

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche

Scientifique Université A. MIRA – BEJAIA



Faculté de Technologie

Département de Génie des

Procédés



En vue de l'obtention du diplôme de

MASTER

En Génie des Procédés

Spécialité : Génie des polymères

Thème

Etude des Biocomposites à base de
biopolymères/fibre végétales : Fibre de diss

Etudiantes

M^{elle} ABOUD Narimane

M^{elle} ALLAOUA Wahiba

Encadré par :

Dr. TOUATI Naïma

Dr. ZAIDI Lynda

Promotion 2019/2020

REMERCIEMENTS

Nous remercions dieu le tout puissant de nous avoir donné le courage, la patience et la volonté pour réaliser ce travail.

Nous tenons à remercier nos encadreurs **Dr Naïma TOUATI** et **Dr lynda ZAIDI** pour L'intérêt qu'elles ont portées à ce travail et pour ses orientations, ses conseils et ses Riches connaissances.

On remercie particulièrement **Dr Idris ZEMBOUAI**.

Nous adressons également nos remerciements à tous le département de Génie des procédés, Faculté de Technologie de l'Université de Bejaia.

Nous remercierons les membres du jury que nous remercions d'avoir accepté de juger ce travail.

Nous ne pouvons pas oublier de remercier tous les membres de nos familles pour leurs soutiens et leurs encouragements.

Enfin, nous remercions tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

Liste des abréviations

PLLA, PLA: Poly (acide lactique)

PHA: Polyhydroxyalkanoate

PHB: Polyhydroxybutyrate

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

PP: Polypropylène

PEHD: Polyéthylène haute densité

MEB: Microscopie électronique à balayage

ATG: Analyse thermogravimétrique

DTG: Differential thermal analysis (analyse thermogravimétrique différentielle)

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

DSC: Differential scanning calorimetry (calorimétrie différentielle à balayage)

T_f: Température de fusion

T_g: Température de transition vitreuse

ΔH_f: Enthalpie de fusion

CNC: Cellulose nanocristalline

PBSA: Poly(butylène succinate-co-butylène adipate)

T_c : Température de cristallisation

MET : Microscopie électronique en transmission

BF : fibre de banane

Sommaire

Chapitre I : Les fibres naturelles végétales

I.1. Présentation des fibres naturelles.....	4
I.2. Classification des fibres naturelles.....	4
I.3. Structure des fibres végétales.....	6
I.5. Morphologie des fibres végétales.	7
I.6. Composition chimique des fibres végétales.....	8
I.6.1. Cellulose.	9
I.6.2. Hémicellulose.	10
I.6.3. Lignine.	11
I.6.4. inorganiques.	12
I.6.5. protéines et extractibles.....	13
I.7. Propriétés des fibres végétales.	13
I.7.1. Propriétés physiques des fibres végétales.	14
I.7.2. Propriétés mécaniques des fibres végétales.	15
I.7.3. Propriétés thermiques des fibres végétales.	16
I.7.4. Biodégradation des fibres naturelles.....	17
I.8. Répartition géographique de fibres végétales en Algérie.	18
I.9. Méthodes d'extraction des fibres végétales.	18
I.9.1. Prétraitement.	18
I.9.2. Extraction mécanique.....	19
I.9.3. Extraction chimique	21
I.9.4. Extraction biologique.....	22
I.10. Modification des fibres naturelles.....	24
I.10.1. Traitement à la soude	24

I.10.2. Traitement par acide stéarique	26
I.10.3. Traitement par les silanes.....	27
I.10.4. Traitement Plasma	29
I.10.5. Traitement Corona	29
I.10.6. Traitement thermique.....	30
I.11. Plante de Diss (Ampelodesmos Mauritanius).....	30
I.11.1. Composition chimique de la fibre de Diss	31
I.11.2.Morphologie et microstructure des fibres de diss	32
I.11.3. Stabilité thermique de la fibre de Diss	34
I.11.4. Applications de fibre Diss.....	35

Chapitre II : Matériaux biocomposites à renfort fibres végétales

II.1. Constituants des matériaux composites à base de fibres végétales	36
II.1.1. Matrice polymère.....	37
II.1.2. Matrice biopolymère.....	38
II.1.3. Classification des polymères biodégradable.....	39
II.1.4. Poly (3-hydroxybutyrate-co-3hydroxyvalérate) (PHBV).....	39
II.2. Renforts	42
II.2.1. Renfort en fibres discontinues	42
II.2.2. Renfort continu	43
II.3. Interface fibre-matrice	43
II.4. Freins affectant le développement des biocomposites	43
II.4.1. Effet de la Composition chimique des fibres.....	44
II.4.2. Stabilité thermique du composite	44
II.4.3. Effet de la teneur de fibres.....	45

II.4.4. Effet de la longueur et du facteur de forme des fibres.....	46
II.4.5. Dispersion et orientation des fibres	47
II.5. Mise en œuvre des biocomposites à fibres végétales	48
II.6. Rappels bibliographiques sur les biocomposites à matrice biopolymères et fibres végétales	49

Liste des tableaux

Tableau I.1 : Propriétés morphologiques de quelques fibres végétales.

Tableau I.2 : Composition chimique (% massique) de quelques fibres végétales.

Tableau I.3 : Propriétés physiques et mécaniques de fibres naturelles et synthétiques.

Tableau I.4 : Variation WVR des fibres de sisal traitées avec de l'acide stéarique à différentes concentrations.

Tableau I.5 : Propriétés mécaniques de PP/Banane fibres (BF) composites.

Tableau I.6 : Composition chimique de la fibre de Diss.

Tableau II.1 : Comparaison des propriétés des PHA avec les propriétés des polyoléfines.

Tableau II.2 : Freins affectant le développement des biocomposites à base de fibres végétales.

Tableau II.3 : Performances mécaniques de composite époxy renforcé par des fibres végétales.

Tableau II.4 : Propriétés mécaniques des biocomposites biopolymère/fibres d'Alfa.

Tableau II.5 : Propriétés mécaniques de PHBV, PBAT, des biocomposites PHBV/kénafe et PBAT/kénafe.

Tableau II.6 : Propriétés thermiques des biocomposites à base de PLLA/kénafe.

La liste des figures

Chapitre I

Figure I.1 : Classification des fibres naturelles.

Figure I.2 : Structure d'une fibre élémentaire végétale.

Figure I.3 : Structure chimique de la cellulose.

Figure. I.4 : Structure de la microfibrille de cellulose.

Figure I.5 : Structure d'hémicelluloses.

Figure I.6 : Représentation schématique d'une structure de lignine.

Figure I.7 : Représentation schématique de l'agencement des différents composants des Fibres végétales à l'échelle micrométrique.

Figure I.8 : Présentation de l'angle micro-fibrillaire.

Figure I.9 : processus de dégradation thermique d'une fibre végétale (thermogrammes ATG/DTG).

Figure I.10 : Gisement de fibres végétales en Algérie.

Figure I.11 : Ecang pour teillage manuel (a) cylindres cannelées pour teillage mécanique (b).

Figure I.12 : Rouissage à l'eau des fibres d'Aloe Vera.

Figure I.13 : Réaction de traitement par la soude.

Figure I.14 : Réactions chimiques du traitement par un alcoxyde de silicium fonctionnalisé.

Figure I.15 : Fibres de diss.

Figure I.16 : Plante de Diss (Ampelodesmos Mauritanius).

Figure I.17 : Observation par MEB de la structure externe de la fibre de Diss à différente échelle.

Figure I.18 : Photographies (a) plante de Diss, (b) fibres non traitées, (c) fibres de Diss après traitement alcalin, (d) fibres de Diss après blanchiment.

Figure I.19 : Micrographies en MEB : (a) plante de Diss, (b) fibres de Diss non traitées (c) fibres de Diss après traitement alcalin, (d) fibres de Diss après blanchiment.

Figure I.20 : Thermogrammes DTG d'une fibre de Diss traité et non-traité.

Figure I.21 : Image visuelle de la plante Diss et des tiges. Schéma et images des fibres diss lors des prétraitements chimiques et enzymatiques. Images de poudres CNC après acide ; traitement d'hydrolyse appliqué aux fibres blanchies chimiquement et enzymatiquement.

Chapitre II

Figure II.1 : Quelques applications des biocomposites.

Figure II.2 : Schéma d'un composite idéal.

Figure II.3 : Cycle de vie d'un polymère biosourcé et biodégradable.

Figure II.4 : Classement des plastiques biodégradables.

Figure II.5 : Structure chimique du PHBV.

Figure II.6 : Biosynthèse du PHB et du PHBV dans l'alcaligènes eutrophus.

Figure II.7 : Orientation de fibres au cours de la fabrication.

Figure II.8 : Pressions et temps habituellement appliqués pour diverses techniques de mise en œuvre des composites à fibres végétales.

Figure II.9 : Clichés par Microscopie optique à lumière polarisée de PLLA (a) et PLLA/kénaf (80/20) (b).

Figure II.10 : Thermogrammes ATG : (a) PLLA, (b) PLLA/KF (90/10), (c) PLLA/KF (80/20), (d) PLLA/KF (70/30), and (e) KF.

Figure II.11 : Evolution du module élastique (G') et module visqueux (G'') des

biocomposites en fonction de la fréquence.

Figure II.12 : Évolution de l'absorption d'eau du PHBHHx et des biocomposites PHBV/Aloe vera en fonction de la racine carrée du temps (en h^{1/2}).

Figure II.13 : Thermogrammes ATG et DTG du PHBHHx et des biocomposites PHBHHx/fibres d'Aloe vera.

Introduction

Introduction

Le renforcement des polymères par des fibres naturelles a suscité durant ces dernières décennies un intérêt croissant aussi bien des industriels que des chercheurs. Cette nouvelle classe de matériaux composites exhibe en particulier de bonnes propriétés mécaniques, permettant ainsi l'élargissement du domaine d'application des matières plastiques

Parallèlement à ceci, des efforts scientifiques et technologiques considérables sont axés sur la préservation de l'environnement en réduisant ou en éliminant même l'utilisation de matrices polymères dérivées du pétrole qui sont souvent polluantes, en particulier en fin de vie. De plus, les filières de recyclage actuelles ne sont pas du tout adaptées à ce type de matériaux composites et le recyclage reste la solution dominante. C'est pourquoi l'attention se porte de plus en plus sur les matériaux dits "respectueux de l'environnement" tels que les biocomposites à base de biopolymères biodégradables qu'ils soient d'origine naturelle ou synthétique, et de charges comme l'amidon, les fibres naturelles [1].

Il existe une grande variété de fibres naturelles qui peuvent être utilisées pour le renforcement ou comme charges. Parmi celles-ci, on retrouve les fibres animales (poils des animaux), les fibres minérales (amiante) et les fibres végétales (coton, lin, chanvre, jute, sisal, palmier, etc) [2, 3]. Dans ce mémoire, nous nous sommes focalisés uniquement sur les fibres naturelles végétales.

La fibre végétale utilisée dans ce travail est le « DISS », elle appartient à la famille des graminées. La plante de diss est répandue dans l'Afrique du nord méditerranéenne et les régions sèches de la Grèce à l'Espagne. Cette plante était utilisée auparavant dans la réalisation des habitations en raison de ses qualités mécaniques. La plante de diss se trouve à l'état sauvage, c'est une plante annuelle, et très disponible sur toute la côte algérienne, et jusqu'à plus de 100 Km à l'intérieur du pays. L'utilisation de ces fibres est limitée à la confection des couffins, à lier les branches de vignes ou à la confection des balais cantonniers. De point de vue gain à la fois technologique, économique et écologique, l'utilisation de ces fibres dans les composites permet de préserver les ressources non renouvelables et d'ouvrir de nouveaux marchés [4, 5].

Parmi les polymères biodégradables susceptibles de constituer une alternative intéressante aux polymères dits pétrochimiques, il y a les poly(hydroxyalcanoates) (PHA) qui sont des thermoplastiques aliphatiques et semicristallins produits par fermentation bactérienne. Ils sont commercialisés sous diverses appellations. De plus, ils sont

biocompatibles et biorésorbables. Parmi les PHA, le poly(3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalérate) (PHBV) est l'un des copolymères le plus utilisé en raison de sa température de fusion abaissée et ses propriétés mécaniques améliorées. Néanmoins, l'utilisation industrielle massive des polymères biodégradables est freinée par plusieurs inconvénients, tels que les propriétés physiques parfois limitées jugées insuffisantes pour de nombreuses applications industrielles. L'inconvénient majeur de ces biopolymères est leur coût de revient élevé (coût et faible production). Ils ne sont donc pas totalement destinés à remplacer massivement les matières plastiques conventionnelles.

Il est possible de faire évoluer ces propriétés principalement au travers de deux approches [6, 7]: (i) la modification chimique et (ii) l'association physique du polymère avec d'autres composés par une démarche de type "formulation". Les biocomposites s'inscrivent surtout dans cette deuxième stratégie. Il s'agit d'incorporer des charges et/ou fibres au sein d'une matrice biopolymère afin de concevoir des matériaux présentant des propriétés améliorées (mécaniques, barrières, stabilité thermique, transparence...).

Cependant, le mélange biopolymères-fibres végétales conduit souvent à des matériaux composites fragiles et très peu performants en raison du manque de compatibilité entre les deux composants. Le caractère hydrophobe de la majorité des polymères et le caractère hydrophile des fibres végétales affectent négativement l'adhésion. D'où la nécessité de modifier les contraintes interfaciales pour les rendre favorables et par voie de conséquence, améliorer la morphologie et les propriétés des biocomposites. Des méthodes variées sont énumérées dans la littérature pour modifier la surface de ces fibres comme le traitement alcalin [8], le traitement avec des silanes [9] ou encore avec d'autres produits chimiques afin d'améliorer la compatibilité des fibres avec la matrice polymérique.

C'est dans cette optique que nous nous sommes fixés d'inscrire notre travail dont les principaux objectifs s'articulent autour de:

- Traitement chimique de la surface de la fibre de diss soit par traitement alcalin ou par les silanes
- Elaboration et caractérisation de biocomposites à base de biopolymère et fibre végétale (fibre de diss) traitée et non traité à différents taux de charge.

Mais malheureusement, on n'a pas pu réaliser la partie expérimentale vu les conditions sanitaires qui prévaut actuellement dans le pays suite à la pandémie de la Covid-19. Donc, on a apporté quelques notions et rappels bibliographiques sur les biocomposites à base de biopolymères et fibres végétales.

Le manuscrit comporte deux chapitres :

Le premier chapitre est consacré à la description des fibres naturelles en générale et les fibres naturelles de type végétales en particulier, en parallèle on a cité quelques biopolymères puis on a présenté quelques travaux antérieurs réalisés dans le domaine de traitement des fibres.

Le deuxième est axé sur les biocomposites et quelques rappels bibliographiques des travaux antérieurs sur l'élaboration et caractérisation des biocomposites à base de biopolymères et fibres végétales.

On termine ce travail par une conclusion.

Références
bibliographiques

Références

- [1] L.Hassaini; « Etude de la Morphologie et des propriétés de biocomposites poly (3-hydroxybutyrate –co-3-hydroxyvalérate) (PHBV) / farine de Grignons d'olive » ; thèse de doctorat , université de Bejaia , 2016.
- [2] Abdelmouleh. M, Boufi.S, Belgacem. M. N, Dufresn. Ae, “Short natural-fibre reinforced polyethylene and natural rubber composites: Effect of silane coupling agents and fibres loading”, *Composites Science and Technology*, pp 1627-1639, 1967.
- [3] SPINU, M. Evaluation des paramètres physiques et physico-chimiques qui influencent l'accessibilité de la cellulose. Thèse de doctorat. L'école nationale supérieure des mines de paris, 2010.
- [4] Martin Lévesque, «L'essai de traction de matériaux composites unidirectionnels à fibres continues», Université de Montréal, Décembre 2000.
- [5] Nicolas Tessier-Doyen, « Etude expérimentale et numérique du comportement thermomécanique de matériaux réfractaires modèles », L'université de limoges, 2003.
- [6] H. Mokhothu and M. J. John, “Review on hygroscopic aging of cellulose fibres and their biocomposites, ” *Carbohydrate Polymers*, vol. 131, pp. 337–354, 2015.
- [7] L.K. Kian , N. Saba , M. Jawaid , M.T.H. Sultan A review on processing techniques of bast fibers nanocellulose and its polylactic acid (PLA) nanocomposites. *International Journal of Biological Macromolecules* 121, 1314–1328, 2019.
- [8] Arsene M'A., Okwo A., Blida K., Soboyejo A.B.O and Soboyejo W.O. Chemically and thermally treated vegetable fibers for reinforcement of cement-based composites. *Materials and Manufac. Process.* 22: 214-227, 2007.
- [9] Fabiola Vilaseca, Alex Valadez-Gonzalez, Pedro J. Herrera-Franco, M. Àngels Pèlach, Joan Pere López, Pere Mutjé; Biocomposites from abaca strands and polypropylene. Part I: Evaluation of the tensile properties; *Bioresource Technology* 101, 387-395, 2010.

Chapitre I

Fibres naturelles végétales

Chapitre I

Fibres naturelles végétales

I.1. Présentation des fibres naturelles

Les fibres naturelles sont utilisées depuis 3000 ans dans les composites, par exemple dans l'ancienne Égypte, où la paille et d'argile étaient mélangés pour construire des murs. Au cours de la dernière décennie, les composites renforcés de fibres naturelles ont reçu une attention croissante, tant auprès du monde universitaire que de diverses industries. Il existe une grande variété de fibres naturelles qui peuvent être utilisées pour le renforcement ou comme charges [1, 2].

Les fibres végétales sont des parois cellulaires ayant une structure fibrillaire, constituées essentiellement de cellulose, d'hémicellulose et de lignine en plus de composés en faibles proportions à savoir les cires, les lipides, les matières minérales et les composés solubles dans l'eau [3]. Les proportions de ces différents constituants dépendent énormément de l'espèce, de l'âge et des organes de la plante [4-5]. Cependant, la plupart des propriétés de la plante végétale sont régies par les trois composantes polymériques principales (cellulose, hémicellulose et lignine) [6]. Compte tenu de ces trois principaux constituants organiques, les fibres végétales sont donc collectivement dénommées fibres lignocellulosiques, matériels lignocellulosiques, ou simplement lignocellulose. Aussi, un des grands défis dans l'utilisation industrielle des matières lignocellulosiques est de comprendre la composition très variable et les attributs résultants de différences entre les espèces, ainsi que la variation souvent considérable entre les individus d'une espèce et même au sein de plantes individuelles [3].

I.2. Classification des fibres naturelles

Les fibres naturelles sont classifiées selon leurs origines en trois groupes (figure I.1):

- Les fibres végétales qui comprennent les fibres provenant des poils séminaux de graines (coton), les fibres extraites des tiges de plantes (lin, chanvre, jute), les fibres extraites des feuilles (sisal), les fibres extraites de troncs (palmier), ou d'enveloppes de fruits (noix de coco) [7].
- Les fibres animales qui proviennent soit des poils des animaux, soit des sécrétions tel que la soie, Alpaga; ect ... [8].

- Les fibres minérales telles que l'amiante

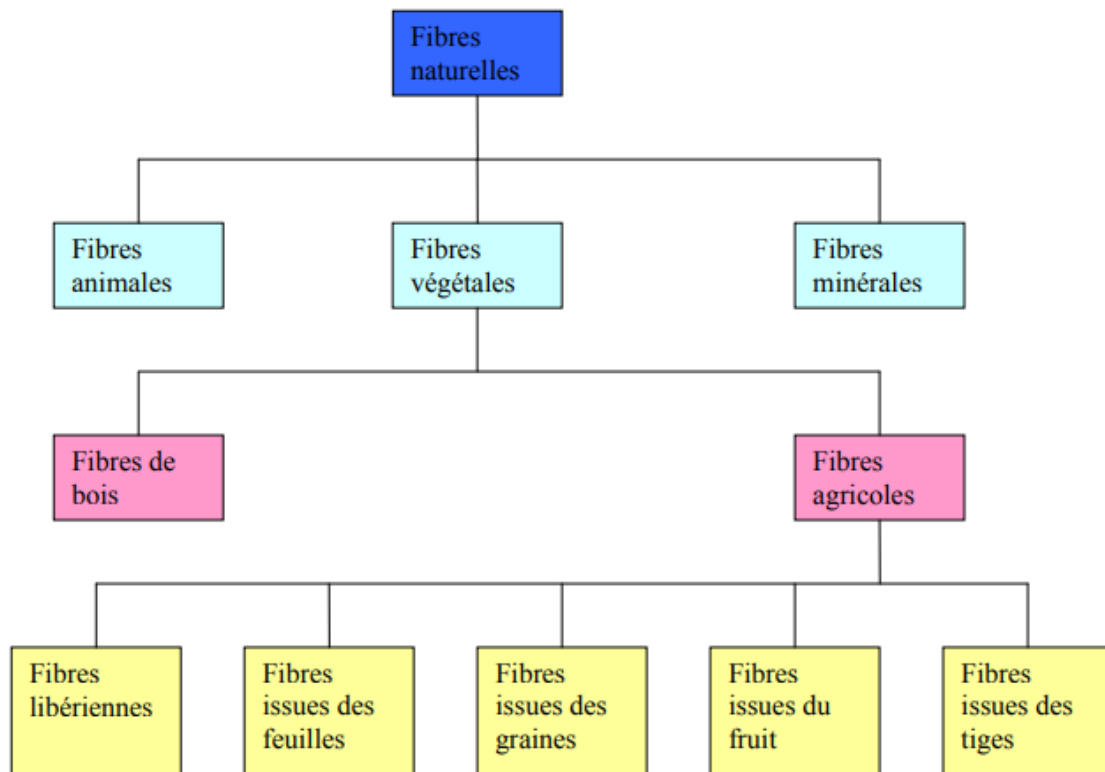


Figure I.1 : Classification des fibres naturelles [2].

Dans ce mémoire, nous nous sommes focalisés uniquement sur les fibres naturelles végétales. La classification des fibres végétales est assez complexe. Selon la littérature, les fibres végétales peuvent être classées en trois catégories selon [9]:

- **L'origine des fibres** : de tige (kéraf, jute, lin, ramie, etc.), de feuilles (sisal, abaca, paille de graminées, etc.), Troncs (palmier), de fruits (noix de coco) ou de graines (coton, kapok, etc.).

- **La longueur des fibres**: qui est fonction du procédé technologique utilisé pour son extraction. La plupart des fibres libériennes et les fibres issues de feuilles, considérées comme fibres longues, présentent des longueurs supérieures à 120-150 mm. En revanche, les fibres ayant une longueur de fibres comprise entre 20 et 60 mm, par exemple le coton, sont considérées comme étant des fibres courtes-discontinues.

- **Les critères fonctionnels**: (i) les fibres de faible rigidité, généralement issues de plantes annuelles pauvres en lignine (coton, chanvre, jute, lin), se caractérisent par un toucher doux; (ii) les fibres plus grossières présentant une rigidité en torsion et en flexion plus importante,

sont plus dures et se caractérisent par une teneur en lignine plus importante. Des exemples typiques sont le bois, le sisal et l'abaca.

I.3. Structure des fibres végétales

Les fibres végétales, quelle que soit leur origine ont toutes la même structure de base (figure I.2). Cette structure est multicouche et possède essentiellement :

- Une couche intercellulaire ou lamelle mitoyenne: d'épaisseur comprise entre (0.5 – 2 μm) et est composée de substances pectiques auxquelles de la lignine peut être ajoutée, elle permet de lier les cellules les unes aux autres;

- Une paroi primaire : très mince (0.03 – 0.1 μm), elle est souvent confondue avec la couche intercellulaire. Elle contient une grande quantité de lignines. Ses microfibrilles de celluloses enchevêtrées de lignines et hémicelluloses forment un réseau poreux :

- Une paroi secondaire : composée de trois couches de microfibrilles (S1, S2, S3). La couche S1 est constituée de microfibrilles croisées, avec un angle compris entre 60° et 80° par rapport à l'axe de la cellule. La couche S2 constitue la partie la plus volumineuse de la paroi. Elle est composée de microfibrilles en hélice formant un angle de 5° à 50° par rapport à l'axe de la cellule. La couche S3 est constituée de microfibrilles dont l'orientation varie entre 60° et 90° par rapport à l'axe de la cellule.

Chaque couche est donc essentiellement un matériau composite dans lequel les microfibrilles de cellulose rigide sont noyées dans une douce matrice composée principalement de la lignine et des hémicelluloses. L'orientation des microfibrilles par rapport à l'axe de la cellule joue un grand rôle dans les propriétés mécaniques des parois des fibres. Plus l'angle des microfibrilles augmente, plus sa rigidité diminue, tandis que l'extensibilité des parois augmente.

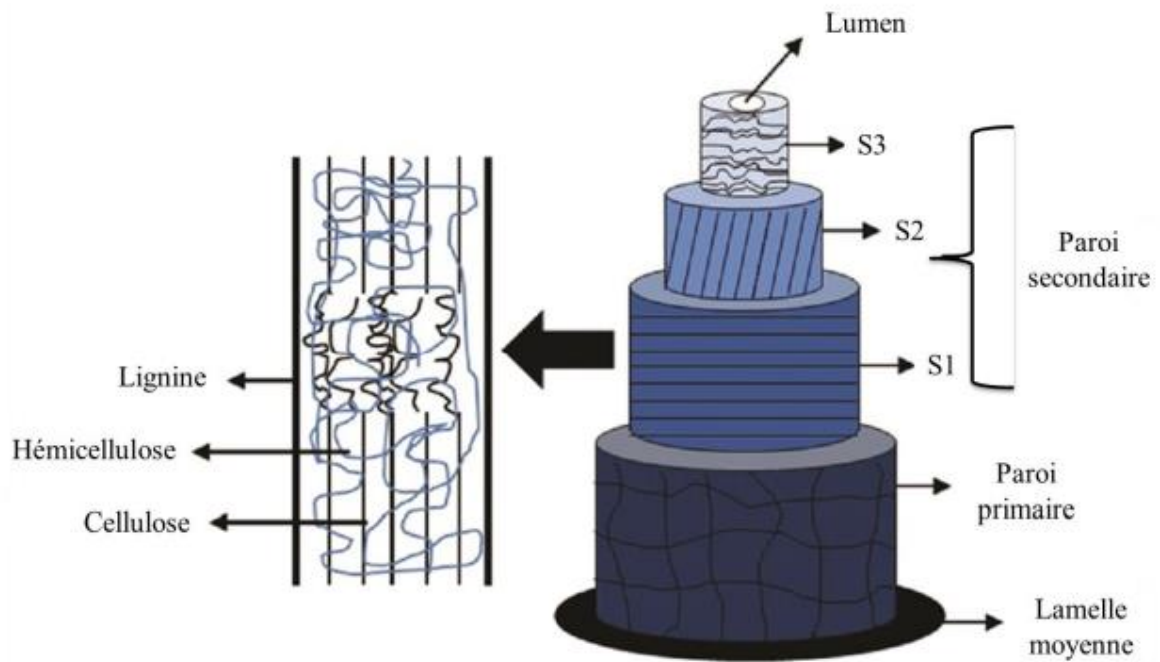


Figure I.2: Structure d'une fibre élémentaire végétale [10].

I.5. Morphologie des fibres végétales

La morphologie des fibres végétales est fonction de plusieurs facteurs qui influent sur ses dimensions. Elle dépend de l'origine de la biomasse, des conditions environnementales de croissance de la plante, et aussi de l'état de maturité de cette dernière. Le caractère variable du diamètre et de la longueur de la paroi des fibres végétales constitue une donnée importante pour bien appréhender les transferts de contraintes aux interfaces fibre-matrice [11]. Les propriétés morphologiques de quelques fibres végétales sont répertoriées dans le tableau I.1

Tableau I.1. Propriétés morphologiques de quelques fibres végétales [11].

Fibres	Longueur (mm)	Diamètre (μm)
Coton	25	12 – 25
Lin	4 – 8.5	12 – 30
Jute	2.5	5 – 25
Sisal	100 -125	100 -400
Chanvre	5 – 40	16 – 50
Kènaf	2.5- 4.5	14 – 33

I.6. Composition chimique des fibres végétales

Les fibres végétales sont fondamentalement constituées de la cellulose, d'hémicelluloses, et de la lignine. On y trouve en faibles quantités les pectines, les pigments et les extractibles. Leurs proportions varient en fonction de l'origine botanique de la fibre étudiée [12].

Tableau I.2: Composition chimique (% massique) de quelques fibres végétales [12].

Fibres	Cellulose (%)	Lignine (%)	Hémicellulose (%)	Pectine (%)	Cendre (%)
Fibre de tige:					
Bambou	46 – 58	20 – 22	16 – 20	8 – 10	-
Kénaf	37 – 49	15 – 21	18 – 24	-	2 – 4
Jute	41 – 48	21 – 24	18 – 22	-	0.8
Fibres d'écorce/ libériennes :					
lin	71	2.2	18.6 – 20.6	2.3	-
kénaf	31 – 57	15 – 19	21.5 – 23	-	2 – 5
jute	45 – 71.5	12 – 26	13.6 – 21	0.2	2 – 5
chanvre	57 – 77	3.7 – 13	14 – 22.4	0.9	0.8
ramie	68.6 – 91	0.6 – 0.7	5 – 16.7	1.9	-
Fibre de feuillage :					
Abaca					
Sisal	56 – 63	7 – 9	15 – 17	-	3
Henequen	47 – 78	7 – 11	10 – 24	10	0.6 – 1
	77.6	13.1	4 – 8	-	-

I.6.1. Cellulose

La cellulose est le polymère renouvelable le plus abondamment disponible sur terre avec une production annuelle estimée de 1011 à 1012 tonnes, englobant environ 33% de toutes les matières végétales. Le terme cellulose, est le nom trivial de β -1,4-D-glucopyranan. C'est un homopolysaccharide linéaire, avec un degré de polymérisation allant de plusieurs centaines à plus de dix milles. La cellulose est composée d'unités de β -Danhydroglucopyranose, également appelées unités anhydroglucose et glucopyranose, mais abrégé universellement AGU, liées par des liaisons éther β -1,4 appelées liaisons glycosidiques. Le β -D-anhydroglucopyranose est un hétérocycle à six chaînons avec un carbone anomère (marqué C1) et généralement présent dans la conformation chaise. L'extrémité réductrice du polymère correspond à l'unité anhydroglucopyranose dont le Carbone anomérique n'est pas lié à une autre unité glucidique (figure I.3). Les chaînes de

Cellulose présentent la particularité d'avoir deux extrémités chimiquement différentes. De ce fait, elle est en équilibre avec la forme aldéhyde minoritaire. La cellulose possède une structure semi-cristalline, c'est-à-dire qu'elle présente à la fois des zones très ordonnées (zones cristallines) et des zones désordonnées (zones amorphes). Les zones cristallines vont conférer à la cellulose son importante résistance mécanique, alors que les zones amorphes vont conduire au gonflement de la cellulose en présence de solvant [13-14].

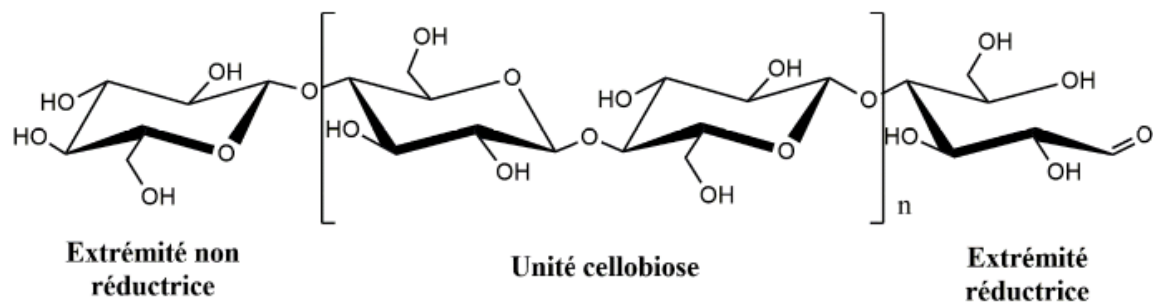


Figure I.3 : Structure chimique de la cellulose [15].

Dans la nature, la cellulose ne se présente pas comme une molécule individuelle isolée, mais se trouve sous forme d'assemblages de fibres individuelles formant des chaînes de cellulose. D'une manière générale, environ 36 assemblages de chaînes de glucanes sont réunis par des forces de van der Waals et des liaisons hydrogènes intra et intermoléculaires en plus grandes unités appelées fibrilles élémentaires (protofibrilles), qui se regroupent en plus grandes unités appelées microfibrilles, et celles-ci sont à leur tour assemblées en fibres de cellulose familières [16].

La cellulose, qui se compose de milliers d'unités de glucose, peut s'empiler pour établir des formes cristallines avec des liaisons hydrogènes intramoléculaires fournissant un polymère stable avec une haute résistance à la traction. Les groupements hydroxyles et leur habilité à former des liaisons hydrogènes jouent un rôle majeur dans l'orientation du réseau cristallin et gouvernent les propriétés physiques de la cellulose [17]. La structure moléculaire de la cellulose détermine ses propriétés caractéristiques : hydrophilie, dégradabilité et

Réactivité chimique. Elle est également le siège d'un très grand nombre de liaisons hydrogènes qui lui confèrent une structure fibreuse partiellement cristalline. Les propriétés de la cellulose sont ainsi déterminées par son organisation supramoléculaire, cette dernière étant directement liée à l'organisation des microfibrilles (figure I.4). Les macromolécules de

Cellulose sont susceptibles de former de multiples liaisons hydrogène intramoléculaires et intermoléculaires qui s'établissent d'une macromolécule à une autre, à partir des groupements hydroxyles. Ces liaisons hydrogènes lui confèrent une structure fibreuse partiellement cristalline. Les chaînes de cellulose peuvent donc s'associer entre elles. Elles constituent des microfibrilles de taille variable. Certaines régions de ces dernières sont hautement ordonnées (zones cristallines) et d'autres le sont moins (zones amorphes) [16,17].

Les chaînes de cellulose sont rassemblées en structures basiques appelées microfibrilles (Figure I.4) qui ont des diamètres de 2 à 20 nm. Chaque microfibrille peut être considérée comme des chaînes de cristaux de cellulose liés par des domaines amorphes. Contrairement aux autres composants des fibres qui possèdent une structure amorphe, la cellulose possède en effet une structure en grande partie cristalline. La cellulose cristalline est l'un des polymères ayant le module d'élasticité le plus élevé, soit environ 136 GPa à comparer aux 75 GPa de la fibre de verre [17].

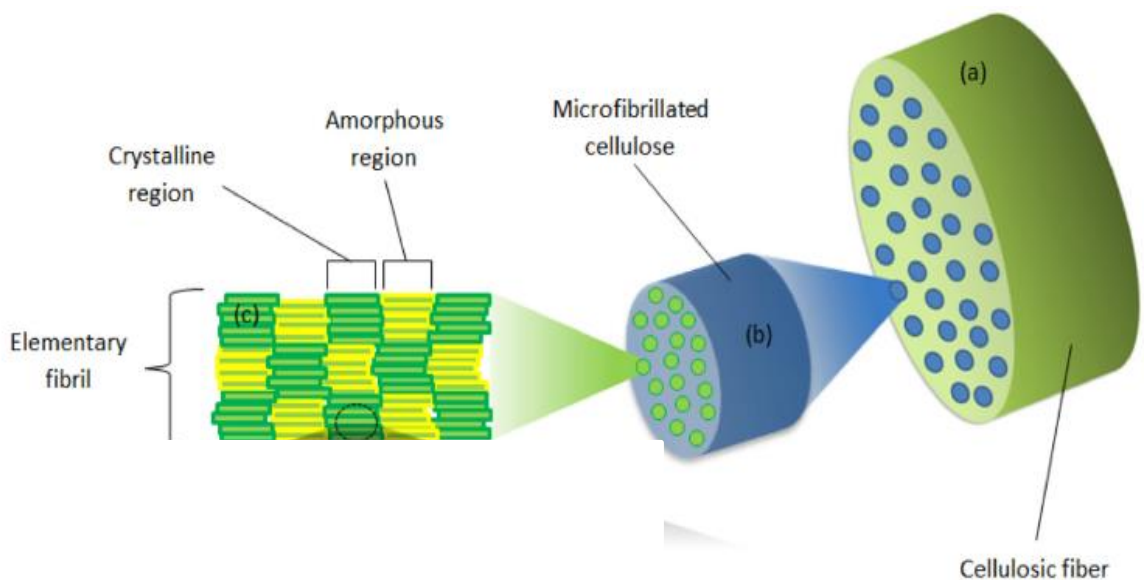


Figure. I.4: Structure de la microfibrille de cellulose [17].

I.6.2. Hémicellulose

Les hémicelluloses sont des hétéropolysaccharides qui diffèrent de la cellulose par leur ramification et leur faible degré de polymérisation (50 à 300 unités). Elles peuvent être linéaires ou branchées. En plus du glucose, les monomères de l'hémicellulose peuvent être de la xylose, du mannose, du fucose, du galactose, du rhamnose ou de l'arabinose et des acides uroniques. Leurs formules générales sont $(C_5H_8O_4)_n$ ou $(C_6H_{10}O_5)_n$, appelées respectivement

pentosanes et hexosanes [18]. Les hémicelluloses les plus courantes, principalement présentes dans les feuillus ou les plantes annuelles, sont constituées d'une chaîne principale de 1,4- β -D-xylopyranosyle avec un nombre variable de chaînes latérales basées sur des unités L-arabinofuranosyle, 4-O-méthyl-D-glucuronopyranosyle, Lgalactopyranosyle ou D-glucuronopyranosyle [18]. Les principales hémicelluloses présentes dans le bois dur sont les (4-O-méthyl-D-glucuronopyranosyl) -D-xylanes partiellement acétylés et souvent appelés simplement xylanes (figure I.5). Les hémicelluloses sont essentiellement utilisées pour la production de sucres. En effet, en milieu acide, l'hydrolyse de la plupart des hémicelluloses conduit aux monomères constitutifs tels que le xylose, le glucose et l'arabinose. La fermentation alcoolique ou enzymatique des sucres ainsi formés, les transforme en alcools (éthanol, butanol) et en acides organiques (butyrique, acétique, lactique).

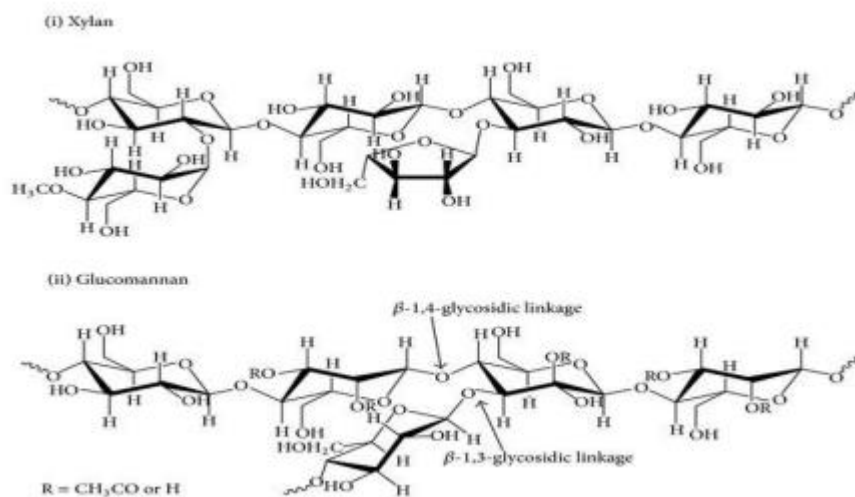


Figure I.5 : Structure d'hémicellulose [18]

I.6.3. Lignine

La lignine est un copolymère tridimensionnel complexe constitué de composés aromatiques et aliphatiques à très haut poids moléculaire. Elle est constituée de trois unités différentes de type phénylopropane à savoir les alcools p-coumarylique, coniférylique et sinapylique (figure I.6). C'est un matériau amorphe et hydrophobe de nature. Sa chimie n'a pas encore été précisément établie, mais la plupart de ses groupes fonctionnels et les unités structurales de la macromolécule ont été identifiés. Elle est caractérisée par la forte teneur en carbone mais une faible teneur en hydrogène [19]. La lignine confère la résistance et la

rigidité aux parois cellulaires en plus d'une protection contre les agents pathogènes microbiens. La teneur de la lignine dans les plantes est très variée étant donné qu'elle dépend souvent de la méthode d'analyse. Les lignines sont intimement associées à l'hémicellulose et la cellulose dans les parois cellulaires des plantes. Elle joue le rôle d'agent incrusté dans la matrice cellulose/hémicellulose, pour cette raison, la lignine est souvent dénommée l'adhésif de la paroi cellulaire végétale. En plus de la cellulose, l'hémicellulose et la lignine, les parois cellulaires des plantes contiennent d'autres molécules organiques comme les protéines, les tanins, les pectines, les cires, les composés aromatiques et les glucides de faible poids moléculaire.

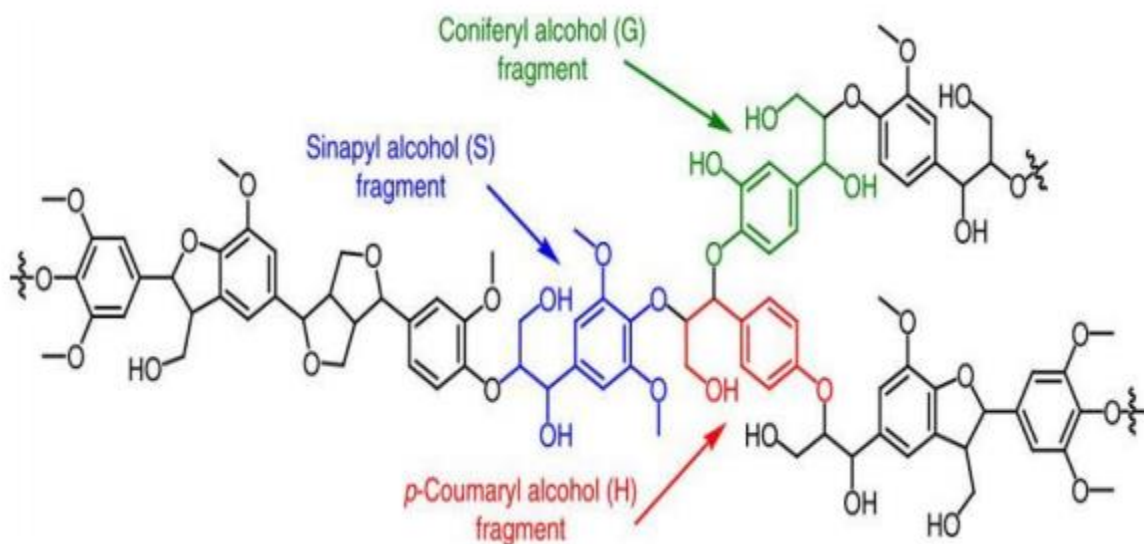


Figure I.6: Représentation schématique d'une structure de lignine [19].

I.6.4. Les inorganiques

La quantité des inorganiques est connue d'après la quantité de cendres obtenue après la dégradation des fibres à une température de 575 ± 25 °C sous air. Ce sont des sels minéraux et d'autres matières inorganiques. Leur quantité est généralement élevée dans les plantes contenant de grandes quantités de silice [19]. Les fibres de lin, kénaf, coton et sisal sont pauvres en inorganiques (entre 0,8 et 5 % en masse), tandis que les différentes variétés de miscanthus contiennent entre 2 et 6 %m d'inorganiques et les fibres de bambou en contiennent entre 5 et 17 % en masse [20].

I.6.5. Protéines et extractibles

Les protéines sont des polymères d'acides aminés parmi lesquels on trouve les enzymes et les toxines. Souvent, la quantité des protéines est considérée comme étant une partie du contenu de la lignine puisque les deux sont isolés par la même procédure [21].

Les extractibles constituent en général entre 0,3 et 3% de la masse des fibres naturelles. Ils constituent les membranes cellulaires telles que la graisse, les acides gras, les alcools gras, les terpènes, les stéroïdes, les résines et les cires. Ils peuvent être des monomères, dimères et polymères [22]. (figure I.7)

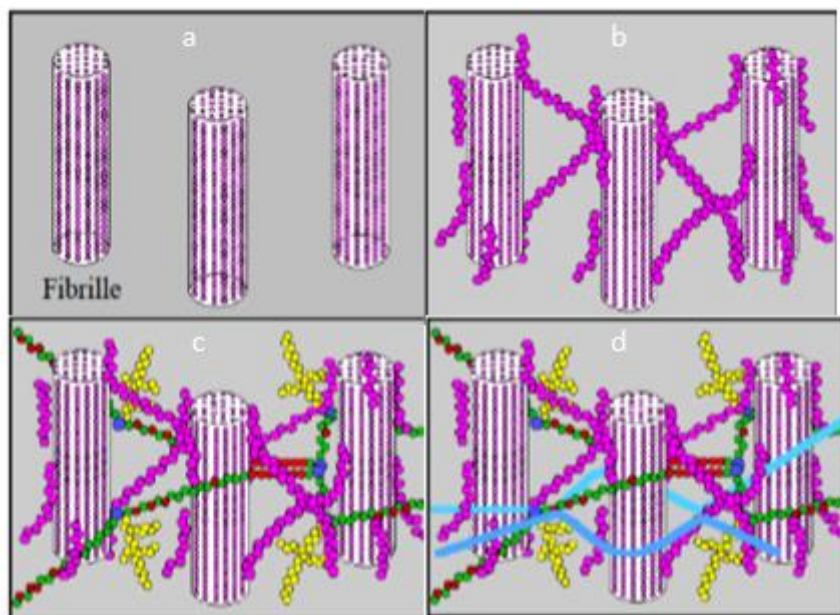


Figure I.7: Représentation schématique de l'agencement des différents composants des fibres végétales à l'échelle micrométrique (**a** : Cellulose seule ; **b** : Cellulose et hémicelluloses; **c** : Cellulose, hémicelluloses et pectine; **d** : Cellulose, hémicelluloses, pectines et réseau de protéines dans plusieurs acides [22]).

I.7. Propriétés des fibres végétales et module de Young

La structure, les dimensions des cellules, les défauts, et la composition chimique des fibres sont les principales variables qui conditionnent l'ensemble des propriétés des fibres. En règle générale, la résistance à la traction et le module d'Young des fibres croît avec l'augmentation de la teneur en cellulose [22].

I.7.1. Propriétés physiques des fibres végétales

Les propriétés physiques des fibres sont d'une importance cruciale dans la détermination du potentiel des fibres dans différentes applications industrielles. Comme décrit précédemment, les propriétés physiques des fibres telles que la résistance, les dimensions, la structure, la cristallinité et la variabilité des fibres sont les paramètres essentiels à prendre en considération lors de l'utilisation des fibres dans une application donnée pour la production d'un matériau de haute performance [23]. En effet, les dimensions des fibres telles que: la longueur, la largeur, le facteur de forme (longueur/largeur), l'épaisseur et la densité, sont importantes pour comparer les différents types de fibres naturelles. Le degré d'ouverture d'un matériau fibreux est d'impact majeur sur les propriétés du matériau, vis-à-vis des aspects mécaniques, physiques et chimiques. Le degré d'ouverture dépend de facteurs tels que le nombre de fibres par unité de poids, la longueur, l'épaisseur et la ramification des fibres. Les fibres naturelles hydrophiles et le caractère hydrophobe de la plupart des polymères conduit à des difficultés de dispersion des fibres dans la matrice, ce qui perturbe les propriétés du composite résultant. Il s'agit d'un inconvénient majeur des composites renforcés par des fibres naturelles [24].

a)- Densité

La densité varie peu d'une espèce de fibre végétale à une autre et est liée à la porosité de la fibre. Elle est de l'ordre de $1,5 \text{ g/cm}^3$ [25].

b)- Dimensions

Une fibre végétale a une longueur comprise entre 1 et 250 mm. Son diamètre peut atteindre plusieurs dizaines de microns ; revêt d'une importance capitale lorsqu'il s'agit de fabriquer un composite unidirectionnel, car le renfort doit être le plus continu possible et la surface de contact entre la matrice et les fibres suffisante pour assurer le transfert de charge [25].

c)-Angle micro-fibrillaire

Il est un point de différenciation très déterminant parmi les propriétés physiques d'une fibre. Les bonnes propriétés mécaniques de la fibre peuvent s'expliquer en partie sur la base de l'organisation micro-fibrillaire [26]. (figure I.8)

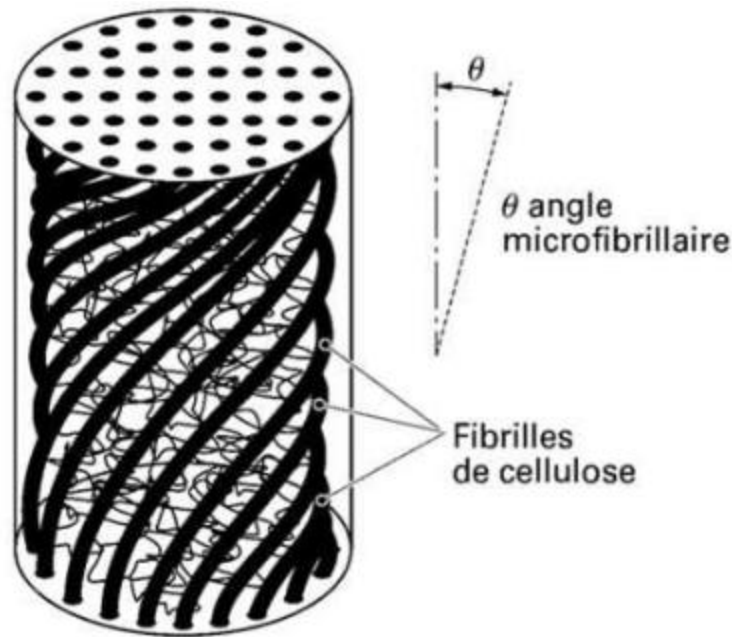


Figure I.8 : Présentation de l'angle micro-fibrillaire.

I.7.2. Propriétés mécaniques des fibres végétales

Les fibres naturelles végétales peuvent concurrencer les fibres synthétiques en termes de propriétés mécaniques. Les fibres végétales présentent des propriétés mécaniques très variables en fonction de la morphologie des fibres, de leur composition chimique, de leur cristallinité, du degré de polymérisation de la cellulose ainsi que la méthode d'extraction des fibres. La taille des fibres, et principalement le facteur de forme, influence les propriétés mécaniques des matériaux. En général, la résistance à la traction et le module de Young de fibres végétales augmentent avec la teneur en cellulose des fibres, alors que l'orientation des microfibrilles de cellulose par rapport à l'axe de la fibre détermine la rigidité des fibres [27].

Les fibres végétales sont plus ductiles si les microfibrilles présentent une orientation spirale par rapport à l'axe de la fibre. Les fibres sont moins flexibles et plus rigides avec une résistance à la traction plus importante si les microfibrilles sont orientées parallèlement à l'axe de fibres. En raison de la faible densité et la résistance relativement bonne des fibres végétales, celles-ci sont privilégiées comme renforts dans plusieurs applications [28].

Les fibres végétales peuvent également développer des défauts structuraux suite aux différents stress que peut subir la plante au cours des différentes étapes de sa vie, à titre d'exemple les teillages et les entortillements (plis) qui peuvent se former lors du processus de transformation, ce qui affecte considérablement la rigidité et la résistance du produit final. En

Outre, les fibres naturelles végétales sont hydrophiles par nature et contiennent une teneur substantielle d'humidité qui affecte les propriétés mécaniques. La teneur en humidité des fibres pourrait être liée aux volumes de pores dans les fibres, l'humidité relative, la composition chimique et la cristallinité des fibres. De façon générale, une teneur en cellulose, une humidité relative et un volume de pore élevés en plus d'une faible cristallinité des fibres ont tendance à causer des teneurs en humidité élevées [29]. Le Tableau I.3 présente les propriétés physiques et mécaniques des fibres naturelles généralement utilisées pour renforcer les composites à matrice polymérique.

Tableau I.3 : Propriétés physiques et mécaniques de fibres naturelles et synthétiques [30].

Fibre	Densité (g/cm ³)	Longueur (mm)	Diamètre (μm)	Taux d'humidité (%)	Module de Young (GPa)	Allongement à la rupture (%)	Résistance à la traction (MPa)
Coton	1.5-1.6	10-40	10-30	8-25	5.5-12.6	7-8	287-597
Lin	1.4-1.5	9-70	12-177	1.2-8	45-100	2.7-3.2	345-1100
Chanvre	1.5	5-55	5-51	1.2-6.2	70	1.6	690
Jute	1.3-1.46	2-5	40-350	12.5-13.7	27.6	1.5-1.8	393-773
Ramie	1.5	60-250	50	12-17	61.4-128	3.6-3.8	400-938
Kenaf	1.45	2-6	-	6.2-12	53	1.6	930
Sisal	1.33-1.5	1-8	100-300	11	9.4-22	2-2.5	511-635
Bois résineux	1.5	-	-	-	40	4.4	1000
Fibre de verre (E)	2.5-2.55	-	<17	-	70	2.5-3.4	2000-3500
Aramide	1.44	-	11.9	-	63-67	2.5-3.7	3000-3150
Fibre de carbone	1.82	-	8.2	-	-	1.3	2550

I.7.3. Propriétés thermiques des fibres végétales

En raison de leur structure chimique, chacune des trois composantes (cellulose, hémicelluloses et lignine) réagit différemment au cours du processus de dégradation thermique. La fibre végétale commence à se dégrader à environ 240 °C. La dégradation thermique des fibres naturelles est un processus en trois étapes (figure I.9) :

- Le processus de dégradation à faible température (100-180 °C), associé à la dégradation d'hémicellulose ;

- Le processus de dégradation à haute température (280-400 °C), dû à la dégradation de la cellulose.
- La lignine se dégrade avec une cinétique plus lente que les autres constituants

La stabilité thermique limitée des fibres végétales est l'un des inconvénients majeurs, principalement dans le cas de leur utilisation dans les composites. De nombreuses études ont montré que la modification chimique des fibres cellulosiques peut modifier leur stabilité thermique

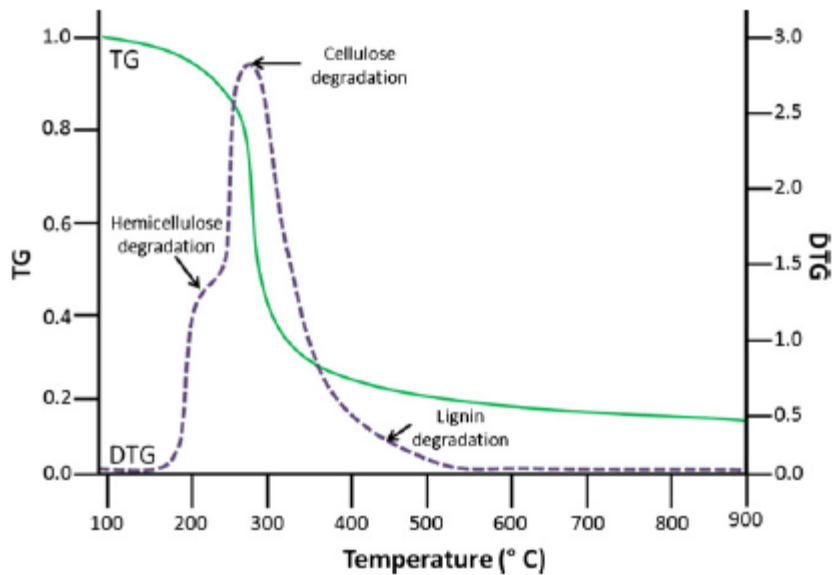


Figure I.9 : Processus de dégradation thermique d'une fibre végétale (Thermogrammes ATG/DTG) [30].

I.7.4. Biodégradation des fibres naturelles

Les fibres végétales sont biodégradables par des enzymes très spécifiques capables d'hydrolyser la cellulose et les hémicelluloses présents dans la paroi cellulaire. En contact avec les rayons UV, les fibres végétales subissent une dégradation photochimique. La photodégradation se déroule principalement au niveau de la lignine qui est responsable du changement de couleur. Ainsi, la surface devient plus riche en cellulose. La résistance à la photodégradation et à la biodégradation peut être améliorée par modification chimique de la fibre naturelle [31]

I.8. Répartition géographique de fibres végétales en Algérie :

L'Algérie dispose de réserves importantes de fibres végétales non valorisées qui peuvent être largement utilisées comme une ressource potentielle. Les fibres végétales sont

dispersées sur tout le territoire national, on les trouve dans les régions côtières beaucoup plus que les régions intérieures du pays, comme le voit clairement sur la figure I.10. L'utilisation privilégiée de ces fibres végétales pour la conception des biocomposites peut permettre de réduire les impacts environnementaux et contribuer à développer l'activité économique locale [32].

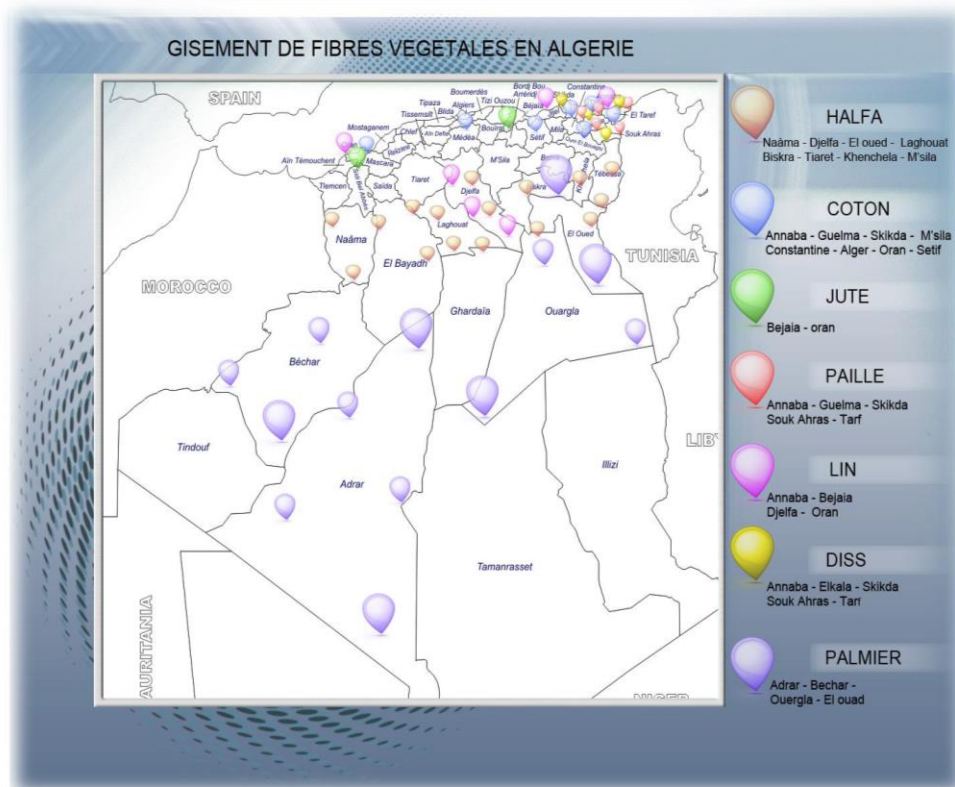


Figure I.10: Gisement de fibres végétales en Algérie

I.9. Méthodes d'extraction des fibres végétales :

II.9.1. Prétraitement

Avant de commencer l'extraction des fibres, un travail préliminaire s'impose afin de mieux préparer les tiges aux différents traitements, cette préparation va faciliter et augmenter l'efficacité des prochaines opérations d'extraction. La matière première arrive sous la forme de bottes (de 1-5 kg), les tiges contiennent parfois de la terre, des racines, de la poussière ou tout autre type d'impuretés, des tiges mortes sont quelque fois présentes dans le lot, la première opération consiste à éliminer toutes ces impuretés et/ou corps étrangers de façon à n'avoir que des tiges propres et utilisables [33].

I.9.2. Extraction mécanique

- **Teillage** : Cette méthode consiste à séparer le bois (le casser) des tiges par action mécanique : Broyage et battage, cette technique est plutôt utilisée pour extraire les fibres de lin ou de chanvre, les tiges sont prises par leurs extrémités et insérées dans le tilleul ou l'écang (instrument manuel à levier) si l'opération est manuelle, les tiges sont battues pour enlever le bois et cette opération est répétée jusqu'à ce que les fibres soient le plus souples possible, les morceaux de bois récupérés sont appelés les «anas», cette méthode ancestrale a été toujours effectuée manuellement avant de laisser la place aux machines. Par ailleurs, il existe aujourd'hui des systèmes complètement automatisés qui engagent et dégagent automatiquement les tiges sans aucune intervention humaine grâce à des systèmes de roues cannelées à grosses dentures (figure I.11), au début puis à plus fines denture par la suite, elles passent sous la cannelure des rouleaux avec un angle proche de 90° pour rendre le broyage plus efficace. L'opération est effectuée successivement côté pied et côté tête, les fibres courtes appelées aussi étoupes moins résistantes, et les anas sont récupérées par aspiration et séparées [34]. Enfin, pour donner aux fibres obtenues un meilleur aspect, les faisceaux de fibres sont divisés par une opération de peignage et séparées selon leur longueur.

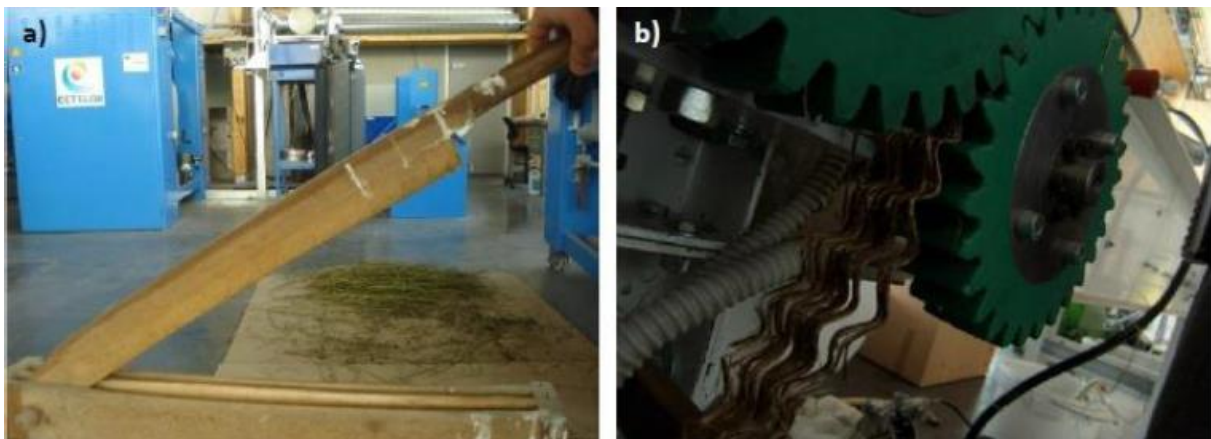


Figure I.11: Ecang pour teillage manuel (a) cylindres cannelés pour teillage mécanique (b) [34].

- **Par déflexion** : L'extraction des fibres se fait par action combinée de grattage et de battage, les machines Appelées «raspadors» (grattoir en langue espagnole) râpent les feuilles de la plante et libèrent les fibres, ces machines principalement constituées par un axe rotatif entraîné par un moteur sur lequel des supports maintiennent des batteurs en acier ont été fixés, les tiges insérées en amont de la machine sont prises entre ces batteurs et une table à ciseaux,

râpées et guidées vers le côté opposé, la poudre et le bois passent à travers des cribles, la distance qui sépare les lames est réglable en fonction du lot [35].

- **Par laminage** : Les tiges sont découpées en morceaux qui sont ensuite écrasés sous presse ou par laminage ou encore par combinaison des 2 traitements, ceci est effectué plusieurs fois de suite jusqu'à ce que les fibres soient le plus possible séparées [36].

- **Par explosion à la vapeur** : L'explosion à la vapeur connue également sous l'appellation anglaise « steam explosion » parue en 1924, est un procédé thermomécanochimique qui permet la déstructuration de la matière lignocellulosique par l'action combinée de la chaleur issue de la vapeur, des hydrolyses induites par la formation d'acides organiques et du cisaillement résultant de la chute brutale de pression [37,38], le procédé est composé de deux phases distinctes:

- **Vapocraquage**: Cette première phase consiste à faire pénétrer la vapeur sous haute pression par diffusion à l'intérieur de la structure du matériau, la vapeur va ainsi se condenser et en présence d'une haute température va initier l'hydrolyse des groupements acétylés et méthylglucuroniques contenus dans les xylènes et dans certaines fractions galactomannanes, les acides organiques libérés augmentent l'acidité du milieu et catalysent la dépolymérisation de la lignine [39].

- **Décompression explosive** : Cette deuxième phase consiste à une chute brutale de pression ce qui va provoquer la vaporisation d'une partie de l'eau présente dans le matériau, cette expansion brutale de la vapeur d'eau va créer des forces de cisaillement assez importantes pour réussir un éclatement mécanique dans la structure du matériau. Ces actions combinées vont selon les conditions modifier les propriétés physiques du matériau (surface spécifique, rétention d'eau, coloration, taux de cristallinité de la fraction cellulosique,...), améliorer l'hydrolyse des fractions hémi cellulosiques et induire des modifications dans la structure des lignines ce qui facilite leur extraction [40]. Tous ces procédés d'extraction mécanique souffrent de deux problèmes majeurs, le premier réside au niveau du risque élevé de chute de propriétés mécaniques des fibres suite aux sollicitations mécaniques qui peuvent être agressives et altérer les caractéristiques intrinsèques de fibre et ceci quel que soit le mode de séparation suivi, le deuxième étant le prix élevé des lignes d'extraction et leur encombrement [33].

I.9.3. Extraction chimique

La méthode de l'extraction chimique (figure I.12) permet d'éviter les inconvénients de l'extraction mécanique et surtout un gain de temps et d'énergie considérables, dans cette section nous présentons les principales méthodes d'extraction chimique des fibres végétales [35].

a). Procédé Kraft

Ce procédé alcalin visant à éliminer la lignine, les pectines et les hémicelluloses sous l'action d'une solution d'hydroxyde de sodium (NaOH) et de sulfure de sodium (Na_2S), ce dernier est un réducteur, il protège la cellulose et évite son oxydation, la température de cuisson est comprise entre 170 et 175 °C pour une durée de 2 à 4 heures, lors de la cuisson le sulfure de sodium est hydrolysé en soude en NaHS et en H_2S , les différents composés soufrés présents réagissent avec la lignine pour donner des thiolignines plus facilement solubles, la soude joue aussi un rôle de délignification qui s'associe à celui du sulfure et de ses dérivés, la liqueur appliquée au matériau est appelée liqueur blanche et la liqueur extraite du réacteur contenant les composés éliminés de la paroi est appelée liqueur noire [42].

b). Procédé au bisulfite

Le procédé au bisulfite permet de séparer la lignine des fibres de cellulose en utilisant divers sels de l'acide sulfureux, les sels utilisés dans le processus de réduction sont en fonction du pH: des sulfites (SO_3^{2-}) ou bisulfites (HSO_3^-), il est basé sur la réaction sur la lignine de l'hydrogénosulfite de calcium, sodium, ammonium ou magnésium contenant de l'anhydride sulfureux libre, l'anhydride sulfureux est préparé par combustion à partir du soufre dans un excès d'air, le bisulfite est directement obtenu par réaction de l'anhydride sulfureux, le pH est situé entre 1.5 et 5 (sulfites ou bisulfites), la durée est entre 4 et 14 heures et la température de 130 jusqu'à 160°C qui sont aussi en fonction de la base utilisée [42].

c). Procédé acide

Les composants non cellulosiques sont éliminés par l'action d'un acide de préférence fort tel que l'acide sulfurique qui transforme la lignine en acide lignosulfonique soluble, ou l'acide chlorhydrique qui grâce à ses ions chlorates, forme des chlorolignines solubles dans l'hydroxyde de sodium [33].

d). Procédé Soude-Anthraquinone

Le procédé Soude-Anthraquinone ou Kraft-Anthraquinone utilise un catalyseur tel que les composés quiconque dont fait partie l'antraquinone, de ce fait le temps de cuisson peut

être réduit et le rendement en pâte augmenté, les propriétés de ces pâtes sont comparables à celles des pâtes kraft [33].

e). Procédé à la soude

Ce procédé n'utilise que la soude NaOH pour dissoudre les substances non celluloses telles que la lignine, la pectine et l'hémicellulose ainsi que les différents constituants formant la réserve et la paroi extérieure de la tige de plante, la température, la pression, la concentration et la durée du traitement sont à définir en fonction du lot, l'âge et le type de la plante de telle façon à ne pas dégrader les fibres celluloses, il est conseillé de contrôler le pH de la solution et l'ajuster autour de 7, des réducteurs peuvent être rajoutés pour empêcher l'oxydation de la cellulose [33].

f). Procédé au sulfate neutre de sodium

Les fibres sont extraites à l'aide d'une solution de sulfate de sodium avec de carbonate de sodium à une température de 170° à 180°C sous pression (en autoclave), les substances ligneuses sont ainsi délignifiées, sulfonées et dépolymérisées et les hémicelluloses sont dissoutes, les fibres celluloses sont alors libérées [43].

I.9.4. Extraction biologique :

a). Rouissage à terre

Le rouissage est un procédé naturel destiné à favoriser l'extraction des fibres, il consiste à étaler les tiges (de lin par exemple) dans un champ après sa récolte, à fin de bénéficier de l'action combinée du soleil et de la pluie ce qui va favoriser le développement de microorganismes capables de dissocier les éléments non celluloses de la partie fibreuse de la plante par élimination des liaisons qui les relient ensemble, cette opération peut durer 6 à 8 semaines en fonction de la météo, malgré l'efficacité de cette méthode, elle connaît plusieurs handicaps qui résident dans sa dépendance entière des conditions météorologiques, le moindre problème tel qu'un excès d'humidité ou un manque peut affecter directement la qualité des fibres obtenues, en effet si les tiges sont trop rouies, elles doivent être brûlées obligatoirement car elles pourrissent difficilement et lentement et favorisent ainsi l'éclosion de maladies pour la culture suivante ; si la récolte n'est pas assez rouie elle n'est pas transformable et donc invendable, un autre paramètre difficile à contrôler et qui nécessite un bon dosage, c'est le vent qui peut être à la fois un ennemi et un allié lors du rouissage, quand il souffle trop fort, les tiges sont emportées vers l'extrémité du champ mais il est nécessaire au séchage, c'est donc l'alternance des périodes de sec et d'humidité avec un vent léger qui favorise un bon rouissage, une autre difficulté de ce procédé est sa durée très longue, donc le rouissage à l'air

est un procédé efficace si la météo est bonne mais qui reste très lent, par conséquent, c'est un procédé aléatoire [43].

b). Rouissage à l'eau

Ce type de rouissage repose sur le même principe de développement de micro-organismes que le rouissage à l'air, la différence est que les tiges (de chanvre par exemple) sont plongées dans l'eau pendant plusieurs jours, les bottes de 5 à 7 Kg sont soumises à l'action de bactéries anaérobies, dès que les fibres se détachent sur toute la longueur, la plante est sortie de l'eau pour être séchée, cette technique donne des résultats moins aléatoires que la première mais elle présente un handicap majeur la pollution de l'eau . En effet, le rouissage du lin et du chanvre très répandu au nord de l'Europe (France, Belgique, Pays Bas) s'effectuait traditionnellement en rivière avant qu'il soit interdit au début du 20ème siècle pour des raisons environnementales à cause de la décomposition bactérienne des bottes trempées au fond des rivières [33]



Figure I.12: rouissage à l'eau des fibres d'Aloe Vera [41].

c). Par action microbienne

Trois groupes d'agents microbiens sont capables de dégrader les composants non cellulosiques présents dans les tiges ou les feuilles des plantes ; les bactéries, les protozoaires et les champignons, dans la première catégorie de bactéries il existe trois espèces, une qui possède une activité dépolymérase et une autre glycosidasique capables d'hydrolyser la chaîne principale et de couper les chaînes latérales en utilisant les oligosaccharides et les oses libérés, la deuxième possède uniquement une activité dépolymérase mais incapable d'utiliser les produits d'hydrolyse des hémicelluloses, enfin la troisième qui possède des activités glycosidasiques mais dépourvue d'activité dépolymérase, plusieurs espèces des protozoaires sont capables de dépolymériser les hémicelluloses ainsi que pour les substances pectiques, mais elles n'ont qu'une capacité limitée à utiliser les produits d'hydrolyse comme source d'énergie. Concernant les champignons, ils sont capables de dépolymériser les hémicelluloses

et d'utiliser les oligosaccharides et les oses libérés et de solubiliser partiellement la lignine, cependant, elles ne peuvent pas dépolymériser les pectines [20].

I.10. Modification des fibres naturelles

Les fibres végétales sont incompatibles avec les polymères hydrophobes. Or, la qualité de l'interface fibre-matrice est importante pour l'utilisation des fibres naturelles comme fibres de renfort pour les polymères. Il est donc très souvent nécessaire de modifier la surface des fibres pour optimiser cette interface. Les méthodes de modification sont différemment efficaces en ce qui concerne l'adhésion entre la matrice et les fibres. Les fibres de renfort peuvent être modifiées par des méthodes physiques ou chimiques. Les méthodes physiques, telles que le traitement thermique, le laser, les rayons gamma, les UV, plasma... modifient les propriétés structurelles et de surface de la fibre et influencent ainsi les liaisons avec les polymères. Les modifications chimiques comprennent des traitements avec de la soude, du silane (alcoxyde de silicium fonctionnalisé), de l'acide acétique, ou encore à base de d'isocyanate, ect.

La méthode de couplage chimique est l'une des méthodes chimiques importantes, qui permet l'amélioration de l'adhérence interfaciale. Dans la littérature, les méthodes les plus fréquemment utilisées sont le traitement à la soude en premier lieu souvent suivi par une silanisation ou une acétylation ou encore l'addition d'un compatibilisant.

I.10.1. Traitement à la soude

Le traitement à la soude est l'un des traitements chimiques les plus utilisés avec les fibres naturelles lorsqu'elles sont utilisées pour renforcer les thermoplastiques et thermodurcissables. La modification importante apportée par un traitement alcalin est la diminution des liaisons hydrogène entre la cellulose et les deux autres principaux constituants : hémicellulose et lignine. La définition standard du mercerisage (proposée par la norme ASTM D1965) est la suivante : procédé qui consiste à soumettre une fibre végétale à une interaction avec une solution aqueuse concentrée d'une base forte, dans le but de provoquer un gonflement important résultant en des changements dans la structure fine, la dimension, la morphologie et les propriétés mécaniques [44, 45].

Le traitement par la soude change la topographie de la surface des fibres, supprime la cire, la pectine, une partie de la lignine, et l'hémicellulose ce qui est favorable à l'utilisation ultérieure des fibres comme renfort de matériaux polymères. En effet, l'élimination de ces composants est nécessaire car du fait de leur structure amorphe, ils conduisent à une résistance en traction plus faible [44, 46]. En plus, après le traitement à la soude, beaucoup de

groupes $-OH$ sont présents sur la surface des fibres (figure 1.13) et on peut donc traiter les fibres facilement avec d'autres constituants chimiques comme les silanes, l'acide acétique...

L'effet de la soude sur la fibre de cellulose est une réaction de gonflement, au cours de laquelle la structure cristalline naturelle de la cellulose relaxe. La cellulose native (telle qu'elle existe dans la nature) possède un réseau cristallin monoclinique de cellulose-I, qui peut être transformé en différentes formes polymorphes par des traitements chimiques ou thermiques.

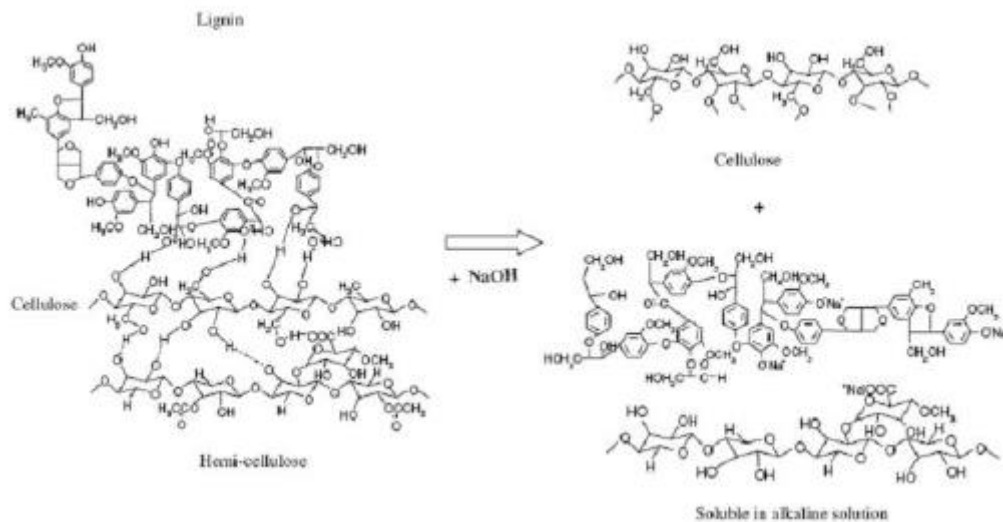
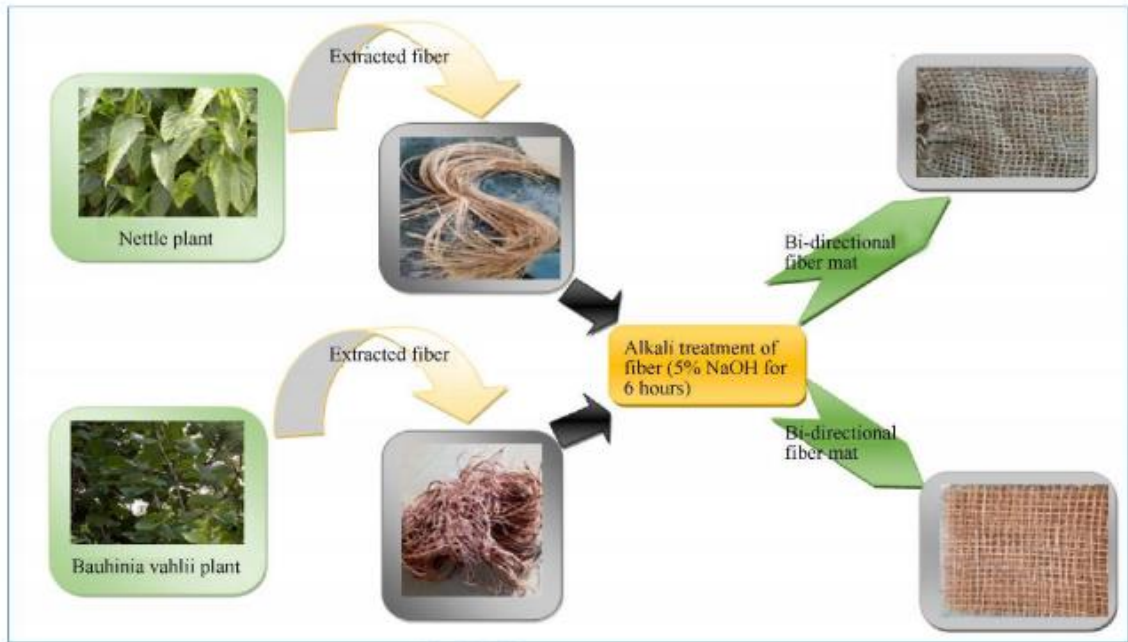


Figure I.13 : Réaction de traitement par la soude.

Le traitement d'alcalisation influence les propriétés thermiques et physiques des fibres naturelles. Loan [47] ont étudié la modification de surface des fibres de jute. Ils ont montré que le traitement à la soude ($NaOH$ 1%, 4 heures) améliore la résistance de la fibre. A cause du traitement alcalin, l'hémicellulose et la lignine sont supprimées, la région inter-fibrillaire est moins dense et moins rigide, ce qui permet aux fibrilles de se réorganiser dans le sens de la traction. Lorsque les fibres sont étirées, de tels arrangements entre les fibrilles se traduiraient par un meilleur partage de la charge.

Ray et al. [48] ont rapporté que le traitement alcalin a deux effets sur la fibre: il augmente la rugosité de surface, et il augmente la quantité de cellulose exposés sur la surface de la fibre, augmentant ainsi le nombre de sites de réaction possible (groupes $-OH$). Par conséquent, le traitement alcalin a un effet durable sur le comportement mécanique des fibres, en particulier sur la résistance et la rigidité de fibres. Après le traitement avec la soude, les fibres sont souvent traitées par du silane, de l'acide acétique, etc, afin de modifier la surface des fibres pour permettre aux fibres de mieux adhérer à la matrice de polymère.



I.10.2 Traitement par acide stéarique

Le traitement par acide stéarique est une autre technique de traitement des fibres végétales. L'acide stéarique de formule $\text{CH}_3(\text{CH}_2)_{16}\text{COOH}$ est utilisé pour modifier la surface des fibres. Le groupement carboxyle $-\text{COOH}$ de l'acide stéarique réagit avec les groupements hydroxyles hydrophiles de la fibre et réduit sa sensibilité à l'humidité. Ce traitement peut conférer aux fibres un caractère extrêmement hydrophobe. Cependant, il élimine certains constituants de la structure de la fibre (pectine, cire, etc.). Par conséquent, les faisceaux de fibres se décomposent et des phénomènes de défibrillation se produisent. Pour des applications composites, ce traitement favorise une meilleure liaison à l'interface fibres-matrice et fournit des meilleurs propriétés des composites.

En 2004, Kalaprasad et al. [49] ont traité les fibres de sisal avec de l'acide stéarique à différentes concentrations dans l'éthanol. Les résultats indiquent que la surface de la fibre devient de plus en plus hydrophobe avec l'augmentation de la concentration de l'acide stéarique (tableau I.4). Ce caractère hydrophobe conféré à la fibre de sisal la rend plus compatible avec le polyéthylène qui est également hydrophobe. Les auteurs ont rapporté également que la résistance à la traction et le module d'Young de ces composites à fibres de sisal ont été améliorés avec ce traitement. De plus, selon les auteurs, l'augmentation de la résistance à la traction est due au plus haut degré de dispersion des fibres de sisal traitées à l'acide stéarique.

Tableau I.4: Variation de WVR des fibres de sisal traitées avec de l'acide stéarique à différentes concentrations [49].

Concentration of stearic acid (wt%)	Weight of wet fibres, W_1 (g)	Weight of dry fiber, W_2 (g)	WRV, $(W_1 - W_2)/W_2$
0	5.0372	1.2373	3.0711
1	4.5511	1.2215	2.7258
2	4.3431	1.2193	2.5619
3	4.3201	1.2150	2.5556
4	4.2711	1.2103	2.5289
5	4.1981	1.2097	2.4703
6	4.0799	1.2093	2.3737

En 2010, Paul et al. [50] ont traité les fibres de banane avec l'acide stéarique. Tout d'abord, les fibres ont subi un traitement alcalin avec une solution de concentration de 10% pendant une heure. Après lavage et séchage, les fibres traitées ont été immergées dans une solution de 1% d'acide stéarique dans l'éthanol pendant 1 heure. Les composites à base de Polypropylène/ fibres traitées montrent une amélioration des propriétés mécaniques par rapport aux composites contenant des fibres non traitées (tableau I.5).

Tableau I.5 : Propriétés mécaniques de PP/Banane fibres (BF) composites

Composites	Tensile strength (MP_a)	Young's modulus (MP_a)	Elongation at break (%)
Untreated fiber composite	31 ± 1.3	1521 ± 35	6.0 ± 0.8
NaOH (10%) treated fiber composite	40 ± 1.7	1660 ± 26	3.4 ± 0.2
Stearic acid treated fiber composite	37 ± 1.7	1650 ± 26	4.5 ± 0.5
Benzoylated fiber composite	35 ± 0.9	1595 ± 36	4.0 ± 0.9
Vinyl trimethoxy silane	34 ± 1.0	1615 ± 24	4.0 ± 0.5
$KMnO_4$ treated fiber composite	33 ± 1.0	1635 ± 34	4.0 ± 0.5

I.10.3. Traitement par les silanes

Un alcoxyde de silicium fonctionnalisé appelé à défaut silane, représenté par $R'-Si(OR)_3$, est l'un des meilleurs agents de couplage, utilisés dans les composites polymère-fibres. Ce sont des composés hydrophiles avec différents groupements associés au silicium tels qu'une extrémité va interagir avec la matrice et l'autre avec la fibre hydrophile, agissant comme un pont entre eux. L'absorption de silane est très dépendante d'un certain nombre de facteurs, comme le temps d'hydrolyse, la fonctionnalité, la température et le pH. Les alcoxydes de silicium sont capables de former des liaisons avec les groupes hydroxyles. Les

silanols peuvent former des polysiloxanes par réaction avec les groupes hydroxyles de la fibre. La réaction chimique est décrite (figure I.14)

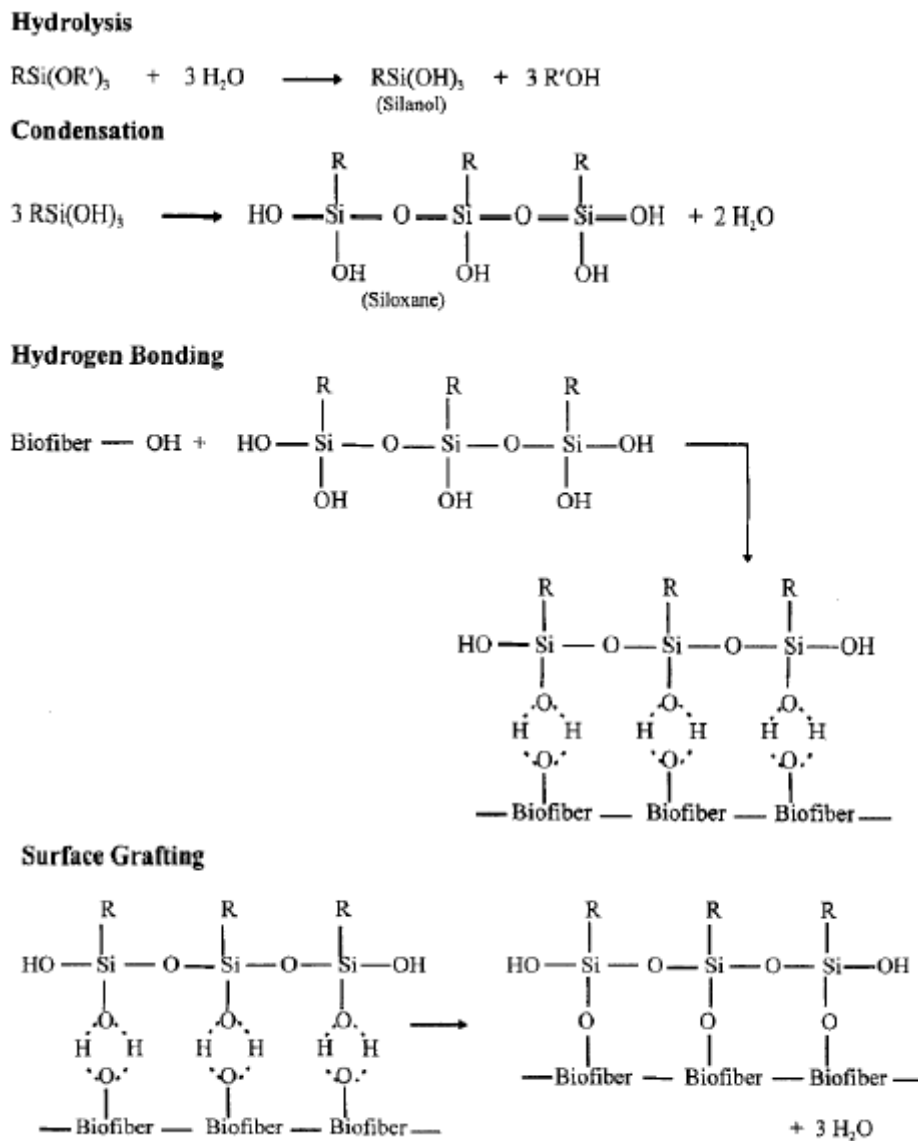


Figure I.14 : Réactions chimiques du traitement par un alcoxyde de silicium fonctionnalisé

Des solutions de silane dans un mélange d'eau et d'éthanol à une concentration de 0,033% ont été utilisées par Valadez et al. [51] pour traiter les fibres. Ils ont constaté que l'effet du traitement par le silane conduisait à une résistance en traction plus élevée que le traitement alcalin. Il a également été vérifié que l'interaction entre la fibre et la matrice PEHD (polyéthylène haute densité) est beaucoup plus forte lorsque la topographie de surface de la fibre est combinée avec une modification chimique de la surface de la fibre par un agent de couplage de type silane. D'autres études, comme Demir et al. [52] et Wu et al. [53] mettent

également en évidence que le silane augmente la compatibilité entre les fibres végétales et la matrice.

I.10.3. Traitement Plasma

Le traitement plasma à faible énergie fait partie des traitements de surface applicables aux fibres. Le plasma peut être appliqué sous atmosphère d'oxygène, connu sous le nom de plasma oxygène. Ce dernier change la composition de la surface des fibres naturelles en l'enrichissant en fonctions $-C=O$, $-COOH$ et $-CO_2$. Il est utilisé pour le nettoyage et l'activation plasma des surfaces à des temps très courts. Ainsi, la surface devient plus accessible aux molécules de modification. A des temps plus prolongés, ce procédé cause des fissures à la surface des fibres.

Sever et al. [54] ont traité la surface des tissus de jute au plasma oxygène à différentes puissances de décharge (30, 60 et 90 W), pendant 15 min, pour améliorer les propriétés mécaniques des composites jute/PEHD (polyéthylène haute densité). Les observations MEB ont indiqué que l'adhérence interfaciale entre les fibres de jute non traitées et la matrice de PEHD est très faible. Cette dernière a été améliorée par le traitement au plasma. Les essais mécaniques ont montré une amélioration des propriétés mécaniques des composites avec jute -traité par rapport au jute non-traité. L'augmentation de la puissance de décharge améliore l'adhésion fibres-matrice et donc les propriétés fonctionnelles des composites.

I.10.4. Traitement Corona

La technique de traitement Corona est également un traitement de surface. La décharge corona produit de nombreux sites actifs sur les longues chaînes polymériques qui pourraient réagir avec l'oxygène pour augmenter la rugosité de la surface du matériau, cette dernière peut être provoquée par la formation de micro-trous et de cavités. Ce traitement peut augmenter l'adhésion des fibres naturelles avec la matrice.

Ragoubi et al. [55] ont étudié l'impact d'une décharge corona sur les propriétés mécaniques des composites de fibres de chanvre/polypropylène. Les fibres de chanvre et le polypropylène (PP) ont subi un traitement corona avant la préparation des composites. Lorsque les fibres ont été traitées, la résistance à la rupture en essais de traction des composites a significativement augmenté. Inversement, lorsque le PP a été traité, la résistance à la rupture.

Le traitement des fibres de chanvre par décharge corona attaque la surface des fibres (ce qui a été confirmé par les observations MEB) et augmente alors la surface de contact entre la matrice et le polymère et donc améliore les propriétés mécaniques. Le module d'Young dans ce cas a augmenté de 13% par rapport au composite sans modification des composants. Le traitement des fibres par décharge corona améliore également la résistance à la compression des composites. Une augmentation de 2 à 6 % du module d'Young a été observée dans ce cas.

I.10.5. Traitement thermique

Le but de ce traitement est de réduire les matières organiques et les substances solubles dans l'eau (particulièrement les sucres) existants dans les fibres végétales. Ce traitement est effectué par la mise en ébullition des fibres végétales pendant une durée, puis égoutté et rincé à grande quantité d'eau afin d'enlever les substances organiques. (figure I.15)

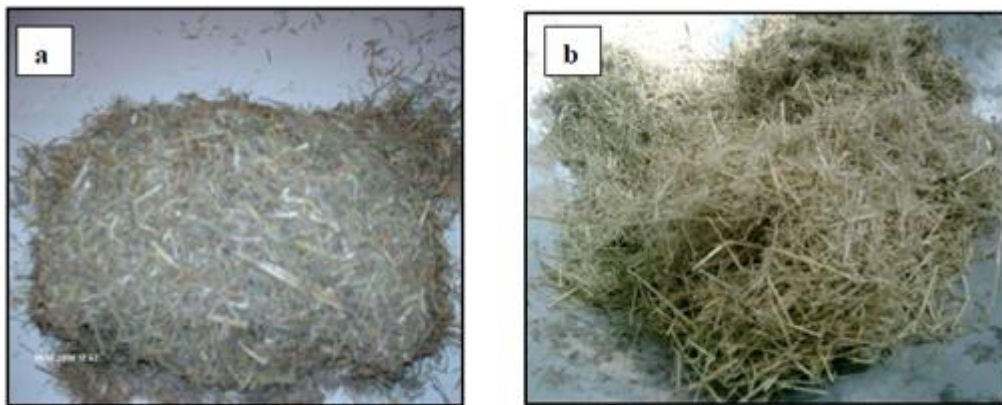


Figure I.15: Fibres de diss (a) broyée et non bouillies, (b) broyées et bouillies [56].

I.11. Plante de Diss (*Ampelodesmos Mauritanius*)

Ampelodesmos mauritanicus, aussi appelé *ampelodesmos* de Mauritanie, *arnpelodesmos tenace* ou Diss, est une espèce de plante de la famille des Poaceae (figure I.16). La plante de Diss est une herbe vivace. Il existe en abondance à l'état sauvage sur le pourtour du bassin méditerranéen et l'Asie occidentale et au sud-ouest de l'Amérique du Nord. Il est utilisé auparavant dans la réalisation des habitations anciennes en raison de ses qualités mécaniques et hydriques et en tant que fibre pour la fabrication de tapis. Cette herbe pousse mieux dans des sols sableux, caillouteux ou argileux qui sont modérément humides. Sa hauteur peut atteindre 3 mètres environ. [57]



Figure I.16: Plante de Diss (*Ampelodesmos Mauritanius*) [58]

I.11.1. Composition chimique de la fibre de Diss

Le Diss n'est pas suffisamment étudié. Il y a peu de références bibliographiques traitant cette herbe. La composition de la fibre de Diss est regroupée dans le tableau I.3. La fibre de Diss est constituée majoritairement de cellulose (45%). La fibre de Diss est accompagnée d'une quantité plus ou moins grande d'autres matières (tableau I.6). Le taux de lignines, d'hémicellulose, et de pectines sont faibles avec respectivement 16 ; 15 et 11%.

Le pourcentage de cellulose pour cette fibre est en moyenne plus faible que pour les fibres de lin, ce qui laisse envisager un caractère hydrophile légèrement moins important. Outre, ce fort pourcentage pourrait également avoir une interaction au niveau chimique lors la préparation des biocomposites.

Tableau I.6 : Composition chimique de la fibre de Diss [58]

Constituant de la fibre de Diss	%	
Matières sèches	91.8	
Matières minérales	11.4	
Matières organiques	80.3	
Composition de la matière organique	Constituants extractibles (cire, graisse)	12.10
	pectine	11.85
	lignine	16.80
	Hémicellulose	15.15
	Cellulose	44.10

I.11.2.Morphologie et microstructure des fibres de diss

Les fibres de Diss présentent une surface rugueuse, à relief très irrégulier avec la présence d'épines. La surface extérieure de la fibre de Diss brute présente des épines d'une taille d'environ 100 μm soit 5 fois plus grande que celles de la surface intérieure [59]. Ces épines sont uniformément espacées et distribuées sur toute la surface de la fibre. La morphologie des épines est la même mais si leur répartition est beaucoup moins dense (figure I.17). La surface entre les épines affiche des stries visibles de façon homogène avec de fines aiguilles embrouillées. La surface intérieure de la fibre de diss est recouverte d'épines de 20 μm de long avec un diamètre à la base de 10 μm .

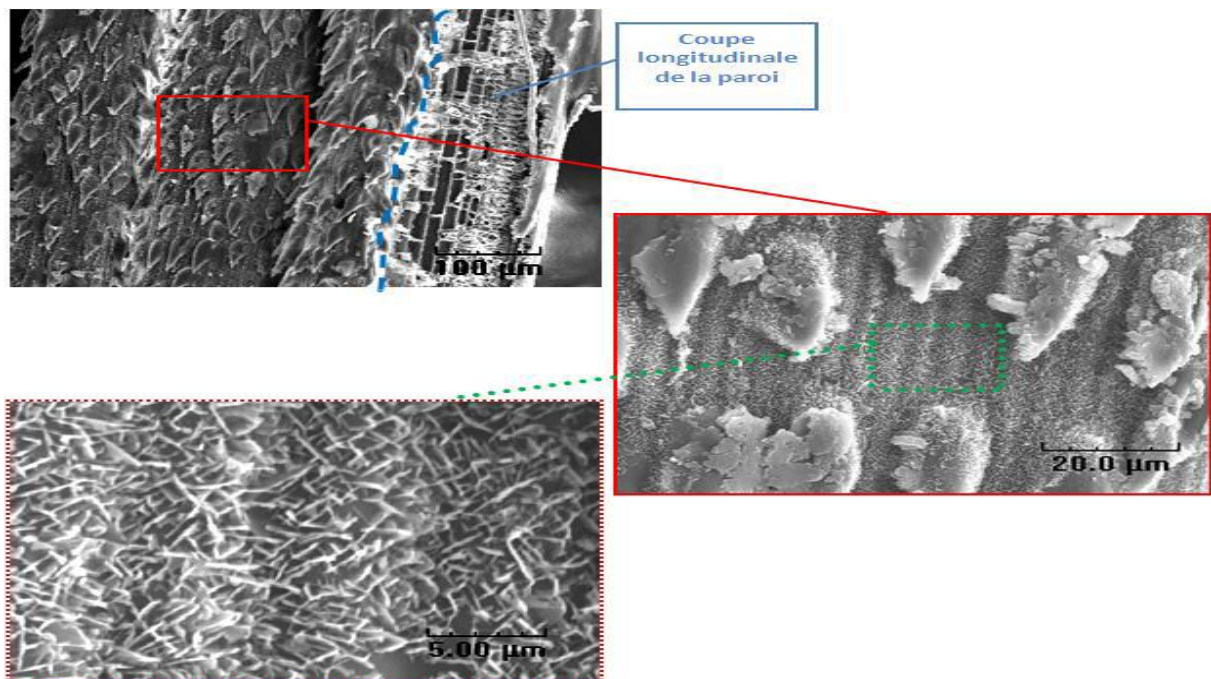


Figure I.17 : Observation par MEB de la structure externe de la fibre de Diss à différentes échelle [59].

Hichem Zergane et al. [60] ont étudié la morphologie des fibres de Diss avant et après un traitement alcalin suivi d'une étape de blanchiment. (figure I.18) présente les photographies obtenues de la plante de Diss et des fibres de Diss après chaque étape de traitement. Les auteurs ont remarqué que la couleur de la fibre passe du vert foncé au jaune, après traitement alcalin. Ce qui indique l'élimination de certains composants. Par ailleurs, ils ont obtenu la couleur des fibres cellulosiques pures (couleur blanche) après l'étape de blanchiment.

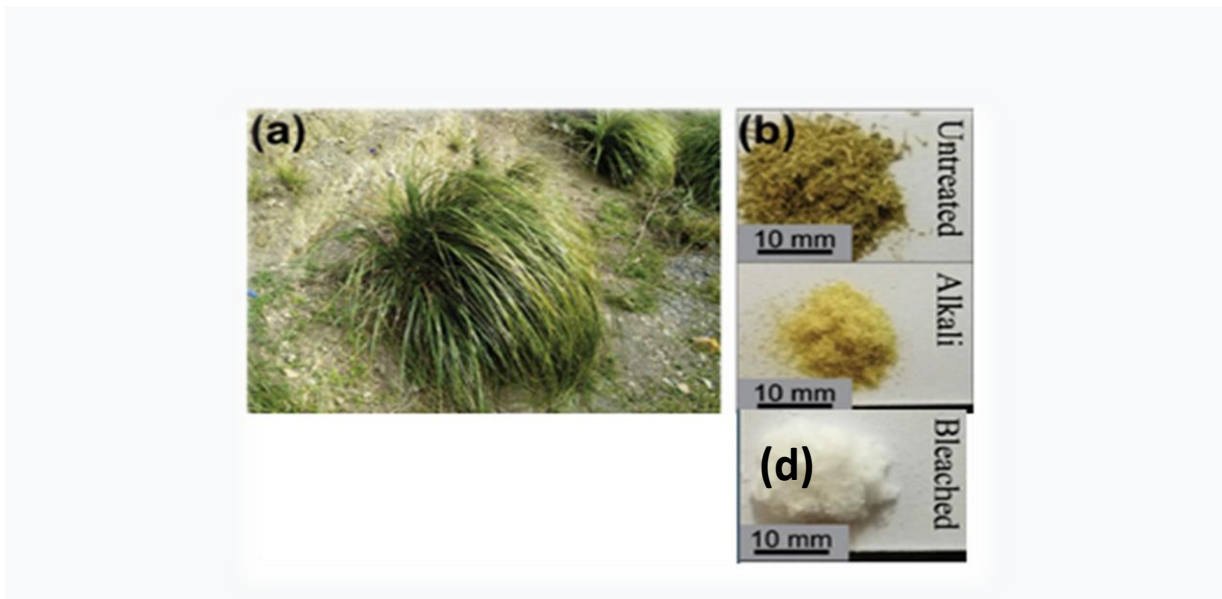


Figure I.18 : Photographies (a) plante de Diss, (b) fibres non traitées, (c) fibres de Diss après traitement alcalin, (d) fibres de Diss après blanchiment [60].

D'après les images MEB (figure I.19), les auteurs ont rapporté que la fibre de diss non traitée contient de la cire qui recouvre sa surface. Après le traitement alcalin, les auteurs ont remarqué que la surface des fibres devient plus rugueuse avec l'apparence de faisceaux de fibres celluloseuses et la disparition de quelques substances non celluloseuses telles que la lignine, hémicelluloses, etc... Par ailleurs, après blanchiment (figure I.18d), les micrographies en MEB ont illustré l'élimination des résidus non celluloseux, en particulier la lignine [60].

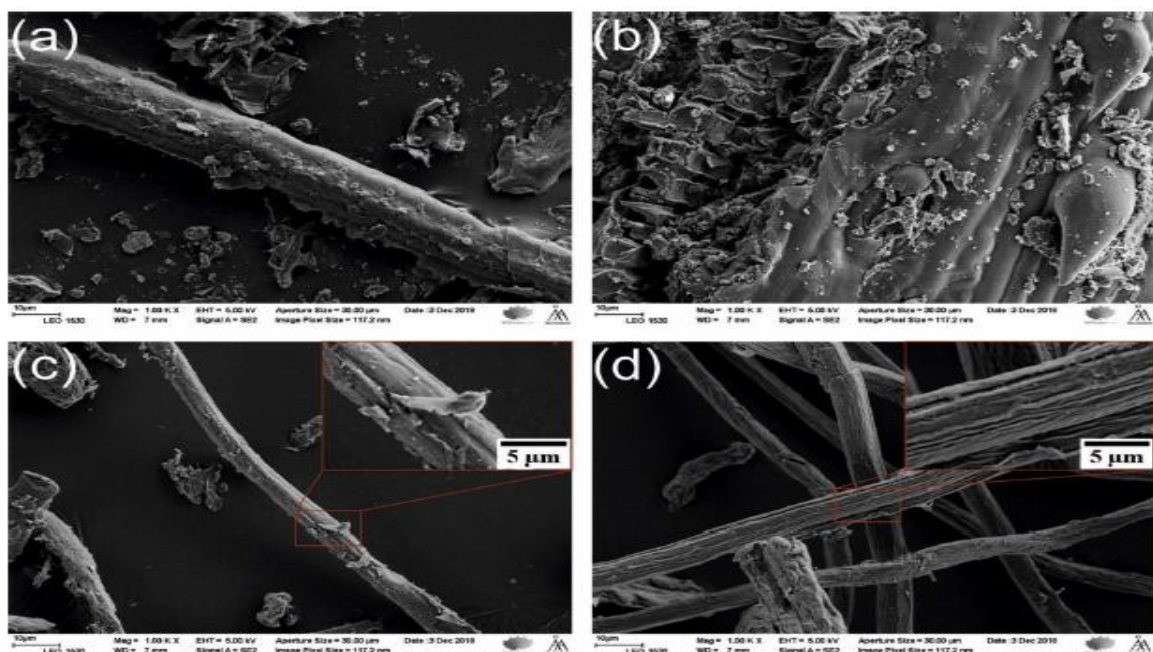


Figure I.19 : Micrographies en MEB : (a) plante de Diss, (b) fibres de Diss non traitées, (c) fibres de Diss après traitement alcalin, (d) fibres de Diss après blanchiment [60].

I.11.3. Stabilité thermique de la fibre de Diss

D'après la (figure I.20), le processus de dégradation de la fibre de Diss est divisé en trois étapes. La première étape est liée à la vaporisation d'eau. Le deuxième pic de dégradation à 270 °C est attribué à la dégradation de l'hémicellulose. La dernière étape de décomposition est attribuée à la dégradation de la cellulose (340-400 °C).

La lignine se dégrade avec une cinétique plus lente que les autres constituants.

Luzi et al. [61] ont rapporté l'effet des traitements alcalin et biologique sur les propriétés thermiques de la fibre de Diss. Les auteurs ont montré que les deux traitements chimique et biologique améliorent la stabilité thermique de la fibre de Diss (figure I.21).

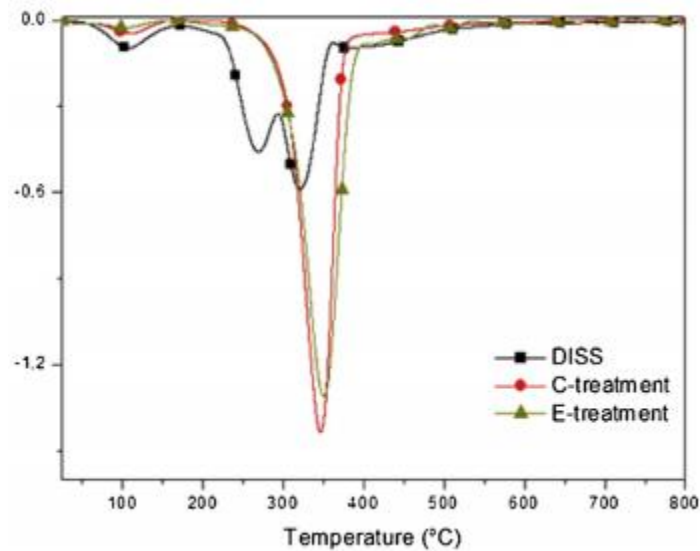


Figure I.20: Thermogrammes DTG d'une fibre de Diss traité et non-traité [61].

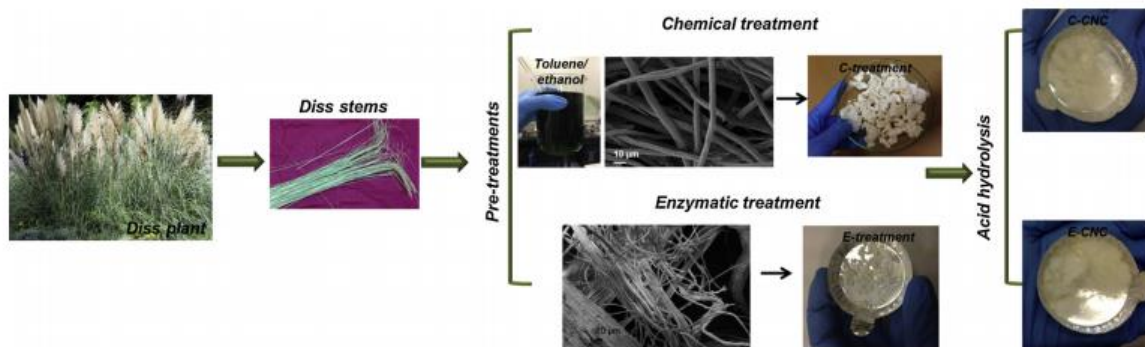


Figure I.21 : Image visuelle de la plante Diss et des tiges. Schéma et images des fibres Diss lors des prétraitements chimiques et enzymatiques. Images de poudres CNC après traitement d'hydrolyse appliqué aux fibres blanchies chimiquement et enzymatiquement.

I.11.4. Applications de fibre de Diss

Le Diss est utilisée dans plusieurs applications aujourd'hui qu'on pourrait classer comme suit:

- Pour la fabrication des produits artisanaux.
- Comme nourriture par les animaux sauvages et pour le bétail.
- Pour des applications techniques renforcement des composites à matrice cimentaire.

En effet, dernièrement quelques études ont utilisé des fibres de Diss comme renfort dans diverses applications structurales en Génie Civil [62,63].

Références
bibliographiques

Références

- [1] Abdelmouleh. M, Boufi.S, Belgacem. M. N, Dufresn. Ae, “Short natural-fibre reinforced polyethylene and natural rubber composites: Effect of silane coupling agents and fibres loading”, *Composites Science and Technology*, pp 1627-1639, 1967.
- [2] Ramarad. S, “Preparation and properties of kenaf bast fiber filled (plasticized) poly (lactic acid) composites”, *Mémoire de Master*, pp 43, 2008.
- [3] J. S. Han and J. S. Rowell, “Chemical Composition of Fibers,” in *Paper and composite from agro-based resources*, vol. 283, 2008, pp. 83–134.
- [4] T. H. Mokhothu and M. J. John, “Review on hygroscopic aging of cellulose fibres and their biocomposites,” *Carbohydrate Polymers*, vol. 131, pp. 337–354, 2015.
- [5] B,TALAL. Utilisation d’une méthode optique sans contact pour décrire le comportement mécanique de composites Bois/Plastiques “WPC “. *Thèse de doctorat*, l’université de Pau et des pays de l’Adour, 2011.
- [6] L, YAHIAOUI. caractérisation d’un composite à la rupture à base des fibres végétales (Diss). *Mémoire de magister*. Sétif. Université FERHAT ABBAS- SETIF, 2011.
- [7] E, PRIVAS. Matériaux ligno-cellulosique « Elaboration et Caractérisation ». *Thèse de doctorat* Paris Tech. L’école nationale supérieure des mines de Paris, 2013.
- [8] M, SPINU. Evaluation des paramètres physiques et physico-chimiques qui influencent l’accessibilité de la cellulose. *Thèse de doctorat*. L’école nationale supérieure des mines de paris, 2010.
- [9] A, SBIAI. Matériaux composites à matrice époxyde chargée par des fibres de palmier dattier effet de l’oxydation au tempo sur les fibres. *Thèse de doctorat*. Paris. L’institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 2011.
- [10] M. Arous, I. Ben Amor, S. Boufi, A. Kallel, Experimental study on dielectric relaxation in Alfa fiber reinforced Epoxy composites, *A. J. APP. Polym. Sci.*, 106 ,3631 -3641,2007.

- [11] P. Dacies, C. Marvan, O. Sire, C. Baley, propriétés des fibres extraites des phanérogames marines (*ZOSTERA* mina), revue des composites et des matériaux avancées. 16, 41- 48, 2006.
- [12] Mohammad. D. H. G, "The Improvement of Interfacial Bonding, Weathering and Recycling of Wood Fibre Reinforced Polypropylene Composites", these of doctorat, University of Waikato, Hamilton, New Zealand, 2007.
- [13] M.ABIR. Etude de la production et de la caractérisation de composites Bois-Plastiques. Mémoire de maîtrise en génie chimique. Québec, CANADA, 2013.
- [14] H. Mokhothu and M. J. John, "Review on hygroscopic aging of cellulose fibres and their biocomposites," Carbohydrate Polymers, vol. 131, pp. 337–354, 2015.
- [15] Twite-Kabamba E., Mechraoui A., Rodrigue D. Rheological properties of polypropylene/hemp fiber composites, Polymer Composites, 30(10), 1401-1407. 2009.
- [16] Habibi. Y, L.A. Lucia, O.J. Rojas, Cellulose nanocrystals: chemistry, self-assembly, and applications, Chem. Rev. 110 (6), 3479–3500, 2010.
- [17] L.K. Kian , N. Saba , M. Jawaid , M.T.H. Sultan A review on processing techniques of bast fibers nanocellulose and its polylactic acid (PLA) nanocomposites. International Journal of Biological Macromolecules 121, 1314–1328, 2019.
- [18] Fernandes. A. N, Thomas. L. H, Altaner. C.M, Callow. P, Forsyth. V. T, Apperley.D .C, Nanostructure of cellulose microfibrils in spruce wood, Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A. 108, 1195–1203, 2011.
- [19] M. RAGOUBI. Contribution à l'amélioration de la compatibilité interfaciale fibres naturelles/matrice thermoplastique via un traitement sous décharge couronne. Thèse de doctorat. Université Henri Poincaré Nancy 1, 2010.
- [20] Charle K., morvan C., Bréard J., Jernot JP., Gomina M. Etude morphologique d'un composite naturel la fibre de lin. Comp. Mater. 16: 11-24, 2006.
- [21] I.Ben Amor, H.Rekik, H.Kaddami, M.Raihane, M.Arous, A.Kallel, studies of dielectric relaxation in natural fiber polymer composites, journal of electrostatics. 67, 717 – 722, 2009.

- [22] C. Baley, Y. Grohens, G. Levesque, F. Busnel, C. Pomel, et O. Sire, "Influence des traitements chimiques sur les propriétés interfaciales et l'adhérence du système fibre de lin-résine polyester," *Matériaux*, pp. 1–4, 2002.
- [23] Dungani, R., Khalil, H.P.S.A., Sumardi, I., Suhaya, Y., Sulistyawati, E., Islam, Md.N, Suraya, N.L.M. et Aprilia .A.S. Non-wood renewable materials: properties improvement and its application. *In* K.R. Hakeem, M. Jawaid et U. Rashid, *Biomass and Bioenergy: Applications*, (p. 1-30). Springer, London, 2014.
- [24] Bodros E., Baley C. Study of the tensile properties of stinging nettle fibers (*Urtica dioica*). *Mater. Letters*. 62: 2143–2145, 2008.
- [25] S, Thiebaud, 'Valorisation chimique de composés lignocellulosiques : obtention de nouveaux matériaux', thèse de doctorat, Institut National Polytechnique De Toulouse, Sciences des Agroressources, 1995.
- [26] Hatakeyama T., Hatakeyama H. Thermal properties of green polymers and biocomposites, Kluwer Academic Publishers, 331 p, 2004.
- [27] Baley C. Analysis of the flax fibers tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Compos. Appl. Sci. Manuf*. 33: 939–948, 2002.
- [28] Nguyen Huy Tung, Hiroshi Yamamoto, Takashi Matsuoka, Toru Fujii; Effect of surface treatment on interfacial strength between bamboo fiber and PP resin; *JSME International Journal, Series A, Vol. 47, No. 4, 561-565, 2004*.
- [29] D. Nabi Saheb, J. P. Jog; *Natural Fiber Polymer Composites: A Review Advances in Polymer Technology; Vol. 18, No. 4, 351-363, 1999*.
- [30] Baley C., *Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites. Technique de l'ingénieur, traité génie des procédés, Vol. AM5, pp. 130. 2004*.
- [31] Mohanty A.K., Khan M.A. and Hinrichsen G. Surface modification of jute and its influence on performance of biodegradable jute-fabric/Biopol composites. *Compos. Sci. Technol*. 60: 1115-1124, 2000.
- [32] Asma SELLAMI « Elaboration des composites cimentaires à base de fibres végétales locales (le diss) : Caractérisation, Durabilité et Application au cas de la maçonnerie » UNIVERSITE BADJI MOKHTAR – ANNABA : 2015.

- [33] Mohamed Dallel, Evaluation du potentiel textile des fibres d'Alfa (Stipa Tenacissima L): caractérisation physico-chimique de la fibre au fil .thèse doctorat en génie des Procédés, P5-Université de Haute Alsace, France, 2012.
- [34] La culture et l'exploitation du lin disponible sur: <http://boiseau.free.fr/dossiers/lin/exploitationlinpdf.pdf>.
- [35] S.Msahli « Etude du potentiel textile des fibres d'Agave Americana L. », Thèse de Doctorat, Université de Haute Alsace, Juillet 2002.
- [36] D.THI Vi Vi « Matériaux composites fibres naturelles/polymère biodégradables ou non », Thèse de Doctorat, Université de Grenoble et Université des sciences de Hochiminh Ville, Juillet 2011.
- [37] K.Brecc, A.Vellar and W.G.Glasser« Steam-assisted biomass fractionation I. Process considerations and economic evaluation » Biomass Bioenergy, Vol 14(3), pp.205- 218, 1998.
- [38] N.Jacquet, C.Vanderghem, C.Blecker and M.Paquot « La steam explosion : Application en tant que prétraitement de la matière lignocellulosique » Biotechnologie, Agronomie, Société et Environnement, Vol 14(S2), pp.561-566, 2010.
- [39] X.F.Sun, F.Xu, R.C.Sun, Z.C.Geng, P.Fowler and M.S.Baird « Characteristics of degraded hemicellulosic polymers obtained from steam exploded wheat straw », Carbohydrate Polymers, Vol 60, pp.15-26, 2005.
- [40] E. Chornet E and R.P. Overend « Phenomenological kinetics and reaction engineering. Aspects of steam/ aqueous treatments » In: Proceedings of the International workshop on steam explosion technique: fundamentals and industrial applications, pp.21-58, Milan, Italy, October 1988.
- [41] N. Dehouche , C. Idres a , M. Kaci a , I. Zembouai a , S.Bruzaud. Effects of various surface treatments on Aloe Vera fibers used as reinforcement in poly (3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyhexanoate) (PHBHHx) biocomposites Polymer Degradation and Stability, 175, 109131, 2020.

- [42] C. Meirhaeghe « Evaluation de la disponibilité et de l'accessibilité de fibres végétales à usages matériaux en France », Etude réalisée pour le compte de l'ADEME par Fibres Recherche Développement, Mars 2011.
- [43] «Lincultivé», Wikipédia (Source électronique), disponibles sur: http://fr.wikipedia.org/wiki/Lin_cultivé, Novembre 2012.
- [44] Arsene M'A., Okwo A., Blida K., Soboyejo A.B.O and Soboyejo W. O. Chemically and thermally treated vegetable fibers for reinforcement of cement-based composites. *Materials and Manufac. Process.* 22: 214-227, 2007.
- [45] N. Sgriccia, M. C. Hawley, M. Misra; Characterization of natural fiber surfaces and natural fiber composites; *Composites: Part A* 39, 1632-1637, 2008.
- [46] Demir U., Atikler D., Balköse F. The effect of fiber surface treatments H on the tensile and water sorption properties of polypropylene–luffa fiber composites. *Composites: Part A.* 37: 447-456, 2006.
- [47] 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.
- [48] D. Ray, B. K. Sarkar, A. K. Rana, and N. R. Bose, "Effect of alkali treated jute fibers on composite properties," *Bulletin of Materials Science*, vol. 24, no. 2, p. 129, 2001.
- [49] G. Kalaprasad et al., "Effect of fibre length and chemical modifications on the tensile properties of intimately mixed short sisal/glass hybrid fibre reinforced low density polyethylene composites," *Polymer International*, vol. 53, no. 11, pp. 1624–1638, 2004.
- [50] Paul. S. A, Joseph. K, Mathew. G. D. G, Pothen. L. A, and Thomas. S, "Influence of polarity parameters on the mechanical properties of composites from polypropylene fiber and short banana fiber," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 41, no. 10, pp. 1380–1387, 2010.
- [51] Fabiola Vilaseca, Alex Valadez-Gonzalez, Pedro J. Herrera-Franco, M. Àngels Pèlach, Joan Pere López, Pere Mutjé; Biocomposites from abaca strands and

polypropylene. Part I: Evaluation of the tensile properties; *Bioresource Technology* 101, 387-395, 2010.

[52] P. Mutje, M. E. Vallejos, J. Girones, F. Vilaseca, A. Lopez, J. P. Lopez, J. A. Mendez; Effect of Maleated Polypropylene as coupling agent for Polypropylene composites reinforced with Hemp strands; *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 102, 833-840, 2006.

[53] J. A. Mendez, F. Vilaseca, M. A. Pèlach, J. P. Lopez, L. Barbera, X. Turon, J. Gironès, P. Mutje; Evaluation of the reinforcing effect of ground wood pulp in the preparation of Polypropylene-based composites coupled with Maleic Anhydride Grafted Polypropylene; *Journal of Applied Polymer Science*, Vol. 105, 3588-3596, 2007.

[54] K. Sever, S. Erden, H. A. Gülec, Y. Seki, and M. Sarikanat, "Oxygen plasma treatments of jute fibers in improving the mechanical properties of jute/HDPE composites," *Materials Chemistry and Physics*, vol. 129, no. 1–2, pp. 275–280, Sep. 2011.

[55] M. Ragoubi, D. Bienaimé, S. Molina, B. George, and A. Merlin, "Impact of corona treated hemp fibres onto mechanical properties of polypropylene composites made thereof," *Industrial Crops and Products*, vol. 31, no. 2, pp. 344–349, Mar. 2010.

[56] M. Merzoud., "Elaboration et caractérisation d'un matériau composite à base de fibres de diss dans la fabrication de la maçonnerie". Thèse de doctorat d'Etat, Université Badji Mokhtar, pp 123,2007.

[57] Watson. L, Dallwitz. MJ, "Les genres d'herbe du monde : descriptions, illustrations, l'identification et la récupération des informations, y compris les synonymes, la morphologie, l'anatomie, la physiologie, la phytochimie, cytologie, la classification, les agents pathogènes, du monde et de distribution locale et des références".

[58] S. Mouhoubie, "Caractérisation de l'interface d'un composite fibre végétale/polypropylène", thèse magister, Université Ferhat Abbas Algérie, mécanique Appliqué, 2008.

- [59] SELLAMI Asma «Elaboration des composites cimentaires à base de fibres Végétales locales (le diss) : Caractérisation, Durabilité et Application au cas de la maçonnerie » UNIVERSITE BADJI MOKHTAR – ANNABA, 2015.
- [60] H Zergane,SaïdAbdi, HuanfeiXuJemming XiaojuWang, Y Habibi , Industrial Crops and Products, 144, 112044, 2020.
- [61] F. Luzia, D. Pugliaa, F. Sarasinib, J. Tirillòb, G. Maffeib, A. Zuorrob, R. Lavecchiab, J.M. Kennya, L. Torrea Valorization and extraction of cellulose nanocrystals from North African grass: *Ampelodesmos mauritanicus* (Diss). Carbohydrate Polymers 209 (2019) 328–337, 2019.
- [62] Bourahli, M. E. H., & Osmani, H. (2013). Chemical and Mechanical Properties of Diss (*Ampelodesmos mauritanicus*) fibers. Journal of Natural Fibers, 10(3), 219–232. doi.org/10.1080/15440478.2012.761115, 2013.
- [63] O. M. Merzoud, M.F. Habita, “Elaboration de composite cimentaire à base de diss (*Ampelodesma Mauritanica*) ”. Journal Afrique Science, 4 (2), 2008.

Chapitre II
Matériaux
biocomposites à
renfort fibres
végétales

Chapitre II

Matériaux biocomposites à renfort fibres végétales

Les biocomposites connaissent depuis la fin du siècle dernier un développement croissant et ceci en raison des restrictions environnementales [1]. Les composites renforcés par des fibres naturelles ont été utilisés par l'homme depuis le début de la civilisation, comme source d'énergie, et en tant que matériau pour construire des abris, des vêtements, des outils, etc. Les composites polymères à base de fibres naturelles tendent à remplacer les composites synthétiques dans diverses applications. Leur flexibilité durant le traitement, leur rigidité spécifique, leur disponibilité, leur biodégradabilité et leur faible coût les rendent attrayant pour les fabricants. Les inconvénients majeurs que présentent les fibres naturelles pour certaines applications industrielles sont leur nature polaire et hydrophilie élevées ainsi que leur faible stabilité thermique. Pour remédier à ces limitations, plusieurs méthodes peuvent être utilisées pour améliorer les propriétés des fibres de renfort, telles que les traitements chimiques, le greffage chimique en modifiant la surface de la fibre, l'introduction d'agents de couplage, les traitements physiques (traitement plasma, traitement corona), ect. (figure II.1)



Figure II.1 : Quelques applications des biocomposites. [2]

II.1. Constituants des matériaux composites à base de fibres végétales

Les composites peuvent être définis comme des matériaux qui se composent de deux phases (ou plus) chimiquement et physiquement différentes séparées par une interface distincte. Les différents constituants sont combinés judicieusement pour obtenir un système ayant des propriétés structurales ou fonctionnelles plus intéressantes. Un matériau composite est une association de matériaux différents par leur nature chimique et par leurs propriétés, dans le but d'améliorer ses performances en termes de facilité de mise en œuvre, de résistances physiques, mécaniques et chimiques. On désigne sous le terme de matrice, la phase continue qui est souvent un polymère thermodurcissable ou thermoplastique. Une interface se crée a pour rôle de lier les renforts, d'assurer leur protection contre les attaques chimiques, et le bon transfert des contraintes sur ces renforts (figure II.2). La structure et la nature de ces trois phases, leur configuration et leur interaction, ainsi que leur proportion dans le matériau déterminent les performances du composite [3].

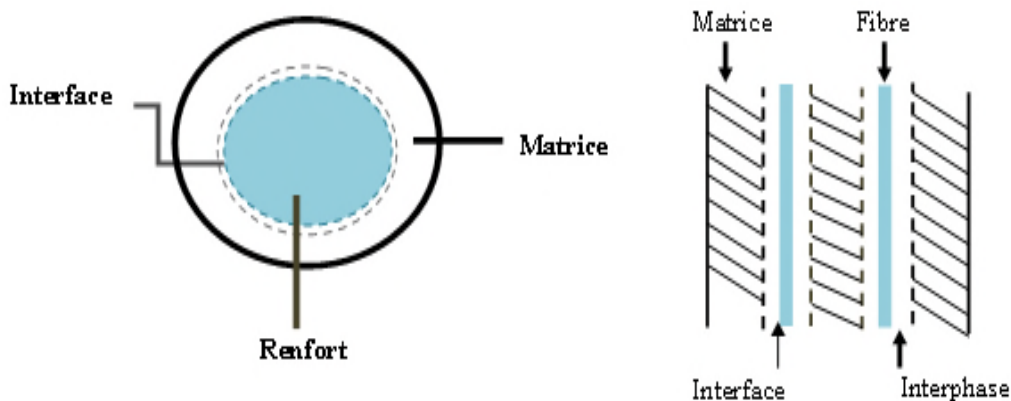


Figure II.2 : Schéma d'un composite idéal [4].

II.1.1. Matrice polymère

Les matrices polymères sont des matériaux viscoélastiques et se caractérisent en général par une rigidité relativement faible. La résistance et la rigidité des composites proviennent principalement des fibres de renforcement. La matrice apporte une contribution significative à la performance mécanique dans le cas des nanocomposites et des composites de fibres discontinues. Il existe deux grandes classes de polymères utilisés comme matrice: les thermodurcissables et les thermoplastiques. Dans un grand nombre de cas, la matrice

Constituant le matériau composite est une résine polymérique. Le rôle de la matrice est de transmettre les efforts mécaniques aux fibres et d'assurer leurs protections chimiques et de donner la forme au produit final. La matrice détermine en général la limite de l'environnement de service du matériau et la température d'utilisation de ce matériau. On énumère un grand type de polymère pour servir de matrice aux matériaux composites [5]

II.1.2. Matrice biopolymère

Un biopolymère est un polymère issu de matières premières d'origine naturelle [6]. Ces biopolymères peuvent être digérés par des micro-organismes définis comme des bactéries, des champignons ou des algues. D'une manière générale, le polymère en question se décomposera en CO_2 et/ou CH_4 et H_2O dans des conditions bien spécifiques (aérobie ou anaérobie) et donnera lieu à la création d'une nouvelle biomasse. Cette facette du matériau lui confère un réel avantage en termes de gestion des déchets. En revanche, les polymères biodégradables ne sont pas nécessairement issus de ressources renouvelables mais peuvent également être obtenus par voie pétrochimique. Cependant, après considération du caractère épuisable du pétrole, l'aspect durable de la biomasse semble bien plus intéressant. Le terme dégradation rassemble les phénomènes biotiques et abiotiques que le matériau subit lorsqu'il est placé dans un milieu particulier pour être traité en fin de vie, sans distinction d'origine (figure II.3). Un matériau est considéré comme dégradé dans certaines conditions s'il subit une dégradation quelconque déterminée dans un temps donné et selon une méthode de mesure standardisée adapté [7].

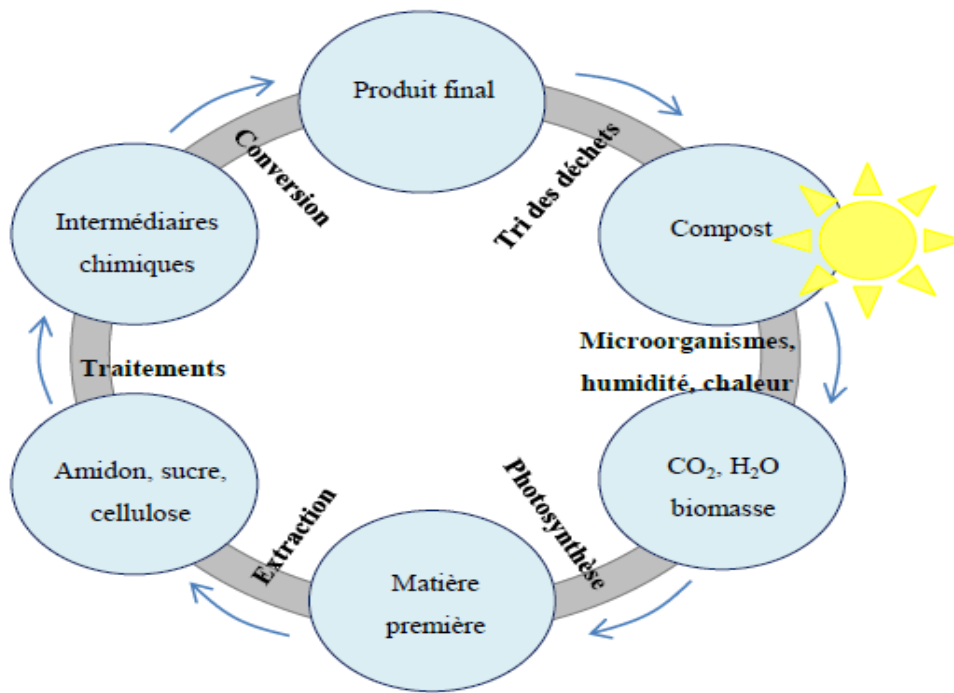


Figure II.3 : Cycle de vie d'un polymère biosourcé et biodégradable.

II.1.3. Classification des polymères biodégradable

Il existe différentes classifications des polymères biodégradables, dans celle que nous présentons, ceux-ci sont classés selon leur procédé de synthèse (figure II.4) [8] :

- ❖ Les polymères issus de la biomasse, c'est-à-dire produits à partir d'agro-ressources : il s'agit d'une part des polysaccharides tels que l'amidon et ses dérivés, la cellulose, la chitine, le chitosane, la lignine et d'autre part des protéines, animales ou végétales.
- ❖ Les polymères produits par des micro-organismes et obtenus par extraction : le polyhydroxyalcanoates (PHA).
- ❖ Les polymères issus de la biotechnologie, c'est-à-dire produits par synthèse conventionnelle à partir des monomères issus de ressources renouvelables, comme le polylactide (PLA).
- ❖ Les polymères dont les monomères proviennent de ressources fossiles et qui sont obtenus par synthèse classique : il s'agit de polyesters tels que le poly (ϵ -caprolactone), les polyesters amides et les copolyesters aliphatiques (PBSA) ou aromatique.

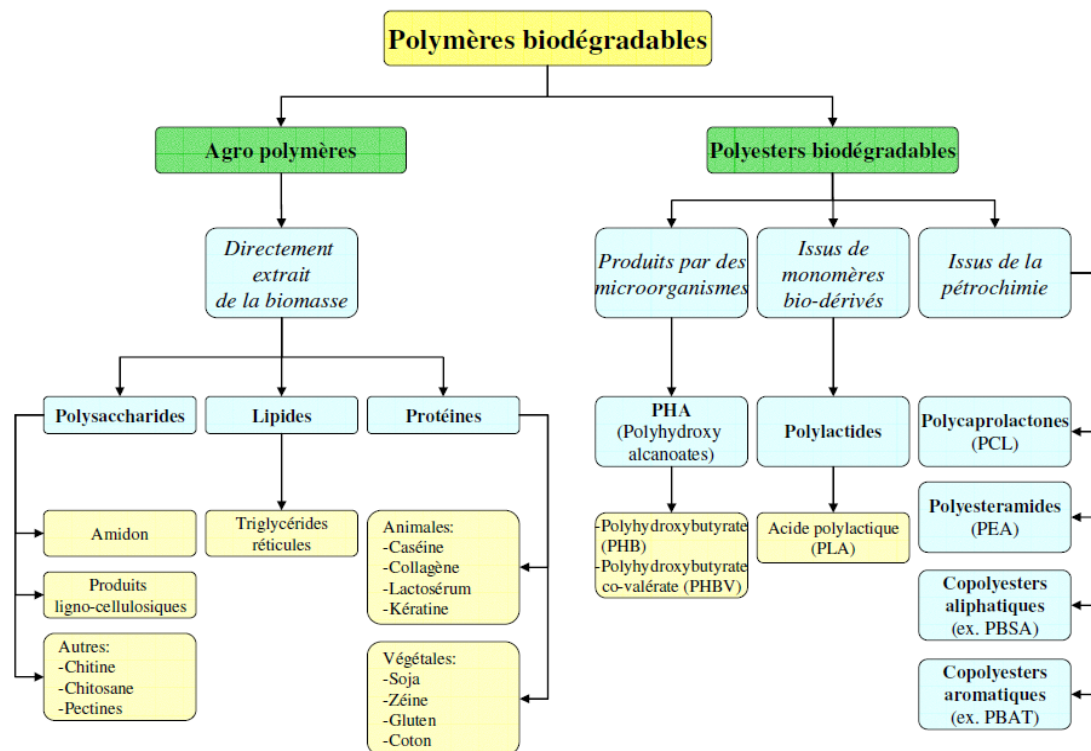


Figure II.4 : Classement des plastiques biodégradables [8].

II.1.4. Poly (3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalérate) (PHBV)

Le PHBV a été synthétisé pour la première fois en 1983 par la société Imperial Chemical Industries (ICI). Les monomères de l'acide 3-hydroxybutanoïque et l'acide 3-hydroxypentanoïque, sont reliés par des liaisons ester, l'épine dorsale du polymère est constitué d'atomes de carbone et l'oxygène. Les propriétés du PHBV dépendent du rapport massique de ces deux monomères. L'acide 3-hydroxybutyrate fournit la rigidité tandis que l'acide 3-hydroxybentanoïque favorise la souplesse. L'augmentation du rapport entre l'acide 3-hydroxybutanoïque et d'acide 3-hydroxypentanoïque engendre une augmentation : de la température de fusion, de la perméabilité à l'eau, de la température de transition vitreuse et de la résistance à la traction. Cependant, la résistance au choc est réduite [9], le P(3HB-co-3HV) est considéré comme le meilleur candidat pour la production des matériaux plastiques biodégradable, car il est plus souple et plus facile à traiter [10]. La structure chimique du PHBV est montrée sur la (figure II.5).

Secteur de l'emballage par exemple .Enfin, ils sont biocompatibles, ils peuvent donc aussi être utilisés dans des applications médicales [14].

Les PHA possèdent des propriétés très variables suivant la source carbonée employée, allant du plastique rigide et cassant au plastique tenace et ductile (élastomère). De manière générale, plus un PHA sera composé de chaînes longues, plus le polymère sera ductile. La température de fusion diminue en fonction du taux de HV (tableau II.1). Les propriétés mécaniques du PHB telles que le module d'Young (3,5 GPa) et la contrainte à la rupture (40 MPa) sont proches de celles du polypropylène (1,7 GPa et 38 MPa). En revanche, son allongement à la rupture (4%) est très inférieur à celui du polypropylène (400%). C'est donc un matériau plus rigide et plus cassant que le polypropylène .L'introduction d'unités 3HV entraîne une diminution de la rigidité. En effet, le module d'Young diminue, de 2,9 GPa pour un PHBV contenant 3% de 3HV à 0,7 GPa pour 25% de 3HV [15].

Tableau II.1 : Comparaison les propriétés des PHA avec les propriétés des polyoléfines [16].

Échantillon	Module d'young (GPa)	Contrainte à la rupture (MPa)	Elongation à la rupture (%)	Choc charpy (entaillé) (kJ/m ²)
P(3HB)	3.5	40	5	-
P(3HB-co-20 mol % 3HV)	0.8	20	50	1.3
P(3HB-co-6 mol % 3HA) ^a	0.2	17	680	-
PP	1.7	38	400	4 – 20
PEBD	0.2	10	620	-

Pour certaines applications, l'utilisation du PHBV réside également dans certaines faiblesses concernant leurs propriétés (stabilité thermique, propriétés mécaniques, ...). Par conséquent, pour améliorer leurs propriétés, diverses approches sont proposées dans la littérature. L'approche la plus répandue est l'ajout d'un renfort aux polymères ou fabrication d'un matériau composite.

Le but de la fabrication d'un matériau biocomposite est de profiter des propriétés reconnues de chaque composant afin d'en constituer un qui sera mieux adapté à certaines applications. Un composite est un matériau qui essaie de combiner les propriétés de ses composants (généralement une matrice polymérique et un renfort) pour permettre d'améliorer certaines caractéristiques comme la résistance à la rupture, ou la rigidité, stabilité thermique ect.. Ces dernières années, les matériaux biopolymères renforcés avec des fibres naturelles

Attirent l'attention des chercheurs parce qu'ils pourraient être une solution efficace pour améliorer les propriétés de ces matériaux, tout en développant des matériaux à moindre prix

II.2. Renforts

Le renfort est le squelette supportant les efforts mécaniques. Le but des renforts dans les matériaux biocomposites est essentiellement d'accroître leurs propriétés mécaniques (rigidité, résistance à la rupture, dureté, etc.) et d'améliorer des propriétés physiques, tels que les comportements au feu, la tenue en température (conservation des caractéristiques mécaniques à haute température) ou les propriétés électriques. Outre les propriétés mécaniques élevées qu'ils procurent, les caractéristiques recherchées dans les renforts sont une masse volumique faible, une compatibilité avec les matrices et une facilité de mise en œuvre. Les renforts peuvent provenir d'origines diverses (animale, végétale, synthétique, etc.). La plupart des renforts possèdent un facteur de forme (longueur/diamètre) considérable d'où leur utilisation comme renfort pour des applications industrielles structurelles et non structurelles. Il peut se présenter sous de nombreuses formes : fibres courtes ou particules (mat) ou fibres continues (unidirectionnel, tissus ou textures multidirectionnelles) [17].

II.2.1. Renfort en fibres discontinues

Des fibres courtes, ou particules (charges sous forme de microbilles, de fibres Broyées, d'écaillés ou de poudre), permettent d'améliorer certaines propriétés de la matrice (résistance à l'usure, propriétés thermiques, poids). Celle-ci reste l'élément de base et on obtient alors un « polymère renforcé ».

II.2.2. Renfort continu

Des fibres sous forme longues qui sont généralement utilisées poudres composites. Cette forme fibreuse offre une résistance à la rupture et souvent un module d'élasticité beaucoup plus élevée que ceux du même matériau massif, avec une augmentation de la longueur de 10000 fois.

II.3. Interface fibre-matrice

Les propriétés des matériaux composites sont déterminées par les constituants, la fibre et la matrice, et dans de nombreux cas, par l'interface fibre-matrice. L'interface est définie comme une région à deux dimensions entre la fibre et la matrice ayant une épaisseur nulle.

Les propriétés de l'interface sont intermédiaires entre celles de la fibre et de la matrice. Les molécules de la matrice peuvent être ancrées à la surface fibreuse, par réaction chimique ou adsorption, qui détermine la force d'adhérence interfaciale. Cependant, il y a un certain nombre de difficultés associées à l'intégration de ces fibres dans les matrices polymères, en particulier l'incompatibilité fibre- matrice. L'adhérence fibre-matrice peut être améliorée par la modification de la topologie de la surface de la fibre. De divers traitements permettent la modification de la surface des fibres. Ces traitements améliorent la mouillabilité de la fibre avec la matrice et créent un lien fort à l'interface fibre-matrice. Une bonne adhérence à l'interface contribue à son tour, à l'amélioration du transfert de charges entre les fibres et la matrice et par conséquent de meilleures propriétés mécaniques sont accrues [18]. Plusieurs techniques de modification de surface des fibres naturelles ont fait l'objet de nombreuses citations dans la bibliographie (Voir chapitre I, section I.10). Les processus de traitements affectent les fibres naturelles et apportent une nette performance vis à vis la qualité de l'adhérence fibre-matrice.

II.4. Freins affectant le développement des biocomposites

Il est difficile de prévoir les propriétés mécaniques des composites renforcés par les fibres naturelles en raison de la variété du procédé d'extraction, la composition chimique et la forme de fibres, la résistance des fibres et leur capacité à adhérer avec la matrice polymère [19]. Selon John et Thomas (2008), les principaux effets d'ajout de fibres de renfort sur les propriétés mécaniques des composites se manifestent par une amélioration du module et de la résistance, une amélioration de la résistance au fluage, une dureté accrue et une amélioration substantielle de la résistance à la coupure, à la déchirure et à la perforation. Cependant, une diminution de l'élongation à la rupture est observée [20]. La performance des composites renforcés de fibres végétales repose sur certains paramètres : la structure, les défauts, les dimensions des cellules, les propriétés physiques, les propriétés chimiques, l'angle microfibrillaire, l'orientation des fibres, la résistance des fibres, la fraction des fibres (volume/poids) ainsi que l'interaction fibre/matrice [21, 22, 23]. Les paramètres suivants sont les principaux facteurs à prendre en considération lors de la fabrication de matériaux composites [24].

II.4.1. effet de la Composition chimique des fibres

Le taux de la cellulose détermine la résistance et la rigidité des fibrilles, tandis que la présence d' hémicelluloses dans les fibres permet le contrôle des propriétés d'absorption d'humidité, la dégradation thermique et la biodégradation, puisqu'elles présentent moins de résistance. D' autre part, la lignine est thermiquement stable, mais responsable de la dégradation par les UV [25, 26].

II.4.2. Stabilité thermique du composite

Fondamentalement, les procédés de fabrication peuvent être limités en raison de la faible stabilité thermique des fibres, et limite donc l'utilisation des composites renforcés de fibres végétales pour des applications à basse température [27]. Les fibres végétales commencent à se dégrader à environ 240°C, la lignine commence à une température d'environ 200°C, l' hémicellulose à une température entre 120 et 260°C tandis que la cellulose se dégrade à des températures plus élevées (280-380°C). La stabilité thermique peut être améliorée en éliminant une certaine proportion d' hémicelluloses et de lignine par différents traitements chimiques ou physiques. La dégradation de la fibre végétale est une question importante dans le développement de matériaux composites à la fois dans la fabrication et l'utilisation des composites [28, 29]. Les principaux changements qui influencent les matériaux composites sont la dilatation et la dégradation thermique. Les fibres présentent un coefficient de dilatation thermique négatif tout au long leurs longueurs; cependant, les coefficients de dilatation thermique positifs élevés, ont été estimés dans les directions transversales. Les études ont montré que le module de Young longitudinal dépasse le module transversal [30]. Dans le (tableau II.2) ci-dessous sont synthétisés certains freins identifiés au développement des biocomposites [31].

Tableau II.2: Freins affectant le développement des biocomposites à base de fibres végétales [31].

Coûts plus élevés des biocomposites	-Prix matières et process : Fibres et résines. -Faible échelle de production. -Nécessité d'adapter l'outil de production. -Frais de caractérisation complémentaires.
Des caractéristiques techniques à améliorer	-Nécessité d'améliorer les caractéristiques techniques des matières premières et en particulier de caractériser l'impact des propriétés des fibres dans les composites réalisés et donc des matériaux finaux. -Faible tenue thermique. -Faible stabilité dimensionnelle. -Absorption d'eau. -Nécessité de développer des résines et des process spécifiques -Nécessité de caractériser le vieillissement des matériaux.
La disponibilité des matériaux	-Des circuits de distribution insuffisamment développés. -Faible nombre de fournisseurs de process complet.
L'origine des matières premières	-Concurrence pour l'utilisation des ressources végétales à vocation alimentaire (surtout pour les résines, moins pour les fibres naturelles et le bois).
La gestion des produits en fin de vie	-Filière recyclage peu développée.

II.4.3. Effet de la teneur de fibres

La teneur en fibres détermine les propriétés finales des composites. Wambua et al. (2003)[32], Bos (2004) [33] et Bos et al. (2006) [34] ont étudié l'effet de la fraction volumique des fibres sur la résistance à la traction des composites de fibres naturelles. Ils ont rapporté que l'augmentation de la fraction pondérale de fibres induit une augmentation de la résistance à la traction. Nishino (2004) conclut que le module des matériaux composites augmente avec la fraction volumique des fibres, mais seulement jusqu' à un certain pourcentage. Lorsque ce seuil est atteint, une réduction spectaculaire des propriétés du composite est observée [35]. Le volume critique est un paramètre important, puisqu' il correspond à la fraction volumique critique des fibres au-dessus de laquelle celles-ci commencent à renforcer la matrice, plutôt que de l'affaiblir.

Ismail et al. (1997) [36]. Ont étudié l'effet de la taille et la teneur en charge sur les caractéristiques des fibres. Lorsque la teneur en fibres est élevée, on assiste à une réduction de la résistance à la traction et une augmentation de l'élongation à la rupture. Il a été également observé une hausse évidente dans l'allongement, la résistance à la déchirure, le module de traction et la dureté suite à l'incorporation d'une teneur élevée des fibres de bois.

Srinivasa et Bharath [37]. Ont également montré que la fraction de fibre influence aussi la dureté, les propriétés de traction et la résistance au choc des composites tandis que la résistance à la flexion et la résistance au cisaillement inter-laminaire sont fortement influencées par l'espace vide présent dans le composite et voit leur valeur diminuer suite à une teneur élevée en fibres. Ceci est le résultat d'une faible adhérence fibre/matrice et une augmentation de la porosité. La présence d'un pourcentage élevé en fibres cause une augmentation de la viscosité de la résine, créant ainsi des bulles d'air ou des pores piégés au cours du mélange de fibres dans la matrice polymère, et par ailleurs, augmente la probabilité d'absorption d'eau.

II.4.4. Effet de la longueur et du facteur de forme des fibres

La longueur et la géométrie des fibres jouent un rôle décisif dans les composites. Habituellement, la plupart des propriétés mécaniques d'une fibre peuvent être améliorées en augmentant le facteur de forme [38]. Une spécificité de fibres de cellulose est leur flexibilité par rapport aux fibres de verre permettant d'avoir le facteur de forme souhaitable et qui peut être maintenu même après le processus de transformation, celui-ci est aux alentours de 100-200 pour les composites à haute performance à fibres courtes [39]. Toutefois, des matières lignocellulosiques sont principalement utilisées comme fibres courtes discontinues et sont broyées en fines particules avec des rapports d'aspect (facteurs de forme) relativement faibles. Ces charges augmentent généralement la rigidité des composites, mais la résistance reste généralement inférieure à celle de la matrice vierge [40, 41].

Fu et al. (1999) [41] ont également rapporté qu'une longueur importante de fibres augmente leur énergie de détachement et améliore ainsi l'énergie d'impact. Pour des fibres longues, la dispersion est meilleure, en raison du faible nombre de fibres. Cela conduit à moins de fibres empilées, et donc moins de possibilité d'agglomération dans la matrice. Par conséquent, chaque fibre pourrait interagir avec la matrice de manière plus efficace.

L'intensification de contrainte est réduite, ce qui conduit à retarder la craquelure. Dans ce cas, la matrice va absorber la forte énergie de déformation d'impact, et par ailleurs l'amélioration de la résistance au choc du composite. Cependant, des résultats différents ont été obtenus

II.4.5. Dispersion et orientation des fibres

La dispersion du renfort conduit à un mélange plus ou moins homogène sans formation d'amas. Des études montrent que l'amélioration du processus de mélange permet une augmentation du module d'élasticité et de l'élongation à la rupture supérieure de 10% [41]

L'orientation des fibres est un paramètre important qui influe le comportement mécanique des matériaux composites à fibres courtes. En raison de l'anisotropie dans les composites renforcés de fibres naturelles, certaines propriétés sont modifiées suite à l'orientation de la fibre. Pendant la fabrication des composites à fibres courtes, une orientation continue et progressive des fibres individuelles se produit (figure II.7). Ce changement est lié aux caractéristiques géométriques des fibrilles, les propriétés viscoélastiques de la matrice et la variation de la forme produite au cours de la fabrication. Les fibres adoptent une orientation particulière dans le processus de fabrication, qui est responsable d'une plus grande rigidité dans la direction parallèle au flux [42].

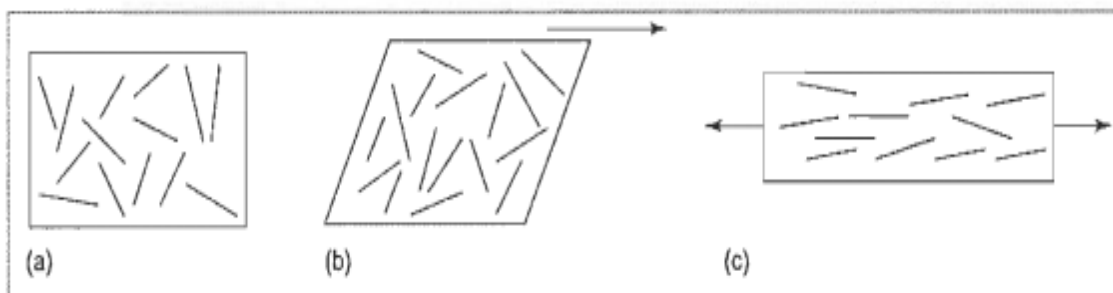


Figure II.7 : Orientation de fibres au cours de la fabrication des composites : (a) distribution initiale aléatoire, (b) rotation durant le flux de cisaillement et (c) alignement durant le flux d'allongement [42]

En fonction de l'orientation de la fibre dans la matrice, trois types de renforcement peuvent être obtenus. Tout d'abord, les composites fibreux alignés

Longitudinalement se caractérisent généralement par une résistance à la traction élevée, mais une faible résistance à la compression suite au flambage. En second lieu, les fibres orientées dans la direction transversale supportent des contraintes de traction très faibles, qui sont inférieures à la résistance de la matrice. Enfin, les composites de fibres courtes orientées de façon aléatoire, dans ce cas la prédiction des propriétés mécaniques est beaucoup plus difficile, en raison de la dispersion, l'orientation et la complexité de la répartition de la charge le long de l'interface fibre-matrice [43].

Tableau II.3 : Performance mécaniques de composite époxy renforcé par des fibres végétales

COMPOSITE	TRACTION		FLEXION	
	Résistance (MPa)	Module (MPa)	Résistance (MPa)	Module (MPa)
Fibres UD-polyester	45 – 143	4 – 17	63 – 280	4 – 41
Mat aléatoire-polyester	18 – 92	2 – 7	50 – 155	4 – 5
Fibres UD-époxy	65 – 535	6 – 16	84 – 324	5 – 24
Mat aléatoire - époxy	49 – 59	60 – 11	77 – 180	2 – 8

II.5. Mise en œuvre des biocomposites à fibres végétales

Selon le procédé de mise en œuvre choisie, qui est largement déterminée selon la nature du polymère, sa viscosité et les contraintes thermiques et mécaniques. La faible stabilité thermique des fibres naturelles aux températures de mise en forme des polymères demande une attention particulière. Les fibres végétales sont particulièrement sensibles à la température mais aussi aux temps auxquelles les matériaux sont soumis.

Les techniques de mise en œuvre des matériaux composites renforcés par des fibres naturelles sont celles couramment utilisées par ailleurs pour la fabrication de pièces à renforts classiques. Il existe plusieurs procédés pour élaborer et mettre en forme les composites qui

Sont : l'extrusion, très utilisée avec les thermoplastiques ; l'imprégnation, utilisée souvent avec les tissus et les fils ; le dépôt pour les composites en sandwichs. Les procédés de mise en œuvre des composites sont souvent suivis d'un moulage qui détermine les formes du matériau composite. Pour les biocomposites, les techniques de transformation les plus utilisées sont l'extrusion mono ou baxis, le mélangeur interne, la compression et le moulage par injection [44]. La (figure II.8) présente la variation de certains paramètres de mise en œuvre des composites à base de fibres végétales en fonction du procédé prédestiné.

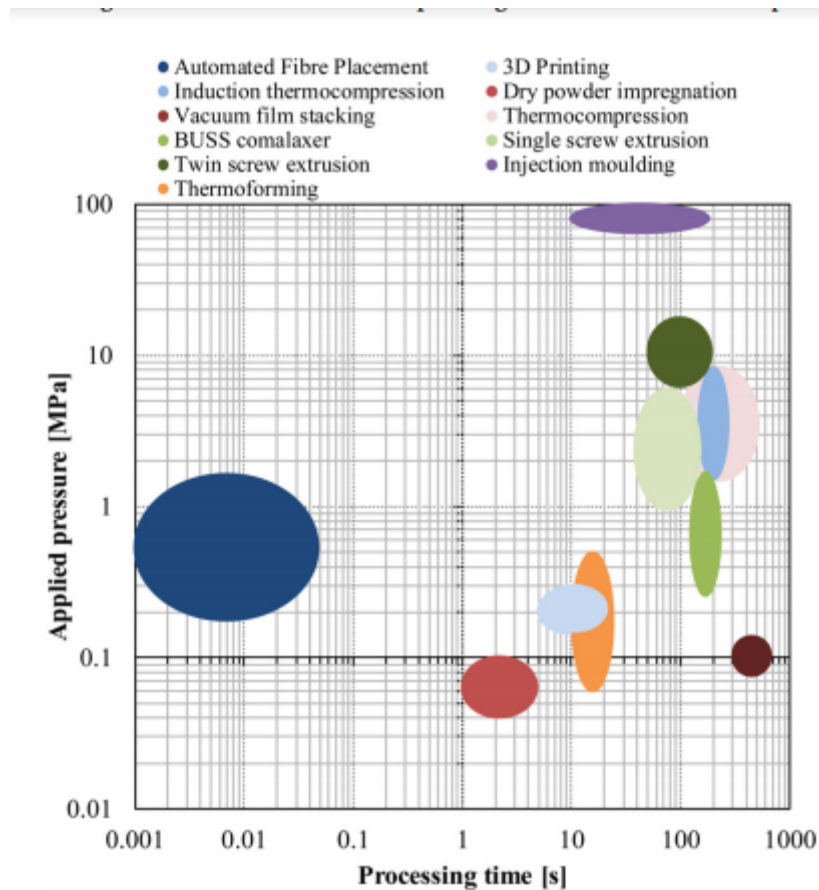


Figure II.8: Pressions et temps habituellement appliqués pour diverses techniques de mise en œuvre des composites à fibres végétales [45].

II.6. Rappels bibliographiques sur les biocomposites à matrice biopolymère et fibres végétales

L'addition de fibres végétale à une matrice biopolymère affecte d'une manière significative les propriétés physiques du matériau composite résultant, tels que la performance mécanique, thermique, la décomposition et la cristallinité. D'une manière générale, les performances des matériaux biocomposites dépendent principalement de la méthode d'élaboration des composites, de la nature des fibres utilisées, du facteur de forme des fibres, de l'orientation des fibres dans la matrice, de la fraction volumique des fibres, de la force d'adhésion inter-faciale fibre-matrice, de l'efficacité de transfert des contraintes à l'interface et du degré de cristallinité de la matrice.

Belhassen et al. [46] ont mené une étude sur l'effet de l'incorporation des fibres d'Alfa traitées à la soude, à une matrice biopolymère commerciale Biopar-S® qui est un polyester à base d'amidon. Dans cette étude, les biocomposites ont été élaborés dans un mélangeur interne suivi d'une opération d'injection. Les auteurs ont montré que l'incorporation des fibres végétales dans ce type de biopolymère provoque une forte augmentation du module d'élasticité et de la résistance maximale à la traction et à la flexion des biocomposites en fonction du taux de fibres en passant de 10 à 30 (% m) avec une diminution de l'allongement à la rupture. Une augmentation de la résistance aux chocs des biocomposites a été aussi démontrée. Les auteurs ont expliqué l'amélioration de la résistance mécanique par les images MEB qui ont prouvé la forte adhésion entre les fibres d'Alfa et la matrice ainsi que par la valeur du facteur de forme des fibres qui dépasse la valeur critique. (tableau II.4)

Tableau II.4: Résultats des Propriétés mécaniques des biocomposites biopolymère/fibres d'Alfa [46]

W_f (%)	V_f (vol%)	σ_f^c (MPa)*	E_f (MPa)	ε_{Max} (%)	TEA (kJ/m ²)	σ_f^c (MPa)**	E_f (MPa)	Izod (J/m)	η_l ***
0	—	6.5 [0.3]	131 [10]	9.4 [0.45]	—	5.3 [0.25]	126 [7]	23.6 [1]	—
10	0.07	10.2 [0.5]	608 [30]	3.9 [0.2]	22.7	13.0 [0.6]	481 [25]	34.6 [1.6]	0.58
15	0.11	13.2 [0.65]	863 [45]	3.8 [0.18]	33.5	16.8 [0.8]	642 [32]	43 [2]	0.55
20	0.14	15.9 [0.8]	1100 [55]	3.6 [0.15]	44.9	20.5 [1]	869 [43]	49.4 [2.5]	0.53
30	0.22	21.7 [1]	1550 [75]	3.3 [0.15]	59.2	28.3 [1.4]	1230 [65]	61.5 [3]	0.5

Values in brackets refer to confidence interval.
 * Tensile strength.
 ** Flexural strength.
 *** η_l value for the ROM.

Russo et al.[47] ont préparé des biocomposites à base de fibres de kénaf en utilisant deux types de polymères biodégradables à savoir le PBAT et le PHBV. Les composites ont été élaborés dans un mélangeur interne suivi d'une opération de moulage par compression. Les fibres de kénaf ont subi un traitement alcalin à la soude ainsi qu'un traitement au silane. L'étude par MEB a démontré une meilleure compatibilité des fibres de kénaf avec la matrice PHBV par rapport au PBAT. Cette constatation morphologique justifie le comportement mécanique de ces matériaux. En effet, les composites à base de PHBV présentent l'amélioration la plus prononcée de la résistance à la flexion et aux chocs, indépendamment du traitement de fibres adopté en raison de la bonne adhésion inter-faciale fibre/matrice. Les auteurs ont conclu que les biocomposites avec les fibres de kénaf à base de PHBV et PBAT peuvent fournir une alternative aux matières thermoplastiques classiques tout en conservant de bonnes performances et en réduisant les coûts. (tableau II.5)

Tableau II.5: Propriétés mécaniques de PHBV, PBAT, des biocomposites PHBV/kénaf et PBAT/kénaf

Echantillons	MATRICE	
	PHBV(GPa)	PBAT(MPa)
Matrice seul	1.28 ± 0.12	67 ± 2.0
40 kef. Unt	3.60 ± 0.23	713 ±36
60 kef. Unt	4.02 ± 0.37	939 ±23
40 kef. NaOH	3.81 ± 0.41	602 ±30
60 kef. NaOH	4.38 ± 0.52	784 ±23
40 kef. APS	3.78 ± 0.29	577 ±43
60kef. APS	4.44 ±0.14	892 ±30

Pan et al. [48] ont rapporté l'effet de l'incorporation des fibres courtes de kénaf à des teneurs de 0, 10, 20, et 30% en masse à une matrice biopolymère (PLLA). Les propriétés des biocomposites ont été observées par différents techniques (DSC, ATG et microscopie optique à lumière polarisée). L'étude de la cristallisation a illustré que la température de transition vitreuse (T_g) ne change pas après l'ajout des fibres de kénaf mais que la température de fusion (T_f) augmente légèrement et que la température de cristallisation (T_c) augmente significativement avec l'augmentation du taux de fibres dans le composite. (tableau II.6)

Tableau II.6: Propriétés thermiques des biocomposites à base de PLLA/kénaf [48].

Sample	T_g (°C)	T_c (°C)	ΔH_c (j/g PLLA)	T_m (°C)	ΔH_m (j/g PLLA)	X_c (%)
PLLA	58.4	97.7	-16.6	169.6	43.1	53.0
PLLA/KF(90/10)	58.2	101.4	-37.5	170.2	47.2	58.1
PLLA/KF(80/20)	58.3	102.6	-38.5	170.3	46.3	56.9
PLLA/KF(70/30)	58.5	103.2	-36.9	170.6	44.5	54.7

Par microscopie optique à lumière polarisée, (figure II.8) les auteurs ont confirmé que l'ajout de fibres naturelles augmente la densité de nucléation et diminue considérablement la taille des sphérolites, ce qui prouve que les fibres de kénaf ont un fort effet nucléant sur la matrice PLA [48].

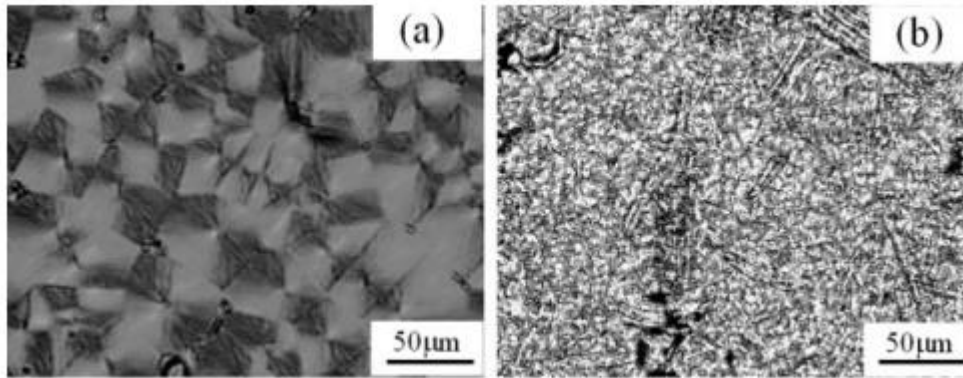


Figure II.8: Clichés par Microscopie optique à lumière polarisée de PLLA (a) et PLLA/kénaf (80/20) (b).

Les auteurs (figure II.9) ont également montré par ATG que la stabilité thermique des biocomposites diminue en comparaison avec le PLA d'autant plus que la teneur en fibres contenue dans le matériau biocomposite augmente.

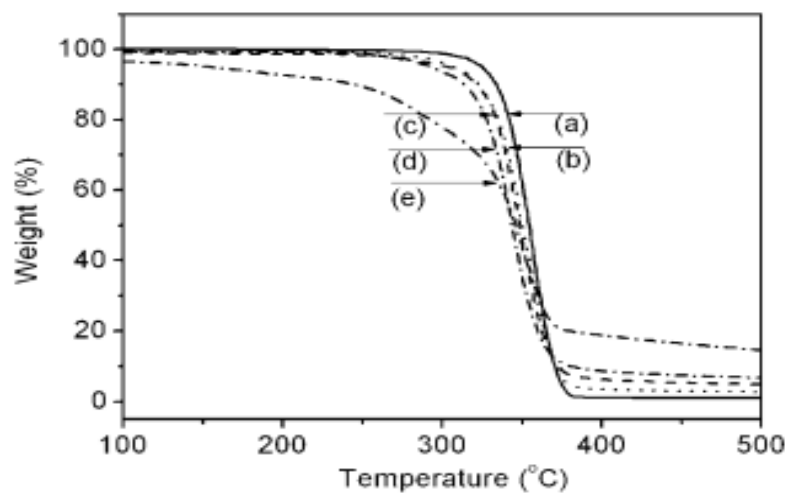


Figure II.9: Thermogrammes ATG : (a) PLLA, (b) PLLA/KF (90/10), (c) PLLA/KF (80/20), (d) PLLA/KF (70/30), and (e) KF

Mittal et al. [49] ont examiné les propriétés rhéologiques des biocomposites à base de farine de noyaux de dates et deux types de biopolyesters le PLA et le PBAT (figure II.10). Il a été démontré d'une part, que le comportement rhéologique des biocomposites étudiés est dominé par un comportement visqueux et d'autre part que le module de conservation et celui de perte augmentent en fonction du taux de charges présent dans le mélange en passant de 0

À 40 % m. Dans les cas des biocomposites à base PLA et à des taux de charges élevés (30 et 40%) ces modules sont significativement plus importants pour que les autres mélanges. Les auteurs ont expliqué ce phénomène par la présence d'agrégats de charges, ce qui a été confirmé par les clichés du MET ainsi que par l'absence d'interactions entre la matrice PLA et la farine de noyaux de dates.

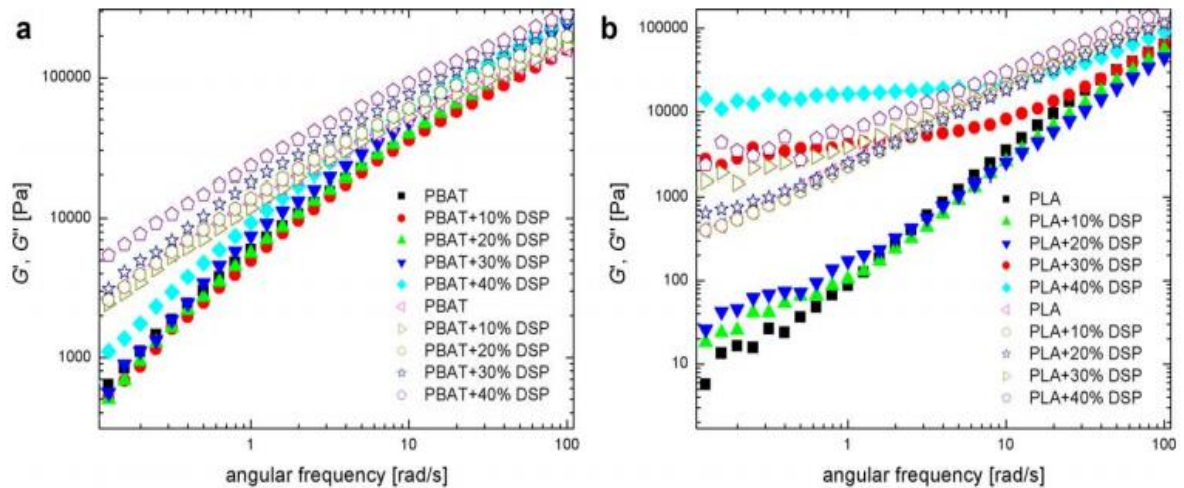


Figure II.10 : Evolution du module élastique (G') et module visqueux (G'') des biocomposites en fonction de la fréquence [49].

Dehouche et al. [50] ont étudié les propriétés des biocomposites à base de PHBHHx et 20% wt. fibres d'Aloe Vera non traitées et traitées. Les auteurs ont utilisés trois types de traitement : alcalin (NaOH à 5% en masse), au silane (2%) et un traitement combiné (NaOH - silane) traitements avec NaOH, suivis à un traitement de silane. Les auteurs ont rapporté que l'incorporation des fibres d'Aloe vera dans la matrice PHBHHx révèle une nette augmentation de la viscosité complexe, du module de conservation et du module de perte et cet effet devient encore plus important après modifications chimiques des fibres. (figure II.11).

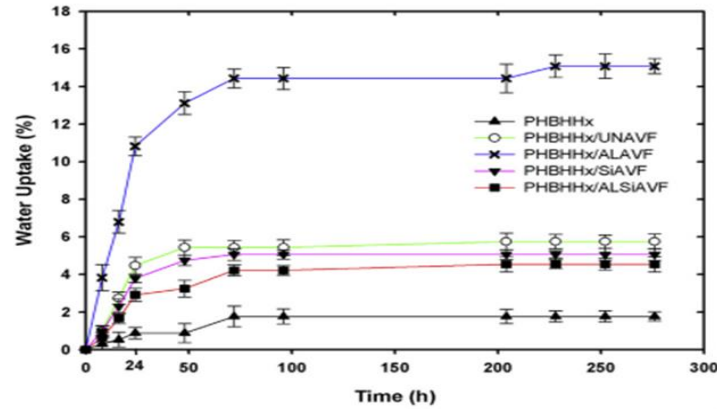


Figure II.11: Évolution de l'absorption d'eau du PHBHHx et des biocomposites PHBV/Aloe vera en fonction de la racine carrée du temps (en $h^{1/2}$) [50]

Le taux d'absorption d'eau augmente en présence des fibres, ceci suggère que les fibres végétales peuvent influencer l'hydrophilie final du biopolymère. En revanche, la stabilité thermique des biocomposites PHBHHx/ Fibres d'Aloe vera diminue par rapport à celle du PHBHHx pure. (figure II.12)

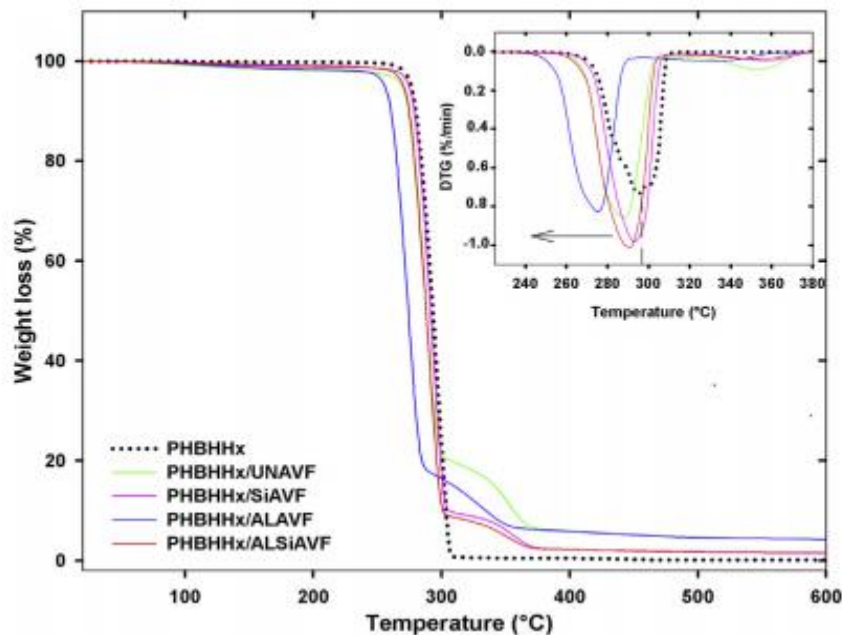


Figure II.12: Thermogrammes ATG et DTG du PHBHHx et des biocomposites PHBHHx/fibres d'Aloe vera [50]

Références
bibliographiques

Références

- [1] K. Murali Mohan Rao, K. Mohana Rao; Extraction and tensile properties of natural fibers: Vakka, date and bamboo; *Composite Structures* 77, 288-295, 2007.
- [2] « Emballage en biocomposites » [en ligne] : Disponible sur : <www.grenoble-inp.fr>, Consulté le 19/06/2020.
- [3] D. Sedan; Etude des interactions physico-chimiques aux interfaces fibres de chanvre/ciment. Influence sur les propriétés mécaniques du composite; Thèse de doctorat, Faculté des Sciences et Techniques, Université de Limoges, 2007.
- [4] K. Nassima, « caractérisation de la morphologie et des propriétés physico-mécaniques de matériaux composites EVA/farine de grignons d'olive/EBAGMA avant et après recyclage ». Mémoire magister, Bejaïa, 2010.
- [5] A. Rana; Development and characterization of compression molded flax fiber reinforced biocomposites; Thèse de doctorat, Department of Agricultural and Bioresource Engineering, University of Saskatchewan, Saskatoon, Saskatchewan, 2008.
- [6] www.european-bioplastics.org/bioplastics.
- [7] P.U, Beimborn D, Yamamoto M, Biodegradability and compostability of polymers - Test methods and criteria for evaluation. *Journal of Environmental Polymer Degradation*; 4: 173-178, 1996.
- [8] C. Decriaud A., Bellon-Maurel V. and. Silvestre F. Standard methods for testing the aerobic biodegradation of polymeric materials. Review and perspectives, in *Blockcopolymers Polyelectrolytes Biodegradation*: 207-226, 1998.
- [9] L. R.W. Biodegradable Polymers. *Advances in Polymer Science*; 107:1-40, 1993.
- [10] Th. R.N. Biodegradable films and composite coatings: past, present and future. *Trends Food Sci. Tech*; 14:71-78, 2003
- [11] A. Ojito Betancourt « Analyse, extraction et récupération de poly-3-hydroxybutyrate présent dans la biomasse », université de Québec à Montréal, janvier 2008.

- [12] R. D., Dubois P., Les (bio)polymères biodégradables : l'enjeu de demain, *Chim. Nouv*; 86 : 66–75, 2004.
- [13] F. P., Cesar G., Benguigui L., Grohens Y., Pillin H., Bewa S., Jamal M., Degradation of polyethylene used for agricultural purposes, *J. Polym. Environ*;13: 349–355, 2005.
- [14] M. D.P., Williams S.F., Medical applications of poly-4-hydroxybutyrate: a strong flexible absorbable biomaterial, *Biochem. Eng. J*; 16: 97–105, 2003
- [15] U. BD, Nair LS, Laurencin CT. Biomedical Applications of Biodegradable Polymers. *J Polym Sci Part B Polym Phys*; 49:832–864, 2011.
- [16] Ch. G.Q., Wu Q., The application of polyhydroxyalkanoates as tissue engineering materials, *Biomaterials*; 26: 6565–6578, 2005.
- [17] M. Nicolas Le Moigne ; Mécanismes de gonflement et de dissolution des fibres de cellulose ; Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2008.
- [18].S, A. Matériaux composites a matrice Epoxyde chargée par des fibres de palmier dattier effet de l'oxydation au tempo sur les fibres. Thèse de doctorat. Paris. L'institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 2011.
- [19] K. M.M., Wang, H., Lau, K.T., Cardona, F. Chemical treatments on plantbased natural fibre reinforced polymer composites: An overview, *Composites: Part B*, 43, 2883–2892, 2012.
- [20] R. Hajj. Procédés de Modification des Fibres naturelles. Thèse de doctorat. MINES ALES - IMT - Ecole Mines d'Alès - Télécom, 2018.
- [21] O. Reddy , K., Uma Maheswari, C., MukulShuklaa, Song , J.I., VaradaRajulue, A. Tensile and structural characterization of alkali treated Borassus fruit fine fibers, *Composites: Part B*, 44, 433–438, 2013.
- [22] R, K. O., Reddy, K. R. N., Feng, Y., Zhang, J., & Rajulu. Effect of alkali treatment on the properties of century fiber. *Journal of Natural Fibers*.10 (3), 282-296, 2013.
- [23]. T. H. Mokhothu and M. J. John, "Review on hygroscopic aging of cellulose fibres and their biocomposites," *Carbohydrate Polymers*, vol. 131, pp. 337–354, 2015
- [24]. C. Baley, Y. Grohens, G. Levesque, F. Busnel, C. Pomel, and O. Sire, "Influence des traitements chimiques sur les propriétés interfaciales et l'adhérence du système fibre de lin-résine polyester," *Matériaux*, pp. 1–4, 2002.

- [25] M. S., Gouanvé F., Bonnesoeur A., Grenet J., Poncin-Epaillard F., Morvan C., Métayer M., “Unsaturated polyester composites reinforced with flax fibers: effect of cold plasma and autoclave treatments on mechanical and permeation properties”, *Composites* : 36, 975-986, 2005.
- [26] S. S, Pupo. J.F, Schreiber. H, Thermal degradation of cellulose containing composites during processing, *Journal of Applied Polymer Science*, 37, p. 233-240, 1989.
- [27] K. C, Kubat. J, Strömvall. H.E, The efficiency of cellulosic fillers in common thermoplastics. Part 1 Filling without processings aids or coupling agents. *Inter. J. Polymeric Mater*, 10, p. 159-187, 1984.
- [28] B. C., *Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites. Technique de l'ingénierie, traité génie des procédés*, Vol. AM5, pp. 130. 2004.
- [29] N. Le Moigne, B. Otazaghine, S. Corn, H. Angellier-Coussy, A. Bergeret, *Surfaces and Interfaces in Natural Fibre Reinforced Composites : Fundamentals, Modifications and Characterization*, Springer, 2018.
- [30] B. E., Baley C., Study of the tensile properties of stinging nettle fibers (*Urtica dioica*). *Mater. Letters*. 62: 2143–2145, 2008.
- [31] *Etude de marché des biocomposites*, CEIS/CETELOR, 2011.
- [32] W. P., Ivens J., Verpoest I., “Natural fibres: can they replace glass in fibre reinforced plastics ?” *Composites Science and Technology*, 63, 1259-1264, 2003.
- [33] B. H.L., “The potential of flax fibres as reinforcement for composite materials”, Thèse, Eindhoven, 2004.
- [34] B. H.L., Mussig J., Van den Oever M.J.A., “Mechanical properties of short-flax fibre reinforced compounds, *Composites : Part A*, 37, 1591-1604, 2006.
- [35] N. T., Hirao K., Kotera M., “X-ray diffraction studies on stress transfer of kenaf reinforced poly (L-lactic acid) composite”, *Composites* : 37, 2269-2273, 2006.
- [36] Kh. H.P.S.A., Rozman H.D., Ahmad M.N., Ismail H., “Acetylated plant-fibre-reinforced polyester composites: a study of mechanical, hydrothermal and aging characteristics”, *Polym Plast Technol Eng*, 39, 757-781, 2000.
- [37] C.V. Srinivasa, K.N. Bharath Impact and Hardness Properties of Areca Fiber-Epoxy Reinforced Composites *J. Mater. Environ. Sci.* 2 (4) 351-356, 2011.

- [38] M.S. Sreekala, M.G. Kumaran, S. Joseph, M. Jacob, S. Thomas, Oil palm fibre reinforced phenol formaldehyde composites: influence of fibre surface modifications on the mechanical performance, *Appl. Compos. Mater.* 7. 295–329, 2000.
- [39] R. Chollakup, W. Smitthipong, W. Kongtud, R. Tantatherdtam, Polyethylene green composites reinforced with cellulose fibers (coir and palm fibers): effect of fiber surface treatment and fiber content, *J. Adhes. Sci. Technol.* 27. 1290–1300, 2013.
- [40] L. Suryanegara, A.N. Nakagaito, H. Yano, The effect of crystallization of PLA on the thermal and mechanical properties of microfibrillated cellulose-reinforced PLA composites, *Compos. Sci. Technol.* 69. 1187–1192, 2009.
- [41] J.M. Felix, P. Gatenholm, Nature of adhesion in composites of modified cellulose fibers and polypropylene, *J. Appl. Polym. Sci.* 42. 609–620, 1991.
- [42] L. Suryanegara, A.N. Nakagaito, H. Yano, The effect of crystallization of PLA on the thermal and mechanical properties of microfibrillated cellulose-reinforced PLA composites, *Compos. Sci. Technol.* 69. 1187–1192, 2009.
- [43] Peltola H, Jetsu P, Heinemann S. Wood based PLA and PP composites: effect of fibre type and matrix polymer on fibre morphology, dispersion and composite properties. *Composites Part A* 2014; 61:13–22, 2014.
- [44] A.Bourmaud , D. Shahb, J Beaugrandc, H N. Dhakal, Property changes in plant fibres during the processing of bio-based composites *Industrial Crops & Products* 154. 112705, 2020.
- [45] L. MK, Saini GK, Kannan M, Singh I. Effect of fiber type on thermal and mechanical behavior of epoxy based composites. *Fibers Polym*; 18(4):806–10, 2017.
- [46] R. belahsen , S. Boufi, F Vilasca, Biocomposites based on Alfa fibers and starch-based biopolyme *Polymers for Advanced Technologies* 20(12):1068 - 1075, 2008.
- [47] P. Russo, C. Carfagna, F. Cimino, Biodegradable Composites Reinforced with Kenaf Fibers: Thermal, Mechanical, and Morphological Issues *Advances in Polymer Technology* 32(S1) DOI: 10.1002/adv.21282,2013.
- [48] P. Pan. B. Bo Zhu, Weihua Kai, Crystallization behavior and mechanical properties of bio-based green composites based on poly(L-lactide) and Kenaf fiber *ournal of Applied Polymer Science* 105(3):1511 – 1520.

- [49] V. Mittal, E L. Boril Chernev Nadejda B. Matsko Bio-polyester–date seed powder composites: Morphology and component migration, *Journal Polymer Engineering and Science*, 55, 4, 877-888, 2015.
- [50]. N. Dehouche, C. Idres a, M. Kaci a, I. Zembouai a, S.Bruzaud. Effects of various surface treatments on Aloe Vera fibers used as reinforcement in poly (3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyhexanoate) (PHBHHx) biocomposites *Polymer Degradation and Stability*, 175, 109131, 2020.

Conclusion

Conclusion

Dans un souci de protection de l'environnement et de la santé publique, les matériaux composites tendent à intégrer un caractère écologique (matrice biopolymère biodégradable) et renforts naturels. La recherche de nouveaux matériaux biocomposites est l'objectif primordial des scientifiques et industriels du point de vue gain à la fois technologique, économique et écologique. Pour cela, plusieurs travaux ont été menés dans la littérature et le nombre d'études concernant ces matériaux est en continuelle augmentation. Leur développement représente un enjeu important.

Ce manuscrit est une recherche bibliographique qui traite essentiellement les matériaux biocomposites à matrices biopolymères renforcés par des fibres végétales. Des notions théoriques sur les matériaux composites, les différents constituants utilisés et les procédés de mise en forme sont énoncés. Les polyesters bactériens (PHA) sont des biopolymères très attractifs, notamment pour des diverses applications. De par ces avantages, les PHA constituent l'un des biopolymères les plus appropriés pour développer des biocomposites à renforts fibres végétales.

Dans ce mémoire, nous avons exposé les fibres naturelles végétales et en particulier les fibres de Diss : leur structure chimique et morphologique, leur disponibilité, leurs propriétés d'usage. Les différentes techniques d'extraction de ces fibres à partir de la plante sont présentées.

Nous avons dévoilé également les différents aspects physico-chimiques qui se manifestent à l'interface fibre/matrice et leur influence sur les performances des matériaux biocomposites. Nous avons vu que malgré la diversité de ces méthodes, leur objectif principal réside dans l'accroissement de l'affinité entre les composés.

Nous avons achevé notre manuscrit par la description de quelques résultats obtenus dans la littérature en ce qui concerne les propriétés de ces systèmes biocomposites biopolymères/fibres végétales.