une meilleure adhésion de la fibre à la matrice dans le cas où elle est traitée au NaOH et TMOS.
- Les résultats en infrarouge ont montré que la structure de la fibre d'Aloe Vera a changé après traitement. Cette modification a été montrée par la disparition des pics à 1738cm^{-1} et 1246cm^{-1} après le traitement alcalin. Tandis que sur les spectres des biocomposites, l'augmentation de l'intensité des pics des C—O—C indiquant l'efficacité des traitements.
- Après évaluation de la stabilité et des propriétés thermiques par ATG et DSC. Il en résulte que les différents traitements n'ont pas d'influence notable. Si ce n'est le traitement alcalin qui réduit la stabilité thermique de la fibre et donc du biocomposite correspondant.
- La caractérisation rhéologique de différentes formulations des biocomposites a montré une augmentation de la viscosité complexe ainsi que des modules de perte et de conservation. Avec des valeurs plus importantes dans le cas des biocomposites renforcés aux fibres ayant subis les deux traitements combinés.

A la lumière de ces conclusions, il est intéressant de recommander de :

- Réaliser des tests mécaniques (traction, flexion, choc) afin de mieux investiguer la performance mécanique des biocomposites élaborés.
- Optimiser les traitements effectués et suivre leurs impacts.

Conclusion générale

- Optimiser le taux de charge en réalisant un balayage de différents taux.
- Réaliser les biocomposites à l'aide d'autres procédés de mise en œuvre.

Bibliographie

- [1] S.M. Lee, Dictionary of composite materials technology, CRC Press, 1995.
- [2] S. ARIADURAI, Bio-Composites: Current Status and Future Trends, 5th Int. Tech. Text. Conf. (2012).
- [3] M. Jawaid, M.S. Salit, O.Y. Alothman, Green biocomposites: design and applications, Springer, 2017.
- [4] R. Kueny, Biocomposites: composites de hautes technologies en renfort de fibres naturelles et matrice de résines naturelles, PhD Thesis, Université de Lorraine, 2013.
- [5] M.J. John, S. Thomas, Biofibres and biocomposites, Carbohydr. Polym. 71 (2008) 343–364.
- [6] M. Jawaid, S.M. Sapuan, O.Y. Alothman, Green biocomposites: manufacturing and properties, Springer, 2016.
- [7] P.A. Fowler, J.M. Hughes, R.M. Elias, Biocomposites: technology, environmental credentials and market forces, J. Sci. Food Agric. 86 (2006) 1781–1789.
- [8] A.K. Mohanty, M. Misra, L.T. Drzal, Natural fibers, biopolymers, and biocomposites, CRC press, 2005.
- [9] N. Jarroux, Les biopolymères: différentes familles, propriétés et applications, Ed. Techniques Ingénieur, 2008.
- [10] G. Koronis, A. Silva, M. Fontul, Green composites: a review of adequate materials for automotive applications, Compos. Part B Eng. 44 (2013) 120–127.
- [11] V. Mittal, Renewable polymers: synthesis, processing, and technology, John Wiley & Sons, 2011.
- [12] F. Teyssandier, Formulation et morphologies de mélanges de polymères thermoplastiques à base d'amidon, PhD Thesis, INSA de Lyon, 2011.
- [13] G. CASTELAN, Polymères biodégradables, (2010).
- [14] T. Gurunathan, S. Mohanty, S.K. Nayak, A review of the recent developments in biocomposites based on natural fibres and their application perspectives, Compos. Part Appl. Sci. Manuf. 77 (2015) 1–25.
- [15] Z.A. Raza, S. Abid, I.M. Banat, Polyhydroxyalkanoates: Characteristics, production, recent developments and applications, Int. Biodeterior. Biodegrad. 126 (2018) 45–56.
- [16] D. Plackett, Biopolymers: new materials for sustainable films and coatings, John Wiley & Sons, 2011.
- [17] K.L. Pickering, M.A. Efendy, T.M. Le, A review of recent developments in natural fibre composites and their mechanical performance, Compos. Part Appl. Sci. Manuf. 83 (2016) 98–112.
- [18] C. Johansson, J. Bras, I. Mondragon, P. Nechita, D. Plackett, P. Simon, D.G. Svetec, S. Virtanen, M.G. Baschetti, C. Breen, Renewable fibers and bio-based materials for packaging applications—a review of recent developments, BioResources. 7 (2012) 2506–2552.
- [19] G. Siqueira, J. Bras, A. Dufresne, Cellulosic bionanocomposites: a review of preparation, properties and applications, Polymers. 2 (2010) 728–765.
- [20] T.E. Motaung, L.Z. Liganiso, Critical review on agrowaste cellulose applications for biopolymers, Int. J. Plast. Technol. 22 (2018) 185–216.
- [21] M. Fan, F. Fu, Advanced high strength natural fibre composites in construction, Woodhead Publishing, 2016.
- [22] P.J. Deuss, K. Barta, From models to lignin: Transition metal catalysis for selective bond cleavage reactions, Coord. Chem. Rev. 306 (2016) 510–532.

- [23] Y. Mottiar, R. Vanholme, W. Boerjan, J. Ralph, S.D. Mansfield, Designer lignins: harnessing the plasticity of lignification, *Curr. Opin. Biotechnol.* 37 (2016) 190–200.
- [24] J.J. Stewart, T. Akiyama, C. Chapple, J. Ralph, S.D. Mansfield, The effects on lignin structure of overexpression of ferulate 5-hydroxylase in hybrid poplar1, *Plant Physiol.* 150 (2009) 621–635.
- [25] K. Lau, P. Hung, M.-H. Zhu, D. Hui, Properties of natural fibre composites for structural engineering applications, *Compos. Part B Eng.* 136 (2018) 222–233.
- [26] F.T. Guedes, Vers l'identification des acteurs moléculaires responsables des propriétés mécaniques du bois de tension de peuplier, PhD Thesis, Université d'Orléans, 2013.
- [27] L. Yusriah, S.M. Sapuan, E.S. Zainudin, M. Mariatti, Underutilized malaysian agro-wastes fiber as reinforcement in polymer composites: Potential and challenges, *J. Polym. Mater.* 29 (2012) 201–216.
- [28] M. Ragoubi, Contribution à l'amélioration de la compatibilité interfaciale fibres naturelles/matrice thermoplastique via un traitement sous décharge couronne, PhD Thesis, Nancy 1, 2010.
- [29] M.M. Kabir, H. Wang, K.T. Lau, F. Cardona, Chemical treatments on plant-based natural fibre reinforced polymer composites: An overview, *Compos. Part B Eng.* 43 (2012) 2883–2892.
- [30] M.R. Sanjay, P. Madhu, M. Jawaid, P. Senthamaraiannan, S. Senthil, S. Pradeep, Characterization and properties of natural fiber polymer composites: A comprehensive review, *J. Clean. Prod.* 172 (2018) 566–581.
- [31] N.A.M. Martin, Contribution à l'étude de paramètres influençant les propriétés mécaniques de fibres élémentaires de lin: Corrélation avec les propriétés de matériaux composites, PhD Thesis, Université de Bretagne Sud, 2014.
- [32] L. Sisti, G. Totaro, M. Vannini, A. Celli, Retting process as a pretreatment of natural fibers for the development of polymer composites, in: *Lignocellul. Compos. Mater.*, Springer, 2018: pp. 97–135.
- [33] N. Le Moigne, B. Otazaghine, S. Corn, H. Angellier-Coussy, A. Bergeret, *Surfaces and Interfaces in Natural Fibre Reinforced Composites: Fundamentals, Modifications and Characterization*, Springer, 2018.
- [34] K.P. Kumar, A.S.J. Sekaran, Some natural fibers used in polymer composites and their extraction processes: A review, *J. Reinf. Plast. Compos.* 33 (2014) 1879–1892.
- [35] M.E.H. Bourahli, *Caractérisation d'un composite verre époxy*, (2018).
- [36] O. Faruk, A.K. Bledzki, H.-P. Fink, M. Sain, Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010, *Prog. Polym. Sci.* 37 (2012) 1552–1596.
- [37] R. Hajj, *Procédés de Modification des Fibres naturelles (PROMOF)*, PhD Thesis, IMT Mines Alès, 2018.
- [38] S. Kalia, B.S. Kaith, I. Kaur, Pretreatments of natural fibers and their application as reinforcing material in polymer composites—a review, *Polym. Eng. Sci.* 49 (2009) 1253–1272.
- [39] V.V. Do Thi, *Matériaux composites à fibres naturelles/polymère biodégradables ou non*, PhD Thesis, Université de Grenoble, 2011.
- [40] Y. Xie, C.A. Hill, Z. Xiao, H. Militz, C. Mai, Silane coupling agents used for natural fiber/polymer composites: A review, *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 41 (2010) 806–819.
- [41] M. Ragoubi, Contribution à l'amélioration de la compatibilité interfaciale fibres naturelles/matrice thermoplastique via un traitement sous décharge couronne, PhD Thesis, Nancy 1, 2010.

- [42] P.K. Bajpai, I. Singh, J. Madaan, Comparative studies of mechanical and morphological properties of polylactic acid and polypropylene based natural fiber composites, *J. Reinf. Plast. Compos.* 31 (2012) 1712–1724.
- [43] A.N. Balaji, K.J. Nagarajan, Characterization of alkali treated and untreated new cellulosic fiber from Saharan aloe vera cactus leaves, *Carbohydr. Polym.* 174 (2017) 200–208.
- [44] S. Chaitanya, I. Singh, Novel Aloe Vera fiber reinforced biodegradable composites—Development and characterization, *J. Reinf. Plast. Compos.* 35 (2016) 1411–1423.
- [45] S. Chaitanya, I. Singh, Ecofriendly treatment of aloe vera fibers for PLA based green composites, *Int. J. Precis. Eng. Manuf.-Green Technol.* 5 (2018) 143–150.
- [46] A.K. Bledzki, A. Jaszkwicz, Mechanical performance of biocomposites based on PLA and PHBV reinforced with natural fibres—A comparative study to PP, *Compos. Sci. Technol.* 70 (2010) 1687–1696.
- [47] N.M. Barkoula, S.K. Garkhail, T. Peijs, Biodegradable composites based on flax/polyhydroxybutyrate and its copolymer with hydroxyvalerate, *Ind. Crops Prod.* 31 (2010) 34–42.
- [48] F. Valentini, A. Dorigato, D. Rigotti, A. Pegoretti, Polyhydroxyalkanoates/Fibrillated Nanocellulose Composites for Additive Manufacturing, *J. Polym. Environ.* 27 (2019) 1333–1341.
- [49] F. Mannai, H. Elhleli, M. Ammar, R. Passas, E. Elaloui, Y. Moussaoui, Green process for fibrous networks extraction from *Opuntia* (Cactaceae): Morphological design, thermal and mechanical studies, *Ind. Crops Prod.* 126 (2018) 347–356.
- [50] A.K. Varma, P. Mondal, Physicochemical characterization and pyrolysis kinetic study of sugarcane bagasse using thermogravimetric analysis, *J. Energy Resour. Technol.* 138 (2016) 052205.
- [51] L. Hassaini, Étude de la Morphologie et des Propriétés de Biocomposites Poly (3-Hydroxybutyrate-co-3-Hydroxyvalerate)(PHBV)/Farine de Grignons d'Olive, PhD Thesis, Lorient, 2016.
- [52] P. Georgiopoulos, E. Kontou, G. Georgousis, Effect of silane treatment loading on the flexural properties of PLA/flax unidirectional composites, *Compos. Commun.* 10 (2018) 6–10.
- [53] A. Orue, A. Jauregi, U. Unsuain, J. Labidi, A. Eceiza, A. Arbelaiz, The effect of alkaline and silane treatments on mechanical properties and breakage of sisal fibers and poly (lactic acid)/sisal fiber composites, *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 84 (2016) 186–195.
- [54] P. Garside, P. Wyeth, Identification of cellulosic fibres by FTIR spectroscopy—thread and single fibre analysis by attenuated total reflectance, *Stud. Conserv.* 48 (2003) 269–275.
- [55] M.S. Huda, L.T. Drzal, A.K. Mohanty, M. Misra, Effect of chemical modifications of the pineapple leaf fiber surfaces on the interfacial and mechanical properties of laminated biocomposites, *Compos. Interfaces.* 15 (2008) 169–191.
- [56] A. Baltazar-y-Jimenez, J. Juntaro, A. Bismarck, Effect of atmospheric air pressure plasma treatment on the thermal behaviour of natural fibres and dynamical mechanical properties of randomly-oriented short fibre composites, *J. Biobased Mater. Bioenergy.* 2 (2008) 264–272.
- [57] J.S. Lim, K. Park, G.S. Chung, J.H. Kim, Effect of composition ratio on the thermal and physical properties of semicrystalline PLA/PHB-HHx composites, *Mater. Sci. Eng. C.* 33 (2013) 2131–2137.
- [58] N. Sgriccia, M.C. Hawley, M. Misra, Characterization of natural fiber surfaces and natural fiber composites, *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 39 (2008) 1632–1637.
- [59] A. Céline, S. Fréour, F. Jacquemin, P. Casari, The hygroscopic behavior of plant fibers: a review, *Front. Chem.* 1 (2014) 43.

- [60] L. Boulos, M.R. Foruzanmehr, A. Tagnit-Hamou, S. Elkoun, M. Robert, Wetting analysis and surface characterization of flax fibers modified with zirconia by sol-gel method, *Surf. Coat. Technol.* 313 (2017) 407–416.
- [61] A. Rachini, M. Le Troedec, C. Peyratout, A. Smith, Comparison of the thermal degradation of natural, alkali-treated and silane-treated hemp fibers under air and an inert atmosphere, *J. Appl. Polym. Sci.* 112 (2009) 226–234.
- [62] M.-A. Berthet, C. Mayer-Laigle, X. Rouau, N. Gontard, H. Angellier-Coussy, Sorting natural fibres: A way to better understand the role of fibre size polydispersity on the mechanical properties of biocomposites, *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 95 (2017) 12–21.
- [63] V.A. Alvarez, A. Terenzi, J.M. Kenny, A. Vazquez, Melt rheological behavior of starch-based matrix composites reinforced with short sisal fibers, *Polym. Eng. Sci.* 44 (2004) 1907–1914.
- [64] X. Zhou, Y. Yu, Q. Lin, L. Chen, Effects of maleic anhydride-grafted polypropylene (MAPP) on the physico-mechanical properties and rheological behavior of bamboo powder-polypropylene foamed composites, *BioResources.* 8 (2013) 6263–6279.

Résumé

Le travail s'articule autour d'une élaboration de biocomposites à base de PHBHHx renforcés de fibres d'Aloe Vera (FAV) par mélange fondu dans une extrudeuse bi-vis. Les échantillons de biocomposites PHBHHx/FAV préparés dans la proportion massique 80/20 ont fait l'objet d'une étude de caractérisation impliquant plusieurs techniques telles que la spectroscopie IRTF-ATR, la mesure de l'angle de contact, le taux d'absorption d'eau, les mesures rhéologiques, le MEB, la DSC et l'ATG. La démarche adoptée consiste préalablement à extraire les FAV par la technique de rouissage à l'eau. Ensuite, des traitements chimiques visant à améliorer l'adhésion du renfort au polymère ont été réalisés sur la FAV comprenant un traitement alcalin, un traitement aux silanes et enfin un traitement combiné alcalin-silanes. L'efficacité des différents traitements de la FAV a été évaluée par divers techniques de caractérisation. Les traitements chimiques ont permis d'éliminer non seulement les constituants non cellulotiques de la fibre, mais aussi de réduire son caractère hydrophile. Cependant, le traitement combiné alcalin-silanes a donné de meilleurs résultats qui se sont traduits par une nette amélioration de la morphologie et des propriétés physiques des biocomposites PHBHHx/FAV.

Mots clés : Biocomposites, PHBHHx, Aloe Vera.

Abstract

This work aims to investigate the effect of chemical surface treatment of Aloe Vera fibers (AVF) on the morphology and properties of PHBHHx biocomposites. These biocomposites were melt blended with a fiber weight fraction of 20%. The prepared samples were submitted to several characterization techniques such as FTIR-ATR spectroscopy, water uptake, rheological measurements, SEM, DSC and TGA. Therefore, a prior extraction of the AVF using the water retting technique was done. The surface treatments selected were the alkali treatments, silanization and a combination of these two. These treatments permitted to remove the non-cellulosic content and also to reduce the hydrophilicity of the AVF. However, the combined treatments led to the best result with a better morphology and increased physical properties of the biocomposites PHBHHx/AVF.

Key words : Biocomposites, PHBHHx, Aloe Vera.