



Faculté de Technologie
Département de Génie des procédés
Laboratoire des Matériaux Polymères Avancés

Mémoire

EN VUE DE L'OBTENTION DU DIPLOME DE Master

Domaine : Science et Technologie Filière : Génie des Procédés

Spécialité : Génie Des Procédés

Présenté par

Barache MD'Arab et Hammaid Fatch

Thème

Elaboration et caractérisation d'un matériau composite à base d'une matrice thermodurcissable et d'une fibre cellulosique.

Soutenue le 29/06/2022

Devant le jury composé de :

Nom et Prénom	Grade		
FATMI Sofiane	MCA	Université de Bejaïa	Président
IHAMOUCHEN Chadia	MCA	Université de Bejaïa	Examineur
CHIBANI Nacera	MCA	Université de Bejaïa	Encadrant
HAMADACHE Hassiba	Docteur	Université de Bejaïa	Co- Encadrant

Année Universitaire : 2021/2022

On remercie Dieu tout puissant de nous avoir donné la force, la volonté et d'avoir mis sur nos chemins toutes les personnes qui ont contribué à la concrétisation de ce travail.

On tient en tout premier lieu à présenter l'expression de notre profonde gratitude et nos remerciements les plus sincères à notre promotrice **Dr CHIBANI Nacera**, pour la qualité d'encadrement dont on a bénéficié auparavant en graduation (L3 et M2). Merci énormément Madame pour votre dévouement, tous les conseils et les encouragements dont vous nous avez fait part et la confiance que vous avez placée en nous.

On tient à exprimer également nos plus chaleureux remerciements au **Dr HAMMADACHE Hassiba** notre co-promotrice qui nous a accueilli les bras grands ouverts au sein du Laboratoire votre aide et votre engagement si précieux, ont profondément contribué à notre formation et évolution. Un grand Merci Madame pour tout ce que vous avez fait pour nous et pour votre implication dans l'aboutissement de ce projet de fin d'étude.

On souhaite également remercier l'ensemble des membres du jury : **Dr FATMI Sofiane** pour nous avoir fait l'honneur d'accepter de présider, **Dr IHAMMOUCHEN Chadia** qui a très aimablement accepté de faire partie du jury en qualité d'examinatrice.

Nos sincères remerciements à tous les enseignants de l'Université de Bejaia qui ont contribué à notre formation durant ces deux cycles universitaires.

Grand merci

Je tiens à dédier ce travail à :

Mes parents, Yema qui était ma première enseignante ainsi que Vava qui grâce à lui je suis devenu l'homme que je suis aujourd'hui, les deux personnes les plus chères à mes yeux, ceux qui sont à l'origine même de tous mes exploits, ceux qui ont cru en moi, soutenu avec amour, patience et énormément de sacrifices ; que je qualifie d'indénombrables.

Au-delà de toute reconnaissance, la vôtre est la plus importante.

Mes frères Abderrahim, Fouad, Abd el moumen et Mohamed Riad je tiens à vous remercier infiniment.

A toute ma famille, mes tantes et leurs maris, et mes oncles et leurs femmes, grand et petit et à ma grande mère, je tiens à vous dédier ce travail pour le soutien que vous m'avez apporté de loin ou de près.

A Amine qui a été persévérant durant tout le long de notre cursus ainsi pour la réalisation de ce travail, et sa famille de qui nous ont été très serviables et coopérative.

A tous mes amis, ainsi que tous mes camarades de classe merci pour vos soutiens moraux vous qui m'ont beaucoup aidé.

A la mémoire de tous mes proches disparus.

FATEH

Je tiens à dédier ce travail à :

Mes parents (Vavadh Yema) les deux personnes les plus chères à mes yeux,
Ceux qui sont à l'origine même de cette réussite,
Ceux qui ont cru en moi, soutenu avec amour, patience et énormément de
sacrifices ; que je qualifie d'indénombrables.

Au-delà de toute reconnaissance, la vôtre est la plus importante.

Mon frère (Nacim, sa femme Anfelet leur fille Cyrine), Ma petite sœur (Inès),
y'a pas plus fort que les liens qui nous unissent.

**Mon grand-père (Jedi le vieux) tu es l'une des personnes qui m'ont le plus
marqué, en particulier cette influence que tu as eue sur l'homme que je suis
devenu aujourd'hui.**

Ma tante (Samira), son mari (D'Ahmed) et leurs fils (Dalin, Wassim et Yani)
aucun mot ne pourra décrire tout ce que vous avez fait pour moi durant toutes
ces années.

Mes tantes, mes oncles, mes cousins et toute ma famille.

**Mon bras droit Fateh avec qui j'ai réalisé ce travail et partagé 4ans, de
solidarité et de lutte.**

**Tous Mes amis, de près et de loin, ighmourassen, lyticia, soraya, kamy, chikh
azouaou, chéraz, chikh Hichem.**

**La mémoire de tous mes proches disparus très tôt (Yema Zahra et Yema Fa, Jedi
Belaid, Mohend Said, Yaya Roukia et adem)**

AMINE

ATG/DTG :Analyse thermogravimétrique et sa dérivée. **F0** : Formulation du UP vierge.

CMC :Cellulose microcristalline.

F1 T : UP/1% CTHSE.

CTHSE :Cellulose traitée par l'huile de soja époxydée.

F2 T : UP/5% CTHSE.

CNT :Cellulose non traitée.

F1 NT : UP/1% CMC.

IRTF : Infrarouge à transformée de Fourier.

F2 NT : UP/5% CMC.

MEB :Microscopie électronique à balayage.

UP : Résine polyester insaturé.

Figure 1 : Schéma représentatif d'un Matériau composite.....	4
Figure 2 : Schéma qui représente les différents types de matrices.....	7
Figure 3 : Réaction de synthèse du polyester insaturé par polycondensation.....	9
Figure 4 : Schéma de Différent Type de renfort (Gornet, 2008).....	11
Figure 5 : Schéma de la structure chimique de la cellulose(Ouajai and Shanks, 2005).....	12
Figure 6 : Schéma de la structure chimique de l'hémicelluloses (Gong et al., 2004).....	12
Figure 7 : Schéma de la structure chimique de la lignine.	13
Figure 8 : Spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier (FTIR).....	23
Figure 9 : Machine thermogravimétriques (ATG)	24
Figure 10 : Dispositif de microscopie électronique à balayage.....	25
Figure 11 : Machine de traction	25
Figure 12: Machine de Flexion.	26
Figure 13. Spectres IRTF de la cellulose non traitée et traitée par l'huile de soja époxydée ..	28
Figure 14. Évolution de la contrainte à la rupture des composites UP/cellulose en fonction du taux de charge traitée et non traitée.....	29
Figure 15. Évolution de l'allongement à la rupture des composites UP/cellulose en fonction du taux de charge traitée et non traitée.....	30
Figure 16. Évolution de l'allongement à la rupture des composites UP/cellulose en fonction du taux de charge traitée et non traitée.....	31
Figure 17. Évolution du déplacement à la rupture des composites UP/cellulose en fonction du taux de charge traitée et non traitée.....	32
Figure 18. Thermogrammes ATG et DTG de la résine UP et des composites à 1% de charge traité et non traité.....	33
Figure 19. Thermogrammes ATG de la résine UP et des composites à 5% de charge traité et non traité.....	34
Figure 20. Thermogrammes DTG de la résine UP et des composites à 5% de charge traité et non traité.....	35
Figure 21. Images de la microscopie électronique à balayage (MEB) de : a) UP chargé à 5% traité, b) UP chargé à 5% non traité.	36

Tableau I. Exemples de matériaux composites, pris au sens large. (Berthelot, 2012).....	5
Tableau II : Les avantages et les inconvénients de polyester insaturé(Fathi, 2020).	10
Tableau III :Avantages et inconvénients des matériaux composites (ROYER and MERSON, 2013).....	17
Tableau IV.Caractéristiques de la résine	21
Tableau V :Caractéristiques du catalyseur PMEC 50	22
Tableau VI :. Caractéristiques physiques de l’HSE-100 S.....	22
Tableau VII : Caractéristiques de l’acétone	22
Tableau VIII : Principales bandes d’absorption de la cellulose(Berlitz, 2007).....	27
Tableau IX.Comportements thermiques d’UP et de ses composites.....	35

INTRODUCTION GENERALE	1
SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE.....	3
I. Généralités sur les composites polymère/fibres naturelles	3
I.1. Historique	3
I.2. Définition des composites	3
I.2.1. Propriétés des matériaux composites	4
I.2.2. Classification des matériaux composites.	5
I.3. Constitution des matériaux composites	6
I.3.1. Matrice	6
I.3.2. Renforts.....	11
I.3.3. Interface matrice–renfort dans un matériau composite.....	13
I.4. Traitements de modification.....	14
I.4.1. Méthode physique.....	14
I.4.2. Méthodes chimiques	15
I.5. Mise en œuvre des matériaux composites.....	16
I.6. Domaine d’application des matériaux composites à charges naturelles	16
I.7. Avantages et inconvénients :.....	17
I.8. Etat d’art.....	18
MATERIEL ET METHODES.....	21
I. Présentation des produits utilisés	21
I.1. Polyester insaturé (UP).....	21
I.2. Durcisseur.....	21
I.3. Cellulose microcristalline.....	22
I.4. Huile de soja époxydée (HSE)	22
I.5. L’acétone	22
I.6. La cire.....	23
II. Modification chimique de la cellulose par l’huile de soja époxydée.....	23
III. Préparation des composites.....	23
IV. Techniques de caractérisation	23
IV.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF)	23

V.	Analyse thermogravimétrique (ATG/DTG)	24
VI.	Essai mécanique	24
VI.1.	Analyse morphologique (MEB)	24
VI.2.	Essais de traction.....	25
VI.3.	Essais de Flexion.....	26
RESULTATS ET DISCUSSION		27
I.	Caractérisation de la cellulose traitée et non traitée	27
I.1.	Analyse spectrale IRTF	27
II.	Caractérisation mécanique	29
II.1.	Test de traction	29
II.2.	Test de flexion.....	31
III.	Analyse thermogravimétrie (ATG/DTG).	33
III.1.	ATG et DTG de l'UP et des composite de 1% de charge traité et non traité.....	33
III.2.	ATG et DTG de l'UP et composites de 5% de charge traité et non traité.....	34
IV.	Caractérisation morphologique (MEB)	36
CONCLUSION		37
PERSPECTIVES		37
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES		

Introduction

Introduction générale

Là où l'homme utilise des métaux, la nature de son côté produit des polymères, qui sont fort recherchés pour leurs propriétés physico-chimiques. Au cours de la dernière décennie, il y a eu un intérêt croissant pour les polymères renforcés de fibres naturelles.

Cependant, face aux contraintes économiques, aux préoccupations environnementales et sanitaires, le marché demande de plus en plus un matériau moins cher, plus performant ou plus écologique, voire si possible une combinaison des trois (**Michaud, 2003a; Panaitescu et al., 2007**).

Avec le développement et l'évolution rapide de la technologie et des pratiques industrielles, une nouvelle génération de matériaux allie rigidité, résistance mécanique, haute ténacité et extrême légèreté sont recommandées. C'est pourquoi nous essayons depuis des années d'obtenir des matériaux aux propriétés différentes : les composites (**Marcovich et al., 2001**).

Cette nouvelle génération de matériau (matrice/fibre) allie rigidité, résistance mécanique, haute ténacité et extrême légèreté. Les fibres végétales cumulent de nombreux avantages : ressources renouvelables et disponibles, faible coût et propriétés mécaniques spécifiques élevées (**Sivakumar et al., 2021a**).

Ces matériaux performants reposent sur une compréhension approfondie de la relation structure morphologique-composition-propriété, cette dernière étant essentiellement déterminée par les propriétés de l'interface matrice-charge.

Par conséquent, les problèmes fondamentaux lors de la conception de composites sont l'incompatibilité d'interface, une mauvaise dispersion des fibres dans le composite et une capacité de renforcement réduite. En effet, les fibres naturelles contenant des groupements hydroxyles hydrophiles sont incompatibles avec les therm durcissables hydrophobes tels que les polyesters à faible résistance à l'humidité. Il devient donc crucial d'améliorer cette cohésion interfaciale, notamment en traitant physiquement ou chimiquement les fibres (**Gasmi, 2020**).

Cependant, la modification de la surface des fibres par des méthodes chimiques reste le meilleur moyen d'amélioration de la compatibilité entre les fibres lignocellulosiques et les polymères. Parmi ces méthodes, on peut citer: l'estérification, le traitement alcalin (**Boukerrou et al.**), le traitement par les silanes (**Taurino et al., 2020**), l'utilisation d'agents de couplage (**Hamadache et al., 2019**), et le traitement par l'huile de soja.

C'est dans ce contexte que notre travail a consisté à étudier l'effet des taux de cellulose microcristalline (CMC) sur les propriétés des composites UP/CMC, et la modification chimique de la CMC avec de l'huile de soja époxydée (HSE)(**Falco, 2016**).

Pour atteindre ces objectifs, des composites ont été préparés avec différentes proportions de fibres traitées et non traitées (1% et 5% en masse) :

- Composites UP/cellulose microcristalline non traitée (UP/CNT).
- Composites UP/cellulose microcristalline traitée par l'HSE (UP/CTHSE).

Pour mener à bien ce travail, ce manuscrit s'articule autour de trois chapitres :

- Le premier chapitre est consacré à l'étude bibliographique portant sur les matériaux composite d'une manière générale (leurs morphologies, leurs composition, propriétés, application) ainsi que leurs traitements chimiques. Avec une comparaison d'identification entre les résines thermodurcissables et thermoplastiques, en mettant l'accent sur la résine du polyester insaturé utilisée dans cette étude.
- Quant au second, il traite les protocoles expérimentaux utilisés dans cette étude et qui sont relatifs au traitement de la fibre, la préparation des composites ainsi que les techniques de caractérisation (MEB, ATG, DTG, IRTF, tests mécaniques traction et flexion) des fibres et/ou des composites élaborés lors de cette étude.
- Dans le dernier chapitre enfin, sont exposés les résultats de cette étude, ainsi que la discussion des performances des composites après le traitement chimique subis par les fibres cellulosiques.
- Et pour finir, une conclusion générale clôt cette étude, où les principaux résultats sont synthétisés avec quelques perspectives.

Synthèse
bibliographique

Synthèse bibliographique

I. Généralités sur les composites polymère/fibres naturelles

I.1. Historique

Les matériaux composites sont vieux comme le monde, les utilisations premières des composites remontent aux années 1500 avant JC lorsque les premiers colons égyptiens et mésopotamiens utilisaient un mélange de boue et de paille pour créer des bâtiments solides et durables. La paille a continué à renforcer les anciens produits composites, depuis plus de 4 décades les bateaux de plaisance sont essentiellement fabriqués à l'aide de matériaux composites. Plus tard, en 1200 après JC, les Mongols ont inventé le premier arc composite. En utilisant une combinaison de bois, d'os et de «colle animale» (**Gay and Hoa**), le développement de ces matériaux à matrice organique et à renfort fibreux constitue un événement important dans l'histoire récente des matériaux (**Mercier et al., 1999**).

En 1823, le chimiste et inventeur britannique Charles Macintosh dépose son brevet de vêtement imperméable. L'imperméable est fabriqué en associant du caoutchouc avec des tissus comme le coton. En 1892, l'ingénieur français François Hennebique dépose le brevet du béton armé à Bruxelles (**Hutchinson, 1995**). Au début des années 1900, des plastiques tels que le vinyle, le polystyrène, le phénolique et le polyester ont été développés. Ces nouveaux matériaux synthétiques ont surpassé les résines dérivées de la nature. Cependant, les plastiques seuls ne pouvaient pas fournir une résistance suffisante pour les applications structurelles.

Un renfort était nécessaire pour fournir la force et la rigidité. En 1935, Owens Corning a introduit la première fibre de verre, lorsqu'elle est combinée à un polymère plastique, crée une structure incroyablement solide qui est également légère. C'est le début de l'industrie des polymères renforcés de fibres (FRP) telle que nous la connaissons aujourd'hui (**Chawla, 2012**). Ces matériaux sont particulièrement adaptés aux structures qui requièrent à la fois haute résistance et excellente rigidité, avec en même temps une grande légèreté. En effet, ces composites présentent un certain nombre d'avantages par rapport aux matériaux métalliques : résistance à la fatigue mécanique, insensibilité à la corrosion, facilité et possibilité de mise en œuvre ainsi qu'un faible coût (**Rokbi et al., 2011a**).

I.2. Définition des composites

Les matériaux composites sont des matériaux constitués par l'association d'au moins deux matériaux non miscibles aux caractéristiques complémentaires, les matériaux ainsi obtenus sont très hétérogènes et souvent anisotropes, et cela afin de conférer à l'objet que l'on veut fabriquer toutes les propriétés souhaitées en terme de rigidité, résistance mécanique,

légèreté ou autre propriété physico-chimique, électrique, optique...etc.(Ly, 2022). Dans un matériau composite (**figure 1**) on distingue généralement :

- Une ossature dite (renfort) qui joue le rôle de squelette ou d'armature qui assure la tenue mécanique (résistance à la traction et rigidité).
- D'autre part (les matrices) sont souvent des résines organiques thermoplastiques ou thermodurcissables, elles permettent de lier les fibres (renfort) ; De répartir les efforts (résistance à la compression ou à la flexion), et d'assurer aussi la protection chimique.

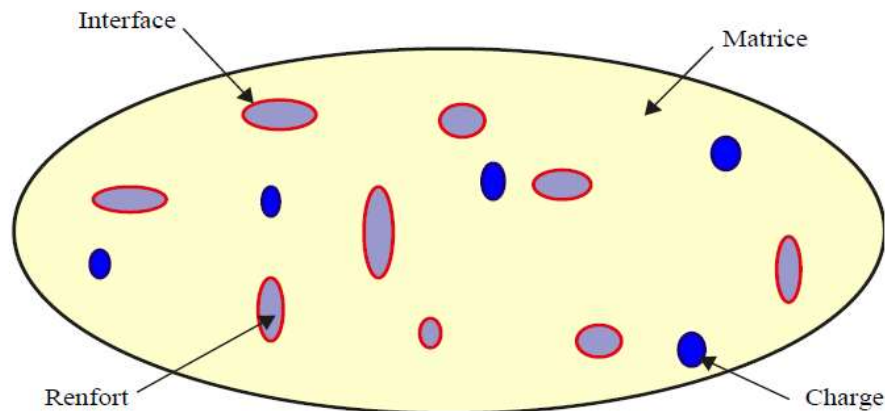


Figure 1 : Schéma représentatif d'un Matériau composite

I.2.1. Propriétés des matériaux composites

Plusieurs facteurs peuvent intervenir pour influencer ou apporter des modifications bien spécifique dans un matériau composite, tel que la nature de la matrice et du renfort, la forme et la proportion du renfort, ainsi que la qualité de l'interface et le procédé de production utilisé (Seyni, 2008). Cependant lors du choix d'une résine, les principales propriétés les plus intéressantes sont :

❖ Propriétés mécaniques :

- Résistance à la traction et module de traction.
- Résistance à la flexion et module de flexion.
- Elongation sous traction.
- Dureté.
- Température de déformation thermique.

❖ Propriétés chimiques :

- Résistance aux conditions alcalines.
- Résistance aux conditions réductrices ou oxydantes des acides.
- Résistance aux solvants.

I.2.2. Classification des matériaux composites.

Les composites peuvent être classés suivant la nature des composants ou suivant leurs formes.

❖ Classement suivant la nature des constituants :

Selon la nature de la matrice, on distingue des matériaux composites à matrice organique, métallique ou minérale (Mercier et al., 1999).

Le **tableau I** ci-dessous regroupe les principaux domaines d'application de ces composites selon les différentes matrices et leurs constituants.

Tableau I. Exemples de matériaux composites, pris au sens large. (Berthelot, 2012).

Composites	Constituants	Domaine d'application
1. Composite à matrice organique Papier, carton Panneaux de particules Panneaux de fibres Toiles enduites Matériaux d'étanchéité Pneumatique Stratifiés Plastique renforcés	Résine/charge/ fibre cellulosique Résine/ copeaux de bois Résine/ fibre de bois Résine souples/ tissus Elastomère/ bitume/ textiles Caoutchouc/ toiles/ acier Résine/ charge/ fibre de verre de carbone ...etc. Résine/ micro sphères	Imprimeries, emballage Menuiseries Bâtiments Sport, bâtiment Toiture, terrasse Automobile Domaine multiple
2. Composite à matrice minérale Béton. Composites carbone-carbone. Composites céramique.	Ciment/ sable/ granulats. Carbone/ fibres de carbone. Céramique/ fibres de céramique.	Génie civil. Aviation, espace, sport, biomédecine. Pièces thermomécaniques
3. Composites à matrice métallique	Aluminium/ fibres de bore. Aluminium/ fibres de carbone	Espace
4. Sandwiches Peaux Ames	Métaux, stratifiés Mousses, nids d'abeilles Plastiques renforcés	Domaines multiples

❖ Classement suivant la morphologie.

Selon **Kaiser(1989)**, les matériaux composites diffèrent selon la forme avec laquelle se présente le renfort où la matrice, on peut classer les composites en :

- Composites à particules.
- Composites à fibres courtes.
- Composites à fibres longues, stratifiés.
- Composites alvéolaires ou squelettes.
- Lamifiés.

I.3. Constitution des matériaux composites

Comme cité précédemment les constituants principaux d'un matériau composite sont : la matrice et le renfort. Une interface se crée entre les deux constituants et aura pour rôle de transmettre les contraintes de l'un à l'autre sans déplacement d'où l'établissement d'une bonne adhérence. Dans certains cas des charges et des additifs peuvent être utilisés (**Kechaou, 2003**).

- L'interface assure la compatibilité renfort-matrice, transfère les efforts de la matrice au renfort et doit être adaptée aux propriétés visées à l'aide d'un ensimage.
- Les "charges" qui sont des ajouts appropriés servent à diminuer les coûts, elles confèrent aussi aux matériaux des propriétés particulières ou complémentaires.
- Les additifs spécifiques peuvent être soit catalyseur, soit accélérateur de polymérisation, soit colorant ou encore agent de décollage.

I.3.1. Matrice

Dans un matériau composite, le terme matrice désigne la matière solide qui entoure les renforts pour former une masse compacte. Dans de nombreux cas, la matrice est une résine polymère. Les résines polymères existent en grand nombre et chacune avec un domaine d'utilisation spécifique, son rôle principal est de transférer les contraintes exercées sur le matériau vers les fibres, de les protéger des environnements abrasifs et agressifs, et de contrôler l'état de surface (**Thwe and Liao, 2003**). Elles doivent également être assez déformables et avoir une certaine compatibilité avec le renfort et pour pouvoir fournir des composites aux propriétés mécaniques assez élevées, elles doivent posséder des masses volumiques faibles (**Aucher, 2009**). Selon la nature de la matrice les matériaux composites sont classés en deux catégories à matrice (polymère ou organique), et à matrice (minérales ou métallique et céramique). La **Figure.2** représente les types de matrices(**Gornet, 2008**).

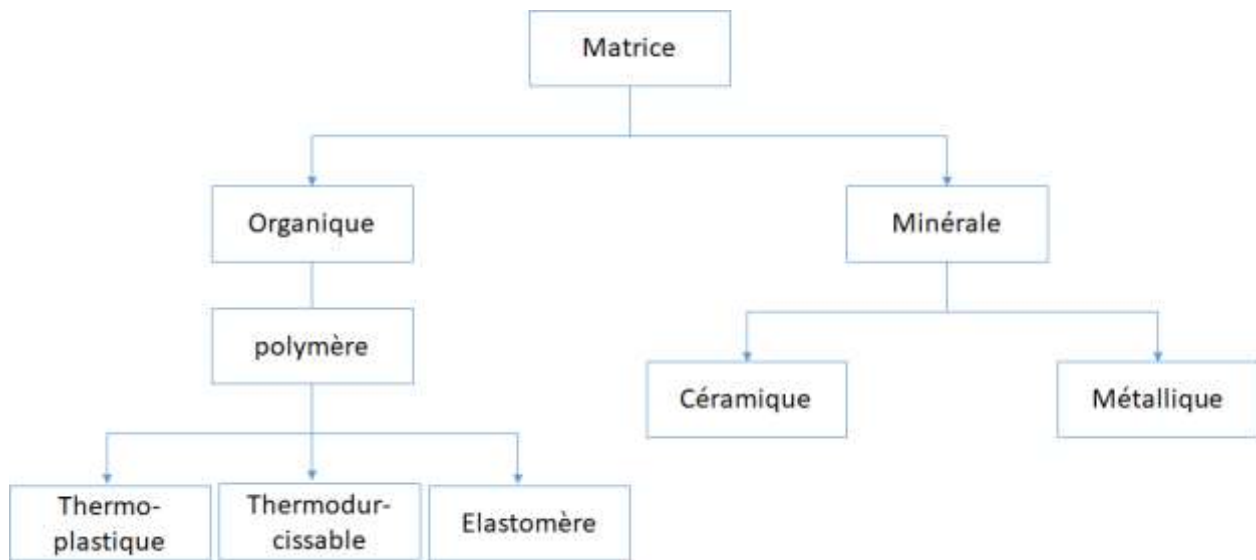


Figure 2 : Schéma qui représente les différents types de matrices

I.3.1.1. Composites à matrices céramiques.

Ils sont caractérisés par leurs hauts modules d'élasticité , leurs duretés élevées , leurs bonnes inerties réservés aux applications de très haute technicité et travaillant à haute température jusqu'à 1000 °C comme dans les domaines: spatial, nucléaire et militaire (**Zidour, 2012**).

I.3.1.2. Composites à matrices métalliques

Etant donné leur prix très élevé, ce type de composites montre un potentiel d'application extraordinaire dans de nombreux domaines de température (jusqu'à 600 C°), comme les industries aérospatiale et automobile, et dans le développement de matériaux structurels (**Lasmi, 2018**).

I.3.1.3. Composites à matrices organiques.

Ils sont largement utilisés dans l'industrie, la plasturgie en particulier, en raison de leur légèreté et de leur faible coût de fabrication. Ils sont appliqués dans le domaine où les températures sont inférieure ou égale à 300 °C (l'aéronautique, la construction automobile ou l'équipement sportif ou le biomédicale).(**Bourban, 2004**), Ces matrices peuvent être des polymères thermoplastiques ou élastomère ou thermodurcissable :

A. Résines thermoplastiques

Les thermoplastiques sont des chaînes polymères reliées entre elles par de faibles liaisons qui peuvent être rompues sous l'effet de la chaleur ou de fortes contraintes. (**Michaud, 2003b**). Elles possèdent la propriété de pouvoir être mises en forme plusieurs fois par chauffages et refroidissements successifs, ces matrices peuvent donc être récupérées et facilement recyclées, contrairement aux matrices thermodurcissables (**Aucher, 2009**).

B. Résines thermodurcissables

Les thermodurcissables se présentent sous la forme de réseaux tridimensionnels qui durcissent de manière permanente lorsqu'ils sont exposés à la chaleur lors de la synthèse. Cette transition est donc irréversible. Elles ne sont utilisables qu'une seule fois, elles sont non fondantes et donc non recyclables, et leurs excellentes propriétés mécaniques, thermiques et chimiques, ainsi qu'une bonne résistance au feu, facilite leur utilisation dans les composites (**Roghani-Mamaqani et al, 2011**). Les plus connus sont les polyesters insaturés, les résines époxy, les résines phénoliques :

✓ Phénoliques.

Sont les plus anciennes des résines thermodurcissables dont la plus connue est la bakélite. Elles sont issues de la polycondensation se caractérise par une bonne tenue au feu et à hautes températures, Après réaction, un réseau tridimensionnel s'est formé. Les phénoliques sont fragiles, sensibles à l'humidité, difficiles à colorer et à mettre en œuvre (**Redjel and Charentenay, 1987**).

✓ Résins époxydes.

Les résines époxydes sont des résines thermodurcissables qui réticulent de façon irréversible. Elles polymérisent à l'aide d'un durcisseur et d'un accélérateur à température ambiante. Elles sont les plus utilisées après les résines polyesters insaturées. Se caractérise par une bonne tenue mécanique, thermique chimique. L'un de ses inconvénients est le prix élevé et la sensibilité à l'humidité. (**Delmas, 2011**)

✓ Résines polyester insaturé.

Ce type de matrice possède de grandes affinités avec la fibre de verre et sont faciles à mettre en œuvre. Elles possèdent aussi une bonne tenue à la température Par contre leur stockage s'avère difficile du fait d'une mauvaise tenue à l'humidité et du risque d'inflammabilité (**Delmas, 2011**). Ce sont de très loin les matrices les plus utilisées dans l'application composite (**Simpson, 2010**).

I.3.1.4. Définition polyesters insaturé

Les polyesters insaturés sont d'un usage relativement ancien (1950), essentiellement dans le bâtiment (moulage au contact), (**Perrot, 2006**). Les polyesters insaturés sont obtenus par polycondensation d'un ou plusieurs diacides avec un ou plusieurs diols (ou glycols) dont l'un au moins contient une double liaison éthylénique, comme étant une résine linéaire de polyester basée sur les acides dibasiques et les alcools di-hydriques , ayant la capacité de se réticuler avec des monomères de vinyle dans le but de produire des copolymères thermodurcissables (infusibles et insolubles) à température ambiante (**Lamy, 2012**).

I.3.1.5. Types de polyester insaturé.

Généralement, il existe quatre variétés de résine polyester (Lamy, 2012) :

- ✓ Orthophtalique : c'est la résine la plus courante à un prix plus bas, ils se prêtent moins bien aux intempéries, ce sont des résines d'usage général basé sur un mélange d'anhydrides phtaliques et d'anhydrides maléiques (insaturés) estérifiés par du propylène glycol
- ✓ Isophtalique : Les résines UP isophtaliques utilisent des acides isophtaliques, ils ont une bonne résistance mécanique, chimique et thermique que les résines ortho.
- ✓ Chlorés: apportant l'autoextinguibilité.
- ✓ Bisphénols : possédant de bonnes caractéristiques chimiques et thermiques.

I.3.1.6. Synthèse de polyester insaturé

Constituées de chaîne qui contient des groupes ester produit par réaction de polycondensation d'un ou plusieurs glycols sur un ou plusieurs diacides ou anhydride de diacide (Bradai et al., 2008), la synthèse de polyester se fait selon la réaction suivante:

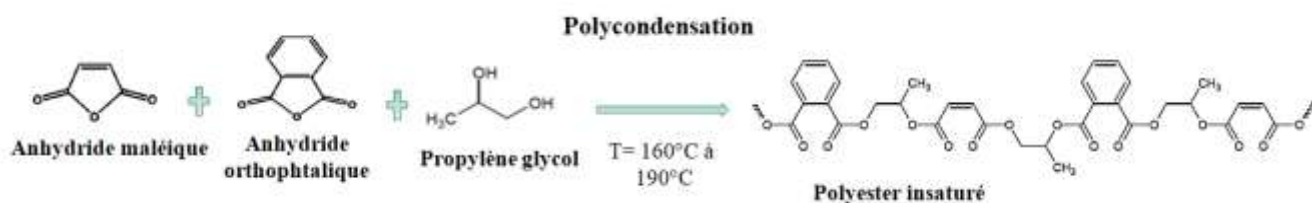


Figure 3 : Réaction de synthèse du polyester insaturé par polycondensation.

I.3.1.7. Propriétés des polyesters insaturés

Les principaux facteurs physico-chimiques régissant les propriétés des résines UP, sont essentiellement la nature, la structure et les proportions des constituants tels que les diacides et les diols, les monomères de copolymérisation et le système catalytique (Carrega et Verney, 2017)

➤ Propriétés physiques

La résine UP seule est considéré comme transparente, l'ajout des renforts ou des charges font diminuer la transmission lumineuse de l'objet fini (Hassar, 2013).

➤ Propriétés mécaniques

La résine UP est généralement associée à des charges ou des fibres. Les propriétés mécaniques observer dans le produit fini dépendent de la nature de l'agent de renforcement, lors de la mise en œuvre (Perrot, 2006). L'humidité et la température ambiante n'affectent pas les propriétés mécaniques du produit (Bessadok et al., 2009a).

➤ Propriétés chimiques

Les polyesters résistent aux acides non oxydants, solutions à température ambiante et aux solvants tels que les alcools et les hydrocarbures aliphatiques. On peut observer les dégradations du polyester dans un environnement humide (Perrot, 2006).

I.3.1.8. Avantages et inconvénients des polyesters insaturés

Le tableau représente quelques avantages et inconvénients des résines polyesters insaturées.

Tableau II : Les avantages et les inconvénients de polyester insaturé (Fathi, 2020).

Avantages	Inconvénients
<ul style="list-style-type: none"> • Prix réduit • Bonne accroche sur fibres de verre • Bonne résistance chimique • Mise en œuvre facile • Bonne tenue en température • Durcissement raide 	<ul style="list-style-type: none"> • Inflammabilité (sauf résines chlorées) • Résistance à la fatigue assez faible • Conservation limitée due à l'évaporation de styrène • Exotherme élevée (microfissures néfastes)

I.3.2. Renforts

Le renfort est le squelette supportant les efforts mécaniques, il contribue à améliorer la résistance mécanique, dureté et la rigidité des matériaux composites. Les caractéristiques recherchées dans les renforts sont une masse volumique faible, une compatibilité avec les matrices et une facilité de mise en œuvre. Il peut se présenter sous de nombreuses formes : (des fibres organiques ou inorganiques) en fonction de l'application envisagée (Gornet, 2008). Les types matériaux de renforts, sont résumés sur la **Figure 4**.

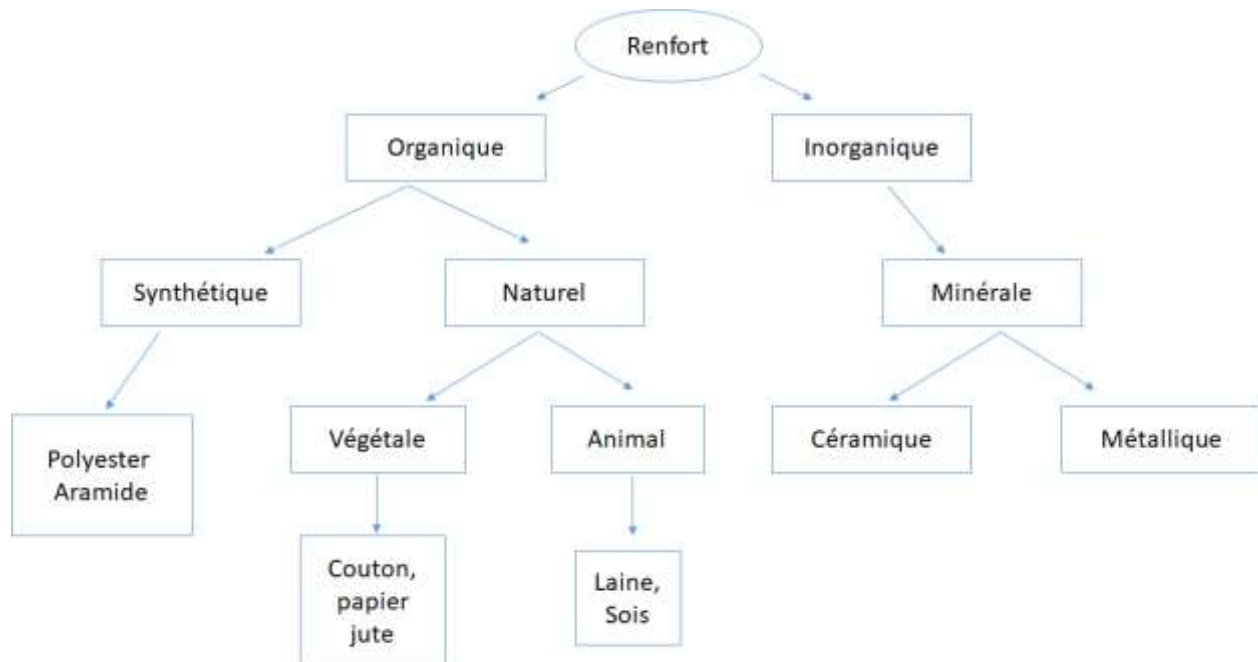


Figure 4 : Schéma de Différent Type de renfort (Gornet, 2008)

I.3.2.1. Fibres naturelles

Les fibres naturelles sont des structures biologiques principalement composées de cellulose, hémicelluloses et de lignine. La proportion d'holocellulose (cellulose, hémicelluloses) et de lignine varie beaucoup selon les fibres naturelles (jute, bois, sisal, etc.) (Pejic et al., 2008). L'utilisation des fibres naturelles comme renfort de matériaux composites, présente deux principaux avantages. Tout d'abord, ces fibres sont largement disponibles à faible coût et leur utilisation dans l'élaboration des composites constitue de nouveaux débouchés pour les matières agricoles. Aussi, la valorisation des fibres végétales permet la réduction des impacts environnementaux par rapport à des composites conventionnels puisque ce sont des matières premières renouvelables, biodégradables (Doan et al., 2006).

➤ Cellulose

La cellulose est une substance naturelle, semi cristalline, elle représente la molécule biologique la plus abondante sur notre planète, est de la famille des polysaccharides. La cellulose est le constituant structural principal des parois cellulaires végétales, C'est un homopolymère, dont l'unité de base est le glucose, ou plus exactement un dimère du glucose, la cellobiose. Les unités sont liées entre elles par des liaisons β (1-4) - glycosidiques (**Figure 5**). Le degré de polymérisation peut atteindre 15000. Ce polymère présente un grand intérêt du point de vue industriel qui permet d'assurer la protection et le soutien dans les organismes végétaux(Alamri, 2012).

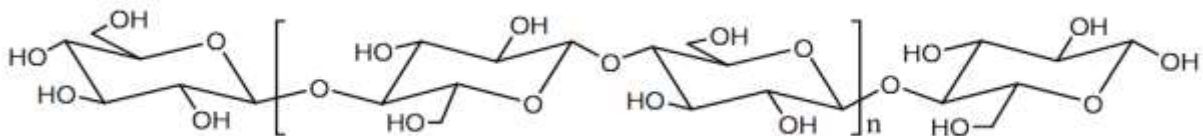


Figure 5 : Schéma de la structure chimique de la cellulose(Ouajai and Shanks, 2005).

➤ Hémicelluloses

Les hémicelluloses sont aussi des polysaccharides, sont l'un des constituants les plus hydrophiles de la fibre associant différents sucres autre que le glucose (pentose, xylose, hexose...etc.). Elles diffèrent de la cellulose par des chaînes moléculaires beaucoup plus courtes et par des ramifications sur la chaîne principale (**Figure 6**), avec un degré de polymérisation moyen de 200. La constitution des hémicelluloses varie d'une espèce à une autre selon leur nature. Si l'on considère que le bois est un matériau composite dans lequel la cellulose est la fibre de renfort et la lignine est la matrice, les hémicelluloses jouent le rôle de comptabilisant à l'interface entre ces deux éléments (Pejic, 2008).

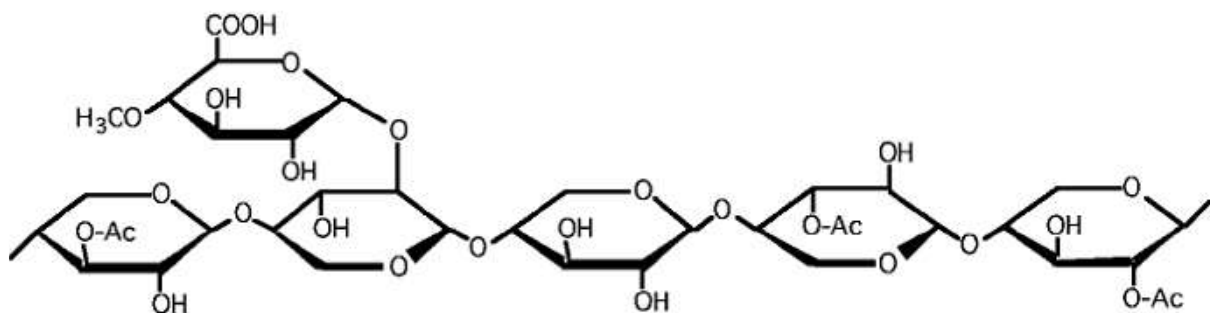


Figure 6 : Schéma de la structure chimique de l'hémicellulose (Gong et al., 2004).

➤ Lignine

La lignine est un polymère tridimensionnel amorphe composée de guaiacyle, qui se situe entre les régions hémicellulosiques et entoure les microfibrilles (Jebrane, 2009). Elle est chimiquement très différente de la cellulose et des hémicelluloses. Elle participe à la rigidité structurale des parois cellulaires et protège les plantes contre l'attaque des organismes pathogènes, Elle permet à la fibre de rester hydratée et de réduire son hydrophilie. Elle possède un fort poids moléculaire (degré de polymérisation = 20000) (Pejic, 2008).

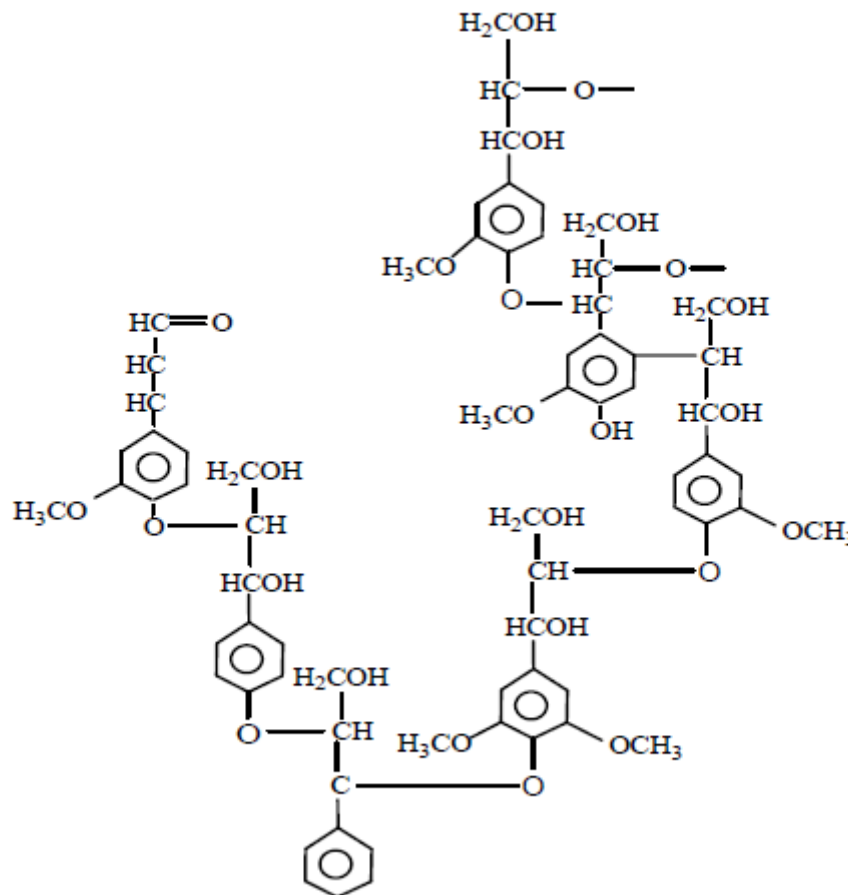


Figure 7 : Schéma de la structure chimique de la lignine.

I.3.3. Interface matrice–renfort dans un matériau composite

Il existe un problème récurrent de compatibilité entre les fibres végétales hydrophiles et la plupart des substrats habituellement hydrophobes. Une mauvaise adhérence fibre/matrice, et donc une mauvaise interface, peut conduire à des fragilités des matériaux préjudiciables aux propriétés mécaniques recherchées dans ces matériaux. L'interface joue un rôle important dans le comportement global du composite, c'est le lieu de transfert de contraintes entre la matrice et les fibres, il doit donc assurer la cohésion entre le matériau de renfort et la matrice (Pasquini et al., 2006).

Les fibres de cellulose ont une énergie de surface très élevée et nécessitent donc d'être modifiées, ce qui apporte des propriétés hydrophobes très efficaces et réduit significativement l'énergie de surface, ce qui favorise le mouillage des fibres et crée une liaison avec la matrice thermodurcissable pour une adhérence optimale (John and Anandjiwala, 2008).

Pour une bonne adhésion, il est possible d'agir soit sur la matrice polymère, soit sur les fibres, au moyen de méthodes physiques ou chimiques (Hossain et al., 2011).

I.4. Traitements de modification

I.4.1. Méthode physique

La modification des fibres par des moyens physiques tel que l'étirage, le calandrage, et les traitements thermiques, comme tout traitement physique de surface ont la particularité de ne pas changer la composition chimique des fibres cellulosiques. Par contre ils modifient la structure et les propriétés de surface des fibres (charges) et affecte la liaison avec les polymères (matrice) (Ly, 2022). On peut citer entre autres :

➤ **Traitement thermique**

Le séchage des fibres naturelles avant la mise en œuvre est un facteur important. En raison de la forte résistance à l'eau parfois présente dans les fibres végétales, il agit comme un agent de séparation entre la fibre et la matrice au niveau de l'interface. Lors de la mise en œuvre, l'évaporation de l'eau peut créer des vides dans le composite, conduisant à la formation d'un réseau de défauts répartis de manière aléatoire et entraînant des propriétés mécaniques affaiblies.

➤ **Agents dispersifs**

Le traitement des fibres avec des agents dispersifs est basé sur l'utilisation de cires et de paraffines. D'autres additifs tels que des élastomères et des plastifiants peuvent être utilisés. Ces produits agissent sur des propriétés spécifiques qui conduisent à une modification directe ou indirecte de la surface, en facilitant leur fabrication (modification des paramètres du procédé de transformation : chute de température, homogénéisation du mélange, réduction des contraintes mécaniques).

Toutes ces méthodes physiques offrent plus ou moins une multitude de solutions faciles à mettre en œuvre. Leurs intérêts sont la purification, l'oxydation des fibres de cellulose et l'activation des sites à sa surface. Le traitement corona, décharges électriques et plasma sont parmi les plus connus (Sbiai, 2011). De nouvelles technologies sont de plus en plus utilisées telles que l'Irradiation laser, UV ou même gamma γ (Takács et al., 2000).

I.4.2. Méthodes chimiques

La modification de la surface par des méthodes chimiques ont pour but de rendre Compatibles la fibre et la matrice par l'introduction d'un troisième aux propriétés intermédiaires.

Plusieurs approches ont été rendues compte de l'utilisation du traitement chimique des fibres de cellulose pour réduire leur caractère hydrophile et améliorer leur adhérence avec la matrice(Zheng et al., 2007). A titre d'exemple de modification chimique on peut citer :

➤ **Traitement Alcalin**

Le traitement à la soude est un traitement chimique couramment utilisé sur les fibres naturelles pour renforcer les résines. Il s'agit du processus d'interaction des fibres végétales avec des solutions aqueuses concentrées de bases fortes dans le but de provoquer un gonflement important, entraînant des modifications de la structure fine, de la taille, de la morphologie et des propriétés mécaniques (Rokbi et al., 2013).

La soude est l'agent chimique le plus utilisé pour blanchir ou laver les surfaces des fibres, provoque une augmentation du taux de cellulose amorphe, qui endommage la cellulose cristalline (Islam et al, 2010).

➤ **Traitement Silane**

Parmi les différents agents de couplage, le silane est l'un des meilleurs agents de couplage utilisés dans les composites polymère/fibre, et sa haute fonctionnalité permet une meilleure adhérence entre les fibres/matrice(Wang and Schaefer, 2008). L'utilisation du silane dépend de nombreux facteurs, notamment le temps d'hydrolyse, l'organofonctionnalité du silane, la température et le pH. Le silane est d'abord hydrolysé en silane dans une solution aqueuse, puis le silane formé réagit par une réaction de condensation directe avec les groupes hydroxyle des fibres naturelles par une liaison covalente. D'autres groupes silane sont capables de former des ponts d'hydrogène ou de condensation avec un autre silane adjacent (Si-O-Si). Enfin, les fractions hydrophobes silane à la surface de la fibre peuvent interagir chimiquement avec la matrice par une liaison de type van der Waals(Xie et al., 2010).

➤ **Traitement par la benzoylation**

La benzoylation est une transformation importante dans la synthèse organique. L'insertion d'un groupe benzoyle (C_6H_5CO) dans la structure fibreuse peut réduire l'hydrophilie des fibres végétales et les rendre plus compatibles avec la matrice. Ce traitement peut améliorer l'adhérence interfaciale et améliorer les interactions avec les matrices hydrophobes (Belkaibech, 2021).

➤ Agents comptabilisants

Les agents de couplage, également appelés agents comptables, améliorent l'adhérence interrassiale. La composition chimique des agents de couplage leur permet de réagir avec la surface de la fibre, formant un pont de liaison chimique entre la fibre et la matrice. Typiquement, les agents de couplage sont des molécules à deux fonctions, la première réagit avec les groupements -OH de la cellulose et la seconde réagit avec les groupements fonctionnels de la matrice. L'agent de couplage est situé à l'interface entre la fibre et le thermodurcissable, c'est donc exactement là où il doit modifier et améliorer l'adhérence (Bourban, 2004).

I.5. Mise en œuvre des matériaux composites

La conception d'un matériau composite dépend du type d'application, de chargement, etc. Ce qui le diffère fortement des matériaux classiques (Trejo-O'reilly et al., 1998), c'est pour cela qu'il existe plusieurs méthodes pour élaborer et mettre en forme les matériaux composites qui peuvent être regroupées en trois catégories principales :

- Par extrusion, très utilisée avec les thermoplastiques
- Par imprégnation, utilisée souvent avec les tissus et les fils
- Par dépôt pour les composites en sandwichs.

Ces techniques sont souvent suivies d'un moulage qui définit les formes du matériau. Le moulage peut être réalisé de plusieurs façons on prend comme exemples :

- Par compression (à froid, à chaud, par injection de résine), Il s'agit d'une méthode utilisée pour les composites à fort taux de renfort ou des pièces produites en grande quantité afin d'obtenir des formes profondes et délicates.
- Sous pression : méthode la plus simple permettant l'obtention de pièces en grande série et à bas prix. Le taux de renfort est toutefois limité.
- Sous vide (pour des pièces de petites et moyennes séries).
- En continu : les pièces obtenues sont planes ou ondulés, les composites en sandwichs Sont souvent préparés par cette technique.
- Par centrifugation : technique réservée pour les formes cylindriques (tubes, tuyaux)

I.6. Domaine d'application des matériaux composites à charges naturelles

Le secteur des matériaux composites inonde de plus en plus notre quotidien. Ce procédé d'assemblage associant une fibre naturelle à une matrice, attire l'attention des chercheurs parce qu'ils pourraient être une solution efficace pour résoudre les problèmes d'environnement, de biodégradabilité et d'épuisement du pétrole (Abdelmouleh et al., 2007), et les industriels développant ces composites au design nouveau, plus léger, plus résistant et renfermant de très

hautes performances, afin de les utilisés dans de nombreuses applications (automobiles, aéronautiques, transports, aérospatiales et génie civile) (**Bourban, 2004**).

I.7. Avantages et inconvénients :

Le **tableau III** ci-dessous représente quelques avantages et inconvénients des matériaux composites.

Tableau III :Avantages et inconvénients des matériaux composites (ROYER and MERSON, 2013).

Avantages	Inconvénients
<ul style="list-style-type: none"> • Leur légèreté. • Leur résistance la corrosion et aussi à la fatigue. • Leur insensibilité aux produits comme les graisses, les liquides hydrauliques, les peintures et les solvants. • Leur possibilité de prendre plusieurs formes, d'intégrer des accessoires et permettre la réduction de bruit. 	<ul style="list-style-type: none"> • Les coûts des matières premières et des procédés de fabrication. • La gestion des déchets engendrés et la réglementation de plus en plus stricte.

I.8. Etat d'art

Islam et al, (2010) se sont intéressés aux matériaux composites. Le travail porte sur l'étude de l'effet de traitement alcalin des fibres de chanvre industriels courtes (aléatoires et alignés) et longues (alignés) par moulage compression, sur les composites d'acide polylactique (PLA).

Les résultats obtenus par les analyses de (DSC, IFSS et MEB) nous montrent :

- Une amélioration des liaisons entre la fibre et la matrice PLA.
- Une augmentation du pourcentage cristallinité dans la matrice PLA par rapport aux composites produits avec fibres non traitées.
- L'augmentation de la rugosité de la surface permettrait également un meilleur verrouillage mécanique avec le PLA. Une forte adhérence à l'interface fibre/PLA est nécessaire pour un transfert efficace des contraintes et une répartition efficace des charges l'interface.
- Une augmentation de taux de cristallinité des fibres.

Il a été constaté qu'un composite de fibres longues/PLA traité à l'alcalin était meilleur.

Rokbi et al, (2013) ont mené une étude sur les composites polyesters/ fibres d'Alfa, où les fibres d'Alfa ont été traitées avec 1, 5 et 10 % d'alcali NaOH à 28 °C pendant 24 et 48 heures. Les résultats du test de flexion montrent que le traitement alcalin a une grande influence sur les propriétés mécaniques., Un traitement alcalin des fibres avec 10 % de NaOH sur une période de 24 heures a conduit à l'amélioration de la résistance à la flexion et du module d'environ 60% et 62 %, respectivement, Cela peut être dû à la liaison de la fibre avec la matrice polyester en améliorant l'interaction fibre-matrice.

Sivakumar et al, (2021) se sont intéressés aux études expérimentales des propriétés de traction et de flexion des composites de polyester renforcés de fibres de palmier non traitées et traités au permanganate de potassium. Les panneaux composites sont fabriqués par moulage.

Les composites de fibres de palmier traitées ont un bon allongement à la rupture et des propriétés de flexion, avec une résistance à la traction plus élevée par rapport aux autres composites polymères à fibres naturelles.

Les tests de traction ont révélé que la résistance ultime est d'environ 48 MPa et la rupture d'allongement à 6 %. La résistance à la flexion est estimée à environ 64 MPa respectivement.

Les propriétés mécaniques des matériaux préparés à partir d'un produit chimique traité avec du permanganate de potassium de Palmyre se révèlent beaucoup plus fortes que celles des fibres non traitées, il peut être suggéré de fabriquer des matériaux composites pour divers domaines.

Esmail and Mohammad, (2010) ont étudié les effets des traitements chimiques sur les propriétés des composites bois-plastique (WPC), et les fibres lignocellulosiques ont subi un

traitement au silane, alcalin et au chlorure de benzoyle. Dans ce travail, l'adhérence interrassiale, la morphologie et les propriétés mécaniques ont été déterminées.

Les spectres FTIR des fibres de bois traitées ont montré des changements dans la force de liaison à 3400 et 1740 cm^{-1} en raison de la réaction des groupes O-H de la cellulose et de la formation de groupes ester dans l'échantillon.

L'image MEB du composite de fibres non traité montre quelques vides, ce qui indique une faible interaction entre la charge et le polymère.

Pour les échantillons alcalinisés et benzoylés, les images MEB ont montré que les fibres de bois étaient arrachées de la matrice, d'où la présence de microvide, impliquant que l'interaction entre les phases n'était pas assez forte.

Les images MEB ont montré que la meilleure interaction entre la farine de bois et la matrice polymère a été observée dans les échantillons de fibres traités avec du silane.

Les essais de traction des composites ont montré une augmentation du module d'élasticité et de la résistance à la traction des composites par rapport aux composites de fibres non traitées en raison du traitement chimique des fibres lignocellulosiques réduisant l'hydrophile et résultant en une bonne liaison d'interface.

Des études de modification chimique à l'aide d'anhydrides acétique et propénoïque ont été menées par **Tserki et al., (2005)**, sur différentes charges végétales, à savoir la farine de bois, le chanvre et le lin. L'analyse infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) a été utilisée pour détecter l'effet de la réaction d'estérification entre le groupe acétyle et le groupe propionyle de la fibre et le groupe hydroxyle, ce qui a confirmé l'influence de la présence du groupe ester sur la structure moléculaire de la fibre.

La diffraction des rayons X et microscopie d'électrons à balayage (MEB) a été utilisé pour déterminer la cristallinité et la morphologie des fibres traitées et non traitées. Les résultats ont montré que la surface de la fibre traitée est devenue plus lisse, ce qui a été attribué à l'élimination de la cire. De plus, ils ont rapporté que la vitesse de cristallisation des fibres diminuait légèrement après ce traitement, ce qui était dû à la proportion accrue de la phase amorphe.

La réaction d'estérification modifie considérablement toutes les interactions entre la farine de bois et d'autres substances, entraînant une réduction significative de l'absorption d'eau, qui est l'objectif principal de cette modification.

Une autre étude qui peut être citée est celle **Edeerozey et al., (2007)**, qui ont étudié l'effet de la concentration de la solution alcaline sur les fibres de kénaf. Ont été modifiées par des solutions de NaOH de différentes concentrations (3, 6 et 9%).

Les changements morphologiques et structurels des fibres ont été étudiés à l'aide de la microscopie électronique à balayage (MEB). Une série d'essais de traction de faisceaux de

fibres a également été effectuée pour évaluer l'effet des traitements sur la résistance à la traction des fibres. Les résultats obtenus sont les suivants :

- La surface de la fibre traitée est améliorée pas le traitement alcalin, les meilleurs résultats sont obtenus à la concentration la plus élevée (9%).
- L'augmentation de la résistance à la traction du faisceau de fibre de kénaf traitée avec 6% de NaOH.
- La solution alcaline à 9% a entraîné une diminution des propriétés mécanique des fibres, et les valeurs enregistrées étaient même inférieures à celle de la fibre non traitée.

A.Boukerrou et al (2012) on mené un travail sur le développement des matériaux composites avec PVC renforcé par la cellulose microcristalline. Par ailleurs, les fibres ont été modifiées chimiquement par l'huile de soja époxydée. L'analyse par IRTF a révélé les principales différences entre les fibres traitées et non traitées. Après traitement, il y'a eu une diminution de l'intensité de la bande O-H et son déplacement de 3400 cm^{-1} à 3700 cm^{-1} et aussi la formation de nouveaux pics aux alentours de 1740 cm^{-1} attribués aux groupements acetyl de la réaction d'estérification.

La caractérisation des composites par le MEB a montré que le traitement par l'huile de soja a changé la morphologie des composites, résultant des agglomérats globulaires.

La résistance à la traction pour les composites à fibres modifiées ont contribué positivement à la force de traction.

La thermostabilité des composites non traitées ou traitées par l'huile de soja a été évaluée par l'analyse thermogravimétrique (ATG). L'analyse a montré que les composites traitée présente une meilleur stabilité par rapport aux composites non traités.

Matériel & méthodes

Matériel et méthodes

I. Présentation des produits utilisés

I.1. Polyester insaturé (UP)

La résine polyester insaturée utilisée est la **POLYLITE 442-100** à base d'acide ortho-phtalique, fabriquée et commercialisée par **RECHOLD**. Les caractéristiques des produits utilisés sont résumées dans le tableau IV:

Tableau IV.Caractéristiques de la résine

Caractéristiques avant ajout de catalyseur		Caractéristiques après ajout de catalyseur	
Densité	1.10g/cm ³	Dureté Barcol	40
Teneur en styrène	39 %	Résistance à la flexion	105 MPa
Viscosité à 28°C	380-480 cps	Module d'élasticité en flexion	4200 MPa
Indice d'acide	22.5 mg KOH/g	Température d'en Dureté (HDT)	62 °C
Couleur (max)	80 Hazan		
Point d'éclaire	32°C		
Temps de gel (0.1% de Co et 1% de PMEC)	18.5 à 21.5 min		

I.2. Durcisseur

Les catalyseurs sont des substances qui ne subissent pas de transformations visibles, provoquent ou accélèrent des réactions et sont des peroxydes organiques (par exemple, le peroxyde de benzoyle). Chaque peroxyde est caractérisé par sa propre stabilité thermique. Le durcisseur agit comme un agent de réticulation pour la résine liquide.

Tableau V : Caractéristiques du catalyseur P MEC 50

Caractéristiques du catalyseur	
Densité à 20°C	≈ 1,14 g/cm ³
Oxygène actif	9,0 - 9,2 (% massique)
Température de stockage	25 °C max
Couleur	Claire
Stockage	6 mois

I.3. Cellulose microcristalline

Le renforcement de l'UP a été effectué par la cellulose microcristalline (CMC) du type **Avicel®, Art 2330 Merk Darmstadt**. Son diamètre est inférieur à 100 µm.

I.4. Huile de soja époxydée (HSE)

La fonction de l'huile de soja époxydée est doublée ($C_{18}H_{34}O_2$), en tant que plastifiant et stabilisant. Elle est totalement non toxique et compatible avec tous les polymères. L'huile de soja époxydée employée comme agent de modification chimique de la cellulose microcristalline est de type **HSE-100 S** produite par la société **BETAQUIMICA, SA**.

Le tableau résume les principales caractéristiques physiques de l'HSE-100 S.

Tableau VI : Caractéristiques physiques de l'HSE-100 S.

Caractéristiques	Valeurs
Apparence	Liquide visqueux
Indice de réfraction	1.4760
Fonction oxirane (%)	6.5
Pourcentage en iode (%)	3
Densité	1.002

I.5. L'acétone

L'acétone utilisée a été produite par la société « **BIOCHEM CHEMOPHARMA** », ses principales caractéristiques sont représentées dans le tableau VII :

Tableau VII : Caractéristiques de l'acétone

La formule chimique	C 3H6O
La masse moléculaire	58,08 g/mol
Pureté	99.78 %

I.6. La cire

C'est un agent de démoulage considérés comme une substance qui empêchent l'éprouvette de se coller ou de s'adhérer au moules.

II. Modification chimique de la cellulose par l'huile de soja époxydée

Ce traitement chimique est réalisé comme suit : la cellulose microcristalline et l'huile de soja époxydée ont été mélangées avec une proportion de 1/3 en masse. Le mélange a été mis dans un ballon avec l'acétone jusqu'à l'immersion à une température de 55 °C pendant 30 mn, ensuite le mélange est filtré, sécher dans haute chimique, broyer puis tamiser a <100 Um et étuvé à 50 °C pendant 24 h (Liu et al., 2006).

III. Préparation des composites

Différentes formulations à base de polyester insaturé (UP) et de cellulose microcristalline ont été préparées en introduisant 2% de **PMEC 50** dans une résine pré-accelérée pour un collage à température ambiante par coulée dans des moules en acier, conçus pour la traction et la flexion. Après 24 heures de conditionnement à température ambiante, les éprouvettes ont été retirées du moule puis elle subit une post-cuits à 40°C pendant 16 heures. Cette température est suffisamment élevée pour réticuler les éprouvettes sans brûler le renfort fibreux. (Belloul, 2007).

IV. Techniques de caractérisation

IV.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF)

La spectroscopie FTIR est une technique analytique utilisée pour identifier les groupes fonctionnels qui apparaissent sous forme de bandes d'absorption (Hossain et al., 2011). Les spectres infrarouges de la cellulose traitée et non traitée ont été enregistrés sur un spectrophotomètre modèle « **SHIMADZU IRAffinity-1** », piloté par un ordinateur équipé d'un logiciel de traitement avec une résolution de 4 cm⁻¹, allant de 4000 cm⁻¹ à 400 cm⁻¹.



Figure 8 : Spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier (FTIR).

Analyser un mélange de 0,08 g de KBr et 0,002 g de l'échantillon à caractériser (cellulose traitée ou non traitée) sous forme de pastilles préparées à une pression d'environ 80kN. Cette analyse a été effectuée pour confirmer la réaction d'estérification de la cellulose modifiée avec de l'huile de soja époxydée.

V. Analyse thermogravimétrique (ATG/DTG)

L'analyse thermogravimétrique est utilisée afin d'évaluer la perte de masse, la stabilité thermique et la vitesse de décomposition que subit un échantillon au cours d'un traitement thermique en fonction de la température (Elkhaoulani et al., 2013).

L'appareillage utilisé est de type « **appareil LINSEIS STA PT 1600** », constitué d'une ATG/DTG couplé et piloté par un micro-ordinateur. Les expériences ont été menées sur des échantillons de masse allant de 15 à 25 mg, lesquels sont mis dans un creuset en alumine.



Figure 9 : Machine thermogravimétriques (ATG)

VI. Essai mécanique

VI.1. Analyse morphologique (MEB)

La microscopie électronique à balayage (MEB) est une technique de microscopie électronique capable de produire des images en haute résolution de la surface d'un échantillon en utilisant le principe des interactions électron – matière, résultant de l'interaction d'un faisceau d'électrons. Les électrons incidents excitent la couche superficielle de l'échantillon et donnerons naissance à des zones lumineuses alors que les creux apparaîtront plus sombres(Haddadi, 2015).

Les échantillons sont analyser avec un microscopie électronique à balayage de type PHILLIPS ESEM XL 30, ont été préparés par fracturation après les avoir plongés dans l'azote liquide(Elkhaoulani et al, 2013).



Figure 10 : Dispositif de microscopie électronique à balayage

VI.2. Essais de traction

La caractérisation mécanique des composites est réalisée par le test de traction qui consiste à déterminer la déformation de l'éprouvette qui est normalisées sous forme d'haltères en appliquant une charge avec une vitesse de 2 mm/min.

Cet essai permet de déterminer le module d'élasticité E (MPa) ou module de Young, qui n'est autre que la constante qui relie la contrainte de traction (δ) et la déformation (ϵ) dans le domaine de déformation élastique. Dans le présent travail, l'essai de traction a été effectuées au niveau de l'unité de recherche de l'université de Boumerdes à température ambiante sur une machine de traction de marque «**Zwick/Roell Z050**» piloté par un micro-ordinateur, selon la norme ISO 527.



Figure 11 : Machine de traction

VI.3. Essais de Flexion

L'essai de flexion est utilisé dans le but de déterminer le module de flexion, la Résistance à la flexion ainsi que la résistance à la rupture. Il a été effectué au niveau de l'unité de recherche de l'université de Boumerdes sur une machine de flexion de marque « **Zwick/Roell Z010** » (**Figure 12**) piloté par un logiciel. Ce test consiste à appliquer une charge au milieu d'une éprouvette située sur deux appuis(**Singha et al., 2013**).



Figure 12: Machine de Flexion.

Résultats & discussion

Résultats et discussion

I. Caractérisation de la cellulose traitée et non traitée

I.1. Analyse spectrale IRTF

Le Tableau VIII, illustre quelques fonctions chimiques attribuées aux principales bandes d'absorptions de la cellulose.

Tableau VIII : Principales bandes d'absorption de la cellulose(Berlioz, 2007)

<i>Nombre d'onde (cm-1).</i>	<i>Types d'élongations.</i>
3000-3600	Vibrations d'élongation des liaisons O-H des fonctions alcool.
2900	Vibrations d'élongation des liaisons C-H
1160	Vibrations d'élongation asymétriques de la liaison C-O-C de la cellulose.
950-1200	Vibrations des liaisons C-O des groupements alcool.
500-710	Vibration de la molécule d'eau résiduelle dans la cellulose

L'analyse IRTF peut indiquer les principales différences entre la cellulose traitée et non traitée, les changements et l'aspect de nouvelles bandes peuvent fournir des informations au sujet du déroulement de la modification chimique.

Le spectre IR présenté en (**figure 13**) montre les différences entre les bandes d'absorption avant et après traitement de la cellulose par l'huile de soja époxydée.

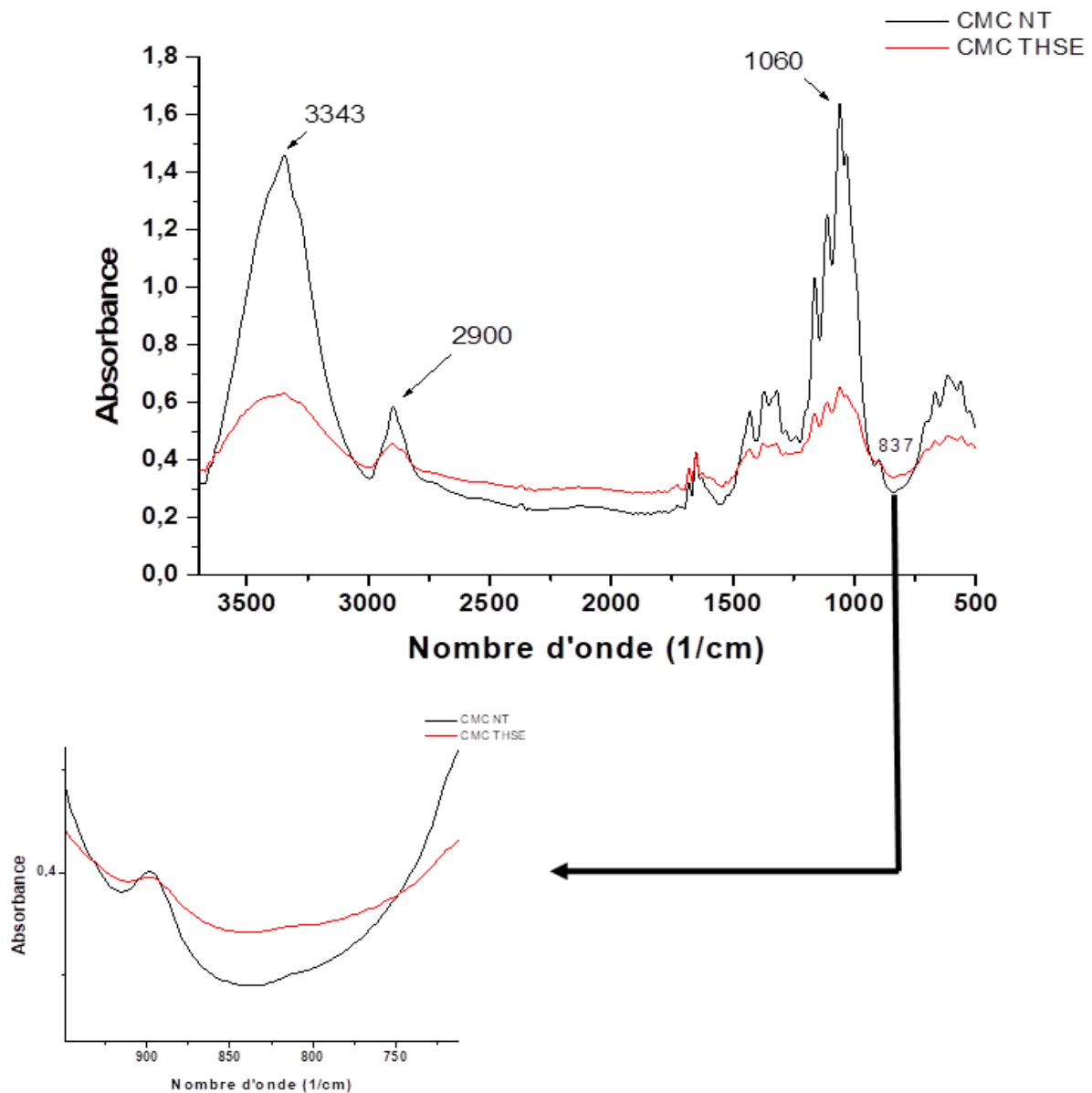


Figure 13. Spectres IRTF de la cellulose non traitée et traitée par l'huile de soja époxydée

Le traitement de la cellulose microcristalline (CMC) par l'HSE provoque les changements structuraux suivants :

- Une diminution de la bande d'absorption de la vibration hydroxyle (OH) à 3343 cm^{-1} est observée après traitement avec l'huile de soja époxydé en raison de la réaction d'estérification.
- Réduction de la bande d'absorption de la vibration d'élongation des liaisons (C-H) aux alentours de 2900.
- Un affaiblissement de la bande d'absorption qui se situe à environ 1062 cm^{-1} attribuée aux groupements C-O et aux groupements C-O-C de la cellulose. Cette diminution

peut être expliquée par la diminution du degré de polymérisation de la cellulose lors du traitement avec l'HSE.

- Diminution de la bande d'absorption située aux alentours de 837 (cm⁻¹) qui correspond à la fonction époxyde. Cette disparition confirme la réaction d'estérification.

Ces résultats sont en accord avec (Abu Bakar and Baharulrazi, 2008; Bessadok et al, 2009b; Bueno-Ferrer et al, 2010).

II. Caractérisation mécanique

II.1. Test de traction

- **Contrainte à la rupture**

La figure 14 : illustre l'évolution de la contrainte à la rupture des composites en fonction du taux de la cellulose microcristalline traitée et non traitée.

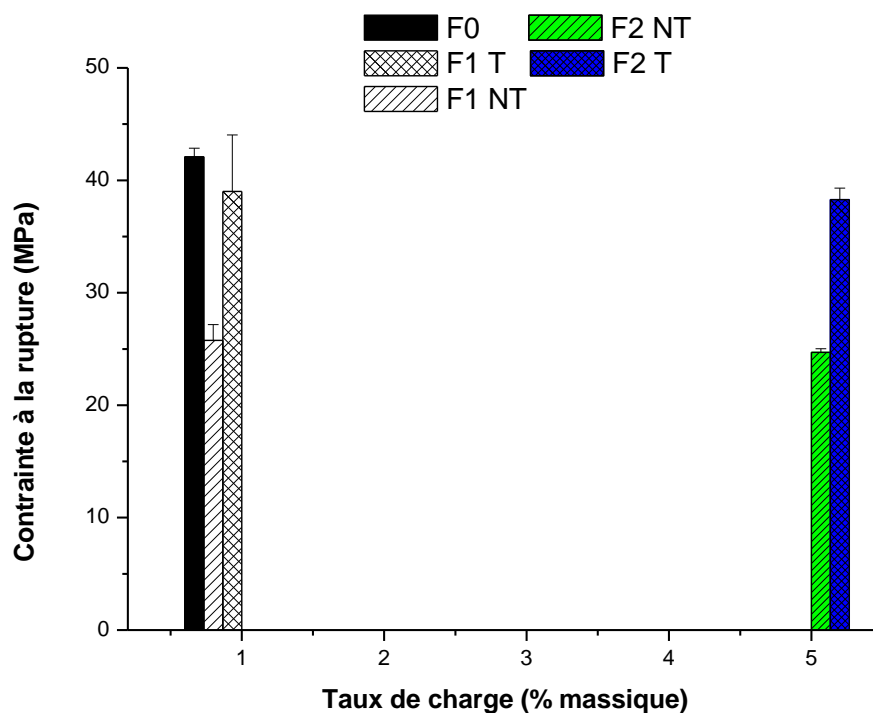


Figure 14. Évolution de la contrainte à la rupture des composites UP/cellulose en fonction du taux de charge traitée et non traitée

Pour la matrice UP vierge on enregistre une valeur de la contrainte à la rupture d'environ 42.09 MPa, avec l'introduction de la charge non traitée, la contrainte diminue et cette diminution est d'avantage prononcée avec l'augmentation du taux de charge pour atteindre des valeurs d'ordre de 25.76, 24.7 MPa pour les formulations F1 NT, F2 NT respectivement. Cette baisse est principalement due à la mauvaise dispersion de la charge, en formant des agglomérats entraînant un mauvais transfert de contraintes, d'où l'affaiblissement des

interactions entre la matrice et le renfort. Ces résultats sont ainsi en accord avec (Djidjelli et al., 2007; Islam et al., 2010b).

Pour améliorer les propriétés mécaniques des composites on a fait appel aux traitements chimiques. Effectivement le traitement de la cellulose par l'huile de soja époxydée a permis l'augmentation des valeurs de la contrainte à la rupture. Elles sont égales à 39.01, 38.28 MPa pour les formulations F1 T et F2 T respectivement et visiblement supérieur aux formulations F1 NT et F2 NT à 25.76, 24.7 MPa respectivement. Cette augmentation est due à une meilleure dispersion de la cellulose traitée et à une bonne adhésion interfaciale entre la matrice et la charge, par conséquent un meilleur transfert de contrainte entre les deux phases (Singha et al., 2013b)

➤ **Allongement a la rupture**

L'effet du taux de charge et du traitement chimique sur l'allongement à la rupture des composites est illustré en **figure 15**.

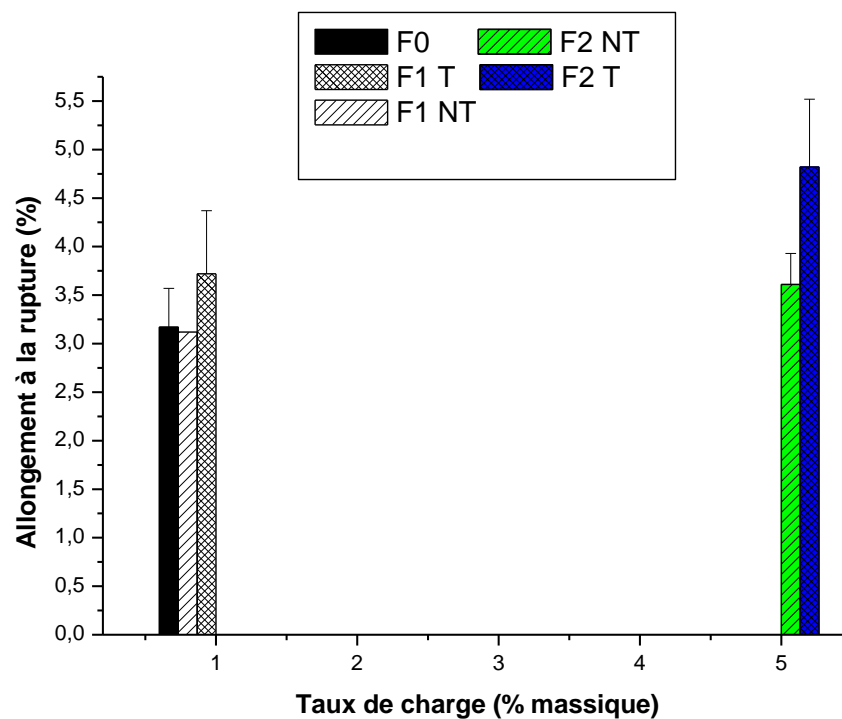


Figure15. Évolution de l’allongement à la rupture des composites UP/cellulose en fonction du taux de charge traitée et non traitée.

Le traitement de la cellulose par l’HSE a apporté une amélioration dans l’allongement à la rupture par rapport aux composites non traité. À titre d’exemple, pour la formulation F2, l’allongement à la rupture passe de 3.61% (F2 NT) à 4.82% (F2 T). Le composite UP/CTHSE à un allongement supérieur par rapport à UP vierge pour toutes les formulations et cela peut

être expliqué par la diminution de la rigidité de la CMC en présence de l'HSE qui joue le rôle de plastifiant.(Elkhaoulani et al., 2013b).

II.2. Test de flexion

➤ Charge à la rupture

La figure 16. Illustre l'évolution de la charge à la rupture de flexion des composites renforcé avec de la cellulose traitée et non traité

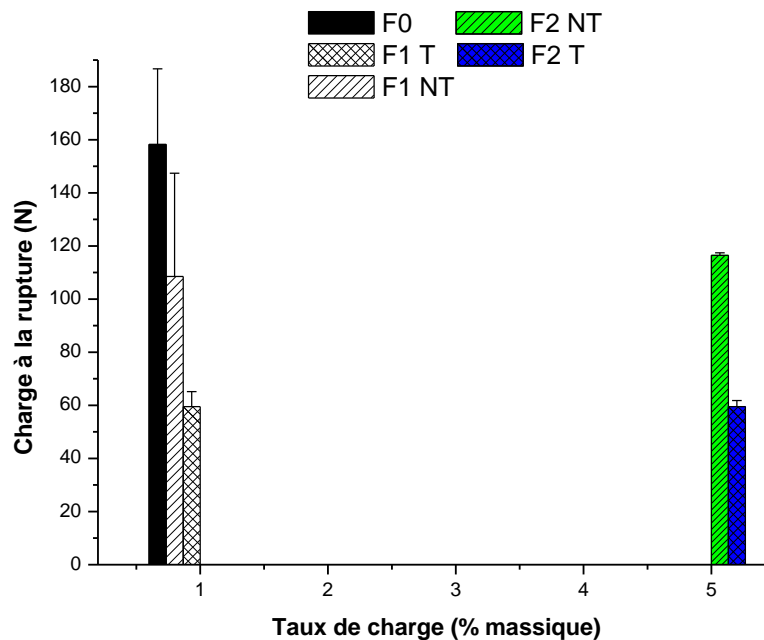


Figure 16. Évolution de l'allongement à la rupture des composites UP/cellulose en fonction du taux de charge traitée et non traitée.

Pour la matrice UP vierge, il a fallu une charge de 158,22 N pour atteindre sa rupture. Avec l'introduction de la CMC non traitée, la charge à la rupture diminue progressivement avec le taux de la CMC, pour atteindre des valeurs de 108.52 et 116.49 N pour les formulations F1 NT, F2 NT respectivement. Cette diminution est liée à l'agglomération de la CMC NT dans la matrice, due à une mauvaise adhésion, et par conséquent la force de liaison interfaciale diminue. Cependant, la charge à la rupture des composites traités, diminue dans la même gamme de composition et qui est égale à 59.5 N pour les deux formulations F1 T et F2 T. Ceci est peut-être expliquer par la présence de HSE, qui joue le rôle de plastifiant, ou qui peut affaiblir la fibre voir l'endommager (Rokbi et al., 2011b).

➤ **Déplacement à la rupture**

La **figure 17**, illustre l'évolution du déplacement à la rupture des composites traités et non traités en fonction du taux de charge.

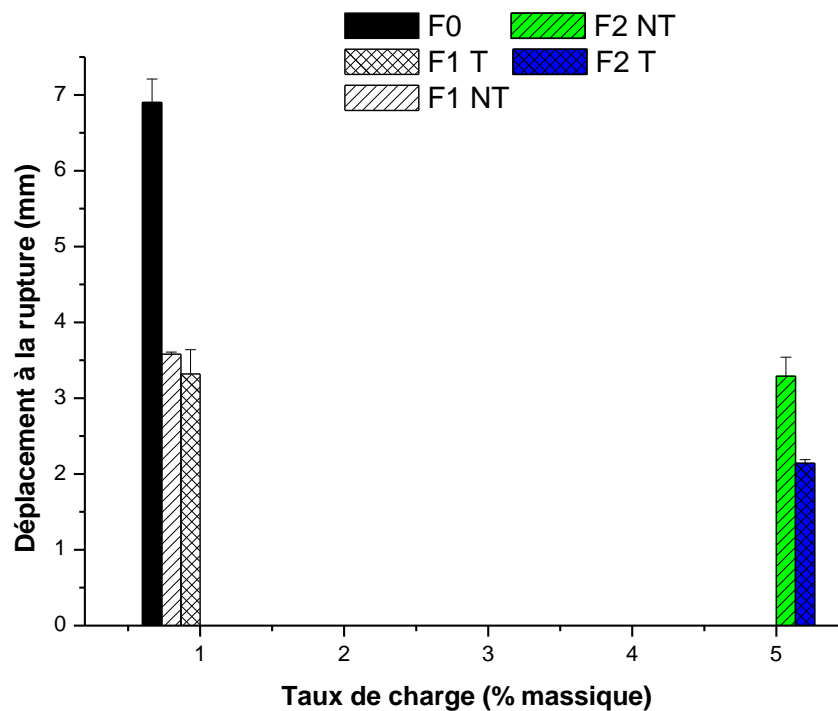


Figure 17. Évolution du déplacement à la rupture des composites UP/cellulose en fonction du taux de charge traitée et non traitée.

Le déplacement à la rupture des composites non traités diminue par rapport à UP vierge et leurs valeurs sont estimées à 3.58, 3.29 et 6.9 (Mm) pour les formulations F1 NT, F2 NT et F0 respectivement. Cela est peut-être dû la nature rigide de la CMC. Après traitement avec HSE la diminution est prononcée davantage pour les composites traités et leurs valeurs sont égales à 3.32 et 2.14 (mm) pour les formulations F1T et F2T respectivement. Ces résultats sont en accord avec (Sivakumar et al., 2021a)

III. Analyse thermogravimétrie (ATG/DTG).

III.1. ATG et DTG de l'UP et des composite de 1% de charge traité et non traité.

Les thermogrammes ATG et DTG, nous a permis de déterminer la température de début de décomposition ainsi que la vitesse de dégradation des échantillons UP et les composites traité et non traité à différents taux de charge (voir le **tableau IX**).

D'après les thermogrammes ATG et DTG, on remarque que la température de début de décomposition de l'UP est de 235 °C et avec une vitesse maximale de dégradation de l'ordre de 17 %/mn qui correspond à une température de 375°C.

Les thermogrammes ATG, nous montrent que la température de début de décomposition des composites traités et non traité augmentent par rapport au composite UP vierge. Elles sont pratiquement identiques et sont égales à 250°C. L'amélioration de la thermostabilité de F1 NT par rapport à l'UP est due à la stabilité thermique plus élevée de la cellulose et à sa structure cristalline qui joue le rôle d'une barrière vis-à-vis de la diffusion des gaz. (**Radhakrishnan Nair et al., 2007**). Cependant le composite traité avec un taux de charge de 1% n'a pas donné de résultat significatif par rapport au composite non traité (**Fu et al., 2010**).

En analysant les pics représentés sur les thermogrammes DTG (**Figure 18**), on peut observer le déplacement des pics des composites traités et non traités vers les plus hautes températures par rapport à UP vierge. En effet, la vitesse de perte de masse maximale enregistrée pour les formulations F1 NT et F1 T est la même qui est de l'ordre de 12.7 %/min à la température identique qui est estimé à 393°C, (**Joseph et al., 2003**).

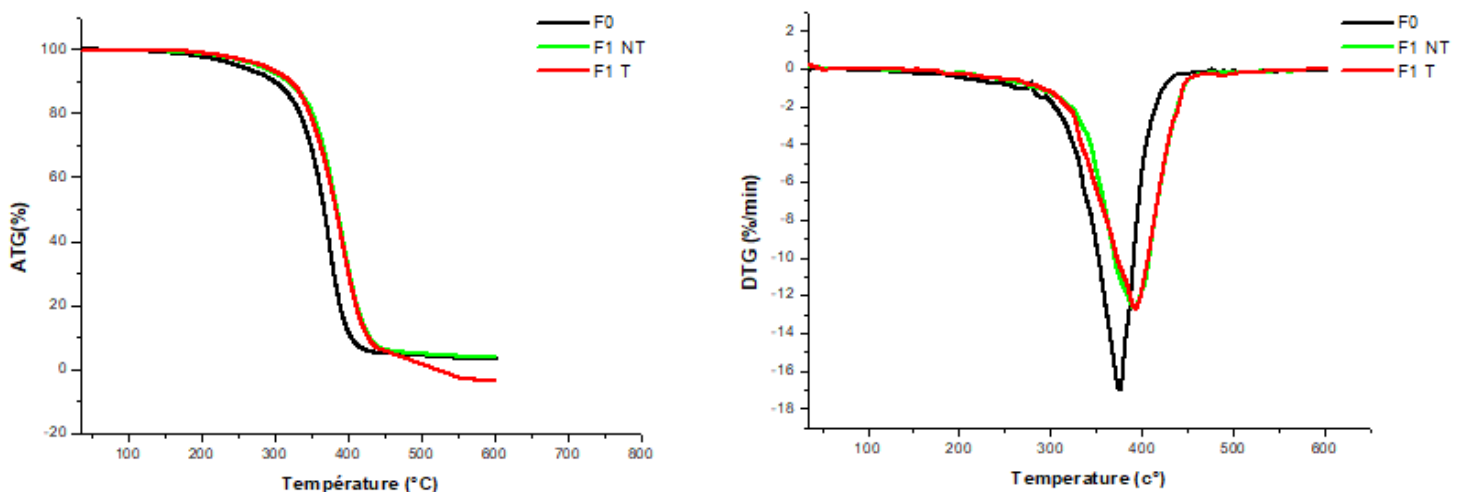


Figure 18 : Thermogrammes ATG et DTG de la résine UP et des composites à 1% de charge traité et non traité.

III.2. ATG et DTG de l'UP et composites de 5% de charge traité et non traité.

Selon les thermogrammes ATG(**Figure22**), on remarque que la température de début de décomposition du composite traité augmente par rapport à la résine polyester insaturé et au composite non traité. Elles sont égales à 245°C pour F2 T et 184.4°C pour les formulations F2 NT et F0 qui sont identiques. Cette augmentation est peut-être due à la présence des chaînes hydrocarbures de HSE qui nécessite plus d'énergie pour les rompre. (**Radhakrishnan Nair et al., 2007; Fu et al., 2010**).

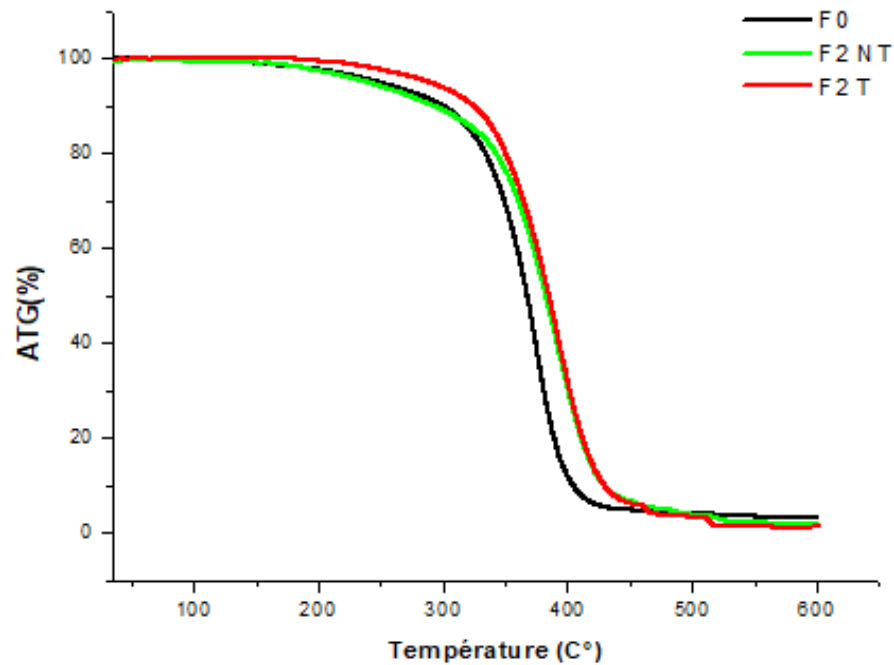


Figure 19. Thermogrammes ATG de la résine UP et des composites à 5% de charge traité et non traité.

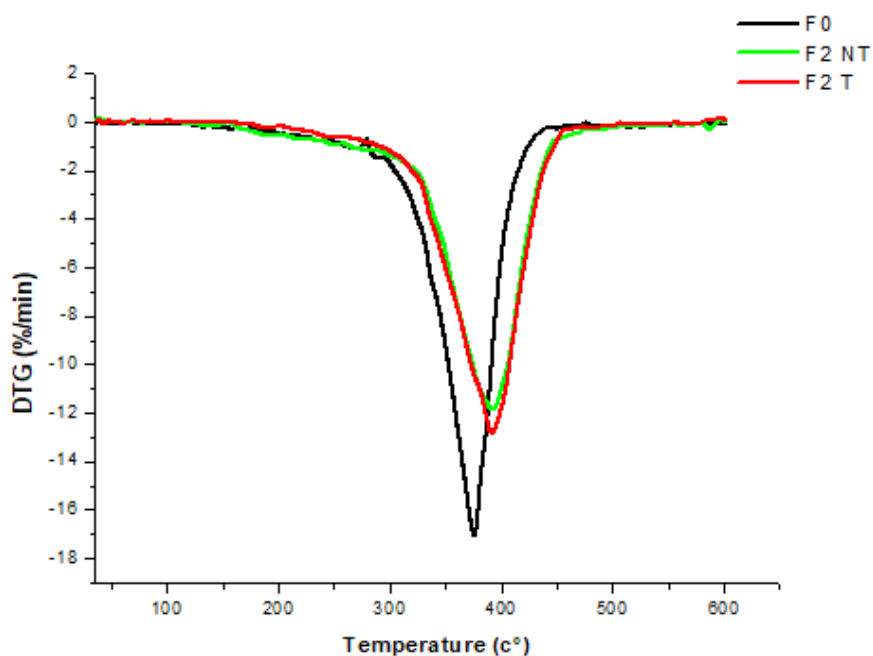


Figure 20. Thermogrammes DTG de la résine UP et des composites à 5% de charge traité et non traité.

Tableau IX. Comportements thermiques d'UP et de ses composites.

Composite	Td (°C)	T5% (°C)	T50% (°C)	T à V max (°C)	V max (%/min)
F0	235	248.8	276.8	375	17
F1 (1% NT)	250	276.6	385.3	393	12.7
F1 (1% T)	250	282.2	383.9	393	12.7
F2 (5% NT)	235	239.5	382.6	392.5	11.8
F2 (5% T)	245	289.1	385.3	392.5	12.8

IV. Caractérisation morphologique (MEB)

La microscopie électronique à balayage (MEB) est une méthode efficace pour observer qualitativement le niveau de l'adhésion fibre/matrice. **La figure 21** présente les clichés MEB des faciès de rupture des surfaces des composites UP/CNT (**figure 21a**), UP/CTHSE (**figure 21b**) à un taux de charge de 5%. On remarque la présence de cavités dans les composites non traités. Cela indique que le niveau de l'adhésion entre les fibres et la matrice est faible et quand une force est appliquée, elle provoque l'arrachement des fibres de la matrice laissant ainsi des vides. A partir de **la figure 21** (UP/CTHSE), on peut constater que le nombre de cavités a été réduit et la surface du composite traité par l'HSE est devenue lisse. Cette amélioration dans la morphologie est attribuée à la bonne adhésion interfaciale et la bonne dispersion de la cellulose dans la matrice UP après traitements chimiques (**Nachtigall et al, 2007; Sari et al, 2021**).

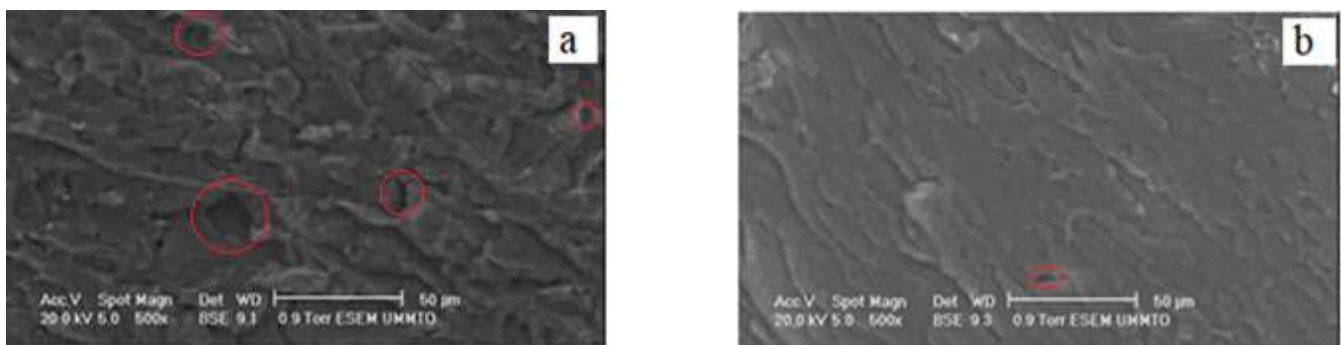


Figure 21. Images de la microscopie électronique à balayage (MEB) de : a) UP chargé à 5% traité, b) UP chargé à 5% non traité.

Conclusion

Conclusion

Au cours de cette étude, consacré à l'élaboration et caractérisation d'un matériau composite polyester insaturé/Cellulose microcristalline avec 1 et 5% de taux de charge.

Nous nous sommes intéressés particulièrement au problème d'adhésion à l'interface fibre /matrice, à l'amélioration des propriétés mécanique et thermique du notre composite, ainsi qu'aux contraintes environnementales et écologiques, par ailleurs nous avons choisi le traitement chimique de la cellulose par l'huile de soja époxydes.

La mise en évidence de la modification a été examinée par l'analyse (IRTF, ATG/DTG, MEB, essai mécanique traction et flexion)

L'analyse des différents résultats expérimentaux nous ont permis de tirer les conclusions suivantes :

- L'analyse IRTF a confirmé la réaction d'estérification, par la diminution de l'intensité de la bande hydroxyle.
- L'analyse ATG/DTG, a montré que la stabilité thermique des composites est améliorée en présence de la cellulose traitée aux températures élevées.
- Pour ce qui est du comportement mécanique on observe une meilleure amélioration des propriétés (contrainte et allongement à la rupture) à la traction. Par contre les résultats obtenus à la flexion sont in-significatifs.
- Le teste de la morphologie (MEB), nous a montré une réduction des cavités ce qui est signe d'une bonne adhésion interfacile.
- La formulation F2 à 5% de charge nous a donné de meilleurs résultats.

D'après l'ensemble des résultats, on constate que les meilleures propriétés sont obtenues avec l'incorporation de la formulation F2 à 5% de charge traité avec de l'huile de soja époxydes.

PERSPECTIVES

Tous les résultats obtenus montrent que le traitement chimique possède des insuffisances concernant l'amélioration des différentes propriétés. Parmi les perspectives, qu'on peut souligner:

- Elaboré plus de formulation, pour une bonne comparaison.
- Il serait aussi intéressant de d'utiliser un autre traitement.
- L'utilisation d'un autre procédé de moulage est recommandée.

Références bibliographiques

Références bibliographiques

- Abdelmouleh, M., Boufi, S., Belgacem, M. N., and Dufresne, A. (2007). Short natural-fibre reinforced polyethylene and natural rubber composites: Effect of silane coupling agents and fibres loading. *Compos. Sci. Technol.* 67, 1627–1639. doi: 10.1016/j.compscitech.2006.07.003.
- Abu Bakar, A., and Baharulrazi, N. (2008). Mechanical Properties of Benzoylated Oil Palm Empty Fruit Bunch Short Fiber Reinforced Poly(vinyl chloride) Composites. *Polym.-Plast. Technol. Eng.* 47, 1072–1079. doi: 10.1080/03602550802367300.
- Alamri, H. (2012). Effect of water absorption on the mechanical properties of n-SiC filled recycled cellulose fibre reinforced epoxy eco-nanocomposites. *Polym. Test.* 31, 810–818. doi: 10.1016/j.polymertesting.2012.06.001.
- Aucher, J. (2009). Etude comparative du comportement composites à matrice thermoplastique ou thermodurcissable. Available at: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00557897> [Accessed April 3, 2022].
- Belkaibech, S. A. (2021). Etude de l'effet des traitements chimiques sur la morphologie structurale des fibres végétales. Available at: <http://localhost:8080/xmlui/handle/123456789/26502> [Accessed April 27, 2022].
- Belloul, N. (2007). Procédé de fabrication de structure en composite verre / polyester. Available at: <https://www.ccdz.cerist.dz/admin/notice.php?id=123001> [Accessed June 24, 2022].
- Berlioz, S. (2007). Etude de l'estérification de la cellulose par une synthèse sans solvant.
Application aux matériaux nanocomposites. Available at: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00266895> [Accessed June 20, 2022].
- Berthelot, J.-M. (2012). *Matériaux composites: comportement mécanique et analyse des structures*. 5e éd. Paris: Éd. Tec & doc.
- Bessadok, A., Roudesli, S., Marais, S., Follain, N., and Lebrun, L. (2009). Alfa fibres for unsaturated polyester composites reinforcement: Effects of chemical treatments on mechanical and permeation properties. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 40, 184–195. doi: 10.1016/j.compositesa.2008.10.018.
- Boukerrou, A., Rahmoune, A., and Kaci, M. INFLUENCE OF ALKALINE TREATMENT OF ALFA FIBER ON THE MECHANICAL, VISCOELASTIC, THERMAL AND MORPOLOGICAL PROPERTIES OF PVC/ALFA COMPOSITES. *Sci. Pap.* 8, 6.
- Bourban, P.-E. (2004). *Matériaux composites à matrice organique: constituants, procédés, propriétés*. PPUR presses polytechniques.
- Bradai, C., Bouraoui, T., Hamed, N., and Elhalouani, F. (2008). Réticulation et comportement mécanique d'une résine polyester insaturée pour différents taux de catalyseur. *Ann. Chim.-Sci. Mater. - ANN CHIM-SCI MAT* 33, 293–302. doi: 10.3166/acsm.33.293-302.
- Bueno-Ferrer, C., Garrigós, M. C., and Jiménez, A. (2010). Characterization and thermal stability of poly(vinyl chloride) plasticized with epoxidized soybean oil for food packaging. *Polym. Degrad. Stab.* 95, 2207–2212. doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2010.01.027.

- CARREGA, M., and Verney, V. (2017). *Matières Plastiques : Propriétés, mise en forme et applications industrielles des matériaux polymères*. Dunod Editions Available at: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01659535> [Accessed April 4, 2022].
- Chawla, K. K. (2012). *Composite Materials: Science and Engineering*. Springer Science & Business Media.
- Delmas, G.-H. (2011). La Biolignine™ : Structure et Application à l'élaboration de résines époxy. Available at: <http://ethesis.inp-toulouse.fr/archive/00001605/> [Accessed April 3, 2022].
- Djijdjelli, H., Boukerrou, A., Founas, R., Rabouhi, A., Kaci, M., Farenc, J., et al. (2007). Preparation and characterization of poly(vinyl chloride)/virgin and treated sisal fiber composites. *J. Appl. Polym. Sci.* 103, 3630–3636. doi: 10.1002/app.25502.
- Doan, T.-T.-L., Gao, S.-L., and Mäder, E. (2006). Jute/polypropylene composites I. Effect of matrix modification. *Compos. Sci. Technol.* 66, 952–963. doi: 10.1016/j.compscitech.2005.08.009.
- Edeerozey, A. M. M., Akil, H. M., Azhar, A. B., and Ariffin, M. I. Z. (2007). Chemical modification of kenaf fibers. *Mater. Lett.* 61, 2023–2025. doi: 10.1016/j.matlet.2006.08.006.
- Elkhaoulani, A., Arrakhiz, F. Z., Benmoussa, K., Bouhfid, R., and Qaiss, A. (2013). Mechanical and thermal properties of polymer composite based on natural fibers: Moroccan hemp fibers/polypropylene. *Mater. Des.* 49, 203–208. doi: 10.1016/j.matdes.2013.01.063.
- Esmail, G., and Mohammad, F. (2010). Interfacial Behaviour Of Wood Plastic Composite: Effect Of Chemical Treatment On Wood Fibres. 19, 811–818.
- Falco, G. (2016). Huiles végétales époxydées et alcool furfurylique : deux types de monomères pour l'élaboration de therm durcissables et de composites biosourcés. Available at: <https://www.theses.fr/2016AZUR4155> [Accessed June 27, 2022].
- Fathi, E. B. (2020). Élaboration et caractérisation d'un matériau composite à base d'une résine therm durcissables renforcé par la sciure de bois. Available at: <http://localhost:8080/xmlui/handle/123456789/20404> [Accessed April 4, 2022].
- Fu, C., Zhang, B., Ruan, C., Hu, C., Fu, Y., and Wang, Y. (2010). Improved hydrolytic stability of poly(dilactide) with epoxidized soybean oil. *Polym. Degrad. Stab.* 95, 485–490. doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2010.01.007.
- Gasmi, S. B. (2020). Elaboration et caractérisation d'un matériau composite renforcé par les fibres de paille de blé. Available at: <http://localhost:8080/xmlui/handle/123456789/20751> [Accessed June 22, 2022].
- Gay, D., and Hoa, S. V. *Matériaux composites: Conception et applications, deuxième édition*.
- Gong, F., Feng, M., Zhao, C., Zhang, S., and Yang, M. (2004). Thermal properties of poly(vinyl chloride)/montmorillonite nanocomposites. *Polym. Degrad. Stab.* 84, 289–294. doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2003.11.003.
- Gornet, L. (2008). Généralités sur les matériaux composites. Available at: <https://cel.archives-ouvertes.fr/cel-00470296> [Accessed April 4, 2022].
- Haddadi, M. (2015). Propriétés de transport des matériaux hétérogènes à renfort naturel. Available at: <http://dspace.univ-batna.dz/xmlui/handle/123456789/736> [Accessed June 10, 2022].

- Hamadache, H., Djidjelli, H., Boukerrou, A., Kaci, M., José Antonio, J.-R., and Martín-Martínez, J. M. (2019). Different compatibility approaches to improve the thermal and mechanical properties of EVA/starch composites. *Polym. Compos.* 40, 3242–3253. doi: 10.1002/pc.25179.
- Hassar, M. (2013). Influence des nano-charges de noir de carbone sur le comportement mécanique de matériaux composites : application au blindage électromagnétique. Available at: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00878994> [Accessed April 7, 2022].
- Hossain, M. K., Dewan, M. W., Hosur, M., and Jeelani, S. (2011). Effect of surface treatment and nanoclay on thermal and mechanical performances of jute fabric/biopol 'green' composites. *J. Reinf. Plast. Compos.* 30, 1841–1856. doi: 10.1177/0731684411430426.
- Hutchinson, J. M. (1995). Physical aging of polymers. *Prog. Polym. Sci.* 20, 703–760. doi: 10.1016/0079-6700(94)00001-I.
- Islam, M. S., Pickering, K. L., and Foreman, N. J. (2010a). Influence of alkali treatment on the interfacial and physico-mechanical properties of industrial hemp fibre reinforced polylactic acid composites. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 41, 596–603. doi: 10.1016/j.compositesa.2010.01.006.
- Islam, Md. N., Rahman, Md. R., Haque, Md. M., and Huque, Md. M. (2010b). Physico-mechanical properties of chemically treated coir reinforced polypropylene composites. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 41, 192–198. doi: 10.1016/j.compositesa.2009.10.006.
- Jebrane, M. (2009). Fonctionnalisation chimique du bois par transesterification des esters d'enol. 155 p. Available at: <https://hal.inrae.fr/tel-02824604> [Accessed April 8, 2022].
- John, M. J., and Anandjiwala, R. D. (2008). Recent developments in chemical modification and characterization of natural fiber-reinforced composites. *Polym. Compos.* 29, 187–207. doi: 10.1002/pc.20461.
- Joseph, P. V., Joseph, K., Thomas, S., Pillai, C. K. S., Prasad, V. S., Groeninckx, G., et al. (2003). The thermal and crystallisation studies of short sisal fibre reinforced polypropylene composites. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 34, 253–266. doi: 10.1016/S1359-835X(02)00185-9.
- Kaiser, T. (1989). Highly crosslinked polymers. *Prog. Polym. Sci.* 14, 373–450. doi: 10.1016/0079-6700(89)90007-5.
- Kechaou, B. (2003). Corrélation entre propriétés diélectriques et mécaniques de composites à matrice époxyde renforcée par des fibres de verres E. Available at: <https://www.theses.fr/2003ECDL0017> [Accessed April 7, 2022].
- Lamy, Y. (2012). Nanostructuration de résines polyester insaturé par des copolymères à blocs : application aux composites SMC et BMC. Available at: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00812588> [Accessed April 4, 2022].
- Lasmi, S. (2018). Effets des taux de l'agent traitant et de l'agent comptabilisant sur les propriétés des nanocomposites Polypropylène /Silice. Available at: <http://dspace.univ-setif.dz:8888/jspui/handle/123456789/1875> [Accessed April 3, 2022].
- Liu, Z., Erhan, S. Z., Akin, D. E., and Barton, F. E. (2006). "Green" Composites from Renewable Resources: Preparation of Epoxidized Soybean Oil and Flax Fiber Composites. *J. Agric. Food Chem.* 54, 2134–2137. doi: 10.1021/jf0526745.
- Ly, E. B. (2022). Nouveaux matériaux composites thermoformables à base de fibres de cellulose.

- Marcovich, N. E., Aranguren, M. I., and Reboredo, M. M. (2001). Modified woodflour as thermoset fillers Part I. Effect of the chemical modification and percentage of filler on the mechanical properties. *Polymer* 42, 815–825. doi: 10.1016/S0032-3861(00)00286-X.
- Mercier, J. P., Zambelli, G., and Kurz, W. (1999). *Introduction à la science des matériaux*. PPUR presses polytechniques.
- Michaud, F. (2003). Rhéologie de panneaux composites bois/thermoplastiques sous chargement thermomécanique : aptitude au postformage. Available at: <https://corpus.ulaval.ca/jspui/handle/20.500.11794/17863> [Accessed June 22, 2022].
- Nachtigall, S. M. B., Cerveira, G. S., and Rosa, S. M. L. (2007). New polymeric-coupling agent for polypropylene/wood-flour composites. *Polym. Test.* 26, 619–628. doi: 10.1016/j.polymertesting.2007.03.007.
- Ouajai, S., and Shanks, R. A. (2005). Composition, structure and thermal degradation of hemp cellulose after chemical treatments. *Polym. Degrad. Stab.* 89, 327–335. doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2005.01.016.
- Panaitescu, D., Iorga, M., Vuluga, Z., Donescu, D., Dan, M., Serban, S., et al. (2007). Effect of interface in natural fiber-polymer composites. *Rev. Roum. Chim.* 52, 409–414.
- Pasquini, D., Belgacem, M. N., Gandini, A., and Curvelo, A. A. da S. (2006). Surface esterification of cellulose fibers: Characterization by DRIFT and contact angle measurements. *J. Colloid Interface Sci.* 295, 79–83. doi: 10.1016/j.jcis.2005.07.074.
- Pejic, B. M. (2008). The effects of hemicelluloses and lignin removal on water uptake behavior of hemp fibers. *Bioresour. Technol.* 99, 7152–7159. doi: 10.1016/j.biortech.2007.12.073.
- Pejic, B. M., Kostic, M. M., Skundric, P. D., and Praskalo, J. Z. (2008). The effects of hemicelluloses and lignin removal on water uptake behavior of hemp fibers. *Bioresour. Technol.* 99, 7152–7159. doi: 10.1016/j.biortech.2007.12.073.
- Perrot, Y. (2006). Influence des propriétés de la matrice sur le comportement mécanique de matériaux composites verre/polyester utilisés en construction navale de plaisance - Cas des résines polyester limitant les émissions de styrène. Available at: <https://archimer.ifremer.fr/doc/00000/2485/> [Accessed April 4, 2022].
- Radhakrishnan Nair, M. N., Thomas, G. V., and Gopinathan Nair, M. R. (2007). Thermogravimetric analysis of PVC/ELNR blends. *Polym. Degrad. Stab.* 92, 189–196. doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2006.11.014.
- Redjel, B., and Charentenay, F. X. de (1987). Application des statistiques de Weibull à la caractérisation des résines phénoliques et des matériaux composites SMC. *Matér. Tech.* 75, 421–424. doi: 10.1051/mattech/198775100421.
- Roghani-Mamaqani, H., Haddadi-Asl, V., Najafi, M., and Salami-Kalajahi, M. (2011). Preparation of nanoclay-dispersed polystyrene nanofibers via atom transfer radical polymerization and electrospinning. *J. Appl. Polym. Sci.* 120, 1431–1438. doi: 10.1002/app.33119.
- Rokbi, M., Herbelot, C., and Imad, A. (2013). Influence du traitement chimique sur le comportement à la rupture du polyester orthophtalique renforcée par des fibres Alfa. in *CFM 2013 - 21ème Congrès Français de Mécanique Congrès français de mécanique.*, ed. A. F. de Mécanique (Bordeaux, France: AFM, Maison de la Mécanique, 39/41 rue Louis Blanc - 92400

- Courbevoie). Available at: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-03439906> [Accessed April 22, 2022].
- Rokbi, M., Osmani, H., Imad, A., and Benseddiq, N. (2011). Effect of Chemical treatment on Flexure Properties of Natural Fiber-reinforced Polyester Composite. *Procedia Eng.* 10, 2092–2097. doi: 10.1016/j.proeng.2011.04.346.
- ROYER, R., and MERSON, E. (2013). Influence des propriétés des matériaux composites sur leur perçage. in *CFM 2013 - 21ème Congrès Français de Mécanique Congrès français de mécanique.*, ed. A. F. de Mécanique (Bordeaux, France: AFM, Maison de la Mécanique, 39/41 rue Louis Blanc - 92400 Courbevoie). Available at: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-03440468> [Accessed May 16, 2022].
- Sari, N. H., Suteja, S., Fudholi, A., Zamhuriadi, A., Sulistyowati, E. D., Pandiatmi, P., et al. (2021). Morphology and mechanical properties of coconut shell powder-filled untreated cornhusk fibre-unsaturated polyester composites. *Polymer* 222, 123657. doi: 10.1016/j.polymer.2021.123657.
- Sbiai, A. (2011). Matériaux composites à matrice époxyde chargée par des fibres de palmier dattier : effet de l'oxydation au tempo sur les fibres. Available at: <https://www.theses.fr/2011ISAL0043> [Accessed May 9, 2022].
- Seyni, A. (2008). Propriétés physico-chimiques et d'usage de matériaux composites à charge dégradable produits par co-broyage. Available at: <http://ethesis.inp-toulouse.fr/archive/00000841/> [Accessed April 8, 2022].
- Simpson, J. M. (2010). Synthesis and characterization of unsaturated polyesters for use in multi-vesiculated particles (MVPs). Available at: <https://scholar.sun.ac.za:443/handle/10019.1/5177> [Accessed April 4, 2022].
- Singha, A. S., Rana, A. K., and Jarial, R. K. (2013). Mechanical, dielectric and thermal properties of *Grewia optiva* fibers reinforced unsaturated polyester matrix based composites. *Mater. Des.* 51, 924–934. doi: 10.1016/j.matdes.2013.04.035.
- Sivakumar, S., Vignesh, V., Arasu, I. V., Venkatesan, G., Mohamed Rabi, B. R., and Adam Khan, M. (2021a). Experimental investigation on tensile and flexural properties of randomly oriented treated palmyra fibre reinforced polyester composites. *Mater. Today Proc.* 46, 7556–7560. doi: 10.1016/j.matpr.2021.01.511.
- Takács, E., Wojnárovits, L., Földváry, C., Hargittai, P., Borsa, J., and Sajó, I. (2000). Effect of combined gamma-irradiation and alkali treatment on cotton–cellulose. *Radiat. Phys. Chem.* 57, 399–403. doi: 10.1016/S0969-806X(99)00409-0.
- Taurino, R., De Bortoli, L. S., Schabbach, M. L., and Bondioli, F. (2020). Development of glass-stalks-unsaturated polyester hybrid composites. *Compos. Commun.* 22, 100428. doi: 10.1016/j.coco.2020.100428.
- Trejo-O'reilly, J.-A., Cavaille, J.-Y., Belgacem, N. M., and Gandini, A. (1998). Surface Energy and Wettability of Modified Cellulosic Fibres for Use in Composite Materials. *J. Adhes.* 67, 359–374. doi: 10.1080/00218469808011117.
- Tserki, V., Zafeiropoulos, N. E., Simon, F., and Panayiotou, C. (2005). A study of the effect of acetylation and propionylation surface treatments on natural fibres. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 36, 1110–1118. doi: 10.1016/j.compositesa.2005.01.004.

Wang, P., and Schaefer, D. W. (2008). Why does Silane Enhance the Protective Properties of Epoxy Films? *Langmuir* 24, 13496–13501. doi: 10.1021/la8028066.

Xie, Y., Hill, C. A. S., Xiao, Z., Militz, H., and Mai, C. (2010). Silane coupling agents used for natural fiber/polymer composites: A review. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 41, 806–819. doi: 10.1016/j.compositesa.2010.03.005.

Zheng, Y.-T., Cao, D.-R., Wang, D.-S., and Chen, J.-J. (2007). Study on the interface modification of bagasse fibre and the mechanical properties of its composite with PVC. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 38, 20–25. doi: 10.1016/j.compositesa.2006.01.023.

Zidour, M. (2012). Etude du comportement mécanique des nanotubes en carbone entourés par une matrice polymère. Available at: <http://rdoc.univ-sba.dz:8080/jspui/handle/123456789/1477> [Accessed April 3, 2022].

Résumé

L'adhésion entre fibres végétales et matrice polymère reste l'un des verrous techniques du développement des composites. En effet, la cellulose, principal constituant des fibres végétales, est souvent incompatible ou peu compatible avec les matrices thermodurcissables. De nombreuses recherches se sont donc concentrées sur l'amélioration de ces propriétés, notamment en traitant physiquement ou chimiquement les fibres.

Au cours de ce travail consacré à l'étude de l'effet des taux de cellulose microcristalline (CMC) traité et non traité sur les propriétés des composites UP/CMC, Nous nous sommes focalisés particulièrement sur l'amélioration des propriétés mécaniques et thermique du composite, ainsi pour remédier au problème d'incompatibilité interfaciale entre la charge (CMC) et la matrice (UP) par la modification chimique de la cellulose microcristalline avec le traitement de l'Huile de soja époxydé (HSE).

La mise en évidence de la modification a été examinée par l'analyse IRTF, ATG/DTG, MEB, tests mécaniques de Traction et Flexion. Les résultats obtenus ont montré que la charge traitée par HSE améliore les propriétés mécaniques de Traction, ainsi qu'une meilleure stabilité thermique, et une bonne morphologie. En revanche on a enregistré une diminution de la résistance à la flexion.