

RÉPUBLIQUE ALGERIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTÈRE D'ENSEIGNEMENT SUPÉRIEUR ET DE LA  
RECHERCHE SCIENTIFIQUE



*Université Abderrahmane Mira BEJAÏA*  
*Faculté de technologie*  
*Département de Génie des Procédés*



**MÉMOIRE**

En vue de l'obtention du diplôme de  
**Master**

**En Génie des Procédés**  
**Option : Génie des Matériaux**

**Valorisation Des Polymères Issus  
d'Emballages Alimentaires**

Présenté par :

Akli AFFROUN  
Salima M'SILI

Encadré par :

Dr. D. HAMMICHE  
Pr. A. BOUKERROU

Devant le jury

**Président :** Mme Hamour

Docteur Université A.Mira BEJAÏA

**Examineur :** Mme Ihemouchene

Docteur Université A.Mira BEJAÏA

**Année universitaire : 2017/2018**

# Remerciements

*Tout d'abord, nous remercions Dieu le tout puissant, de nous avoir donné la force et la patience de pouvoir mener ce travail à terme.*

*Au terme de la réalisation de ce mémoire, nous tenons à présenter nos remerciements les plus sincères à notre promotrice Madame **Hammiche Dalila** et notre co-promotrice Monsieur Boukerrou pour avoir dirigé ce travail, pour leurs précieux conseils, leurs orientations, leurs encouragements, leurs disponibilité, leurs aides et leurs patience avec nous.*

*Nous remercions également M<sup>me</sup> Hamour et M<sup>me</sup> Ihemouchene pour avoir acceptés d'examiner ce mémoire.*

*Nous témoignons notre reconnaissance à toute personne ayant Contribué de pré ou de loin à la réalisation de notre mémoire de fin de cycle.*

# *Dédicaces*

*Je tiens à dédier ce modeste travail :*

*À mes très chers parents qui m'ont tant données,  
aucune dédicace ne saurait exprimer l'amour, l'estime, le  
dévouement et le respect que j'ai toujours pour vous,  
Rien au monde ne vaut les efforts fournis jour et nuit  
pour mon bien être. Ce travail est le fruit de vos  
sacrifices que vous avez consentis pour mon éducation et  
ma formation*

*A ma très chère sœur Ouahiba que j'ai tant aimé et qui  
a été toujours à mes cotés.*

*À mes chers frères Djillali, Kamel, Zoubir et leurs neveux  
A toi ma chère Ouiza que j'aime beaucoup*

*A tous mes amis en particulier :*

*Mohand, Samir, Ali(Rougie), Chabane, Hakim, Yacine,  
Khoudir, Lounis, Karim et Yamine*

*Et à ma binôme Salima avec laquelle j'ai partagé ce  
travail*

*Tanmirt Nwen*

*Affroun Akli Ж*

# *Dédicaces*

*Louange à Allah, seigneur de l'univers, le tout puissant et Le miséricordieux, qui nous inspire.*

*Et combler de bien fais, on lui rend grâce.*

*A ceux qui nous ont tout donné sans rien attendre en retour.*

*A ceux qui nous ont encouragés et soutenues dans les moments les plus difficiles*

*Et ceux à qui nous devons tant*

*A mon cher père pour son amour et son support continu.*

*Que ce travail soit le témoignage sincère et affectueux de notre profonde reconnaissance pour tous ce que vous avez fait pour nous.*

*A la mémoire de ma très chère mère que dieu ait pitié de son âme et l'accueille dans son vaste paradis.*

*A ma chère grand -mère que dieu me la protège*

*A ma sœur Nadira et son marie Samir et leurs enfants : Dadi, Oussama, et Adel*

*A ma sœur Zaza et son marie Toufik*

*A ma tante Hadjira et mes belles sœurs Bahia et Nahina.*

*A mes frères Salim, Sofiane, Djebbar, Samir et ses enfants : Mounir, Amine, et les petites et adorables Tata. et Racine*

*A toute la promo Génie des Procédés des Matériaux 2017/2018*

*Et à mon binôme Akli avec lequel j'ai partagé ce travail.*

*Salima*



# *Sommaire*

Liste des abréviations

Liste des tableaux

Liste des schémas et figures

**Introduction générale ..... 01**

## *Partie théorique*

### *Chapitre I : Etude bibliographique*

I.1 Généralités sur les matériaux composites .....	03
I.1.1 Histoire des polymères.....	03
I.1.2 Définition .....	04
I.1.3 Intérêts d'utilisation des matériaux composites .....	05
I.1.4 Classification des composites .....	06
I.1.5 Constituants des matériaux composites .....	07
I.1.5.1 Classification des renforts .....	07
I.1.5.2 Matrice .....	07
I.1.5.2.1 Matrices thermodurcissables .....	08
I.1.5.2.2 Matrices thermoplastiques .....	09
I.1.5.2.3 Matrices céramiques .....	10
I.1.5.2.4 Matrices métalliques .....	10
I.1.5.3 Charges .....	11
I.1.5.4 Les additifs .....	11
I.1.6 Le polypropylène .....	11
I.1.6.1 Propriétés générales .....	12
I.1.6.2 Les avantages .....	13
I.1.6.3 Domaines d'application .....	13

I.1.7 Recyclage du polypropylène .....	14
I.2.1. Les renforts .....	17
I.2.2. Les fibres végétales .....	17
I.2.2.1. La cellulose .....	18
I.2.2.2 Les hémicelluloses .....	19
I.2.2.3 Les lignines .....	19
I.2.2.4 Les pectines .....	20
I.2.3 Compositions de quelques fibres végétales .....	21
I.2.3.1 Origine des fibres naturelles .....	21
I.2.3.2 Les fibres végétales dans les matériaux composites .....	22
I.2.4 Le grignon d'olive .....	22

### *Partie expérimentale*

#### *Chapitre II : Matériaux et techniques*

II.1 Présentation des produits utilisés .....	24
II.1.1 Polypropylène .....	24
II.1.2 Grignon d'olive .....	25
II.1.2.1 Mode d'obtention de la farine de grignon d'olive .....	25
II.2 Préparation des composites .....	26
II.3 Préparation des éprouvettes .....	26
II.3.1 L'extrusion .....	27
II.3.2 La presse hydraulique .....	28
II.3.3 Découpage des haltères .....	29
II.3.4 Les haltères .....	29
II.4 Techniques expérimentales .....	30
II.4.1 Analyse spectrale .....	30
II.4.1.1 Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF).....	30

II.4.1.2 Diffraction des rayons X (DRX).....	30
II.4.2 Analyse physique .....	31
II.4.2.1 Test d'absorption d'eau .....	31
II.4.3 Analyse thermique .....	32
II.4.3.1 Analyse thermogravimétrique (ATG).....	32
II.4.4 Analyse mécanique .....	33
II.4.4.1 Test de traction .....	33

### ***Chapitre III : Résultats et discussions***

III.1 Caractérisation spectroscopique .....	34
III.1.1 Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) .....	34
III.1.2 Diffraction des rayons X (DRX) .....	35
III.2 Caractérisation thermique .....	36
III.2.1 Analyse thermogravimétrique (ATG-DTG) .....	36
III.3 Caractérisation physique .....	39
III.3.1 Absorption d'eau .....	39
III.4 Caractérisation mécanique .....	40
III.4.1 Allongement à la rupture .....	40
III.4.2 Module d'Young .....	41
III.4.3 Contrainte à la rupture .....	42
Conclusion .....	44
Perspectives .....	46
Références bibliographiques .....	47

## *Liste des abréviations*

**PE:** Polyéthylène.

**EP:** Epoxy.

**PLA:** Acide polylactique.

**PMC:** Composite à matrice polymère.

**CMC:** Composite à matrice céramique.

**MMC:** Composite à matrice métallique.

**ABS:** L'acrylonitrile-butadiène-styrène.

**SAN:** L'acrylonitrile.

**SMA:** L'anhydride maléique styrène.

**PET:** Polyéthylène téréphtalate.

**PBT:** Polybutylène téréphtalate.

**TP:** Thermoplastique.

**EPA:** Environmental Protection Agency.

**LDPE:** Polyéthylène basse densité.

**LLDPE:** Polyéthylène linéaire basse densité.

**PEHD:** Polyéthylène haute densité.

**PP :** Polypropylène

**IRTF :** Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier

**DRX :** Diffraction des rayons X

**ATG :** Analyse thermogravimétrique

**FGO :** Farine de grignon d'olive

**DTG :** Dérivée de la thermogravimétrique

**Td :** Température de dégradation

**Vmax :** Vitesse maximale

**Tmax :** Température maximale



# *Liste des tableaux*

**Tableau 1 :** Propriétés des matrices Thermodurcissables et Thermoplastiques

**Tableau 2 :** Principales propriétés physiques, mécaniques et thermiques du polypropylène

**Tableau 3 :** Compositions de quelques fibres végétales

**Tableau 4 :** Constituants des différents types de grignon d'olives

**Tableau 5 :** Abréviations des formulations

**Tableau 6 :** Propriétés de polypropylène BORSTAR HC115FB

**Tableau 7 :** Bandes d'absorptions du PP avant le recyclage

**Tableau 8 :** Les paramètres thermiques des différents composites

# *Liste des schémas et figures*

## Schémas

**Schéma 1** : Classification schématique des différents types de composites

**Schéma 2** : Différentes familles du renfort

**Schéma 3** : Différentes familles de matrice.

**Schéma 4** : Structure du polypropylène.

**Schéma 5**: Types de recyclage

**Schéma 6**: Structure schématique de la chaîne de cellulose

**Schéma 7**: Structure d'hémicellulose

**Schéma 8**: Structure de lignine

**Schéma 9**: Structure de pectine

## Figures

**Figure 1** : Figure de Matériau composite

**Figure 2** : Recyclage des déchets plastiques post-consommation en Europe en 1994.

**Figure 3**: Constituants structurel de la cellule de fibre naturelle

**Figure 4**: Classification selon l'origine des fibres naturelles

**Figure 5** : Appareil de broyage et tamisage

**Figure 6** : Aspect des granulés utilisés

**Figure 7** : La machine d'extrusion

**Figure 8** : La presse hydraulique

**Figure 9** : Machine de découpage des haltères

**Figure 10** : Forme de l'haltère

**Figure 11** : Appareil de DRX

**Figure 12** : Montage utilisé pour l'absorption

**Figure 13** : Appareil d'ATG

**Figure 14** : Appareil de traction

**Figure 15** : Spectres infrarouge de F1 et F3

**Figure 16 :** Spectres de diffraction des rayons X

**Figure 17 :** Thermogrammes TG

**Figure 18 :** Thermogrammes DTG

**Figure 19 :** Evolution du taux d'absorption d'eau en fonction du temps (h).

**Figure 20 :** Variation de l'allongement à la rupture

**Figure 21 :** Evolution du module d'Young

**Figure 22 :** Evolution de la contrainte à la rupture

A decorative border resembling a scroll, with a vertical strip on the left and a horizontal strip at the top. The corners are rounded, and there are small circular details at the top-left and top-right corners.

# Introduction Générale

# *Introduction*

L'histoire industrielle des polymères thermoplastiques est très récente comparée à d'autres industries comme celles du verre et de la métallurgie. Elle connaît un grand essor au cours de la seconde moitié du 20<sup>ème</sup> siècle. De par leur grande diversité, les polymères ont su progressivement s'imposer et proposer de nouvelles solutions pouvant se substituer aux matériaux déjà existants tels que les métaux et les céramiques dans des applications nécessitant des propriétés thermomécaniques toujours plus avancées. De plus, dans le contexte actuel où les exigences industrielles en matière de coûts, de sécurité et de respect de l'environnement deviennent de plus en plus importantes, ces nouveaux matériaux se révèlent être de sérieux candidats de par la simplicité de leur mise en forme, leur faible masse volumique, leur inertie chimique, leur recyclabilité [1]. Les matériaux polymériques offrent aussi la possibilité de se « mélanger » avec d'autres polymères pour former des copolymères présentant de meilleures propriétés, de se combiner avec d'autres matériaux pour aboutir à des composites intéressants et moins coûteux [2].

Bien sûr, un composite, comme son nom l'indique, est un produit composé d'éléments différents où la finalité de la mise en œuvre est de combiner deux ou plusieurs matériaux (renfort, matrice) tout en créant une synergie entre ces différents constituants afin qu'il en résulte un produit plus performant que chacun des composants pris individuellement [3]. Outre les matrices thermoplastiques et les thermodurcissables conventionnels (polypropylène F1, Polyéthylène PE, époxy EP...), d'autres polymères d'origine végétale (amidon de maïs, acide polylactique PLA) peuvent être utilisés. Avec tous les avantages de polypropylène à savoir la facilité de transformation, la bonne résistance aux substances chimiques, le prix peu élevé et la possibilité d'être recyclé, le polypropylène est un bon candidat comme matrice [4]. Pour le renforcement, les fibres issues de la biomasse présentent de nombreux atouts (impacts environnementaux faibles, bonnes propriétés mécaniques spécifiques). Il s'agit de ressources renouvelables, naturellement biodégradables, neutres quant aux émissions de CO<sub>2</sub> et ne demandant que peu d'énergie pour être produites [3].

Ces derniers temps il y'a une augmentation très importante dans l'utilisation des matières plastiques, et l'une des préoccupations majeures est la limitation de l'usage de ces ressources et la nécessité de gérer les milliers de tonnes de déchets produits chaque année, qui est présente comme un danger majeur sur l'environnement et la santé des êtres vivants, pour cela le recyclage sera la solution la plus adaptée à cet effet [5].

Ce présent travail s'inscrit dans ce cadre. Il vise à valoriser un déchet agricole qui est le grignon d'olive, un sous produit des huileries et un déchet plastique qui est le polypropylène. L'objectif c'est de mettre à profit ces déchets en élaborant un matériau composite à base de polypropylène recyclé chargé avec la farine du grignon d'olive.

Pour mener à bien cette étude, ce mémoire sera subdivisé en trois chapitres:

Le premier chapitre fera l'objet d'une synthèse bibliographique sur les matériaux composites à fibres végétales.

Le deuxième chapitre comporte les matériels utilisés et les techniques expérimentales.

Le troisième chapitre présente les résultats obtenus par différentes techniques de caractérisation ainsi que leurs discussions.

On termine ce travail par une conclusion dans laquelle on illustre les différents résultats obtenus et nous proposons quelques perspectives.



# Partie théorique



# Chapitre I

## Etude bibliographique



## Chapitre I: Etude bibliographique

### I.1 Généralités sur les matériaux composites

Il existe différentes familles de matériaux: les métaux, les plastiques, les composites, etc. Les matériaux composites ne sont pas une nouveauté, ils ont tous le temps été utilisé par l'homme, citons par exemple le bois, le béton et le béton armé.

Durant ces dernières années, l'utilisation des matériaux composites a connue une évaluation considérable dans différents domaines; l'aéronautique, automobile, emballage, bâtiment, etc. L'avantage principal qu'offrent ces matériaux pour l'industrie est leur faible poids pour d'excellentes qualités mécaniques.

Les composites sont des matériaux très anciens dans leur principe. Il a cependant fallu attendre l'apparition des matières plastiques pour qu'ils connaissent une évolution significative. L'idée de base est très simple: en associant deux matériaux complémentaires et compatibles, on profite des qualités des composants en atténuant leurs défauts.

Une partie considérable de ces matériaux innovants est destinée au secteur de l'emballage, afin de substituer ces matières plastiques qui sont utilisées sur une période de temps très réduite et qui génèrent rapidement un volume de déchets importants.

Dans ce chapitre, nous présentons une revue bibliographique consacrée à la description des matériaux composites, leur classification, constituants et l'intérêt de leur utilisation.

#### I.1.1 Histoire des composites

Cette section décrit brièvement l'histoire des composites allant de l'ancien aux histoires modernes.

##### a)-Histoire ancienne des composites

Les matériaux composites existent déjà depuis l'âge paléolithique (aussi connu sous le nom d'âge de la pierre ancienne). Il est rapporté qu'une ziggourat de 300 pieds de hauteur a été construite dans le centre-ville de Babylone, avec le seul matériau utilisé étant l'argile mélangée avec de la paille finement hachée. **Gordon(2006) [6]** a déclaré que les matériaux composites avaient été autour depuis l'époque de Pharaon en Egypte et pendant ce temps, les briques ont été renforcées avec de la paille pour former des briques composites.

**Herakovich (1998)** [7] a rapporté que les Egyptiens utilisaient des composites de fibres pour les matériaux d'écriture laminés provenant du papyrus. Au Japon, il est rapporté que l'épée samouraï a été développée à partir de matériaux composites [8]. En fait, la plupart des objets naturels, tels que le corps humain, les plantes et les animaux sont composites [7] mais ce ne sont pas ces types de composites qui nous intéressent ici. Selon **Kelly et Mileiko (1983)** [9], parmi les premières applications de composites, on trouve dans l'industrie de la poterie des fibres de verre et de poils qui, avant la cuisson, renforçaient un autre matériau dans le but de réduire le rétrécissement et d'améliorer la résistance.

### **b) Histoire moderne des composites**

Les composites polymères ont une histoire longue et honorable dans l'industrie automobile, en commençant par les corps de mise en main pour une production limitée de voitures de sport jusqu'au collecteur d'admission d'air moulé par injection le plus sophistiqué [10].

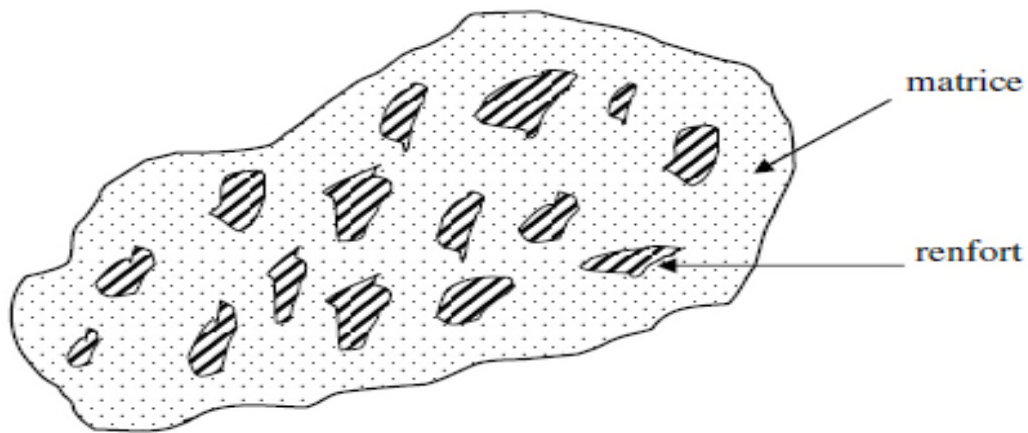
Des composites de polymères ont été développés après que des matériaux polymères aient été disponibles dans les années 1950 dans l'industrie pétrolière [11].

**Gomina (2012)** [12] a rapporté que pendant la seconde guerre mondiale, en Grande-Bretagne, le matériau pour le fuselage des avions Spitfire a été remplacé par de l'aluminium aux composites phénoliques renforcés de fibres de lin, en raison de l'approvisionnement insuffisant en aluminium. Les composites étaient initialement commercialisés en grande quantité, quelques années plus tard, dans l'industrie de la défense [13]. L'application a ensuite été étendue à d'autres industries, telles que les usines de produits chimiques, les coques de bateaux, les carrosseries de voitures de sport et les articles de sport [10].

### **I.1.2 Définition**

Les composites sont en fait des matériaux solides qui sont composés d'une matrice qui entoure et lie ensemble des renforts fibreux. La matrice maintient les renforts et assure les transferts de charge, tandis que les renforts apportent principalement leurs caractéristiques mécaniques élevées (modules et limites d'élasticité, résistance mécanique...) [14].

Cette association a pour but d'obtenir un matériau dont les propriétés spécifiques sont supérieures à celles des composants pris séparément.



**Figure 1** : Figure de Matériau composite [6].

Les matériaux composites sont considérés comme des matériaux d'aujourd'hui parce qu'ils sont maintenant appliqués dans diverses industries allant des jouets pour enfants au corps d'avion. Cependant, ils peuvent être considérés comme des matériaux de demain en raison de leurs potentiels qu'ils peuvent offrir dans le futur, comme dans le domaine des nanocomposites, des matériaux fonctionnels et des matériaux intelligents.

La matrice la plus couramment utilisée est le polymère ou les plastiques (composite à matrice polymère, PMC) et dans une moindre mesure les céramiques (composite à matrice céramique, CMC) et les métaux (composite à matrice métallique, MMC). Les composites sont considérés comme présentant un comportement anisotrope, c'est-à-dire qu'ils ont des propriétés différentes le long des axes dans des directions différentes [15]. Une large gamme de matrices et de renforts peut être combinée sous diverses formes avec des permutations pratiquement illimitées [10].

### **I.1.3 Intérêts d'utilisation des matériaux composites**

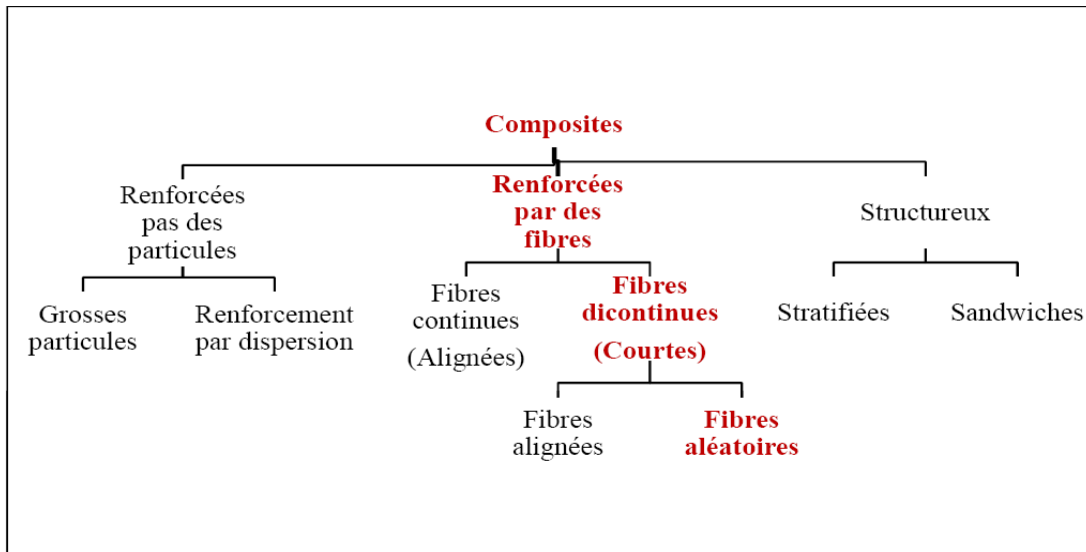
Le principal intérêt de l'utilisation des matériaux composites provient de leurs excellentes caractéristiques. Ils disposent d'atouts importants par rapport aux matériaux traditionnels. Ils apportent de nombreux avantages fonctionnels comme:

- La légèreté.
- Une grande résistance à la fatigue.
- Une liberté de formes.
- Une maintenance réduite.
- Un faible vieillissement sous l'action de l'humidité, de la chaleur et de la corrosion.

- Insensibles aux produits chimiques sauf les décapants de peinture qui attaquent les résines.
- Une bonne isolation électrique [16,17].

### I.1.4 Classification des composites

Il existe aujourd'hui un grand nombre de matériaux composites qu'on peut classer soit selon la forme ou suivant la nature des composants [18].



**Schéma 1** : Classification schématique des différents types de composites [19].

Selon la nature de la matrice, les matériaux composites peuvent être classés en composites à matrice organique, métallique ou minérale. Divers renforts sont associés à ces matrices [20,21].

En fonction de la forme des constituants, les composites sont classés en deux grandes classes : les matériaux composites à fibres et les matériaux composites à particules [22].

#### a)-Composites à fibres

Un matériau composite est un composite à fibre si le renfort est sous forme de fibres. Les fibres utilisées se présentent soit sous forme de fibres continues (fibres longues), soit sous forme de fibres discontinues (fibres courtes, coupées, etc.).

## b) Composites à particules

Un matériau composite est dit à particules lorsque le renfort se trouve sous forme de particule. Une particule, par opposition aux fibres ne possède pas de dimension privilégiée

## I.1.5 Constituants des matériaux composites

### I.1.5.1 Classification des renforts

Les renforts peuvent être d'origine organique ou inorganique :

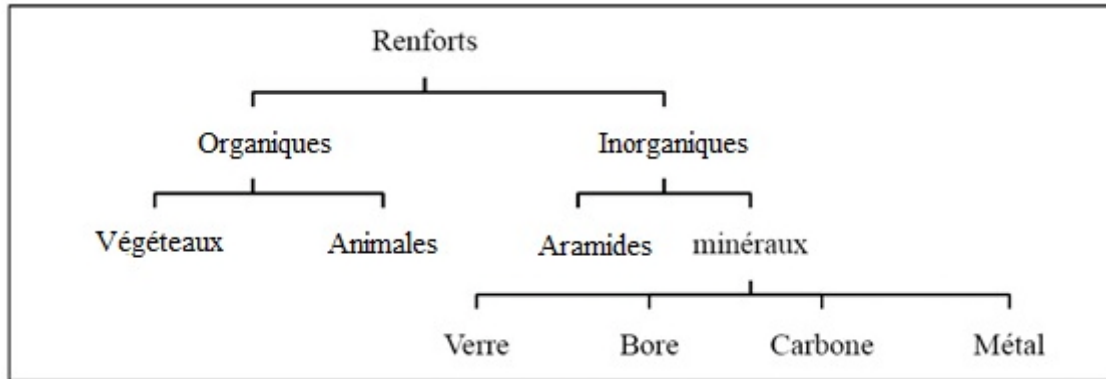


Schéma 2 : Différentes familles du renfort [16].

La fibre est le deuxième composant le plus important du composite. Les fonctions de fibre sont:

- Contribuer à la haute résistance et à la rigidité des composites
- Porter la majorité de la charge (contrainte).

Trois principaux types de fibres couramment utilisées comme renforts dans les composites polymères, sont les fibres de verre, de carbone et d'aramide [11]. D'autres fibres comprennent le bore, le polyéthylène, la céramique, le carbure de silicium et les fibres naturelles ou cellulosiques.

### I.1.5.2 Matrice

La matrice est l'élément qui lie et maintient les fibres. Elle répartie les efforts (résistance à la compression ou à la flexion) et assure la protection chimique des fibres. Elle peut être de différentes natures (Schéma 3)

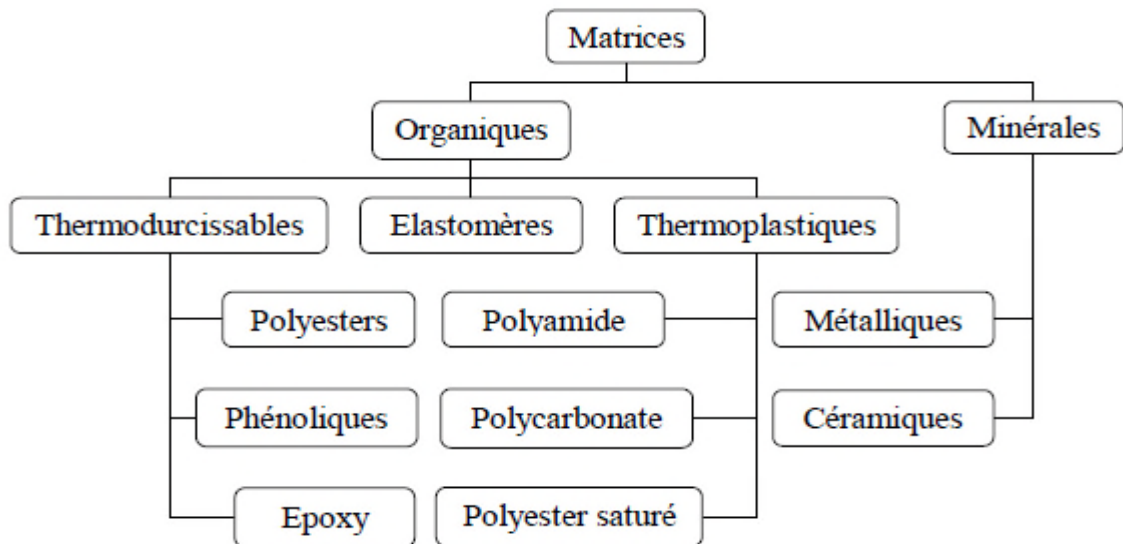


Schéma 3 : Différentes familles de matrice.

Le polymère utilisé comme matrice dans les composites est également connu comme résine. Les fonctions des matrices polymères sont :

- Pour aider à distribuer ou transférer des charges.
- Aider à contrôler les propriétés chimiques des composites.
- Porter un cisaillement interlaminaire.
- Pour maintenir tous les renforts ensemble comme un liant, permettant ainsi la force appliquée à être transmise au renforcement.
- Protéger et empêcher les fibres de subir des dommages mécaniques dus à la propagation des fissures dans le matériau [23].

Il existe deux principaux types de polymères utilisés comme matrices dans les composites, à savoir les polymères thermoplastiques et thermodurcissables. Lorsque le composite a été introduit dans les années 1940, les polymères thermodurcissables, tels que le polyester, l'époxy et le phénolique étaient principalement utilisés.

### I.1.5.2.1 Matrices thermodurcissables

Les polymères thermodurcissables sont composés de longues chaînes de molécules fortement réticulées à d'autres longues chaînes de molécules. À la suite de la réticulation, des structures de réseau 3D sont obtenues [24].

Les polymères thermodurcissables peuvent être liquides ou solides à température ambiante et ils se ramollissent lorsqu'ils sont chauffés puis durcis, tandis que les thermoplastiques se ramollissent et s'écoulent lorsqu'ils sont chauffés, mais ils durcissent de nouveau après avoir subi le refroidissement [25].

Des exemples de polymères thermodurcissables utilisés comme matrices dans les composites comprennent les époxydes, les polyesters insaturés, les polyimides, le bismaléimide, les esters de cyanate, le polyuréthane, les résines phénoliques, les silicones et les esters vinyliques. Certains polymères spéciaux sont également disponibles, tels que les alkydes, les allyles, le furane et les mélamines [10].

### **I.1.5.2.2 Matrices thermoplastiques**

Ils se présentent fréquemment sous forme de pré imprégné solide, prêt à l'emploi dont la durée de stockage est illimitée à faibles taux d'humidité relative pour éviter toute reprise hydrique (importante pour les polyamides, en particulier le polyamide 6).

Les composites à matrice thermoplastique occupent une place de plus en plus importante dans certains secteurs comme l'aéronautique. En effet, ils offrent de nombreux avantages par rapport à leurs homologues thermodurcissables notamment une meilleure tenue au choc, ainsi qu'une bonne résistance à l'endommagement [26-28]. Les thermoplastiques peuvent être refondus et ainsi être réellement recyclés et non simplement valorisés thermiquement.

Pour les polymères thermoplastiques, les exemples comprennent le polystyrène, le polycarbonate, les polyamides, les polyacrylates, l'acrylonitrile-butadiène-styrène (ABS), L'acrylonitrile (SAN), l'anhydride maléique styrène (SMA), le PET, le polybutylène téréphtalate (PBT) [10].

Les plus courants sont le poly (chlorure de vinyle) qui est utilisé dans la fabrication des tuyauteries, le poly (acétate de vinyle) que l'on trouve dans les colles et adhésifs, le polyéthylène dont on se sert pour fabriquer les jouets, les bouteilles ou les sacs de supermarchés, le polypropylène pour les boîtes alimentaires ou les revêtements de sols, le polystyrène qui intervient dans la composition des contenants alimentaires, etc.

Leur recyclabilité et leur thermo-réversibilité constituent l'un des grands avantages qui prend de plus en plus d'importance de nos jours [29]. Le Tableau 1 présente les Principales caractéristiques des matrices Thermodurcissables et Thermoplastiques.

**Tableau 1** : Propriétés des matrices Thermodurcissables et Thermoplastiques.

Matrices	Thermodurcissables	Thermoplastiques
Etat de base	Liquide visqueux à polymériser	Solide prêt à l'emploi
Stockage	Réduit	Illimité
Mouillabilité des renforts	Aisée	Difficile
Moulage	Chauffage continu	Chauffage + refroidissement
Cycle	Long (polymérisation)	Court
Tenue au choc	Limitée	Assez bonne
Tenue thermique	Meilleure	Réduite (sauf nouveau TP)
Chutes et déchets	Perdus ou utilisés en charges	Recyclables
Conditions de travail	Emanations de solvants	Propreté

Il existe d'autres types de matrice telle que les matrices en céramique et les matrices métalliques.

#### **I.1.5.2.3 Matrices céramiques**

Composées d'un ou plusieurs métaux combinés à un élément dont le plus courant est l'oxygène comme par exemple  $Al_2O_3$  (Alumine),  $SiO_2$  (Silice),  $MgO$  (Magnésie). Les CMC s'adressent aux applications à très hautes températures. Elles peuvent résister à des températures très élevées, sont plus légères que de nombreux métaux, et présentent une bonne stabilité chimique. Malheureusement, leur grande fragilité limite fortement leur domaine d'utilisation [30].

#### **I.1.5.2.4 Matrices métalliques**

Les Composites à matrice en métal sont des matériaux qui combinent la dureté des métaux et la rigidité de la céramique. Ce type de résines est utilisé comme liant dans des applications nécessitant un matériau aux bonnes propriétés spécifiques et possédant une bonne tenue en température. Les matrices les plus utilisées à ce jour sont les alliages d'aluminium. Les fibres utilisées sont le carbone et les fibres céramiques [30].



### I.1.5.3 Charges

L'objet de la charge renforçant est d'améliorer les caractéristiques mécaniques de la résine, ou diminuer le coût en conservant les performances des résines. En générales ces charges sont des microbilles ou des particules (poudre) [16].

### I.1.5.4 Les additifs

Ils sont nécessaires pour assurer une adhérence suffisante entre le renfort fibreux et la matrice et de modifier l'aspect ou les caractéristiques de la matière à laquelle ils sont ajoutés [16].

Les additifs se trouvent en faible quantité (quelques % et moins) et interviennent Comme :

- Des lubrifiants et agents de démoulage.
- Pigments et colorants.
- Agents anti-retraits, anti-ultraviolets.
- Catalyseur.

### I.1.6 Le polypropylène

Le polypropylène est l'un des polymères les plus polyvalents. Il sert à la fois comme thermoplastique et comme fibre. Comme thermoplastique il sert à fabriquer des boîtes à aliments qui résistent au lave-vaisselle. C'est possible parce qu'il ne fond pas en dessous de 160°C. Comme fibre, le polypropylène est utilisé pour faire des revêtements de sol intérieur et, extérieur, du type de ceux que l'on trouve autour des piscines et des golfs miniatures.

Structurellement c'est une polyoléfine, et il est similaire au polyéthylène, seulement sur un carbone sur deux de la chaîne principale il y a un groupe méthyle attaché. Le polypropylène peut être fabriqué à partir du monomère propylène par polymérisation Ziegler-Natta et par polymérisation par catalyse par un métallocène.

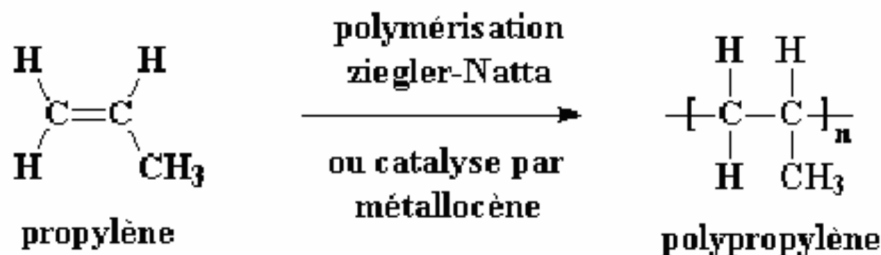


Schéma 4 : Structure du polypropylène.

Il est compatible avec de nombreuses techniques de traitement et utilisé dans de nombreuses applications commerciales [31]. C'est l'une des classes de thermoplastiques de base à plus forte croissance, avec une part de marché de 6-7%/an, et le polypropylène produit n'est dépassé que par le polyéthylène et le polychlorure de vinyle [32, 33].

Le coût modéré et les propriétés favorables du polypropylène contribuent à son fort taux de croissance. En raison de son rapport résistance / poids élevé, il est plus rigide que les autres polyoléfinés. Il a la température de fusion la plus élevée (160-170 ° C) de tous les thermoplastiques et une meilleure résistance à la chaleur que d'autres thermoplastiques à faible coût [32, 34].

Le polypropylène est disponible dans une grande variété de débits de masse fondue, allant de 0,3 à plus de 1000 g / 10 min, et il est facilement recyclé. Il peut être traité par pratiquement toutes les méthodes, y compris le moulage par injection, le moulage par soufflage, l'extrusion, le film soufflé et coulé et le thermoformage. [32, 35-37, 40]

### I.1.6.1 Propriétés générales

De nombreuses qualités disponibles avec différentes propriétés rendent le polypropylène utile dans de nombreuses applications. Les différentes propriétés du polypropylène sont citées dans le tableau 2 [38].

**Tableau2** : Principales propriétés physiques, mécaniques et thermiques du polypropylène.

Propriétés physiques	Valeurs
Indice de fluidité (g/min)	3
Densité (g/cm <sup>3</sup> )	0.90-0.91
Absorption d'eau à 23°C (%)	0.02
Propriétés mécaniques	
Résistance à la traction (MPa)	21-37
Module d'élasticité en traction(MPa)	1300
Allongement à la rupture (%)	100-600
Propriétés thermiques	
Température de fusion (°C)	165
Température de transition vitreuse (°C)	-20
Conductivité thermique w/°C.m	0.22

Propriétés chimiques	
<b>Resistance</b>	Acides, alcalins, solutions salées, solvants, alcools, eau, huiles, benzine, graisses, détergents
<b>Non- résistance</b>	Acides oxydants, hydrocarbures aromatiques, xylol ; éviter le contact avec le cuivre

### I.1.6.2 Les avantages

- Faible densité.
- Très grande dureté.
- Très bonne résistance à hautes températures.
- Grande résistance à la fissuration.
- Faible absorption d'eau.
- Grande résistance aux agents chimiques.
- Inertie physiologique (certains PP sont alimentaires).
- Excellente propriétés électriques, bonne propriétés mécaniques [34].

### I.1.6.3 Domaines d'application

Pièces industrielles (automobile : bonne résistance à la température et aux produits chimiques), équipement ménager, corps creux, bouchage tubes, tuyaux d'eau chaude, bandes de cerclage, composants électriques et électroniques, emballages alimentaire (bac, pot, couvercle, seau, ...), souvent utilisé dans les laboratoires ainsi que dans l'industrie alimentaire et le secteur médical. Il remplace le verre, le métal et les plastiques techniques tels que l'ABS, le polycarbonate, le polystyrène et le nylon dans les appareils de cuisine et les gros appareils tels que les fours, les lave-vaisselle, les réfrigérateurs, etc [34, 37, 39-42].

### I.1.7 Recyclage du polypropylène

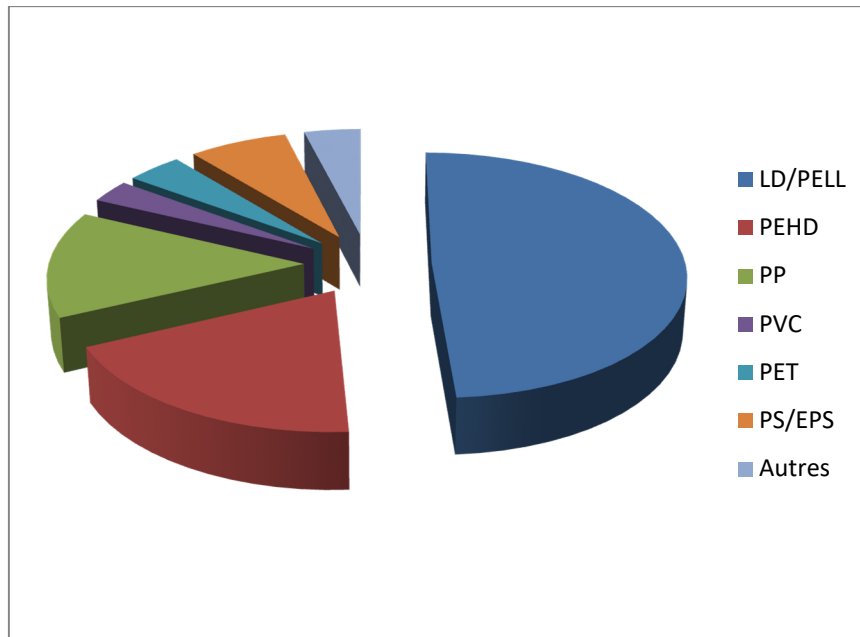
Les produits en plastique issu du pétrole ne sont pas biodégradables. Bien que la plupart des polymères purs se dégradent assez rapidement dans des conditions environnementales de chaleur, de lumière et d'exposition à l'humidité et aux produits chimiques, ils sont conçus et stabilisés chimiquement pour une longue durée de vie. Certains produits en plastique sont recyclés ; Cependant, la plupart sont éliminés dans des décharges.

En raison d'un rapport volume/poids élevé, les plastiques sont devenus l'une des formes les plus visibles de gaspillage pour la société, et le public considère le plastique comme la principale cause de l'augmentation de la quantité de déchets dans les décharges. Les plastiques, cependant, ne représentent que 21% du volume de tous les déchets solides et 9% du poids, selon les statistiques de l'Environmental Protection Agency (EPA) [43-45].

La pression pour le recyclage des plastiques a commencé dans les années 1980 en raison du manque d'espace d'enfouissement dans les grandes villes et de l'augmentation du coût de l'enfouissement. En 1994, la quantité de plastiques recyclés en Europe représentait 6,4% des déchets post-consommation. De grandes quantités de polyéthylène basse densité et linéaire basse densité (LDPE / LLDPE) et de polyéthylène haute densité (PEHD) sont recyclées; étant donné que le film, les caisses et les bouteilles sont fabriqués principalement à partir de ces matériaux (films de LDPE / LLDPE et bouteilles et caisses en PEHD), une séparation de matériau minimale est nécessaire [46, 47].

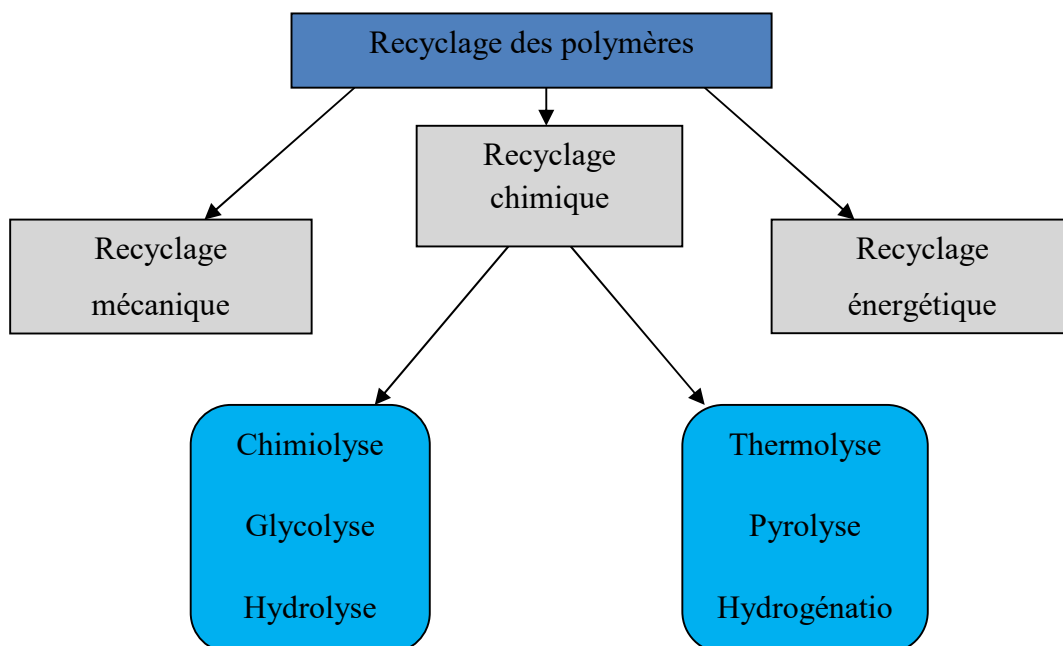
Le polypropylène est utilisé dans de nombreuses applications diverses, de sorte que la séparation des matériaux est nécessaire; par conséquent, un pourcentage inférieur est recyclé [46].

Le propylène a été recyclé en Europe en 1994. Les batteries au plomb avec des caisses en polypropylène ont toujours été recyclées à grande échelle afin de récupérer le plomb. Cependant, la teneur en plomb a diminué et la principale raison du recyclage de la batterie a été la récupération du polypropylène. Les sacs tissés, le dos de tapis et le ruban de cerclage sont également fortement recyclés, en raison de la faible quantité de séparation de matériaux requise; une application majeure de polypropylène recyclé à partir de fibres est dans des pots de plantes. D'autres applications nécessitent la collecte et la séparation de différents types d'applications, et un recyclage efficace n'est pas réalisable [46, 47].



**Figure 2** : Recyclage des déchets plastiques post-consommation en Europe en 1994.

Différentes méthodes de recyclage ou d'élimination des déchets sont présentées au Schéma 5 décrites ci-dessous. Le recyclage mécanique est la méthode la plus courante, mais le recyclage des matières premières et la récupération d'énergie sont étudiés comme solutions de rechange en raison des problèmes de contamination liés au recyclage mécanique [48].



**Schéma 5**: Types de recyclage.

Dans le recyclage mécanique, les déchets sont séparés, refondus et regranulés pour être utilisés dans de nouveaux produits de consommation. Le recyclage mécanique nécessite la séparation de polymères non compatibles pour obtenir de bonnes propriétés de performance dans le produit recyclé.

Dans le recyclage des matières premières, les polymères sont décomposés en leurs monomères constitutifs ou convertis en huile synthétique ou en gaz pour une utilisation dans d'autres procédés. Les monomères peuvent ensuite être utilisés pour produire de nouveaux polymères vierges. La récupération d'énergie utilise l'incinération de polymères pour produire de la chaleur ou de l'énergie. La destination finale de la plupart des déchets, qui ne sont pas recyclés ou après de nombreux cycles de recyclage, est la mise en décharge [48, 49].

Quelques articles sont disponibles dans la littérature concernant le recyclage de déchets de polypropylène et de polyéthylène, en mélange ou non. Les études sont menées sur des polymères vierges, sur des mélanges de composition proche de celle des déchets ou sur des polymères issus de collectes de plastiques usagés. Différents thèmes y sont traités :

- Le recyclage en mélange avec un matériau vierge : en diluant un mélange de déchets polypropylène et polyéthylène haute densité dans une matrice polypropylène ou polyéthylène, les propriétés mécaniques du système final dépendent de la composition [50]. Elles peuvent être améliorées par l'ajout d'un tiers corps comptabilisant.
- L'effet de recyclages multiples sur les propriétés des polymères : sous l'effet des contraintes thermomécaniques subies pendant la remise en œuvre, les polymères ont tendance à se dégrader. Le polypropylène subit principalement des coupures de chaînes, alors que le polyéthylène a tendance à se brancher sous l'effet de la recombinaison des radicaux [51]. Cette dégradation entraîne une modification des propriétés mécaniques et rhéologiques du mélange qui va dépendre de la composition initiale de celui-ci et du nombre de mises en œuvre successives [52-54]. L'utilisation d'antioxydants permet d'éviter ou de limiter la dégradation des chaînes.

### I.2.1 Les renforts

La fibre est une forme de matière extraordinaire possédant une résistance à la rupture et souvent des modules d'élasticité beaucoup plus élevés que ceux du même matériau sous sa forme massive. Elle présente les avantages d'une faible densité, d'un faible coût et sont biodégradables, mais elle présente aussi certains inconvénients lorsqu'elle est utilisée dans les composites, par exemple une mauvaise compatibilité avec différentes matrices et une propriété d'absorption et de gonflement élevée qui provoque la formation de fissures dans les matrices fragiles [55][56].

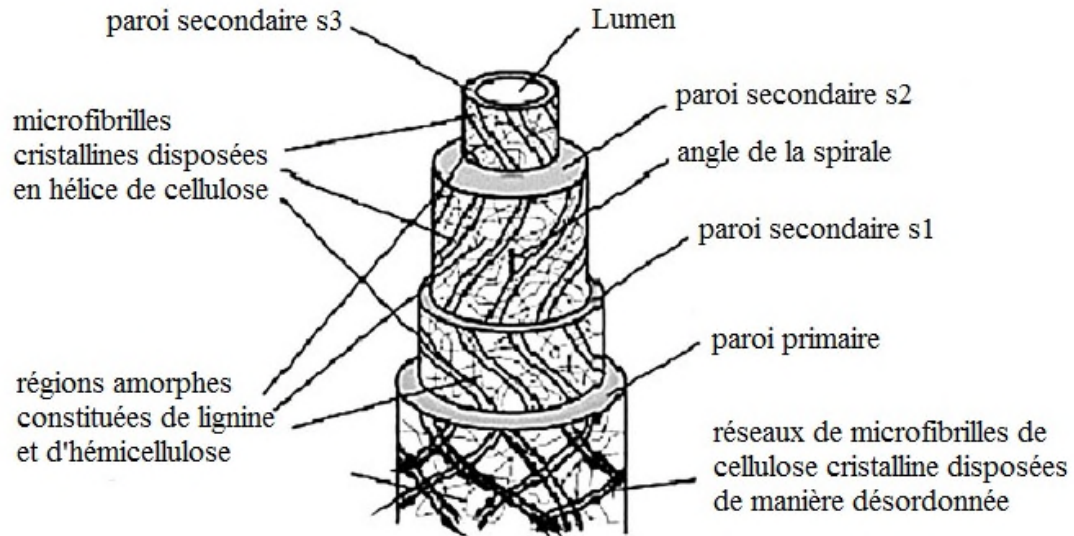
L'incorporation de ces produits dans un composite a pour fonction soit d'améliorer les caractéristiques mécaniques et physiques du produit fini, soit d'en faciliter la mise en œuvre, Ils peuvent se présenter sous formes de fibres de verres, carbonés, naturelles (sisal, jute, lin, grignon d'olive... etc.) [56].

### I.2.2 Les fibres végétales

Les fibres naturelles se trouvent dans les lignocelluloses et sont composées de cellulose, hémicelluloses, pectine, lignine, et de l'eau principalement (d'après Rowell et al., 1998; Westman et al., 2010), La cellulose est le principal constituant de la fibre naturelle qui confère la résistance, stabilité et la rigidité aux fibres, Leurs applications à la conception des composants à travers les polymères sont limités par la nature hydrophile de la cellulose.

Bien que des inconvénients existent pour l'amélioration des propriétés par le renforcement de la matrice polymère, Les composites de fibres naturelles ont des propriétés spécifiques comparables avec des composants en fibre de verre et même meilleurs en poids spécifique que les composants en fibre de verre. Les principaux inconvénients des composites à fibres naturelles sont leur absorption élevée en l'eau et une faible mouillabilité de la fibre avec la matrice organique.

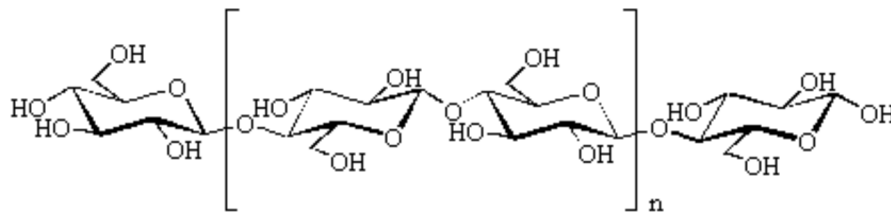
Cependant, des études classiques sur la modification des fibres naturelles pour améliorer les propriétés des fibres naturelles existent [57].



**Figure 3:** Constituants structurel de la cellule de fibre naturelle [58].

### I.2.2.1 La cellulose

La cellulose est considérée comme le polymère naturel le plus abondant sur la terre, il est certainement l'élément structural le plus important dans la structure des plantes et d'autres espèces tels que les animaux, bactéries ainsi que certaines amibes. C'est une structure polymère omniprésente qui confère ses propriétés mécaniques aux cellules végétales supérieures. Dans toutes les espèces végétales terrestres et aquatiques, la paroi cellulaire primaire est une structure dynamique et son matériau constitutif doit être synthétisé sous une forme capable de contenir une extension. Le monomère principal est la D-glucopyranose liés entre eux par des liaisons  $\beta$ -(1-4) (Schéma 6).



**Schéma 6:** Structure schématique de la chaîne de cellulose (Finch, 1985)

L'une des caractéristiques les plus spécifiques de la cellulose est que chacun de ces monomères portent trois groupements d'hydroxyles. Ces groupements hydroxyles et leurs liaisons hydrogènes jouent un rôle majeur dans la direction du réseau cristallin et dans les propriétés physiques importantes de ces matériaux hautement cohésifs [59].



### I.2.2.2 Les hémicelluloses

Les hémicelluloses sont des polysaccharides, omniprésents dans les végétaux, différents de la cellulose pour contenir plusieurs sortes d'unités de sucre en composition (D-xylose, D-mannose, D-glucose, L-arabinose, etc.). Ce sont des polymères ramifiés (amorphes) avec des chaînes plus courtes (degré de polymérisation jusqu'à 200 unités de sucre) par rapport à la cellulose (Fengel et Weneger, 1989, Salmén et Olsson, 1998).

Ils sont caractérisés par une faible masse moléculaire par rapport à la cellulose et par des structures moins régulières causée par les différentes unités présentes dans leurs chaînes ou par la ramification.

L'hémicellulose joue le rôle d'un comptabilisant à l'interface si on considère la cellulose comme une fibre de renfort et la lignine comme matrice dans un composite de bois [60][61].

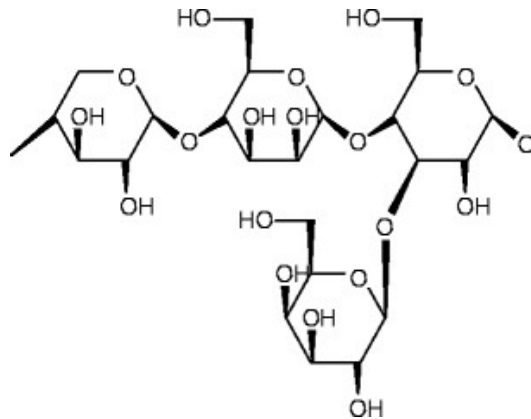


Schéma 7:  
Structure d'hémicellulose

### I.2.2.3 Les lignines

La lignine est la structure macromoléculaire la plus présente dans les végétaux après la cellulose. C'est un polymère réticulé avec une structure très complexe et qui varie en fonction de l'espèce, l'âge du végétal et des conditions climatiques qui l'entourent. La lignine, bien qu'elle ne soit pas aussi répandue que la cellulose, représente encore quelque 12 milliards de tonnes de matières formées chaque année.

On note aussi que la lignine est liée par des liaisons covalentes aux polysaccharides ceux qui améliorent l'adhésion de l'interface entre cette matrice et les fibres cellulosiques. Cette comptabilisation est assurée par les hémicelluloses [62][63].

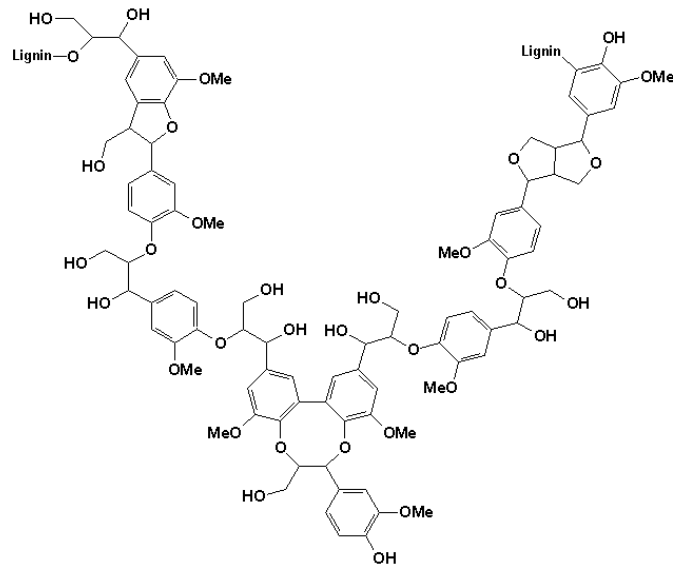


Schéma 8 : Structure de lignine

### I.2.2.4 Les pectines

La pectine est un polysaccharide naturel composé structurellement par de grandes quantités d'acide poly-D-galacturonique lié par une liaison  $\alpha$ -1,4-glycosidique. La présence de molécules tensioactives dans la pectine lui offre des propriétés d'émulsification.

La pectine se présente sous la forme d'une poudre blanche ou brun clair ou granulaire et inodore ou a une odeur légèrement caractéristique. La composition, la structure et les propriétés physiologiques de la pectine pourraient être influencées par les conditions d'extraction ainsi que par les sources, l'emplacement et de nombreux autres facteurs environnementaux. Cette fibre soluble est utilisée comme gélifiant, agent stabilisant et épaississant dans les systèmes alimentaires tels que confitures et gelées, confiseries et jus de fruits [64-66].

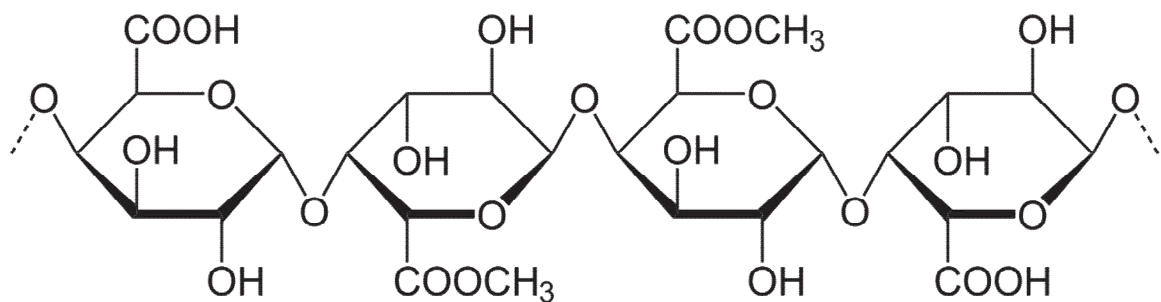


Schéma 9: Structure de pectine

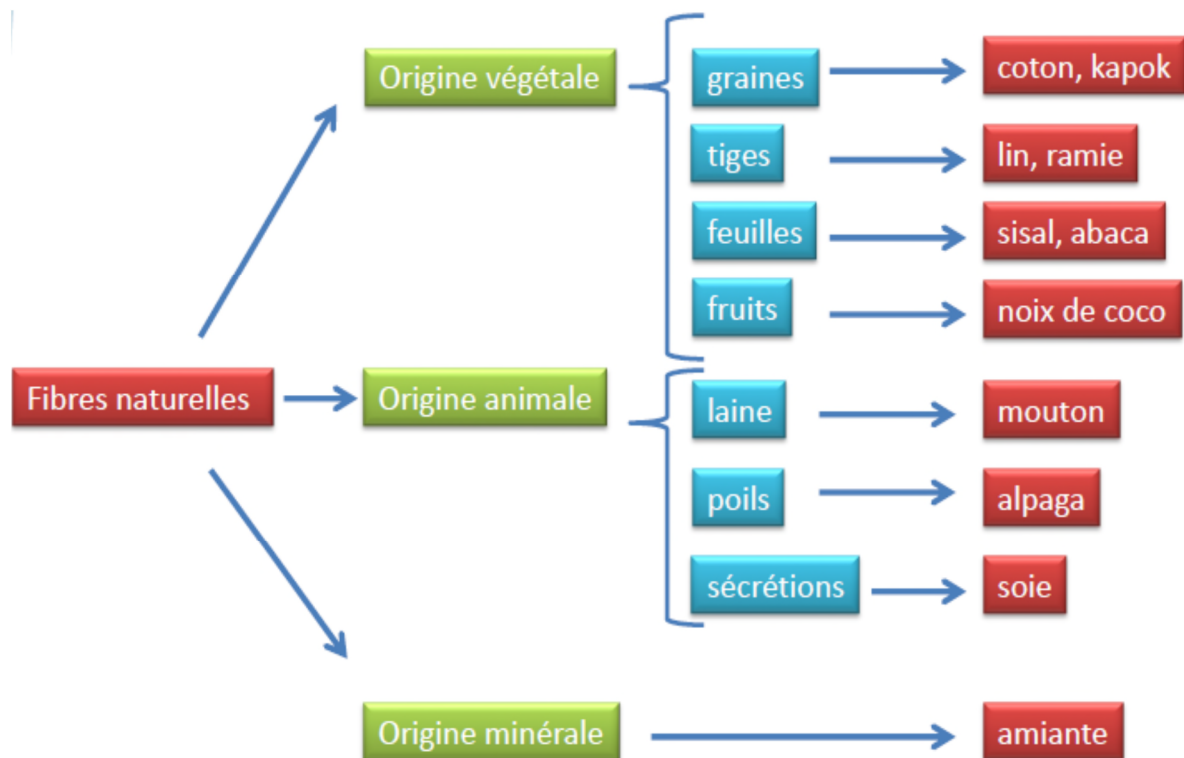
### I.2.3 Compositions de quelques fibres végétales

Les compositions de certaines fibres naturelles sont mentionnées dans le tableau 3 :

**Tableau 3** : Compositions de quelques fibres végétales [67].

Fibres	Cellulose	Lignin	Hémicellulose	Pectine	La cire
<b>Coton</b>	82.7	0.7-1.6	5.7	-	0.6
<b>Lin</b>	71	2.2	18.6-20.6	2.3	1.7
<b>Palf</b>	70-82	5-12	-	-	-
<b>Chanvre</b>	70.2-74.4	3.7-5.7	17.9-22.4	0.9	0.8
<b>Ramie</b>	68.6-76.2	0.6-0.7	13.1-16.7	1.9	0.3
<b>Sisal</b>	67-78	8-11	10-14.2	10	2
<b>Jute</b>	61-71.5	12-13	13.6-20.6	2.3	1.7

#### I.2.3.1 Origine des fibres naturelles



**Figure 4** : Classification selon l'origine des fibres naturelles [68].

### I.2.3.2 Les fibres végétales dans les matériaux composites

La nature, la structure morphologique et les propriétés mécaniques des fibres végétales sont très diverses. En principe, on peut considérer la fibre végétale comme étant un matériau composite composé d'une matrice (lignine ; hémicellulose,...) et renforcée par une fibrille de cellulose (Hearle, 1963). L'utilisation des fibres naturelles dans les composites permet d'avoir des produits plus respectueux de l'environnement vu les soucis environnementaux qui se présente à l'heure actuelle. Leurs propriétés mécaniques (résistance et rigidité) et leurs faibles coûts y sont des avantages tandis que leur grande absorption d'eau (à cause de l'hydrophilidé des fibres), leurs biodégradabilités et la faible tenue en température tendent à les desservir [69].

Un concepteur est toujours intéressé par l'estimation des contraintes de rupture du matériau qu'il veut employer dans sa conception et les caractéristiques les plus importantes exigeant la considération pour la plupart des composants d'ingénierie incluent, propriétés mécaniques (force, rigidité, force et rigidité spécifiques, fatigue et ténacité, et l'influence des températures hautes ou basses sur ces propriétés), la susceptibilité à la corrosion et la dégradation, la résistance à l'usure et les propriétés de frottement, propriétés spéciales (par exemple, propriétés thermiques, électriques, etc.) et les coûts totaux attribuables à la matière choisie et la route de fabrication.

De nombreux facteurs doivent être pris en compte lors de la conception de composites renforcés de fibres (Hall, 1981). En pratique, il est difficile de concevoir des expériences pour couvrir toutes les combinaisons possibles de contraintes critiques, car chaque test est coûteux et un grand nombre est requis [70].

### I.2.4 Le grignon d'olive

Les grignons d'olives sont disponibles en quantités importantes dans de nombreux pays méditerranéens. Selon le procédé d'extraction et l'équipement des huileries, il est possible de distinguer trois types de grignons :

- les grignons bruts issus des huileries utilisant le système traditionnel.
- les grignons épuisés obtenus après traitement des grignons bruts aux solvants pour l'obtention d'huile utilisée en savonnerie.
- les grignons issus des huileries modernes utilisant le procédé d'extraction en chaîne continue ou super presses.

Ces sous-produits sont riches en cellulose brute et en lignine. Ils peuvent servir pour l'extraction de certains éléments tels les furanes ou être utilisés comme combustible. Les grignons des super presses sont particulièrement riches en eau et fermentent très rapidement. Ces déchets sont couramment abandonnés autour des huileries et représentent des sources importantes de nuisances [71]. Et le but de notre travail est de valoriser ce déchet en le réutilisant comme renfort dans une matrice organique.

La composition des grignons figure dans le tableau 4 ci-dessous [71].

**Tableau 4 :** Constituants des différents types de grignon d'olives

<b>Aliment</b>	<b>Grignon brut</b>	<b>Grignon épuisé</b>	<b>Grignon chaînes continues</b>
<b>Matière sèche</b>	70.2	83.4	40.6
<b>En % de la M.S</b>			
<b>M.Minérales</b>	3.7	10.4	2.4
<b>M.grasses</b>	8.1	3.3	9.1
<b>M. Azotées totales</b>	8.7	9.5	7.2
<b>Cellulose brute</b>	47.6	46.7	52.0
<b>A.D.F</b>	53.6	68.2	59.9
<b>E.Digestible (Kcal/kg MS)</b>	3134	2038	2057

A decorative border resembling a scroll, with a vertical strip on the left side and a small circular element at the top right corner.

# Partie expérimentale

A decorative graphic of a scroll with a black outline and rounded corners. The scroll is partially unrolled, with the top and bottom edges showing a greyish shadow. The text is centered within the scroll.

# Chapitre II

## Matériaux et techniques

## Chapitre II

## Matériaux et techniques

Dans cette partie, nous allons présenter les matériaux utilisés et toutes les méthodes de transformation pour la fabrication des échantillons utilisés.

**Tableau 5 :** Abréviations des formulations

<b>F1</b>	<b>Polypropylène vierge 100%</b>
<b>F2</b>	Polypropylène vierge 80% + Farine grignons d'olive 20 %
<b>F3</b>	Polypropylène recyclé 100 %
<b>F4</b>	Polypropylène recyclé 80% + Farine grignons d'olive 20%

## II.1 Présentation des produits utilisés

### II.1.1 Polypropylène

Dans ce travail réalisé on a utilisé une matrice en polypropylène. Le choix de cette matrice est justifié par le fait que c'est une matrice de grand tonnage et elle présente d'excellentes propriétés ainsi son importance production mondiale.

Le PP utilisé dans ce travail est un homopolymère destiné aux applications de fibre du type BORSTAR HC115FB dont les caractéristiques sont les suivantes :

**Tableau 6:** Propriétés de polypropylène BORSTAR HC115FB

Propriétés	Caractéristiques	Méthode de test
Aspect	Granulés blancs	-
Propriétés Physiques	Indice de fluidité : 2,8 g/10min Répartition du poids moléculaire : Moyenne	ISO 1133 -
Propriétés Thermiques	Température de fusion : 161-165 °C	ISO 3146
Autres caractéristiques	Excellente processibilité Pureté optimale de la résine Une cohérence optimale du produit	



## II.1.2 Grignon d'olive

La fibre naturelle utilisée dans ce travail est le grignon d'olive récupéré directement d'une huilerie dans la région de Takrietz, une commune de la wilaya de Bejaia.

### II.1.2.1 Mode d'obtention de la farine de grignon d'olive

#### a)-Lavage :

Nous avons procédé au lavage des grignons d'olives avec de l'eau chaude plusieurs fois pour éliminer les huiles, les résidus et les impuretés insolubles dans l'eau froide.

#### b)-Séchage :

Les grignons d'olives sont misent et étalés sur un support propre en aluminium, puis séchés à l'air libre dans une hotte pendant 2h à la température ambiante puis dans une étuve pendant 24h à 60 °C.

#### C)-Broyage et tamisage :

Le broyage et le tamisage ont été effectués à l'aide d'un appareil de broyage de type 'Retsh ZM 200', la machine réduit la taille des grains puis ces derniers passent à travers un tamis de 0.08 mm de diamètre pour obtenir la farine du grignon d'olive.



Figure 5 : Appareil de broyage et tamisage

## II.2 Préparation des composites

Dans cette présente étude plusieurs formulations à base de polypropylène vierge et de polypropylène recyclé avec des taux de grignon d'olive varient entre 0% et 20 %.



**Figure 6 :** Aspect des granulés utilisés

## II.3 Préparation des éprouvettes

La préparation des éprouvettes est une étape importante parce qu'elle conditionne les propriétés finales du matériau. Dans ce travail la technique utilisée pour la préparation des éprouvettes est l'extrusion à l'aide d'une extrudeuse double vis suivie par un moulage par compression réalisé avec une presse hydraulique.

### II.3.1 L'extrusion

La machine d'extrusion utilisée de type Micro compounder DSM Xplore d'une capacité d'injection de 12 cm<sup>3</sup>. Cette machine est verticale, électrique et à vis de plastification.

La machine est équipée de deux vis de 135mm de longueur qui tournent dans un fourreau en forme de huit légèrement déformé régulé en température au bout duquel est fixée une filière.

Les deux vis sont généralement coniques, leurs filets peuvent être plus ou moins usinés en fonction des effets de transport ou de malaxage attendus. Il existe trois zones phénoménologiques : la zone d'alimentation où le polymère est solide (granulés ou poudre plus ou moins compactée) ; la zone de plastification ou de compression dans laquelle coexistent le polymère solide et en phase fondue ; la zone de pompage où le polymère est totalement fondu.



**Figure 7 : La machine d'extrusion**

La température de mise en œuvre est de 185 °C avec un temps de séjour de 8 min et une vitesse de rotation 50 tour/min est la même pour toutes les formulations.

### II.3.2 La presse hydraulique

Une presse hydraulique est une machine avec un circuit hydraulique qui fournit une grande force de compression.



**Figure 8** : La presse hydraulique

La machine utilisé est de la marque « Carver », on mit notre formulation ( F1, F2, F3 ou F4) dans un moule d'une forme carrée couvert par deux feuilles de Polytétrafluoroéthylène (téflons) et deux plaques métalliques pour empêcher les fuites, on introduit la plaque dans la presse avec une température de 210 °C et 0.5 tonnes de compression et un temps de séjour de 11 min.

### II.3.3 Découpage des haltères

Le découpage des haltères a été réalisé avec un appareil « CEAST », on mit la plaque formée puis on exerce une pression avec le moule sous forme d'haltère sur la plaque afin de réaliser le découpage.

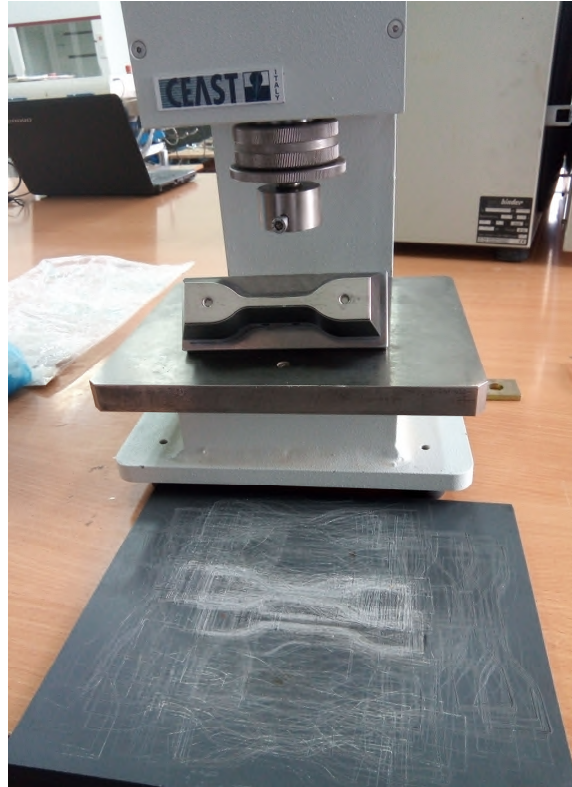


Figure 9 : Machine de découpage des haltères

### II.3.4 Les haltères

Les éprouvettes obtenues ont une forme d'haltère avec une zone utile de dimensions qui sont représentées sur la figure 14 ci-dessous:

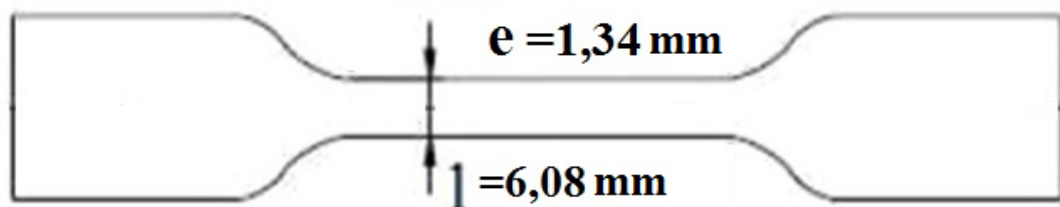


Figure 10 : Forme de l'haltère

## II.4 Techniques expérimentales

### II.4.1 Analyse spectrale

#### II.4.1.1 Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF)

La spectroscopie IRTF est une technique d'analyse qualitative et quantitative qui permet de connaître la nature chimique d'un produit par identification de certaines bandes d'absorption présentes sur un spectre. Elle permet d'avoir des informations sur la structure moléculaire d'un composé donné en détectant la présence de groupements fonctionnels dans ce composé.

#### II.4.1.2 Diffraction des rayons X (DRX)

L'analyse par diffraction des rayons X a été effectuée à l'aide d'un appareil de type X Pert Pro Panalytical en utilisant la raie  $K\alpha_1$  du cuivre de longueur d'onde  $\lambda = 1,540598 \text{ \AA}$ . Les diffractogrammes ont été enregistrés de  $0^\circ$  à  $70^\circ$  avec un pas de  $0.01^\circ$ . C'est une méthode d'analyse non destructive.



Figure 11 : Appareil de DRX

## II.4.2 Analyse physique

### II.4.2.1 Test d'absorption d'eau

Des éprouvettes carrées de F1, de F2, de F3 et de F4, de 2 cm de côté sont séchées dans une étuve pendant 24h à 60°. Après séchage, on pèse les échantillons à un milligramme près.

Ensuite les échantillons sont immergés dans des fioles à 250 ml d'eau distillée et à température ambiante. On fait des prélèvements chaque 24h où les éprouvettes sont retirées de l'eau. Toute l'eau à la surface est enlevée avec du papier absorbant. Les échantillons prélevés sont pesés et la variation de masse est donnée par la formule :

$$\Delta m (\%) = \frac{m - m_0}{m_0} * 100$$

Avec :

$m_0$  : La masse des échantillons avant immersion.

$m$  : La masse des échantillons après immersion.



Figure 12 : Montage utilisé pour l'absorption

## II.4.3 Analyse thermique

### II.4.3.1 Analyse thermogravimétrique (ATG)

L'ATG est une technique d'analyse thermique qui permet de suivre la dégradation thermique d'un produit en fonction de la température et du temps lorsque le matériau se décompose dans une atmosphère donnée. L'analyse thermogravimétrique consiste à mesurer au cours du temps la masse d'un échantillon soumis à une variation de température.

L'appareil utilisé est de marque LINSEIS STA PT 1600, selon les conditions de l'expérience suivantes :

- Intervalle de température : 20 - 700 °C.
- vitesse de dégradation 10 mg/min



Figure 13 : Appareil d'ATG



## II.4.4 Analyse mécanique

### II.4.4.1 Test de traction

L'essai de traction est une expérience dont l'objectif est de déterminer l'allongement, la contrainte à la rupture et aussi le module d'Young d'un matériau. Ce teste permet de mettre une relation entre les déformations et les contraintes et déterminer la nature d'un matériau. L'essai a été fait au sein du laboratoire des matériaux émergents à l'université Ferhat Abbas de Sétif, il s'est réalisé sur des éprouvettes sous forme d'haltère de type 'H' sur une machine universel des essais mécaniques de type 'MTS Criterion' model 45 piloté par un ordinateur à la température ambiante et une vitesse de déplacement 5 mm/min.



Figure 14 : Appareil de traction

Le déroulement du test consiste à subir à l'éprouvette un étirement avec une vitesse constante puis on relève la force de traction en fonction de l'allongement.

Ces essais permettent de tracer la courbe de traction d'où la déformation à la rupture, les valeurs du module de Young et de la contrainte maximale atteinte peuvent être relevées.

A decorative graphic of a scroll with a black outline and rounded corners. The scroll is partially unrolled, with the top and bottom edges curving upwards. The text is centered within the scroll.

# Chapitre III

## Résultats et discussions

## Chapitre III

## Résultats et discussions

## III.1 Caractérisation spectroscopique

## III.1.1 Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF)

La caractérisation par la spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier IRTF est d'une importance major, elle permet de prédire les différents phénomènes qui se produisent et déterminer les modifications de la structure chimique du polypropylène étudié après le recyclage.

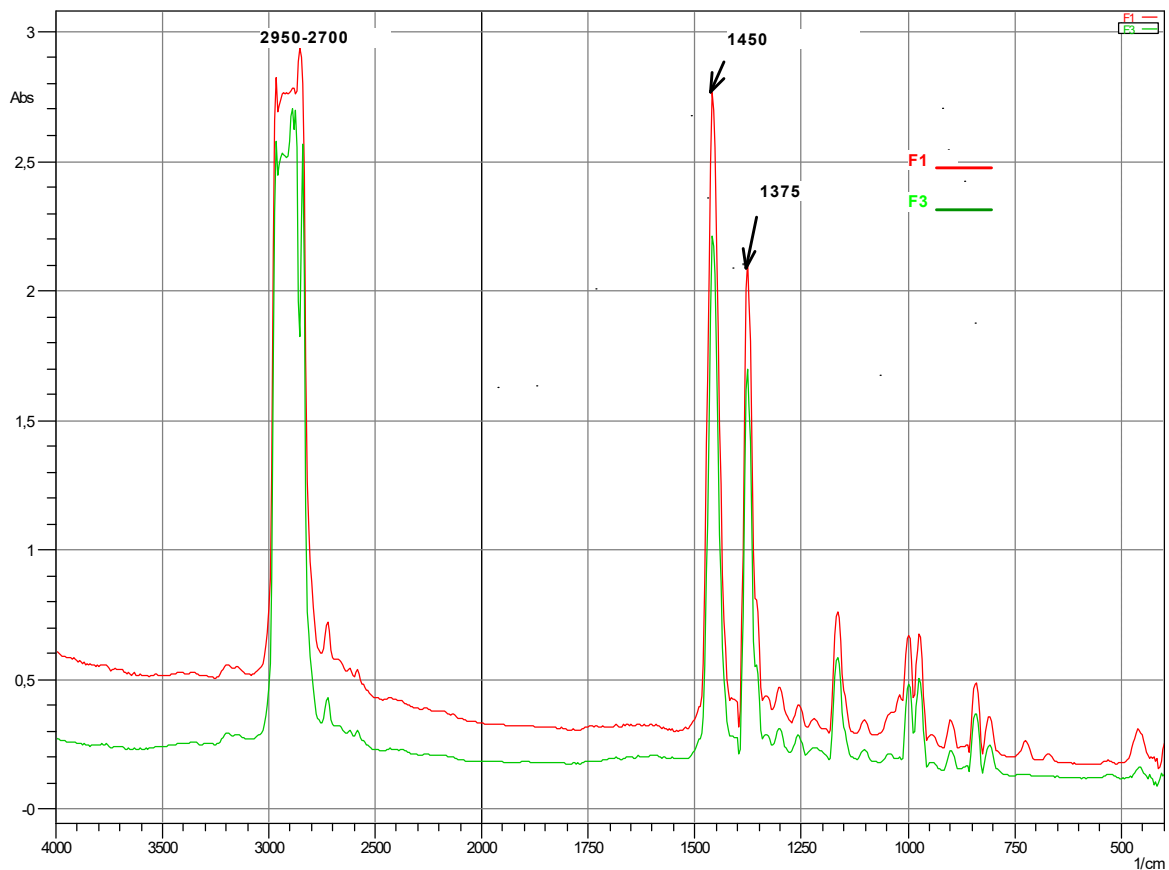


Figure 15 : Spectres infrarouge de F1 et F3

La figure 15 illustre les spectres IRTF de F1 et F3. Les différentes bandes d'absorption qui peuvent apparaître dans le spectre IRTF du PP sont identifiées dans le tableau 7

**Tableau 7** : Bandes d'absorptions du PP avant le recyclage

Nombre d'onde (cm <sup>-1</sup> )	Types de vibration
➤ 2950-2700	Vibration d'allongement CH du PP
➤ 1450	Vibration d'allongement du groupe CH <sub>2</sub>
➤ 1375	Vibration d'allongement du groupe CH <sub>3</sub>

D'après la figure 15, Une comparaison des spectres FTIR du F1 (PP vierge) et F3 (PP recyclé) indique clairement qu'aucun changement notable n'a été observé dans la matrice PP après le recyclage, ce qui signifie que le recyclage n'implique pas de modification des structures chimiques du PP. En général, en cours du recyclage, les chaînes polymères sont soumises à des températures élevées et à un cisaillement intensif qui favorise les mécanismes thermiques, mécaniques [72].

Les travaux réalisés par Salem et Al (2018) et Cherfa.N (2007) ont montrées que le recyclage d'un seul cycle ne modifie pas visiblement la structure chimique [73-74].

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

Afin d'examiner plus en détail l'influence de l'ajout de la fibre FGO sur les phases cristallines du polymère, des analyses par la DRX ont été réalisées. Les courbes de la diffraction des rayons X (DRX) des matrices F1 et F3 et les composites sont représentés sur la figure 16.

Pour les matrices F1 et F3 plusieurs pics de faible ou forte intensité peuvent être identifiés à  $2\theta = 13,32^\circ ; 20,65^\circ ; 22,96^\circ (13,61^\circ ; 16,19^\circ ; 17,91^\circ ; 21,10^\circ)$  correspondant à des plans diffractions de 110, 117, 041, 110, 040, 040, 301, le taux de cristallinité est de 13,24% et 36,92% pour F1 et F3 respectivement.

Pour les composites F2 et F4 des pics de faible intensité peuvent être trouvés à  $2\theta = 13,73^\circ ; 16,54^\circ ; 18,13^\circ ; 21,31^\circ (13,88^\circ ; 16,74^\circ ; 18,29^\circ ; 21,42^\circ)$ , le taux de cristallinité est de 17,22% et 34,63% pour F2 et F4 respectivement.

En comparant ces résultats, on trouve que le taux de cristallinité du F3 est plus élevé que celui du F1. L'effet du recyclage a conduit à la modification du réseau par conséquent une augmentation de la proportion de la phase cristalline.

L'ajout d'une fibre cellulosique FGO a influencé sur le taux de cristallinité des composites F2 et F4 qui est très élevés par rapport à la matrice seule à cause de la structure cristalline de la fibre FGO qui est une fibre cellulosique.

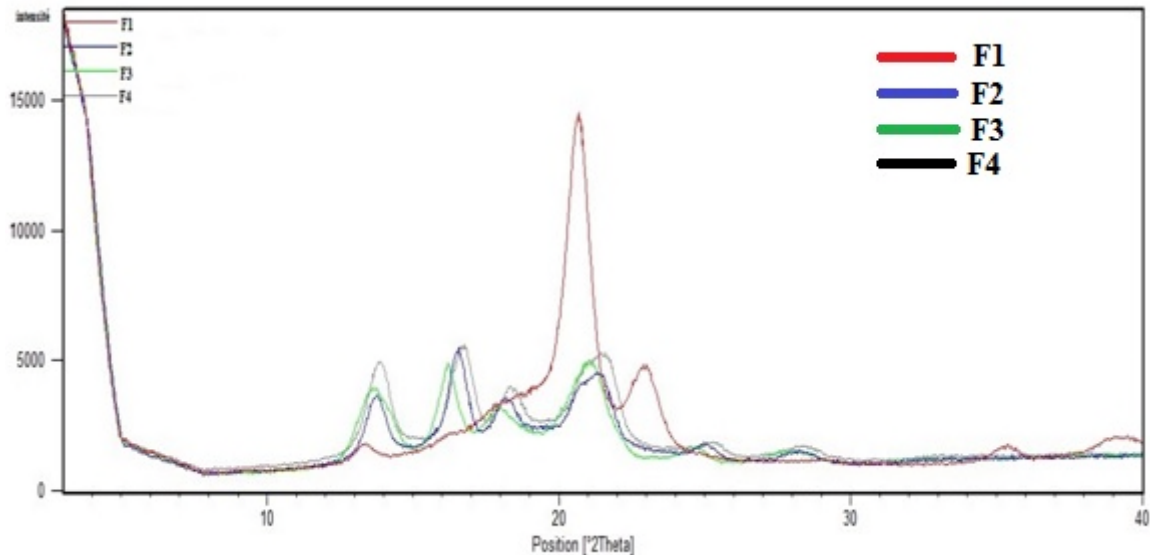


Figure 16 : Spectres de diffraction des rayons X

## III.2 Caractérisation thermique

### III.2.1 Analyse thermogravimétrique (ATG-DTG)

Comme cela a été décrit dans le chapitre 'Matériels et méthodes', l'ATG permet de suivre la variation de la masse d'un échantillon en fonction de la température et ainsi d'accéder aux paramètres de décomposition d'un matériau. Les phénomènes de perte de masse peuvent être identifiés à partir des courbes d'ATG et DTG vu qu'ils se présentent sous forme de pics.

Les figures 17 et 18, représentent les thermogrammes donnant la variation de perte de masse (TG) et la vitesse de perte de masse (DTG) des différents échantillons en fonction de la température.

Le tableau 8 représente les différents paramètres thermiques à savoir : la température de dégradation à 5% et 50%, La vitesse maximale de perte de masse ( $V_{max}$ ), La température où on enregistre la vitesse maximale de perte de masse ( $T_{max}$ ) et le taux de résidu.

Tableau 8 : Les paramètres thermiques des différents composites

Echantillon	Td 5%	Td 50 %	V max	T max	Taux de résidu
F1	394,9	443,1	2,17	447,58	21,01%
F2	278	440,7	2,44	466,84	2,12%
F3	391,8	440,6	2,39	462,53	10,16%
F4	281	442,4	1,90	449,97	19,14%

La figure 17 montre que l'allure des thermogrammes du F1 et F3 sont presque identiques, on observe que leurs décompositions débute vers 358°C (rupture des liaisons C-C de la chaîne principale) [75-77] et continue jusqu'à atteindre la température maximale de décomposition 448°C pour F1, et de 376°C jusqu'à 463°C pour F3. Ils possèdent un processus de décomposition en une seule étape

Vers Tmax les chaînes de F1 et F3 sont complètement dégradées. La composition est complètement achevée au delà de 500°C cela est en accord avec les études qui parlent sur la dégradation thermique des polymères [78-79].

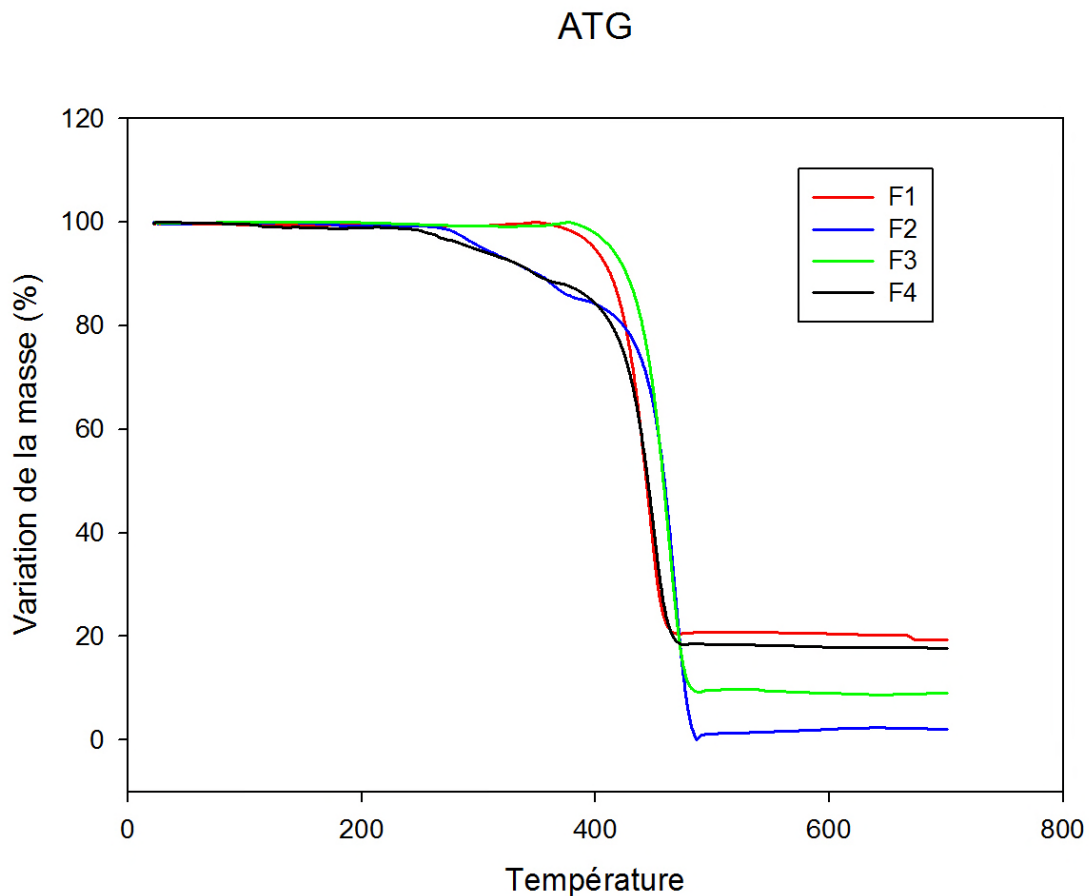
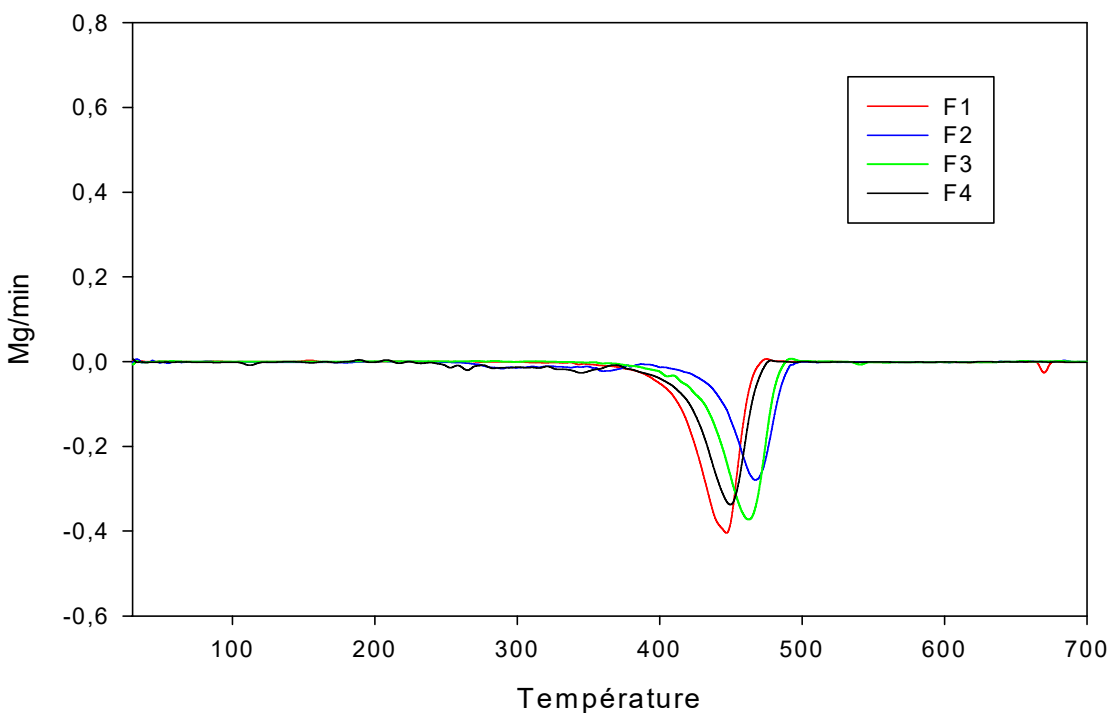


Figure 17 : Thermogrammes TG

On peut donc utiliser les matériaux recyclés sur la même gamme de température que les matériaux vierges.

Dans le cas des composites F2 et F4 le processus de décomposition se réalise en deux étapes, la première étape correspond à la décomposition de la fibre qui commence de 265 °C jusqu'à 375 °C pour F2 et de 249 °C à 368 °C pour F4. La deuxième étape correspond à celle de la matrice qui démarre de 412 °C et continue vers  $T_{max}$  467 °C pour F2 et de 400 °C jusqu'à 449 °C pour F4. Lorsque la FGO commence à se décomposer (avant le PP) la surface de PP ayant une température de début de dégradation plus élevée peut commencer à se dégrader aussi et sa décomposition est accélérée si bien qu'elle s'opère à une température plus faible.

A partir de 500 °C la masse des échantillons deviennent stable et on enregistre un résidu égal à : 21,01% pour F1, 2,12% pour F2, 10,16% pour F3, 19,14% pour F4.



**Figure 18** : Thermogrammes DTG

D'après les courbes DTG de la figure 18 on observe :

un pic de faible intensité à  $T = 290$  °C, qui correspond à la dégradation de la fibre au sein du composite ce n'est pas l'association avec la matrice qui est à l'origine de cette variation. Cette dernière possède une température de décomposition inférieure à celle du PP; son introduction dans le polymère diminue la température de décomposition du composite.

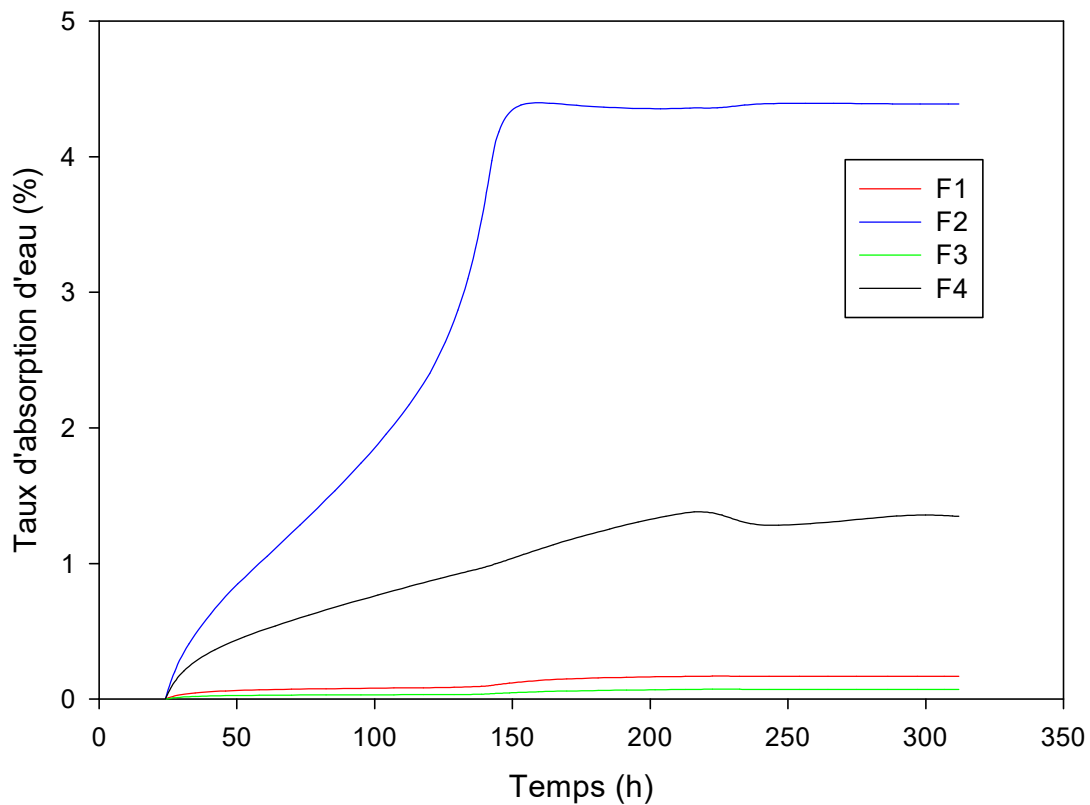
Un pic de forte intensité à 467 °C pour F2 et 448 °C pour F4 correspondent à la dégradation des chaînes du polypropylène.

En conclusion, Les composites présentent une stabilité thermique intermédiaire entre celle des fibres et celle de la matrice, donc l'ajout de la fibre diminue la stabilité thermique des composites car la stabilité thermique des fibres étant plus faible que celle du PP, la dégradation de la fibre peut accélérer la décomposition du polypropylène [80].

### III.3 Caractérisation physique

#### III.3.1 Absorption d'eau

La figure 19 représente l'évolution de la perte de masse des matrices F1, F3 et des composites F2 et F4 en fonction du temps.



**Figure 19 :** Evolution du taux d'absorption d'eau en fonction du temps (h).

Le taux d'absorption d'eau des matrices F1 et F3 est très faible qui ne dépasse pas les 0.15 % quelque soit le temps d'immersion, cela confirme le caractère hydrophobe du polypropylène mais on remarque que l'absorption de F1 est légèrement supérieur à celle du F3 justifiée par le fait que le taux de cristallinité du vierge de 13,24% est inférieur à celui du recyclé (36,92%).



Avec l'ajout de la fibre du FGO, on aura un taux d'absorption élevé qui devient stable après 150 heures et qui est plus intense en le comparant avec la matrice seule, cela indique que la fibre cellulosique FGO est susceptible d'absorption d'eau, ce qui est associé à son caractère hydrophile. Autrement dit, Cette affinité avec l'eau, peut être expliquée par la formation des liaisons hydrogène entre les groupements hydroxyle du FGO et les molécules d'eau. [59] Ce résultat a été confirmé par les travaux de W. Z. W. Zahari et al [81].

En comparant le taux d'absorption d'eau des composites F2 et F4 on constate que l'absorbance du F2 est plus importante cela est dû à son taux de cristallinité faible de 17.22% contrairement à celui du F4 qui est deux fois plus élevé (34,63%).

### III.4 Caractérisation mécanique

#### III.4.1 Allongement à la rupture

L'allongement à la rupture est une grandeur pertinente qui permet de détecter la fragilité d'un matériau lors d'un essai de traction. Vu que les longues chaînes enchevêtrées permettent d'atteindre de grandes déformations ce qui prouve que le matériau a un comportement ductile.

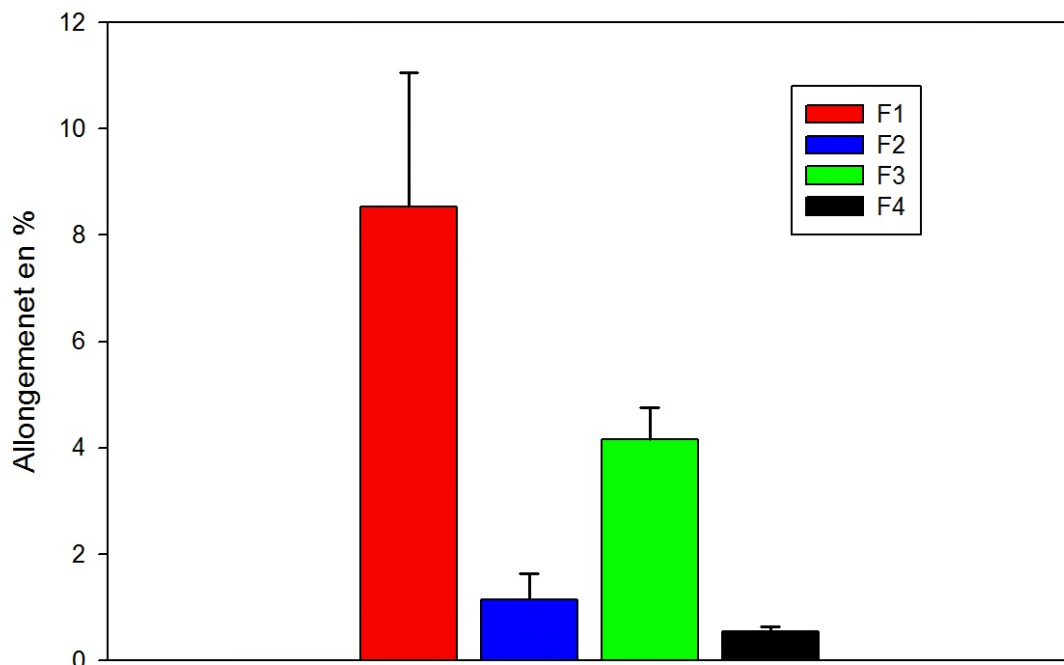


Figure 20 : Variation de l'allongement à la rupture

La figure 20 présente la variation de l'allongement à la rupture des matrices F1, F3 et des composites F2 et F4. On remarque une diminution de l'allongement de la matrice recyclé F3 par rapport au vierge F1 de 8,5% jusqu'à 4,1%. Cette diminution revient à la dégradation causée par les ruptures de chaînes qui diminuent la masse molaire moyenne et la distribution de la masse molaire du PP donc la rupture arrive plus vite [82].

Aussi, la cohésion du PP est amoindrie causée par la réduction du nombre d'enchevêtrements qui assure l'élasticité du polymère et retient les chaînes [74].

L'incorporation de la FGO dans la matrice diminue les propriétés mécaniques et réduit l'allongement à la rupture, cette réduction est de l'ordre de 7,4 % pour F2 et 4% pour F4. Ce résultat est dû à la mauvaise dispersion de la FGO dans la matrice et peut être justifié par l'incompatibilité entre la fibre hydrophile polaire et la matrice polymère apolaire (Faix et al., 1994; Pouteau et al., 2002) [83-84]. Ce résultat est en accord parfait avec les travaux de A.T.R. Sugano-Segura et al (2017) [85].

### III.4.2 Module d'Young

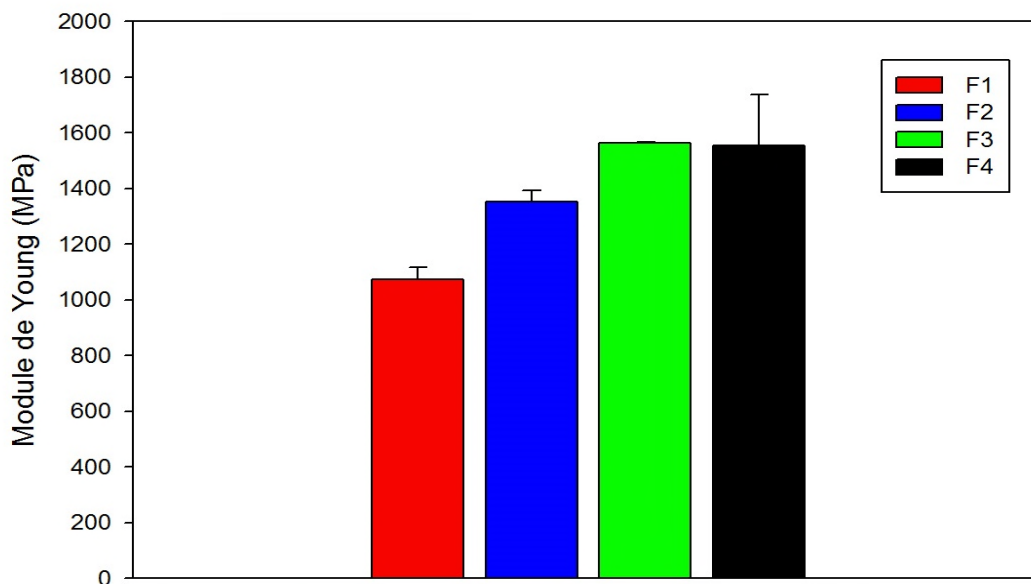


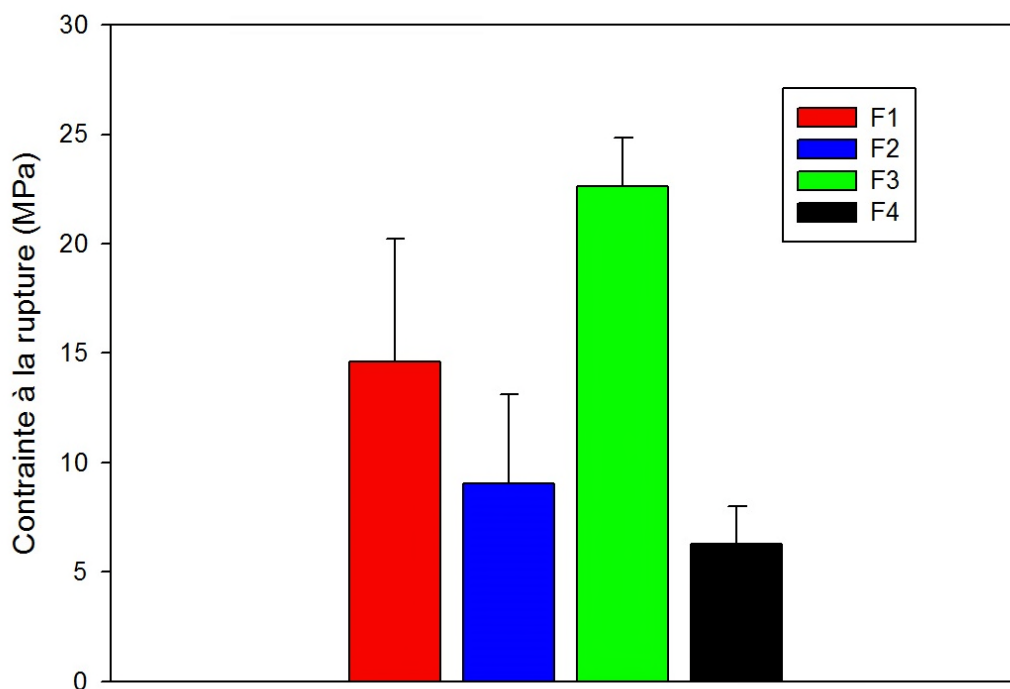
Figure 21 : Evolution du module d'Young

La figure 21 représente le module de Young des matrices et des composites (F1, F2, F3 et F4), qui est un indicateur de la robustesse du polymère.

On voit une nette amélioration du module d'Young du recyclé de 500 MPa comparé au vierge dû peut être à la réticulation des chaînes après un seul cycle de recyclage. Bahlouli [86] a travaillé sur l'influence du recyclage sur les propriétés mécaniques des polymères et une même amélioration du module a été enregistrée après 3 cycles de recyclages contrairement au résultat trouvé par Salem et al (2018) [73], Ou le module a diminué après 6 cycles de recyclage. Donc le nombre de cycle de recyclages peut avoir une influence.

Le module d'Young augmente avec l'ajout de la fibre végétale elle passe de 1072 MPa à 1352 MPa pour le composite vierge et de 1562 MPa à plus de 1570 MPa pour le composite recyclé cela indique que les composites sont devenus plus rigides causée par la rigidité de la fibre végétale. Des résultats similaires ont été trouvés par L.Dobircau et al. Ils ont attribué ce comportement à la phase rigide de la FGO dispersée qui donne une grande rigidité à la matrice du PP [87].

### III.4.3 Contrainte à la rupture



**Figure 22 :** Evolution de la contrainte à la rupture

En ce qui concerne la contrainte à la rupture des différentes formulations qui est représentée sur la figure 22, nous avons observé que le recyclage a augmenté la contrainte de 8 MPa sur la résistance à la traction.

La contrainte à la rupture subit une diminution considérable en présence de la FGO, cette baisse est envisageable en raison de l'incompatibilité entre le PP de nature hydrophobe et la farine du grignon d'olive hautement hydrophile, Elle peut être assignée aussi à la mauvaise dispersion de la fibre dans la matrice en formant un assemblage hétérogène (agrégats) ce qui confère une fragilisation du système [88].



# Conclusion Générale

## *Conclusion*

Cette étude avait pour but d'élaborer et d'étudier des matériaux composites FGO/plastique, afin de favoriser la valorisation des résidus de la FGO et l'étude de l'effet de recyclage sur les propriétés physico-chimique du polypropylène renforcé par 20% de fibres de grignon d'olive tout en profitant des caractéristiques et propriétés qui revêtent cette fibre naturelle mais aussi qui caractérisent le thermoplastique employé. Au cours de cette étude, les composites ont été fabriqués à partir de la FGO et des granulés de polypropylène vierge et recyclé. La FGO n'a pas subi de traitement préalable, La technique de mélange à sec a été adoptée pour la préparation des mélanges avant leur mise en œuvre. Les conditions de mélange ont été établies à travers des essais effectués au laboratoire. Dans la première partie de notre étude on a préparé la farine de grignon d'olive, les fibres de FGO nécessitent un prétraitement spécifique. Tout d'abord, il s'agit d'obtenir un taux faible d'humidité par séchage dans une étuve pendant 24h à  $T=60^{\circ}\text{C}$ .

L'étape suivante est le broyage. C'est une opération mécanique qui consiste à diminuer la taille des fibres et à homogénéiser la poudre pour obtenir une farine. La dernière étape est le tamisage. Cette opération nous permet d'obtenir des charges de faible granulométrie.

La seconde partie du travail consiste à élaborer les matériaux composites à matrice polypropylène renforcés par des fibres de grignon d'olive comme il a été cité précédemment, pour ensuite étudier l'effet du recyclage sur la structure, la morphologie et les propriétés mécaniques de ces matériaux.

Au terme de cette étude et sur la base des résultats expérimentaux, nous pouvons tirer les conclusions suivantes :

La spectroscopie infrarouge indique que les spectres de F1 et de F3 sont identiques. Cela est expliqué par le fait que le recyclage n'implique pas de modification des structures chimiques du PP.

Les analyses par la DRX révèlent que le recyclage augmente la cristallinité de la matrice ce qui conduit à la modification du réseau. L'ajout d'une fibre végétale FGO a augmenté le taux de cristallinité des composites F2 et F4 à cause de la structure cristalline de la fibre FGO qui est une fibre cellulosique.

La caractérisation thermique par ATG-DTG confirme que la stabilité thermique de la fibre étant plus faible que celle du PP seule, ce qui justifie la diminution de cette stabilité thermique dans les composites. On peut donc utiliser les matériaux recyclés sur la même gamme de température que les matériaux vierges.

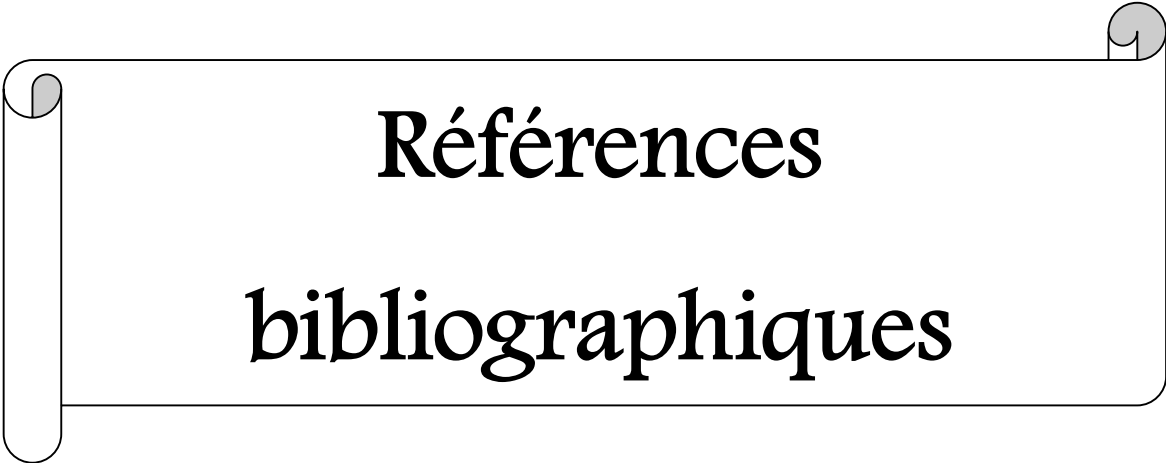
Les tests d'absorption d'eau ont montré que, les composites ont enregistré une augmentation du taux d'absorption d'eau, ce qui est associé au caractère hydrophile de la fibre du grignon d'olive qui est susceptible d'absorption d'eau mais aussi l'absorbance du F2 est plus importante cela est dû à son taux de cristallinité faible de contrairement à celui du F4 qui est deux fois plus élevé.

Nous avons également étudié, le comportement mécanique des composites (F2 et F4). Les résultats montrent que les propriétés mécaniques (l'allongement à la rupture et la contrainte à la rupture) diminuent. Cette diminution causée par la mauvaise dispersion de la FGO dans la matrice, ce qui assignée à l'incompatibilité entre le PP de nature hydrophobe et la farine du grignon d'olive hautement hydrophile. Contrairement au module de Young qui s'améliore en introduisant la FGO ce qui indique la rigidité du matériau.

## *Perspective*

Le problème majeur dans les mélanges fibre végétale/matrice thermoplastique est l'incompatibilité inter faciale entre ce type de mélange. Pour compléter et développer mieux cette étude et afin d'améliorer les propriétés d'interface entre le polypropylène et la FGO, nous recommandons d'utiliser deux modes de traitement chimiques à savoir : le traitement de surface de la FGO et le traitement par un agent comptabilisant. On propose aussi d'effectuer d'autres testes (MFI, détermination de la masse molaire...etc) afin de mieux étudier et identifier l'effet du recyclage.



A decorative graphic of a scroll with a black outline and rounded corners. The scroll is partially unrolled, with the top and bottom edges curving upwards. The text is centered within the scroll.

**Références**  
**bibliographiques**

## *Références bibliographiques*

- [1] *Chaudemanch S*, Caractérisation In Situ De L'endommagement Volumique Par Spectroscopie Raman Et Rayons X De Différents Polypropylènes Déformés En Traction Uniaxiale, Thèse De Doctorat En Mécanique Des Matériaux, Université De Lorraine, 2013.
- [2] *Boufassa, S.*, Nanocomposites à base de polymères/Renfort de structure lamellaire, Thèse De Doctorat, 2015.
- [3] *Ragoubi, M.*, Contribution à l'amélioration de la compatibilité interfaciale fibres naturelles/matrice thermoplastique via un traitement sous décharge couronne, Thèse De Doctorat En Science, Université Henri Poincaré Nancy 1, 2010.
- [4] *S. Bourbigot, E. Devaux, and X. Flambard*, Flammability of polyamide6 /clay hybrid nanocomposite textiles, *Polymer Degradation and Stability*, 75(2), pp. 397–402, 2002.
- [5] *Nasri, H., Benyahia, K.*, Effet de cycle d'extrusion répéter sur les propriétés physico-chimiques du polyéthylène renforcé par des fibres de bois, Mémoire De Master En Génie des Procédés, Université De Bejaia, 2017.
- [6] *Gordon, J.E.*, The New Science of Strong Materials or Why You Don't Fall Through the Floor. Princeton University Press, Princeton, Expanded ed, 2006.
- [7] *Herakovich, C.T.*, Mechanics of Fibrous Composites. John Wiley & Sons, Inc, New York, 1998.
- [8] *Sapuan, S.M.*, *Bahan Komposit Berasaskan Polimer, Sifat-Sifat, Reka Bentuk, Pembuatan dan Penggunaan.* Universiti Putra Malaysia Press, Serdang, Selangor, Malaysia, 2000.
- [9] *Kelly, A., Mileiko, S.T.* (Eds.), Fabrication of Composites. Elsevier, Amsterdam, 1983.
- [10] *Murphy, J.*, Reinforced Plastics Handbook. Elsevier Advanced Technology, Oxford, 1994.
- [11] *Mayer, R.M.*, Design with Reinforced Plastics: A Guide for Engineers and Designers. The Design Council, London, 1993.
- [12] *Gomina, M.*, Flax and hemp composite applications. In: Reux, F., Morel, A. (Eds.), Flax and Hemp Fibres: A Natural Solution for the Composite Industry. JEC Composites, Paris, pp. 141–162, 2012.

- [13] *Mazumdar, S.K.*, Composites Manufacturing, Materials, Product, and Process Engineering. CRC Press, Boca Raton, 2002.
- [14] *Berthelot JM.* Matériaux composites / comportement mécanique et analyse des structures. 4<sup>ème</sup> édition. Paris : Lavoisier, 2005.
- [15] *Hancox, N.L., Sajic, P., Tattersall, P., Tetlow, R., Lovell, D.R.*, A Guide to High Performance Plastics Composites. The British Plastics Federation, London, 1980.
- [16] *Gornet L.* Généralités sur les matériaux composites. cel-00470296, version 1 - 6 Apr 2010.
- [17] *R.G. Raj, B.V. Kokta, C. Daneault, J. Mater. Sci.* 25 1851-1855, 1990.
- [18] *Gay D.* Matériaux composites. 3<sup>ème</sup> édition. Paris : Hermès ; 1991.
- [19] *Callister. W.D.* Science et Génie des matériaux, Edition Dunod, Mont-Royal, Québec, p. 463, 2001.
- [20] *Y. Agari, M. Tanaka, S. Nagai, J. Appl. Polym. Sci.*, Vol. 34, Livre, p 1429, 1987.
- [21] *C. M. Chan, J. Wu, J. X. Li and Y. K. Cheung, Polymer*, Vol. 43, Livre, p 2981, 2002.
- [22] *A. Boudenne, E. Géhin, L. Ibos, M. Fois, J. C. Majeste*, Congrès Français de Thermique, SFT juin, Grenoble, p 551, 2003.
- [23] *Peters, S.T.*, Composite materials and processes. In: Harper, C.A. (Ed.), Handbook of Plastics, Elastomers, and Composites. fourth ed. The McGraw-Hill, New York, pp. 229–320, 2004.
- [24] *Askeland, D.R., Fulay, P.P.*, Essentials of Materials Science and Engineering, second ed. Cengage Learning, Toronto, 2009.
- [25] *Clegg, D.W., Collyer, A.A.*, The Structure and Properties of Polymeric Materials. Institute of Materials, London, 1993.
- [26] *TOMLIMSON W-J, HOLLAND R.*, Advantages of pultruded thermoplastics , Reinforced Plastics, Vol 37, Issue 10, pp 46-49, 1993.
- [27] *BIRON M.*, Thermoplastics and Thermoplastic Composites : Technical Information for plastic Users, Elsevier, 2007.
- [28] *ORANGE G., TUPINIER D., ODONI L.*, Composites Hautes Performances à base de Polymères Haute Fluidité : Compromis Processabilité, Propriétés Mécaniques et Durabilité, Matériaux 2010, Nantes France, 2010

- [29] *El Hadji Babacar LY.* Nouveaux matériaux composites thermoformables à base de fibres de cellulose, thèse de doctorat, institut national polytechnique de Grenoble, 2008.
- [30] *Proulx P.P., Cormier G., Capohianco J.A., Champagnon B., Bettinellis M.,* « Spectroscopie Raman et Raman à Basses Fréquences dans des Verres de Métaphosphate de Plomb, de Zinc et de Baryum Dopés avec l'Ion Eu<sup>3+</sup>», *Journal of Physics Condens. Matter* 6, pp. 215-283, 1994.
- [31] *Bailey, M.S., Brauer, D.,* Polypropylene: New Array of Polymer Variations Expand End-use Applications, *Modern Plastics Encyclopedia 1995*, reference book (M603.1.5) – McGraw-Hill, 1994.
- [32] *Graves, V.,* Polypropylene: A Commodity Plastic Reaches Record Highs in 1994 Production, *Modern Plastics Encyclopedia 1996*, reference book (M603.1.6) – McGraw-Hill, 1995.
- [33] Polypropylene: High Price/Performance Ratio Provides Growth, *Modern Plastics*, trade journal (vol 74, no. 1) – McGraw-Hill, 1997.
- [34] Shell Polypropylene Injection Molding Guide, supplier design guide (SC:797-89) – Shell Chemical Company, 1989.
- [35] *Miller, R. C., Blair, R. H., Vernon, W. D., Walsh, T. S.,* Polypropylene, *Modern Plastics Encyclopedia 1992*, reference book (M603.1.2) – McGraw-Hill, 1991.
- [36] *Materials Handbook*, reference book (ISBN 0-07-007074-1) McGraw-Hill, 1991.
- [37] *Portnoy, R.C.,* Polypropylene for Medical Device Applications, *Medical Plastics and Biomaterials*, trade journal (vol. 1, no. 1) – Canon Communications, 1994.
- [38] *Kelly A., Zweben C.,* Comprehensive composite materials : polymer matrix composites, Vol. 2, Elsevier, 2000.
- [39] *O'Neill, M.,* Polypropylene Makes Inroads in Large Appliances, *Modern Plastics*, trade journal (vol 73, no. 5) – McGraw-Hill, 1996.
- [40] *Colvin, R.,* Performance PPs Make Gains in Kitchen Appliances, *Modern Plastics*, trade journal (vol 73, no. 13) – McGraw-Hill, 1996.
- [41] *Leaversuch, R.D.,* Houseware Molders Seek Out New PP Technologies, *Modern Plastics*, trade journal (vol 73, no. 13) – McGraw-Hill, 1996.
- [42] *Olvin, R.,* Super-soft Grades Could Be a Billion-lb. Replacement Market, *Modern Plastics*, trade journal – McGraw-Hill, 1997.
- [43] *Moore, E.P., Larson, G.A.,* Introduction to Polypropylene in Business, *Polypropylene Handbook*, reference book (ISBN 3-446-18176-8) – Carl Hanser Verlag, 1996.

[44] *Topics In Chemistry* – BASF Plastics Research And Development, supplier technical report – BASF Aktiengesellschaft, 1992.

[45] *Menges, G.*, *Materials Fundamentals in Plastics Recycling, Recycling and Recovery of Plastics*, reference book (ISBN 1-56990-214-3) –Hanser, 1995.

[46] *Dennison, M.T., Mennicken, T.*, *Plastics Recycling in Europe, Plastics Packaging Recycling*, conference proceedings (ISBN: 1-85957-105-0) – Rapra Technology Ltd., 1997.

[47] *Fox, R.C.*, *Recycling and Disposal of Plastics Packaging*, monograph (ISSN 0889-3144) – Rapra Technology Ltd., 1989.

[48] *Future* – The Hoechst Magazine, supplier newsletter (HB920EBR/014) –Hoechst, 1992.

[49] *Baley. C, Grohens. Y, and Pillin. I*, "State of the art regarding biodegradable composites".*Revue des Composites et des Matériaux Avances*, 14, p. 135- 166, 2004.

[50] *Blom H., Teh J. et Rudin A.*, PP/PE Blends. IV. Characterization and Compatibilization of Blends of Postconsumer Resin with Virgin PP and HDPE, *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 70, p. 2081 – 2095, 1998.

[51] *Epacher E., Tolveth J., Stoll K. et al.*, Two-Step Degradation of High-Density Polyethylene During Multiple Extrusions, *Journal of Applied Polymer Science*, 1999, vol. 74, p. 1596–1605, 1999.

[52] *Mantia F.L.*, Mechanical Properties of Recycled Polymers, *Macromoleculare Symposia*, vol. 147, p. 167–172, 1999.

[53] *Bernardo C., Cunha A. et Oliveira M.*, The Recycling of Thermoplastics : Prediction of the Properties of Mixtures of Virgin and Reprocessed Polyolefins, *Polymer Engineering and Science*, vol. 36, no. 4, p. 511–519, 1996.

[54] *Teteris G.*, Degradation of Polyolefines During Various Recovery Processes, *Macromoleculare Symposia*, vol. 144, p. 471–479, 1999.

[55] *Juliana Cruz, Raul Fangueiro*, Surface modification of natural fibers: a review-University of Minho, Guimarães, Portugal, 2C2T].

[56] *Anthony Roland Bunsell*, Chapitre 1 : Constituants des composites, sous la direction de Jacques Renard, élaboration microstructure et comportement des matériaux composites à matrices polymère, livre, édition Lavoisier, 2005 Jean-Marie Berthelot, Mécanique des matériaux et structures composites, édition ISMANS, 2010.

- [57] *Christopher C. Ihueze , Christian E. Okafor , Chris I. Okoye*, Natural fiber composite design and characterization for limit stress prediction in multiaxial stress state, *Journal of King Saud University Engineering Sciences* 27, 193–206, 2015.
- [58] *M.Z. Rong, M. Qiu, Y. Liu, G. Cheng, H. Min*, *Compos. Sci. Technol.* 1437–1447, 2001.
- [59] *Alain Dufresne*, Chapter 6 : Nanocomposites based on natural fibers ,*Sabu Thomas & Laly A.Pothan*, Natural fibre reinforced polymer composites from macro to nanoscale, livre, éditions des archives contemporaines, 2011
- [60] *Alessandro Gandini et Mohamed Naceur Belgacem*, *La chimie des substances Renouvelables, l'actualité chimique*, page 11-12, 2002
- [61] *Juliana Cristina da Silva, Rubens Chaves de Oliveira, Armando da Silva Neto, Vanessa Cunha Pimentel, Allan de Amorim dos Santos*, Extraction, Addition and Characterization of Hemicelluloses from Corn Cobs to Development of Paper Properties, *Procedia Materials Science* 8 (793 – 801), 2015
- [62] *Alessandro Gandini et Mohamed Naceur Belgacem*, *La chimie des substances Renouvelables, l'actualité chimique*, page 11-12, 2002.
- [63] *FRANKLIN E. BARTON, II*, *Chemistry of Lignocellulose: Methods of Analysis and Consequences of Structure*, *Animal Feed Science and Technology*, 21 (279-286), 1988
- [64] *Kanokporn Burapapadh , Hirofumi Takeuchi , Pornsak Sriamornsak*, Development of pectin nanoparticles through mechanical homogenization for dissolution enhancement of itraconazole, *asian journal of pharmaceutical s c i e n c e s* 11 365–375, 2016.
- [65] *Huda Abdallah Mohamed and Babiker El Wassila Mohamed*, Fractionation and Physicochemical Properties of Pectic Substances Extracted from Grapefruit Peels, *J Food Process Technol* 2015.
- [66] *Cibele Freitas de Oliveira , Diego Giordani , Rafael Lutkemier , Poliana Deyse Gurak , Florencia Cladera-Olivera , Ligia Damasceno Ferreira Marczak*, Extraction of pectin from passion fruit peel assisted by ultrasound, *LWT - Food Science and Technology* 71, 2016.
- [67] *M.M. Kabir, H. Wang, K.T. Lau, F. Cardona*, *Composites Part B: Eng.* 43 2883–2892, 2012.

- [68] *Nicolas DUJARDIN*, Maître de Conférences. 25èmes Journées Scientifiques de l'Environnement, Hôtel du département, Créteil, 18 février 2014. (Un matériau biosourcé de choix : les fibres naturelles Caractérisations et applications) université paris-est, 2014
- [69] *Michel Nardin*, Interfaces fibre-matrice dans les matériaux composites, Christophe baley, renforcement des polymères par des fibres végétales, livre édition Lavoisier, 2006
- [70] *Christopher C. Ihueze a, Christian E. Okafor a, Chris I. Okoye*, Natural fiber composite design and characterization for limit stress prediction in multiaxial stress state , Journal of King Saud University – Engineering Sciences 27, 193–206, 2015.
- [71] *Chaabane K ;Bergaoui R ;Ben Hammouda M ;* Utilisation de différents types de grignons d'olive dans l'alimentation des lapereaux , World Rabbit Science, 17-21, 1997.
- [72] *Aurrekoetxea J, Sarrionandia MA, Urrutibeascoa I, Maspoch M Li.* Effects of recycling on the microstructure and the mechanical properties of isotactic polypropylene. J Mater Sci 2001.
- [73] *Salem Krim, Amar Boukerrou, Hocine Djidjelli, Johnny Beaugrand, & Dalila Hammich*, REPROCESSING OF COMPOSITES BASED ON POLYPROPYLENE LOADED WITH OLIVE HUSK FLOUR, Composites: Mechanics, Computations, Applications: An International Journal 9(2):163–187, 2018.
- [74] *Cherfa N*, résistance à l'impact d'un polypropylène recyclé, mémoire magister, université de Boumerdes, 2007.
- [75] *Doan Thi Thu Loan*, Investigation on jute fibres and their composites based on polypropylene and epoxy matrices; Thèse de doctorat, l'université de Dresden, 2006.
- [76] *Hee-Soo Kim, Sumin Kim, Hyun-Joong Kim, Han-Seung Yang;* Thermal properties of bio-flour-filled polyolefin composites with different compatibilizing agent type and content; Thermochemica Acta 451, 181-188, 2006.
- [77] *S.M. Luz, J. Del Tio, G.J.M. Rocha, A.R. Goncalves, A.P. Del'Arco Jr,* Cellulose and cellulignin from sugarcane bagasse reinforced polypropylene composites: Effect of acetylation on mechanical and thermal properties, Composites: Part A 39, 1362-1369, 2008.
- [78] *Joseph. P.V, Joseph. K, Thomas. S, Pillai. C. K. S, Prasad. V. S, Groeninckx. G,* The thermal and crystallisation studies of short sisal fibre reinforced polypropylene composites, Composites : partA , 34, p.253-266, 2003.

- [79] Szabo. P, Varheygi. G, Till. F, Thermogravimetric/mass spectrometric characterization of two energy crops, *Arundo donax* and *Miscanthus sinensis*, *J Anal. Appl. Pyrol*, 36, p.179-190, 1996.
- [80] J.R. Araujo, W.R. Waldman, M.A. De Paoli, Thermal properties of high density polyethylene composites with natural fibres: Coupling agent effect; *Polymer Degradation and Stability* 93, 1770-1775, 2008.
- [81] W. Z. W. Zahari, R. N. R. L. Badri, H. Ardyananta, D. Kurniawan and F. M. Nor, Mechanical Properties and Water Absorption Behavior of Polypropylene / Ijuk Fiber Composite by Using Silane Treatment, *Procedia Manufacturing* 2 573 – 578, 2015.
- [82] C.Combeau, Etude des instabilités volumiques en extrusion de polystyrene et polypropylene, thèse de doctorat , Ecole des mines de Paris (sciences fondamentales et appliquées), p.27, 2004.
- [83] Faix, O., Argyropoulos, D.S., Robert, D., Neirinck, V., Determination of hydroxyl groups in lignins evaluation of 1H-, 13C-, 31P NMR, FTIR and wet chemical methods. *Holzforschung* 48 (5), 387–394, 1994.
- [84] Pouteau, C., Dole, P., Averous, L., Boquillon, N., Antioxidant properties of lignin in polypropylene. *Polym. Degrad. Stab.* 81, 9–18, 2002.
- [85] A.T.R. Sugano-Segura, L.B. Tavares, J.G.F. Rizzi, D.S. Rosa, M.C. Salvadori, D.J. dos Santos, Mechanical and thermal properties of electron beam-irradiated polypropylene reinforced with Kraft lignin, *Radiation Physics and Chemistry* 139 5–10, 2017.
- [86] Nadia BAHLOULI, Effets du Recyclage sur les polymères et les polymères chargés, Laboratoire ICube – Département de Mécanique Equipe MMB (Matériaux Multiéchelle et Biomécanique) Université de Strasbourg, CNRS, 2014.
- [87] L.Dobircau, P.A Sreekumar, R.Saiah, N.LebLANC, C. Terrié, R. Grattin, J.M. Saiter, Wheat flour thermoplastic matrix reinforced by waste cotton fibre : Agro-greeb-composites, Part A 40, 329-334, 2009.
- [88] M. Kazayawoko, J. J. Balatinecz, L. M. Matuana, Surface modification and adhesion mechanisms in woodfiber-polypropylene composites, *Mat.Sci* 34,6189-6199, 1999.



## Résumé

Dans cette présente étude, nous visons à examiner les effets de recyclage sur la structure et les propriétés d'un composite à matrice polypropylène renforcé par la fibre du grignon d'olive. Les mélanges ont été préparés par extrusion bi-vis en maintenant les mêmes conditions (T=180°C, w=50tr/min, t=8min).

Les altères obtenues feront l'objet de notre étude, elles ont été soumises à une série de tests microscopiques et mécaniques (IRTF, DRX, Traction...).

La spectroscopie infrarouge a montré qu'aucun changement n'a été observé dans la matrice F1 après le recyclage, ce qui indique que le recyclage n'implique pas de véritable modification de la structure chimique du PP.

En conclusion, cette étude a prouvé clairement que les composites présentent de grandes potentialités en termes de recyclage. Sans aucun doute, ceci fera l'objet d'une révolution pour l'industrie et une solution pour la préservation de l'environnement.

**Mots-clés :** polypropylène, composites, recyclage, farine de grignon d'olive, propriétés mécaniques.

## Abstract

In this study, we aim to examine the effects of recycling on the structure and properties of a polypropylene matrix composite reinforced with olive pomace fiber. The mixtures were prepared by twin-screw extrusion maintaining the same conditions (T = 180 ° C., w = 50 rpm, t = 8 min).

The alterations obtained will be the subject of our study, they have been subjected to a series of microscopic and mechanical tests (IRTF, DRX, Traction ...).

Infrared spectroscopy showed that no changes were observed in F1 matrix after recycling, indicating that recycling does not involve a real change in the chemical structure of PP.

In conclusion, this study has clearly demonstrated that composites have great potential in terms of recycling. Without a doubt, this will be the subject of a revolution for the industry and a solution for the preservation of the environment.

**Key words:** polypropylene, composites, recycling, olive pomace flour, mechanical properties.