HAL
open science

Elaboration et caractérisation d'un matériau composite à base de farine de bois d'olivier

Nesrine Bouhamed

To cite this version:

Nesrine Bouhamed. Elaboration et caractérisation d'un matériau composite à base de farine de bois d'olivier. Mécanique des fluides [physics.class-ph]. Normandie Université; Université de Sfax (Tunisie), 2020. Français. NNT : 2020NORMLH18 . tel-03128890

HAL Id: tel-03128890

https://theses.hal.science/tel-03128890

Submitted on 2 Feb 2021

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Normandie Université

THESE

Pour obtenir le diplôme de doctorat

Spécialité 4200014 (mécanique des fluides, énergétique, thermique, combustion, acoustique)

Préparée au sein de l'Université Le Havre Normandie

Elaboration et caractérisation d'un matériau composite à base de farine de bois d'olivier

Présentée et soutenue par
Nesrine BOUHAMED

Thèse soutenue publiquement le 11/09/2020 devant le jury composé de		
Mme Anne BERGERET	PU – Ecole des Mines d'Alès	Examinateur
M. Mourad BENTAHAR	MC HDR – Université du Mans	Rapporteur
M. Wassef BEN SALEM	MC HDR – Université de Monastir, Tunisie	Rapporteur
M. Jean DUCLOS	PU émérite – Université du Havre	Invité
M. Hatem KSIBI	PU – Université de Sfax, Tunisie	Codirecteur de thèse
M. Olivier LENOIR	PU – Université du Havre	Directeur de thèse
M. Pierre MARECHAL	MC HDR – Université du Havre	Encadrant de thèse
M. Slim SOUISSI	MA – ENI Sfax, Tunisie	Invité

Thèse dirigée par Olivier LENOIR, LOMC, UMR 6294 CNRS, Université Le Havre Normandie, France et **Hatem KSIBI, LASEM, ENI Sfax, Tunisie**

UNIVERSITÉ LE HAVRE NORMANDIE

ED PSIME

LABORATOIRE ONDES ET MILIEUX COMPLEXES
UMR 6294 CNRS

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé en collaboration entre le Laboratoire Ondes et Milieux Complexes (LOMC) de l'université du Havre et le LAboratoire des Système ElectroMécanique (LASEM) de l'école nationale d'ingénieurs de Sfax (ENIS), Tunisie.

Je tiens tout d'abord à remercier le Professeur Pascal Pareige, le Professeur Bruno Morvan les directeurs adjoints du LOMC et le Professeur Chelly Bradai, directeur de LASEM de m'avoir accueilli.

Je souhaite remercier tout particulièrement mes directeurs de thèse, Professeur Olivier Lenoir, Professeur Hatem Ksibi et Monsieur Mohamed Ben Amar qui ont permis l'existence de ce partenariat franco-tunisien. Je les remercie pour la confiance qu'ils m'ont accordée. Je remercie chaleureusement Monsieur Pierre Maréchal et Monsieur Slim Souissi pour leur encadrement exemplaire, leur soutien et leur confiance. Merci pour tout.

Je tiens à remercier Madame Anne Bergeret et Monsieur Jean Duclos pour leur participation à mon jury de thèse. J'adresse ma reconnaissance à tous les membres du jury, en particulier aux rapporteurs pour m'avoir fait l'honneur d'accepter d'évaluer ce travail : Monsieur Mourad Bentahar et Monsieur Wassef Ben Salem.

Je tiens à remercier tous les doctorants du laboratoire LOMC, anciens et actuels, pour l'ambiance conviviale qui m'a été offerte pendant mes séjours en France. Je remercie également tous les autres membres permanents (Moncef, Damien, Alain, Paul, Francine, Reveka, Pascal, Hervé…).

Je tiens finalement à remercier chaleureusement tous mes camarades du laboratoire LASEM pour le plaisir que j'ai eu à travailler en leur compagnie. Je leur garde une profonde reconnaissance et leur exprime ma sincère amitié, ainsi qu'à tous mes amis du département Génie des Matériaux et Génie Mécanique de l'ENIS.

Dédicaces

Je dédie cette thèse de doctorat

A mes chers parents

A mon cher mari

Et à mes deux frères

Nesrine

Résumé

Ce travail de thèse porte sur l'élaboration et la caractérisation de nouveaux matériaux composites à base de fibres naturelles. Cette étude consiste à exploiter des renforts végétaux résultant du travail du bois d'olivier introduit sous forme de farine de bois d'olivier (FBO) dans une matrice polymère en polypropylène (PP). Ainsi, deux types de bio-composites PP/FBO ont été fabriqués : les combinaisons polypropylène avec les fibres de farine de bois d'olivier non traitées ou traitées avec de l'amino-silane avec un taux de charge massique de 3%. Suite au traitement chimique, les caractérisations des fibres traitées ont montré une augmentation de taux de cellulose, de la rugosité, de la stabilité thermique et aussi de la cristallinité. Les échantillons de matériaux composites étudiés ont été fabriqués à partir des matières premières PP et FBO, par extrusion bi-vis suivie d'une injection en variant le taux de charge en FBO de 0 à 30%. Les micrographies des facettes de rupture réalisées au microscope électronique à balayage (MEB) montrent une meilleure adhésion entre la matrice et les fibres traitées par rapport à celles non traitées. Dans l'objectif d'une caractérisation des propriétés élastiques, des méthodes de caractérisation destructive par essais mécanique et non destructive par ultrasons, sont confrontées afin d'en établir la correspondance, mais aussi les limites. Il en résulte que la rigidité des bio-composites PP/FBO a été améliorée avec l'augmentation du taux de fibres et l'ajout d'un agent de couplage. Un facteur de corrélation entre les modules de Young estimés est établi entre les valeurs ultrasonores et les valeurs mécaniques. Les vitesses longitudinale et transversale augmentent dans les mêmes proportions que la teneur en fibres et que l'ajout d'un agent de couplage. Enfin, la structure interne des échantillons de bio-composites PP/FBO a été évaluée par réflectométrie ultrasonore et la tomographie par rayons X.

Abstract

This work concerns the development and the characterization of new bio-composite materials based on natural reinforcements. It is aimed at the exploitation of natural fibers extracted from the work of olive wood introduced in the form of olive wood flour (OWF) in a polymer matrix of the polypropylene (PP). Thus, two types of PP/OWF bio-composites were produced: with raw OWF and treated OWF, i.e. polypropylene combined with raw olive wood flour or with amino-silane treated OWF with a mass loading rate of 3%. Following the chemical treatment, the characterizations of the treated flour showed an increase in the rate of cellulose, the roughness, the thermal stability and also the crystallinity. The studied wood-polymer composite (WPC) materials were manufactured from PP and OWF raw materials, by twin-screw extrusion followed by injection, varying the OWF charge rate from 0 to 30%. The micrographs of the rupture facets carried out with a scanning electron microscope (SEM) show better adhesion between the matrix and the treated OWF compared to those not treated. With the aim of characterizing elastic properties, destructive characterization methods by mechanical and non-destructive ultrasonic tests are used to establish the correspondence, but also the limits. As a result, the rigidity of the PP/OWF bio-composites has been improved with the increase in the fiber content and the addition of a coupling agent. A correlation factor between the estimated Young's moduli is established between the ultrasonic values and the mechanical values. The longitudinal and transverse velocities increase in the same proportions with the fiber content and with the addition of a coupling agent. Finally, the internal structure of the PP/OWF WPC samples was evaluated by ultrasonic reflectometry and X-ray tomography.

Sommaire :

Introduction générale..... 12

Chapitre I : Matériaux bio-composites 18

I.1 Introduction 19

I.2 Généralités sur les composites bois-polymère 19

I.3 Fibres naturelles végétales 20

I.3.1 Structure et composition des fibres naturelles..... 21

I.3.2 Cellulose 22

I.3.3 Hémicelluloses..... 23

I.3.4 Lignines 23

I.4 Traitement chimique des fibres végétales 24

I.4.1 Traitement au silane 25

I.4.2 Traitement alcalin à la soude 26

I.4.3 Traitement par acétylation 27

I.5 Généralités sur la farine de bois d'olivier..... 28

I.6 Bio-polymères 29

I.6.1 Mise en œuvre des bio-composites bois/polymère 29

I.6.2 Performances des bio-composites 30

I.6.3 Propriétés mécaniques 30

I.6.4 Propriétés thermiques 33

I.6.5 Propriétés ultrasonores 34

I.6.6 Propriétés morphologiques 37

I.7 Conclusion 38

Chapitre II : Elaboration, caracterisation et technique de caracterisation des bio-composites 48

II.1 Introduction 49

II.2 Matériaux 49

II.2.1 Matrice 49

II.2.2 Renfort 50

II.2.3 Traitement au silane 51

II.3 Elaboration des matériaux bio-composites 52

II.3.1 Extrusion bi-vis 52

II.3.2 Conditions d'extrusion des bio-composites 55

II.3.3 Compositions et nomenclature des formulations préparées 57

II.3.4 Préparation des éprouvettes injectées 58

II.4 Techniques de caractérisation 59

II.4.1 Caractérisation morphologique 59

II.4.1.1 Microscope électronique à balayage (MEB) 60

II.4.1.1.1 Dispositif expérimental 60

II.4.1.1.2 Caractérisation morphologique par MEB 60

II.4.1.2 Microscope électronique à balayage couplé avec un spectromètre de rayon X à sélection d'énergie (MEB-EDX) 62

II.4.1.2.1 Dispositif expérimental 62

II.4.1.2.2 Caractérisation morphologique par MEB-EDX 63

II.4.1.2.3 Caractérisation granulométrique 64

II.4.2 Composition chimique de la farine de bois d'olivier 66

II.4.3 Analyse structurale 69

II.4.3.1 Spectrométrie infrarouge à transformé de Fourier (FTIR) 69

II.4.3.1.1 Technique et dispositif expérimental 69

II.4.3.1.2 Analyse des resultats 70

II.4.3.2 Diffraction des rayons X 73

II.4.3.2.1 Technique et dispositif expérimentale 73

II.4.3.2.2 Analyse des résultats 73

II.4.4 Caractérisation thermique 75

II.4.4.1 L'analyse thermogravimétrique (ATG) : Technique et dispositif expérimental 75

II.4.4.2 Analyse des résultats 76

II.4.5 Caractérisation morphologique et thermique des bio-composites élaborés 77

II.4.5.1 Etude des propriétés morphologiques 77

II.4.5.2 Etude des propriétés thermiques 80

II.5 Conclusion 81

Chapitre III : Caractérisation ultrasonore et mécanique du matériau bio-composite 88

III.1 Introduction 89

III.2 Caractérisation ultrasonore 89

III.2.1 Ondes longitudinales 90

III.2.1.1 Mesure du temps de vol 90

III.2.1.2 Méthode spectrale 91

III.2.2 Ondes transversales 92

III.2.3 Résultats 93

III.3 Caractérisation mécanique 98

III.3.1 Dispositif de mesure 98

III.3.2 Mesures mécaniques 99

III.4 Discussion 103

III.5 Conclusion 107

Chapitre IV : Cartographies ultrasonores et tomographie des rayons X des plaques de bio-composite..... 112

IV.1 Introduction..... 113

IV.2 Représentation des signaux ultrasonores..... 113

IV.2.1 A-scan 113

IV.2.2 B-scans..... 114

IV.2.3 C-scans..... 115

IV.3 Cartographies ultrasonores des vitesses longitudinales des ondes ultrasonores..... 116

IV.3.1 Configuration 116

IV.3.2 Détectabilité 121

IV.3.3 C- Scans 122

IV.3.4 Traitements des données 124

IV.3.5 Méthode de corrélation croisée 127

IV.3.6 Mesure d'impédance acoustique de surface 130

IV.4 Cartographie par rayons X 132

IV.4.1 Généralité 132

IV.4.2 Configuration 135

IV.4.3 Mise au point-tomographie 136

IV.4.4 C-scans 136

IV.4.5 Analyse 139

IV.5 Conclusion 143

Conclusion générale 146

Annexes 150

Annexe 1: Essais de traction 151

Annexe 2: Transducteurs ultrasonores 155

Introduction générale

Introduction générale

Les préoccupations environnementales liées à la croissance des matières plastiques ont ouvert la voie à des recherches visant à trouver des alternatives aux matériaux dérivés du pétrole. Du fait des réglementations environnementales qui s'imposent, des innovations basées sur les matériaux naturels et renouvelables ont vu le jour. L'utilisation de ces biomatériaux est en forte expansion et nécessite au préalable une caractérisation et une qualification de ces nouvelles compositions. Parmi ceux-ci, les bio-composites consistent à remplacer la matrice et les fibres dérivés du pétrole par des biomatériaux équivalents. C'est sur cette piste de la substitution des fibres synthétiques par des fibres d'origine naturelle à partir de bois d'olivier que porte ce travail de thèse.

Ces nouvelles combinaisons composites, dites éco-composites se trouvent motivées à la fois par des aspects économiques et écologiques. De nombreuses études ont été menées sur la thématique des fibres végétales (lin, chanvre, kénaf, coton, jute, sisal, coco, abaca, bois…) en lieu et place des fibres synthétiques traditionnelles (fibres de verre, fibres de carbone…) [1]. Cependant, les fibres naturelles qui jouent le rôle d'un renfort dans les matériaux composites, posent des problèmes de compatibilité avec la matrice. Il est donc nécessaire d'améliorer la cohésion entre fibres et matrice au moyen de méthodes physiques ou chimiques [2, 3]. Par ailleurs, leur caractérisation mécanique via des méthodes conventionnelles est contrainte par des éprouvettes de géométrie bien déterminée, modifiant ainsi les propriétés effectives des fibres seules. Ainsi, les propriétés mécaniques des matériaux bio-composites se trouvent parfois plus faibles qu'attendues. Pour une analyse locale, des caractérisations non destructives (CND) sont de plus en plus souvent utilisées pour évaluer les propriétés mécaniques de ces matériaux composites à base de polymères [4, 5]. Certaines méthodes de CND sont mises en œuvre pour suivre leurs propriétés élastiques en conditions réelles d'utilisation.

Dans ce travail, nous avons élaboré des nouveaux bio-composites à base de fibres végétales traitées ou non et de polymère, par la méthode d'extrusion/injection. Des farines ont été exploitées du fait de leur abondance de par le travail du bois d'olivier, comptant parmi les richesses naturelles en Tunisie. Concernant la matrice, le choix s'est porté sur un polymère très utilisé dans l'industrie des composites, le polypropylène (PP).

Ce manuscrit comporte quatre chapitres : bibliographie autour des fibres naturelles pour les composites ; matières premières et élaboration des échantillons ; caractérisation ultrasonore et mécanique d'échantillons ; cartographies des variations de propriétés dans le volume.

Le premier chapitre est une étude bibliographique qui traite dans une première sous-partie des fibres naturelles végétales en général (structure, propriétés et disponibilité) et des fibres de bois d'olivier en particulier. Ensuite, la deuxième sous-partie présente les traitements de surface des fibres rendus possibles par des modifications chimiques. Dans une troisième sous-partie, les différents types des polymères utilisés pour l'élaboration des matériaux composites sont inventoriés, plus spécialement ceux utilisant des renforts de fibres d'origine naturelle. Enfin, les propriétés des bio-composites à base de fibres cellulosique sont décrites à travers leur composition et méthode d'élaboration, ainsi que les moyens de caractérisation morphologique.

Le deuxième chapitre traite des différents traitements sur les matières premières utilisées dans cette étude, en particulier des techniques de préparation et de traitement chimique de farine de bois d'olivier (FBO), depuis les méthodes expérimentales jusqu'aux résultats des analyses morphologique, physico-chimique et thermique. Ensuite, les techniques et les conditions de mise en œuvre des bio-composites sont détaillées, de l'extrusion à l'injection des éprouvettes étudiées par la suite.

Le troisième chapitre porte sur les mesures ultrasonores et mécaniques en tant que méthodes de caractérisation du bio-composite élaboré. Ces deux méthodes sont présentées et comparées, et leurs avantages et inconvénients sont discutés. L'influence de divers paramètres entrant dans la composition du bio-composite est étudiée, en particulier la teneur en farine de bois et son traitement chimique (addition d'un agent de couplage amino-silane) sur les propriétés mécaniques du composite. Ces caractérisations, dont celle non-destructive par ultrasons et celle destructive par essai de traction mécanique, ont permis d'évaluer les constantes élastiques des échantillons selon ces deux méthodes. Les propriétés élastiques des composites ainsi évaluées sont alors comparées et discutées en fin de chapitre.

Le quatrième et dernier chapitre porte sur l'évaluation des farines et de leur dispersion dans les plaques bio-composites. Différentes cartographies sont présentées dans ce chapitre. Ces cartographies résultent de mesures de temps de vol dans les plaques et de rapport des amplitudes des échos obtenus par réflexion. Enfin, des tomographies à rayons X ont permis d'obtenir une imagerie 3D des échantillons, avec des plans de coupes à différentes profondeurs. Ces

cartographies issues du tomographe ont permis d'estimer le taux d'homogénéité des plaques et la dispersion des fibres (FBO) dans la matrice (PP). Ces estimations ont été comparées pour les différentes plaques en fonction du taux de fibres.

Enfin, une conclusion générale vient synthétiser les résultats obtenus et en ouvrir les perspectives qui se présentent à ce jour. Parmi les voies à explorer, celles de matériaux bio-composites incluant fibres et matrice toutes deux d'origine naturelle et renouvelable sont envisagées.

Ces travaux de recherche ont été réalisés dans le cadre d'une cotutelle de thèse entre le Laboratoire Ondes et Milieux Complexes de l'Université du Havre (LOMC, UMR 6294 CNRS) sous la direction du Professeur Olivier Lenoir, et l'encadrement de Monsieur Pierre Maréchal et le LAboratoire des Systèmes Électro-Mécaniques (LASEM) de l'Ecole Nationale d'Ingénieurs de Sfax (ENIS) sous la direction du Professeur Hatem Ksibi et l'encadrement de Monsieur Slim Souissi.

Bibliographie

[1] A. Gharbi, R. B. Hassen et S. Boufi, "Composite materials from unsaturated polyester resin and olive nuts residue: the effect of silane treatment", *Industrial Crops and Products,* vol. 62, pp. 491-498, 2014.

[2] B. Amar, K. Salem, D. Hocine, I. Chadia et M. J. Juan, "Study and characterization of composites materials based on polypropylene loaded with olive husk flour", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 122, n°12, pp. 1382-1394, 2011.

[3] I. Naghmouchi, P. Mutjé et S. Boufi, "Olive stones flour as reinforcement in polypropylene composites: A step forward in the valorization of the solid waste from the olive oil industry", *Industrial Crops and Products,* vol. 72, pp. 183-191, 2015.

[4] A. El-Sabbagh, L. Steuernagel et G. Ziegmann, "Characterisation of flax polypropylene composites using ultrasonic longitudinal sound wave technique", *Composites Part B: Engineering,* vol. 45, n°11, pp. 1164-1172, 2013.

[5] T. Kundu et S. K. Datta, "Ultrasonic and electromagnetic NDE for structure and material characterization engineering and biomedical applications", *CRC Press*, 2012.

Chapitre I

Matériaux bio-composites

I.1 Introduction

Généralement, les composites à renforts en fibres naturelles sont considérés comme des matériaux à grand potentiel pour de nombreuses applications d'ingénierie. Cette étude bibliographique synthétise les connaissances acquises sur les fibres d'origine végétale, en particulier le bois d'olivier, les thermoplastiques ainsi que les traitements de surface des fibres. Dans ce chapitre, les propriétés des bio-composites à base de fibres naturelles sont décrites à travers leur structure, leur composition, leur domaine d'application, leur processus d'élaboration, ainsi que leurs caractérisations mécaniques, ultrasonores et morphologiques.

Dans ce qui suit, chacun des constituants du composite polymère-bois est présenté.

I.2 Généralités sur les composites bois-polymère

Le composite polymère-bois, ou Wood Plastic Composite (WPC), est un matériau fabriqué à partir d'un mélange de fibres de bois et d'un polymère thermoplastique ou thermodurcissable afin de produire un matériau similaire aux produits 100% à base de plastique [1, 2]. Cette association de matériaux permet d'obtenir des caractéristiques spécifiques, en particulier une bonne résistance à la détérioration biologique où les produits en bois seul ne conviennent pas. Ainsi, l'association de fibres de rigidité et de résistance mécanique élevées avec un polymère, permet d'obtenir un composite optimal en assurant : le maintien des fibres dans la bonne direction ; la distribution des efforts ; une bonne cohésion pour limiter la propagation de fissures ; de bonnes propriétés mécaniques en cisaillement du composite. Ces composites sont élaborés par des processus d'extrusion-injection. Cependant, leurs propriétés physiques et mécaniques doivent être améliorées, ainsi que l'apparence des produits finis. Entre autres façons d'améliorer les propriétés globales des panneaux WPC, on peut citer la taille des fibres ajoutées, une qualité de mélange optimale, des additifs tels que des agents de couplage, des pigments et des antimicrobiens lors de la production [3]. La plupart des propriétés physiques et mécaniques du WPC dépendent principalement de la cohésion entre le bois et le polymère. Pour améliorer cela, un agent de couplage peut être incorporé en tant qu'additif pour aider à l'adhésion entre le bois hydrophile et le plastique hydrophobe, favorisant la formation d'un composite homogène. Ce type d'additif élargit le concept courant des composites polymère-bois et permet le développement d'une nouvelle génération de produits haute performance.

I.3 Fibres naturelles végétales

Les fibres végétales sont utilisées depuis de nombreux siècles dans plusieurs domaines tels que la papeterie et le textile. Récemment, une attention croissante est portée aux fibres naturelles pour les utiliser comme renforts de matrices polymères [4, 5, 6, 7]. Ces matériaux à base de fibres végétales sont de plus en plus utilisés dans des domaines de pointe tels que l'aéronautique, l'automobile, les équipements industriels et l'électronique [8]. L'origine des fibres naturelles est le principal critère de classification : végétale, animale et minérale. (Figure I.1) [9, 10].

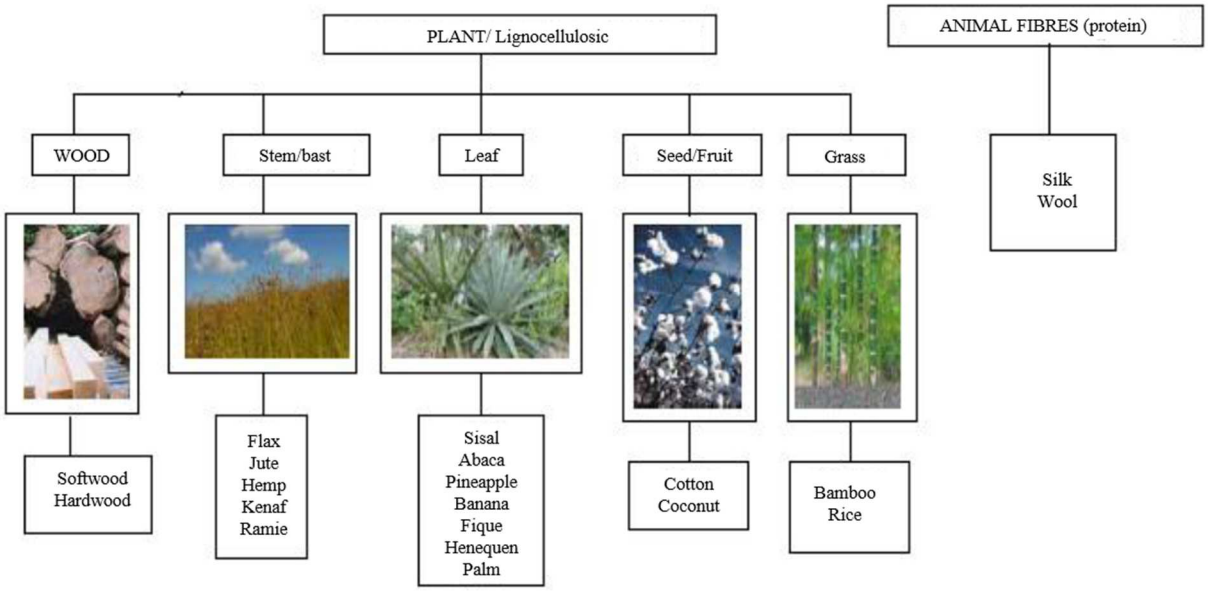


Figure I.1 : **Classification des fibres naturelles** *[11]***.**

Pour les fibres végétales, on peut trouver principalement deux types :

- les fibres ligno-cellulosiques issues du bois qui se trouvent généralement sous deux formes : résineux ou feuillus ;
- les fibres agricoles qui peuvent êtres de feuilles, de graines, de fruits ou des tiges.

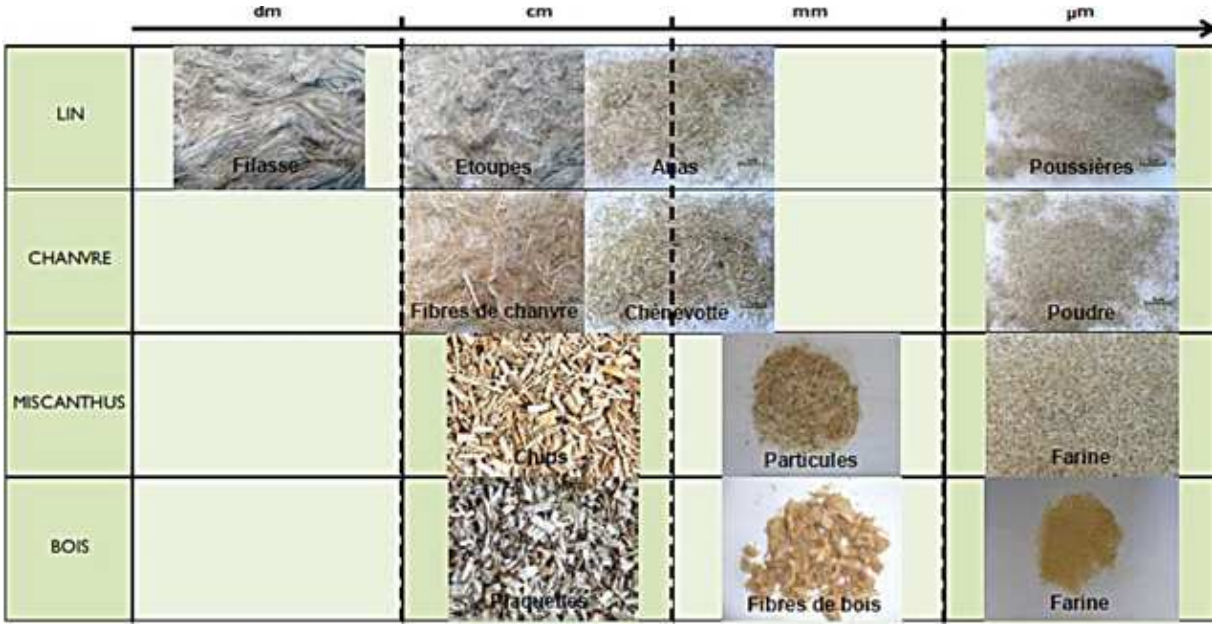


Figure I.2 : **Diversité de l'offre de fractions végétales** *[12]***.**

Les sources des fibres végétales présentent des granulométries variables : fibres longues, fibres courtes, particules et farines (Figure I.2).

I.3.1 Structure et composition des fibres naturelles

Plus particulièrement pour le bois (Figure I.3), les principaux constituants des fibres naturelles sont : la cellulose, les hémicelluloses et les lignines. Elles comprennent aussi des protéines, des extractibles et certains composés inorganiques en pourcentage limité [4].

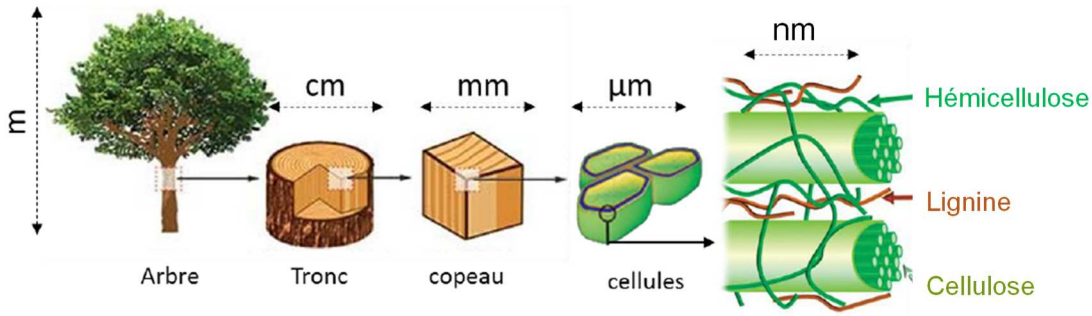


Figure I.3 : **Représentation schématique de la structure d'une fibre de bois** *[13]***.**

Chacune des fibres a la forme d'un bio-composite multicouche dans lequel la cellulose est l'élément structurant rigide enrobé par la lignine qui se comporte comme la matrice. Les micro-fibrilles sont des structures basiques avec des diamètres de 2 à 20 nm qui forment les chaines de cellulose. Liées par des zones amorphes, les micro-fibrilles forment des chaînes de cristaux de cellulose [14]. Les origines botaniques, les conditions climatiques, la maturité et le mode d'extraction influent sur la composition des fibres naturelles [15, 16] (Figure I.3). Les propriétés mécaniques des fibres sont conditionnées par différents paramètres ; on trouve principalement : la composition chimique, la structure, les défauts et les dimensions des cellules des fibres [17]. En règle générale, l'augmentation de la teneur en cellulose entraine une croissance de la résistance à la traction et du module d'Young des fibres.

Tableau I.1 : **Composition massique typique de quelques fibres naturelles** *[4, 18, 19]***.**

Fibres	Cellulose (%)	Lignine (%)	Hémicellulose (%)	Pectine (%)	Cendres (%)
Lin	71	2,5	18,6	1,3	1,5
Cotton	87,5	1	6	5,7	0,6
Jute	74,2	12,5	16	0,2	0,5
Chanvre	80	10	18,5	0,9	0,8
Ramie	72,4	0,65	14,5	1,9	0,3
Noix de coco	39	42,5	0,2	4	-
Sisal	66	10	12	1,4	2

I.3.2 Cellulose

La Figure I.3 illustre la structure de la cellulose, il s'agit d'un homopolysaccaride qui forme la substance majoritaire des fibres végétales et joue à la base un rôle structural. La cellulose est un homopolymère constitué du dimère du glucose, le cellobiose. C'est un type de glycose qui composé de deux molécules de β-glucose. Comme l'illustre la Figure I.4, le nombre de molécules de cellobiose (motif de répétition) constituant la cellulose est appelé degré de polymérisation. Le degré de polymérisation diffère beaucoup selon l'origine de la cellulose, sa valeur peut varier de quelques centaines à quelques dizaines de milliers.

Quand il s'agit de régions cristallines, les chaînes macromoléculaires sont disposées régulièrement par opposition dans les régions amorphes, disposées de manière aléatoire [21]. La cellulose du bois présente un degré de cristallinité de l'ordre de 60 à 70 %. Ainsi, Eichhorn et al. [20] donnent des valeurs de module d'Young de la cellulose microcristalline. Il y est fait état d'un module d'Young de 25±4 GPa, et est comparé à celui de 36±7 GPa pour de la cellulose microcristalline extraite du lin et 40±4GPa pour de la cellulose microcristalline extraite du chanvre. La dispersion de ces valeurs y est expliquée par le degré de cristallinité de la cellulose, dont la valeur à 5 GPa à l'état amorphe est donné et à 128 GPa à l'état cristallin.

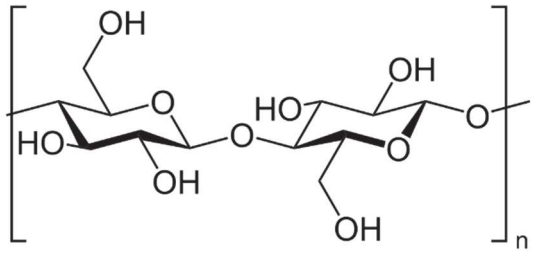


Figure I.4 : **Motif élémentaire d'une chaîne de cellulose.**

I.3.3 Hémicellulose

L'hémicellulose est une forme de polysaccharide complexe qui a un poids moléculaire assez réduit. Elle assure le maintien d'une architecture pariétale organisée, permettant de lier les fibrilles de cellulose entre elles. La cellulose native a un degré de polymérisation 100 fois plus grand que celui de l'hémicellulose. Elle a une structure hélicoïdale qui lui confère une certaine souplesse. Elle est extraite des parois des cellules végétales, et est connue pour sa solubilité dans l'eau et dans des solutions alcalines. Dans le cas des fibres de bois, la cellulose est liée à l'hémicellulose. L'hémicellulose présente une large diversité de structure, et forme une classe de polymères amorphes [22].

I.3.4 Lignine

Après la cellulose, la matière organique la plus abondante sur terre est la lignine. Ce sont trois alcools (phénylpropane) : coumaryliques, sinapyliques et coniféryliques qui forment un polymère tridimensionnel : la lignine. Sa structure est différente selon l'origine des fibres. La lignine joue un rôle d'agent de maintien pour la cellulose. Elle est en conditionne grandement la dureté, rigidité et la résistance à la compression du bois.

I.4 Traitement chimique des fibres végétales

Malgré de bonnes propriétés mécaniques, l'utilisation fibres végétales est limitée du fait de leur caractère hydrophile et de leur faible stabilité thermique. De nombreux travaux leur utilisation dans des matériaux composites [4, 6, 7]. L'adhésion entre les fibres et la matrice joue un rôle très important dans les propriétés finales de ces matériaux. En effet, si l'adhésion fibre/matrice est mauvaise, les propriétés mécaniques diminuent. Le défaut d'adhésion est souvent lié au fait que les fibres végétales sont hydrophiles et polaires alors que les polymères thermoplastiques couramment utilisés pour ces composites, sont hydrophobes et apolaires.

Afin d'améliorer l'adhésion fibre/matrice et d'augmenter leur stabilité thermique, il existe différents traitements surtout au niveau des fibres [23], notamment des traitements chimiques. Citons par exemple le greffage par du silane ou le traitement alcalin, ou encore le traitement de l'acide acétique, ou par des molécules à base de benzoyl, d'isocyanate ou de triazin [24, 25]. Ainsi, les fibres végétales sont fréquemment traitées dans le but d'améliorer leur dispersion et leur accrochage dans les matrices polymères. Il existe des traitements de type chimique ou physique. On s'intéresse ici au traitement chimique qui entraine une modification de la composition chimique (extraction des hémicelluloses, des pectines…), une augmentation de la rugosité de la surface de la fibre, de diminution de capacité de rétention de l'humidité, de modification de ses propriétés mécaniques et d'amélioration de sa stabilité thermique.

L'affinité chimique entre les fibres et la matrice augmente avec la modification chimique des fibres végétales. En réalité, elle consiste à modifier la cellulose. En effet, la zone cristalline est beaucoup moins accessible à l'attaque des réactifs que la zone amorphe [26]. On peut citer quelques exemples de traitements chimiques tels que le traitement à la soude (NaOH), le traitement au permanganate ou au silane, l'acétylation et les prétraitements avec différents agents de couplage. Pour illustration des valeurs de propriétés mécaniques sont présentées dans le Tableau I.2 en fonction de la modification chimique de la fibre de palmier. Le traitement chimique a une grande influence sur les propriétés mécaniques des fibres, il provoque une diminution de ces propriétés en traction, du fait de la délignification et de la dégradation des chaînes cellulosiques lors du traitement. Cependant, les traitements à l'acrylique ou au silane favorisent la formation d'une liaison covalente forte, donc augmentent la résistance à la traction et la rigidité des fibres. Par ailleurs une augmentation de l'allongement à la rupture des fibres aura lieu généralement.

Tableau I.2 : **Propriétés mécaniques de la fibre de palmier après divers traitements** *[27]***.**

Traitement	R_m (MPa)	E (GPa)	A (%)
Aucun	248	6,7	14
Alcalin	224	5	16
Acétate	143	2	28
Peroxyde	133	1	24
Permanganate	207	4	23
Silane	273	5,2	14
Acrylique	275	11,1	26
Acrylonitrile	95	1,7	24

R_m : Résistance à la traction ; E : Module d'Young ; A : Allongement à la rupture.

Les propriétés mécaniques des fibres non traitées semblent plus intéressantes, mais lors de l'incorporation dans une matrice pour former un bio-composite, on obtient un produit final beaucoup moins performant mécaniquement [27]. Pour cette raison, il vaut mieux traiter les fibres végétales. Le produit final obtenu présente des propriétés mécaniques plus importantes [28].

I.4.1 Traitement au silane

Les silanes sont des composés chimiques de nature hydrophile avec différents groupements associés au silicium tel qu'un chloro et un amino-silane ; c'est un des meilleurs agents de couplage utilisés dans les composites polymère/fibres de bois. L'effet positif des silanes sur la fibre cellulosique est liée à l'hydrolyse de ces derniers [29, 30]. Les groupes hydroxyles des silanols réagissent alors avec ceux de la fibre cellulosique pour former des liaisons éther (Figure I.5 (a)). Dans le cas d'un traitement en « *dry blend* » (donc sans hydrolyse), on obtient les deux mécanismes : liaison covalente par éthérification ((Figure I.5 (a)) et liaison hydrogène entre amine protoné et alcoolate de la fibre (Figure I.5 (b)) [31, 32]. Ce sont des composés chimiques qui présentent une extrémité interagissant avec la fibre hydrophile et l'autre avec la matrice, formant un pont entre eux. Dans le cas d'un traitement n'étant pas en « *dry blend* » (donc avec hydrolyse du silane), seul le premier mécanisme se produit.

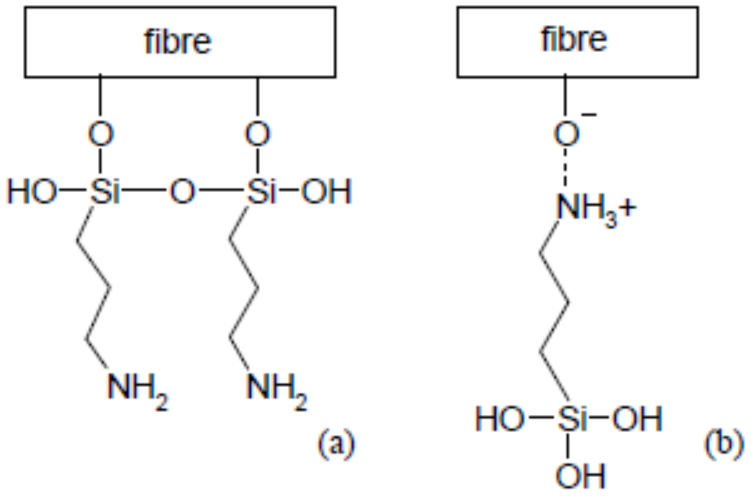


Figure I.5 : **Représentation des liaisons se formant entre l'amino-silane A-1100 et les groupements hydroxyles de la fibre : liaison covalente (a) et liaison hydrogène (b)** *[32]***.**

Ainsi, bien que cela dépende des conditions de traitement (pH, température, nature du silane…), le silane conduit généralement à une résistance en traction plus élevée que le traitement alcalin. Il permet également d'améliorer l'interaction et la compatibilité entre la fibre et la matrice selon la référence [33], et favorise la résistance au cisaillement à l'interface de la fibre.

I.4.2 Traitement alcalin à la soude

Le traitement à la soude est l'un des traitements chimiques les plus couramment employés avec les fibres naturelles utilisées pour renforcer les polymères [34, 35]. Ce traitement, appelé mercerisation, provoque la diminution des liaisons hydrogène entre la cellulose et les deux autres constituants (hémicellulose et lignine).

Le schéma de la réaction de l'hydroxyde de sodium avec la cellulose est le suivant :

$$Cellulose - OH + NaOH \longrightarrow (Cellulose\text{-}O^{-})\, Na^{+} + H_2O \; + \; résidus \qquad (I.1)$$

La composition chimique de la fibre, à savoir la teneur en hémicellulose, la lignine, la pectine ou encore les huiles a été modifiée grâce à ce traitement [36], entrainant des modifications dimensionnelles, morphologiques et mécaniques des fibres [37, 38, 39]. L'apparition des micro-

fibrilles à la surface constitue une rugosité qui facilite l'accrochage physique et produit une meilleure imprégnation de la matrice.

Les propriétés thermiques des fibres végétales sont aussi influencées par le traitement d'alcalinisation [40, 35]. Narendar et Dasan [40] ont étudié le traitement chimique des fibres de noix de coco ; les résultats ont prouvé que le traitement à la soude fait à une concentration de 5% pendant 4 heures améliore la stabilité thermique de la fibre.

I.4.3 Traitement par acétylation

L'acétylation consiste à modifier la surface des fibres végétales pour la rendre moins hydrophile [41, 42]. Le principe de ce traitement est de faire réagir les groupements acétyls (CH3CO-) avec les groupes hydroxyles (-OH) de la fibre. Cette substitution rend ainsi sa surface hydrophobe. Les groupes hydroxyles engagées dans la réaction sont ceux de la cellulose amorphe et ceux des constituants secondaires de la fibre (hémicelluloses et lignine). Grâce à des liaisons intermoléculaires fortes, les groupes hydroxyles des zones cristallines de la fibre sont étroitement compactés et sont inaccessibles aux réactifs chimiques. La réaction d'acétylation du groupe (–OH) est représentée ci-dessous d'après [35, 43] :

$$Cellulose - OH + CH_3 - \underset{\underset{O}{||}}{C} - O - \underset{\underset{O}{||}}{C} - CH_3 \longrightarrow (Cellulose\text{-}O^-)Na^+ + H_2O + résidus \quad \text{(I.2)}$$

Comme l'acide acétique ne réagit pas suffisamment avec la cellulose, il est préférable de le remplacer par l'anhydride acétique. Afin d'accélérer la réaction, la cellulose est trempée dans l'acide acétique puis traitée avec l'anhydride acétique pendant 1 à 3 h. Le traitement d'acétylation permet d'améliorer la résistance au cisaillement interfacial, la stabilité thermique et la résistance à la traction des fibres végétales. Cela a aussi pour effet de réduire l'hygroscopie des fibres végétales [43].

I.5 Généralités sur la farine de bois d'olivier

L'olivier est un arbre fruitier (Figure I.6), très rameux, au tronc noueux, au bois dur et dense, à l'écorce brune crevassée. Il peut atteindre quinze à vingt mètres de hauteur, et vivre plusieurs siècles. On estime que 97 % du nombre d'oliviers dans le monde sont dans le bassin circumméditerranéen. La Tunisie est parmi les premiers producteurs d'olivier dans le monde avec plus de 65 millions d'arbre d'olivier cultivé sur 1,7 million d'hectare [44].

Figure I.6 : **Plantation d'arbres d'olivier.**

La composition chimique (% massique) approximative de fibre de bois d'olivier est la suivante : la cellulose (40 à 50%), l'hémicellulose (20% environ), la lignine (15 à 35%), les cendres (2 à 5%) et d'une proportion d'extractibles généralement faible (gommes, résines, protéines, etc.). L'olivier montre une utilité économique et écologique du fait qu'il n'a pas besoin d'insecticides ou de pesticides nuisibles à l'environnement et il consomme très peu d'eau. De plus, l'olivier joue un rôle important dans la lutte contre la désertification et l'érosion.

Le bois d'olivier présente aujourd'hui plusieurs utilisations possibles :

- alimentation animale : en substitution à du foin ou de la paille ;
- compost ;
- combustible : à usage industriel ou domestique, après broyage et transformation en pellets, séchage et compression ;
- matière première : pour l'industrie du papier, la fabrication des meubles ou d'ouvrages d'art.

Ces utilisations génèrent de grandes quantités de déchet d'où l'intérêt de valoriser écologiquement ce produit comme renfort dans des matrices polymères afin d'obtenir des matériaux composites.

I.6 Bio-composites

Les bio-composites constituent un groupe particulier des matériaux [45, 46]. Ils sont élaborés par incorporation de renforts dans des polymères dont au moins l'un des composants est biodégradable [47].

I.6.1 Mise en œuvre des bio-composites bois/polymère

De même que pour les matériaux composites conventionnels, il existe plusieurs procédés de fabrication de composites renforcés par des fibres naturelles [48]. Parmi les modes de fabrication de bio-composites thermoplastiques/bois (WPC) figurent l'extrusion-injection ou l'extrusion-compression avec conformage en sortie de filière. Ces procédés sont souvent suivis d'un moulage qui détermine la forme finale du matériau composite. Le moulage peut être effectué de plusieurs manières : sous pression, par compression, sous vide.

Dans le domaine de la plasturgie, l'injection et l'extrusion sont les principaux procédés utilisés jusqu'à présent pour la fabrication des composites bois-polymère. Ces procédés consistent à réaliser un mélange des matières premières à une température excédant celle de fusion du plastique, mais restant assez basse pour éviter la dégradation des fibres. L'extrusion peut être réalisée par une extrudeuse mono ou bi-vis, ou encore un mélangeur interne afin de transformer la matière à l'état granulaire ou en poudre en un profilé ; le produit subit par la suite le moulage par injection [7, 49]. La tolérance thermique réduite des fibres végétales demande une attention particulière aux températures de mise en œuvre des polymères thermoplastiques. Ce problème

a été discuté par plusieurs auteurs : Netravali et Chabba [50] préconisent, pendant une longue période de ne pas excéder 175°C ; d'autres, dont Jana et Priet [51] et Joffe *et al.* [52] indiquent de ne pas excéder 200°C pendant 5 minutes, tandis que Taj *et al.* [53] recommandent de ne pas dépasser 230°C. Il importe donc de bien maitriser le cycle de transformation à des températures à l'approche des 200°C étant donné la tenue en température incertaine des fibres végétales.

Les techniques de l'industrie bois consistent à comprimer un matelas de fibres, de copeaux ou particules liées par un adhésif. Le matelas peut se composer comme un mélange homogène ou un stratifié. Il existe aussi d'autres procédés dans l'industrie du bois comme le drapage en autoclave, la centrifugation, la stratification en continu, l'estampage, etc.

I.6.2 Performances des bio-composites

D'une manière générale, le procédé de fabrication joue un rôle primordial sur les performances des matériaux bio-composites : méthode d'élaboration, nature des fibres utilisées, facteur de forme des fibres, orientation des fibres dans la matrice [54, 55]. Dans la suite, les propriétés mécaniques, ultrasonores et morphologiques de bio-composites traités et non traités sont présentées et décrites en se basant sur la littérature.

I.6.3 Propriétés mécaniques

On s'intéresse ici à l'effet des différents facteurs qui ont une influence directe sur les propriétés mécaniques des bio-composites élaborés tel que : la méthode de fabrication, la teneur en fibres et le traitement des fibres. Ainsi, Le Baillif et Oksman en 2006 [56] ont travaillé avec des fibres de bois, et ont montré que l'utilisation de vitesses et/ou de températures très élevées provoque la dégradation des fibres et par suite la diminution des propriétés mécaniques du produit final. Stark *et al.* en 2004 [57], Berg en 2007 [58] ont montré que les composites polymère-bois élaborés par extrusion ont des performances inférieures à ceux fabriqués par injection, du fait que l'injection permet une meilleure orientation des fibres de bois introduites dans la matrice plastique.

Dans sa thèse, Michaud [59] montre que plus le facteur de forme augmente, plus les caractéristiques mécaniques sont bonnes. Par contre, Oksman et Clemons en 1998 [60] ont montré que la résistance mécanique augmente en utilisant de petites particules bien dispersées.

D'après Gamstedt *et al.* en 2007 [61], pour avoir un matériau plus résistant avec un taux de fluage réduit et une rigidité accrue, il est préférable d'utiliser des fibres à la place de la farine de bois.

Les travaux de Migneault en 2008 [62] montrent que les caractéristiques du PEHD (polyéthylène haute densité) chargé avec des fibres de bois augmentent avec l'augmentation de la taille des fibres (Figure I.7).

L'ajout de fibres de bois améliore en général les caractéristiques mécaniques et physiques du bio-composite. Cependant, pour des taux de charge importants en fibres, la rigidité commence à diminuer, ce qui engendre une différence de répartition des contraintes selon Bibo et Hogg en 1996 [64], et dégrade en conséquence les propriétés d'élongation et la résistance à l'impact, d'après Bledzki *et al.* en 1998 [65].

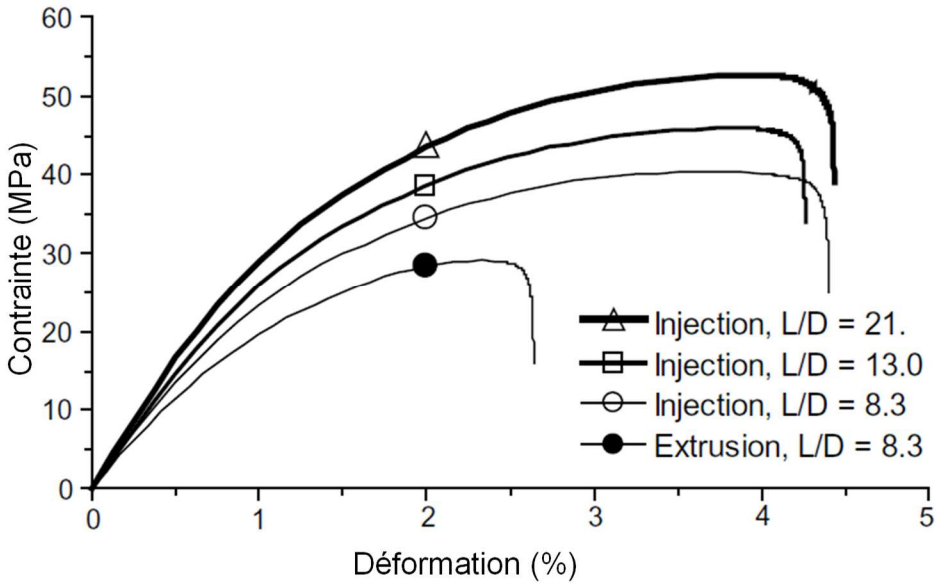


Figure I.7 : **Influence de la longueur des fibres sur le comportement du composite** *[63]***.**

Parmi les facteurs les plus significatifs sur les propriétés mécaniques des composites, on peut citer la teneur de renfort introduit dans la matrice polymère. Julson *et al.* en 2004 [63], montrent que les modules d'élasticité (*MOE*) et de rupture (*MOR*) en flexion et en traction augmentent en passant de 20% à 30% de fibres de bois (Tableau I.3).

Tableau I.3 : **Résultats d'essais mécaniques sur des composites PE / fibres de bois, d'après Julson et al.** *[63]*.

		Flexion		Traction		Résilience
Charge	Granulométrie (micron)	*MOE* (MPa)	*MOR* (MPa)	*MOE* (MPa)	*MOR* (MPa)	R_{IZOD} (kJ/m^2)
20%	420	750	29	700	21	94
	250	830	31	710	22	110
	177	740	28	710	21	120
30%	420	1040	32	850	21	46
	250	1200	34	980	23	55
	177	1020	31	900	21	65

Etant donnée la diversité des propriétés des polymères, les caractéristiques mécaniques du composite varient selon la matrice utilisée. Le Tableau I.4 ci-dessous illustre des variations des propriétés mécaniques liées à la nature de la matrice [4].

Tableau I.4 : **Propriétés mécaniques de WPC constitués fibre de bois de pin ponderosa, d'après Bledzki et al.** *[4]*.

WPC	Proportion (%)	$E_{flexion}$ (GPa)	$\sigma_{flexion}$ (MPa)	E_{Young} (GPa)	R_m (MPa)
Bois / PP	55/45	2,3	41,2	2,6	21,4
Bois / PE	55/45	2,3	28,4	2,4	16,2
Bois / PVC-souple	50/50	0,5	14,5	0,5	7,1
Bois / PVC-souple / PVC-rigide	50/25/25	2,7	40	2,6	21,9

$E_{flexion}$: Module d'élasticité en flexion ; $\sigma_{flexion}$: Contrainte en flexion ;
E_{Young} : Module de d'élasticité en traction ; R_m : Module de traction.

Par ailleurs, les taux d'humidité du bio-composite ont une influence négative sur ces propriétés mécaniques (résistance en traction, en flexion et à l'impact). Stark *et al.* en 2003 [66] ont testé des composites fabriqués à partir de PP avec 20% et 40% de farine de bois. Cette étude a montré que plus le taux des fibres est élevé, plus l'absorption d'humidité augmente, entrainant une diminution des propriétés mécaniques. Ces résultats confirment les résultats de Lin *et al.* en 2002 [67] qui ont testé l'effet de l'absorption de l'humidité sur les caractéristiques mécaniques des composites constitués de PP et de fibre de bois. Afin de limiter les effets de l'humidité et faciliter l'adhésion matrice-fibre, les fibres peuvent être traitées, permettant de stabiliser les fibres et les composites résultants. Ainsi, d'après Garcia *et al.* en 2005 [68], les fibres de bois traitées avec le MAPP (polypropylène PP greffé avec l'anhydre maléique AM) peuvent changer les caractéristiques du panneau bio-composite. Pour toutes les teneurs en MAPP les études montrent que les panneaux produits par des fibres non traitées absorbent plus d'humidité que ceux constitués de fibres traitées.

I.6.4 Propriétés thermiques

Une étude sur la décomposition thermique des WPC à base de polypropylène PP et de farine de balle de riz (*rice husk flour*, notée RHF par la suite) a été réalisée par Analyse Thermo-Gravimétrique (ATG) [47]. Les courbes ATG (Figure I.8) montrent que la décomposition du PP commence à environ 400°C, température supérieure à celle des fibres. Le PP pur possède un processus de décomposition en une seule étape de 400 à 500°C, tandis que les WPC montrent clairement un processus en deux étapes. La première étape correspond à la décomposition de la fibre, et la deuxième étape correspond à celle de la matrice PP. Les composites présentent une stabilité thermique intermédiaire entre celle des fibres et celle de la matrice. L'ajout de fibres diminue donc la stabilité thermique du PP. D'autre part, les petites fibres semblent diminuer légèrement la stabilité thermique par rapport aux autres fibres plus grandes. En effet, la quantité d'interface avec les fibres étant plus importante pour les petites fibres, lorsque celles-ci commencent à se décomposer, la surface de PP pouvant commencer à se dégrader est alors plus élevée et la décomposition est accélérée si bien qu'elle s'opère à une température plus faible.

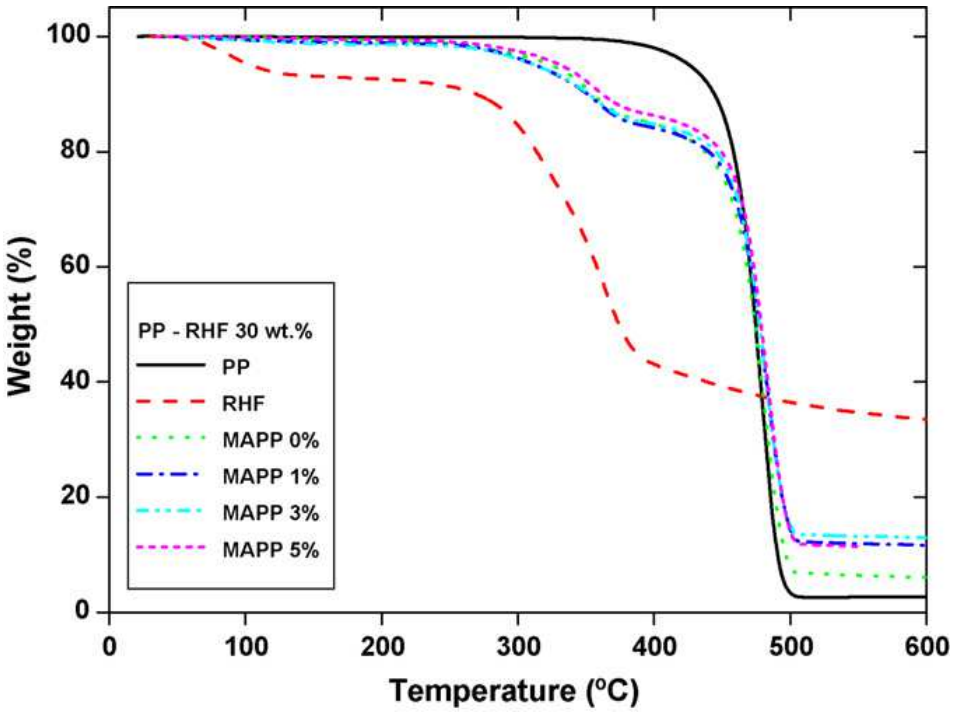


Figure I.8 : **Courbes ATG du PP , RHF et des composites PP/RHF 30% en variant le taux de l'agent de couplage « Anhydride Maléique Polypropylène » (MAPP)** *[47]***.**

I.6.5 Propriétés ultrasonores

Le fait est que les caractérisations mécaniques ne sont pas suffisantes pour donner des informations sur les propriétés des bio-composites au cours de la fabrication ou même après une période d'utilisation. Les méthodes d'évaluation et de contrôle non destructif (ECND) appliquées pour la caractérisation mécanique des matériaux [69] donnent des résultats de mesure proches de ceux des essais mécaniques destructifs. En particulier, les techniques ultrasonores, basées sur l'analyse de la propagation des ondes élastiques à travers un échantillon, permettent une mesure directe des caractéristiques de la réponse élastique du matériau via les caractéristiques de la propagation des ondes. La mesure de la vitesse ultrasonore longitudinale ou transversale permet de déterminer les modules élastiques nécessaires à la description du comportement mécanique [70]. Le principe de cette méthode consiste à mesurer le temps de vol, nécessaire pour le parcours d'une onde entre les deux faces d'un échantillon. Merotte *et al.* [71] ont contrôlé la porosité d'un bio-composite à base de PP par des méthodes mécanique et acoustique. Castellano *et al.* [72] ont utilisé la méthode de contrôle par immersion des ondes ultrasonores pour faire une caractérisation mécanique d'un matériau composite.

Plusieurs auteurs ont étudié l'effet du taux de charge en fibres naturelles sur la vitesse ultrasonore dans des matériaux bio-composite à base d'une matrice polymère. Ainsi, Bledzki *et al.* [73] ont montré que l'ajout de teneur en fibre produit une augmentation de la vitesse ultrasonore comme l'illustre la Figure I.9.

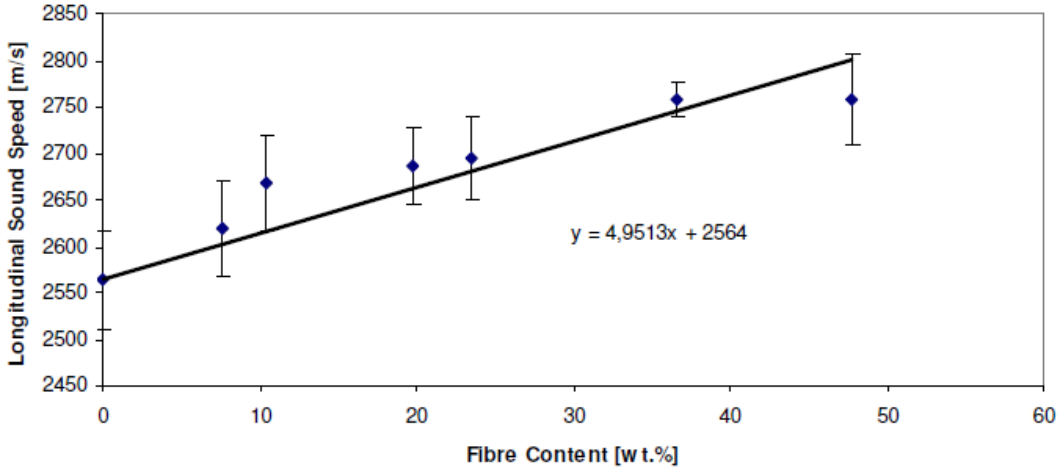


Figure I.9 : **Effet de la teneur en fibres sur la vitesse longitudinale** *[73]***.**

El-Sabbagh *et al.* [74] ont confirmé ces résultats lorsqu'ils ont travaillé avec les fibres de lin dans une matrice thermoplastique. Ils ont conclu que la vitesse ultrasonore augmente quasi-linéairement avec la teneur en fibre, avec pour pente la différence des vitesses :

$$c_{L,WPC} = c_{L,Polymer} + (c_{L,Wood} - c_{L,Polymer})v_{f,Wood} \quad \text{(I.3)}$$

Ils ont mis en évidence une relation entre les propriétés ultrasonores et le taux d'humidité dans les bio-composites (Figure I.10). Ainsi, le taux d'humidité entraine une augmentation de la vitesse ultrasonore. Ainsi, à 50% de fibres, l'augmentation de la vitesse est de 4,0%, 9,5% et 12,5% pour une humidité relative de 10%, 50% et 100%, respectivement.

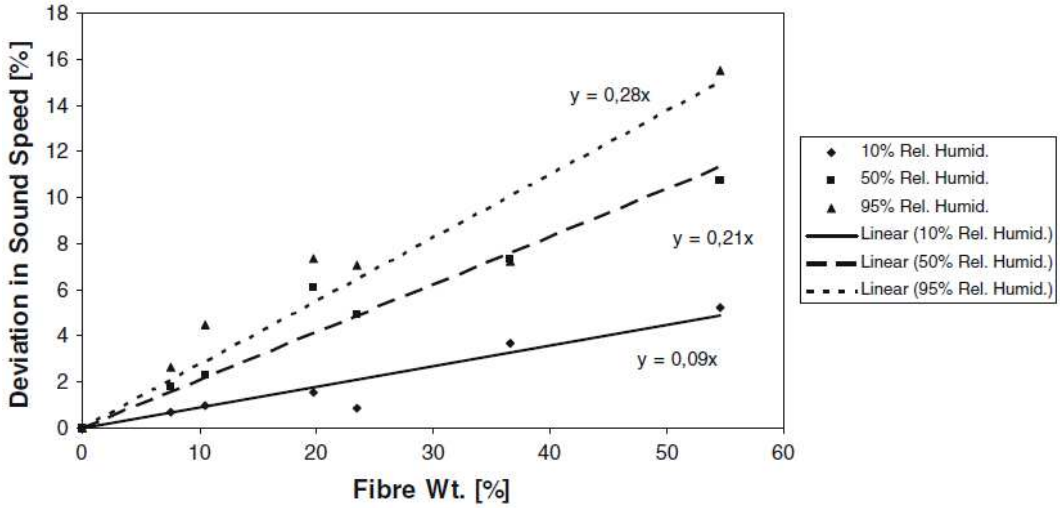


Figure I.10 : **Effet de l'humidité relative sur la vitesse longitudinale** *[74]***.**

Par ailleurs, El-Sabbagh *et al.* [74] ont aussi étudié l'effet de la contrainte appliquée sur la vitesse ultrasonore (Figure I.11). Ainsi, le niveau de contrainte entraine une diminution de la vitesse ultrasonore du matériau bio-composite. Ainsi, les ajustements linéaires montrent des sensibilités semblables à la fraction pondérale des fibres et un décalage de 0%, 1% et 1,5% pour les contraintes appliquées de 0 MPa, 10 MPa et 20 MPa, respectivement.

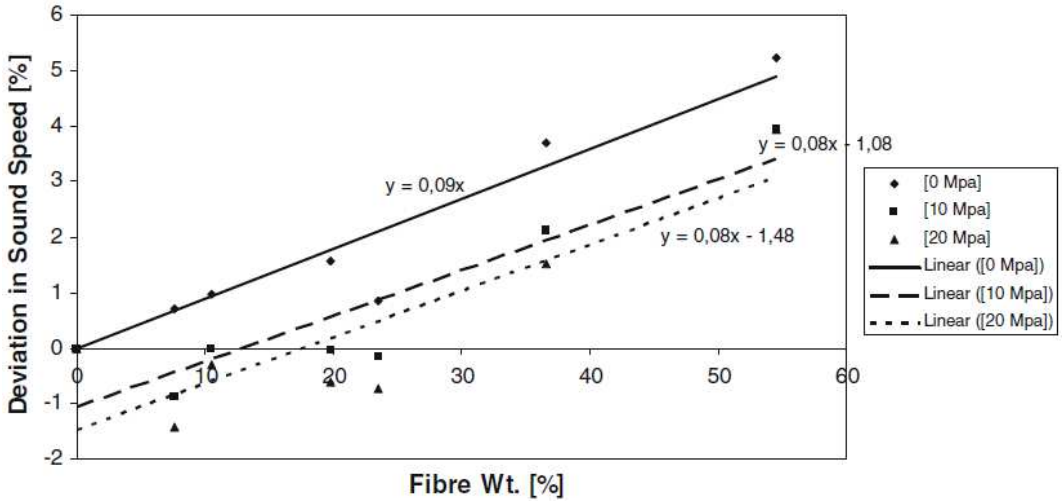


Figure I.11 : **Effet de la contrainte appliquée sur la vitesse longitudinale** *[74]***.**

I.6.6 Propriétés morphologiques

Des essais ont été menés sur un mélange de farine de noix d'olivier (Olive Nut Flour, ONF) et de la résine polyester par Asma Gharbi *et al.* [44]. En effectuant des observations par microscope électronique à balayage (MEB), l'effet du traitement avec le silane est observé (Figure I.12) sur des échantillons de bio-composite (Polyester/ONF).

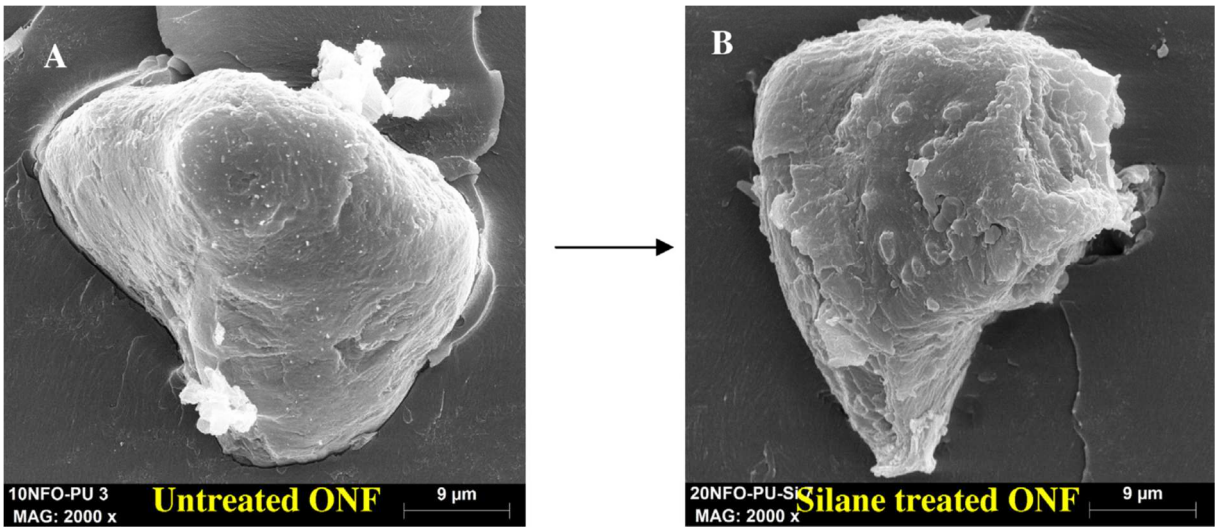


Figure I.12 : **Observation MEB de la surface fracturée en flexion pour le composé ONF (a) en cas d'absence, et (b) en présence d'agent de couplage** *[44]***.**

Dans le cas de l'ONF non traité, les particules de charge montrent des espaces creux entre les fibres et la matrice. L'écart entre la matrice et les fibres a été réduit lorsque l'ONF a été traité avec l'agent de couplage (silane). En conséquence, une meilleure adhérence inter-faciale entre les deux phases.

I.7 Conclusion

Ce chapitre a permis de faire un état de l'art sur les composites polymère-bois (WPC) ainsi que leurs constituants, en citant les problèmes rencontrés en cours de fabrication, tels, que l'adhésion entre fibre et matrice, la mauvaise dispersion et l'hétérogénéité. Afin d'y remédier, les différents types de modification chimique des fibres, ont été détaillés. Une partie de ce chapitre a été consacrée à détailler les différents types de polymères utilisés pour la fabrication des bio-composites (thermoplastiques, thermodurcissables, et bio-polymères). Cette revue de littérature a montré la complexité de ces nouveaux matériaux ainsi que leur diversité tant au niveau de la composition que la fabrication. La dernière partie de ce chapitre a été dédiée aux différents propriétés des bio-composites telles que : les propriétés mécaniques, thermique, ultrasonore et morphologique. Il a été montré que les propriétés mécaniques augmentent avec le taux de fibres dans le composite. Il existe un grand nombre d'études qui ont exploré une grande variété de procédés et de produits afin d'élaborer un matériau composite renforcé par des fibres végétales. Dans le chapitre suivant, des composites à matrice polypropylène et à renfort de farine de bois d'olivier (PP/FBO) seront étudiés plus en détail.

Bibliographie

[1] A. A. Klyosov, "Wood-plastic composites", John Wiley & Sons, 2007.

[2] I. Kellersztein, U. Shani, I. Zilber and A. Dotan, "Sustainable composites from agricultural waste: The use of steam explosion and surface modification to potentialize the use of wheat straw fibers for wood plastic composite industry", *Polymer Composites,* vol. 40, n° S1, pp. E53-E61, 2019.

[3] D. M. Panaitescu, "L'effet de l'interface dans les composites de fibres naturelles et de matières plastiques", *Revue Roumaine de Chimie,* vol. 52, n° 4, pp. 409-414, 2007.

[4] A. K. Bledzki, J. Gassan and S. Theis, "Wood-filled thermoplastic composites", *Mechanics of Composite Materials,* vol. 34, n° 6, pp. 563-568, 1998.

[5] S. J. Eichhorn and R. J. Young, "Composite micromechanics of hemp fibres and epoxy resin microdroplets", *Composites Science and Technology,* vol. 64, n° 5, pp. 767-772, 2004.

[6] O. Faruk, A. K. Bledzki, H.-P. Fink and M. Sain, "Bio-composites reinforced with natural fibers: 2000–2010", *Progress in Polymer Science,* vol. 37, n° 11, pp. 1552-1596, 2012.

[7] K. Oksman, "Mechanical properties of natural fibre mat reinforced thermoplastic", *Applied Composite Materials,* vol. 7, n° 5-6, pp. 403-414, 2000.

[8] M. Zimniewska, M. Wladyka-Przybylak and J. Mankowski, "Cellulosic bast fibers, their structure and properties suitable for composite applications", in *Cellulose Fibers: Bio- and Nano-Polymer Composites*, pp. 97-119, Springer, 2011.

[9] M. Abdelmouleh, S. Boufi, M. N. Belgacem and A. Dufresne, "Short natural-fibre reinforced polyethylene and natural rubber composites: effect of silane coupling agents and fibres loading", *Composites science and technology,* vol. 67, n° 7-8, pp. 1627-1639, 2007.

[10] T. T. L. Doan, "Investigation on jute fibres and their composites based on polypropylene and epoxy matrices", *Master of Science Dissertation*, Dresden Technical University, 2005.

[11] D. Chandramohan and K. Marimuthu, "A review on natural fibers", *International Journal of Research and Reviews in Applied Sciences,* vol. 8, n° 2, pp. 194-206, 2011.

[12] C. Meirhaeghe and H. Bewa, "Evaluation de la disponibilité et de l'accessibilité de fibres végétales à usages matériaux en France", *Étude Fibres Recherche Développement*, ADEME, 2011.

[13] T. Fournier, "Les mélanges polyamides et lignine, une alternative renouvelable pour la réalisation de nouvelles fibres organiques et de précurseurs pour fibres de carbone", *Thèse de Doctorat*, Université de Bordeaux, 2017.

[14] G. Siqueira, J. Bras and A. Dufresne, "Luffa cylindrica as a lignocellulosic source of fiber, microfibrillated cellulose and cellulose nanocrystals", *BioResources,* vol. 5, n° 2, pp. 727-740, 2010.

[15] M. D. H. Beg and K. L. Pickering, "Reprocessing of wood fibre reinforced polypropylene composites. Part I: Effects on physical and mechanical properties", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 39, n° 7, pp. 1091-1100, 2008.

[16] T. Lampke, S. Mishra and A. Bismarck, "Plant fibers as reinforcement for green composites", in *Natural Fibers, Biopolymers, and Bio-composites*, pp. 52-128, CRC Press, 2005.

[17] M. K. Kompella and J. Lambros, "Micromechanical characterization of cellulose fibers", *Polymer Testing,* vol. 21, n° 5, pp. 523-530, 2002.

[18] M. J. John and R. D. Anandjiwala, "Recent developments in chemical modification and characterization of natural fiber-reinforced composites", *Polymer composites,* vol. 29, n° 2, pp. 187-207, 2008.

[19] L. Mwaikambo, "Review of the history, properties and application of plant fibres", *African Journal of Science and Technology,* vol. 7, n° 2, p. 121, 2006.

[20] Eichhorn, S., Young, R. "The Young's modulus of a microcrystalline cellulose", *Cellulose*, vol. 8, pp. 197-207, 2001.

[21] G. B. Mitra and P. S. Mukherjee, "X-ray diffraction study of fibrous polymers. I. Degree of paracrystallinity - A new parameter for characterizing fibrous polymers", *Polymer,* vol. 21, n° 12, pp. 1403-1409, 1980.

[22] J. Aburto, S. Thiebaud, I. Alric, E. Borredon, D. Bikiaris, J. Prinos and C. Panayiotou, "Properties of octanoated starch and its blends with polyethylene", *Carbohydrate Polymers,* vol. 34, n° 1, pp. 101-112, 1997.

[23] M. R. Vignon, D. Dupeyre and C. Garcia-Jaldon, "Morphological characterization of steam-exploded hemp fibers and their utilization in polypropylene-based composites", *Bioresource Technology,* vol. 58, n° 2, pp. 203-215, 1996.

[24] 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, n° 2, pp. 344-349, 2010.

[25] N. E. Zafeiropoulos and C. A. Baillie, "A study of the effect of surface treatments on the tensile strength of flax fibres: Part II. Application of Weibull statistics", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 38, n° 2, pp. 629-638, 2007.

[26] K. Borchani, "Développement d'un composite à base d'un polymère biodégradable et de fibres extraites de la plante d'alfa", *Thèse de Doctorat*, Université de Sfax, Tunisie, 2016.

[27] S. Kalia, B. S. Kaith and I. Kaur, "Pretreatments of natural fibers and their application as reinforcing material in polymer composites - A review", *Polymer Engineering & Science,* vol. 49, n° 7, pp. 1253-1272, 2009.

[28] A. K. Mohanty, M. a. Misra and G. Hinrichsen, "Biofibres, biodegradable polymers and bio-composites: An overview", *Macromolecular materials and Engineering,* vol. 276, n° 1, pp. 1-24, 2000.

[29] M. C. Matias, M. U. De La Orden, C. G. Sánchez and J. M. Urreaga, "Comparative spectroscopic study of the modification of cellulosic materials with different coupling agents", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 75, n° 2, pp. 256-266, 2000.

[30] B. V. Kokta, D. Maldas, C. Daneault and P. Beland, "Composites of poly (vinyl chloride) and wood fibers. Part II: Effect of chemical treatment", *Polymer Composites,* vol. 11, n° 2, pp. 84-89, 1990.

[31] L. M. Matuana, J. J. Balatinecz and C. B. Park, "Effect of surface properties on the adhesion between PVC and wood veneer laminates", *Polymer Engineering & Science,* vol. 38, n° 5, pp. 765-773, 1998.

[32] L. M. Matuana, J. J. Balatinecz, C. B. Park and R. N. S. Sodhi, "X-ray photoelectron spectroscopy study of silane-treated newsprint-fibers", *Wood Science and Technology,* vol. 33, n° 4, pp. 259-270, 1999.

[33] A. Valadez-Gonzalez, J. M. Cervantes-Uc, R. Olayo and P.J. Herrera-Franco, "Chemical modification of henequén fibers with an organosilane coupling agent", *Composites Part B: Engineering,* vol. 30, n° 3, pp. 321-331, 1999.

[34] L. Y. Mwaikambo and M. P. Ansell, "The effect of chemical treatment on the properties of hemp, sisal, jute and kapok for composite reinforcement", *Die angewandte makromolekulare Chemie,* vol. 272, n° 1, pp. 108-116, 1999.

[35] M. S. Sreekala, M. G. Kumaran and S. Thomas, "Oil palm fibers: Morphology, chemical composition, surface modification, and mechanical properties", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 66, n° 5, pp. 821-835, 1997.

[36] M. Le Troedec, D. Sedan, C. Peyratout, J. P. Bonnet, A. Smith, R. Guinebretiere, V. Gloaguen and P. Krausz, "Influence of various chemical treatments on the composition and structure of hemp fibres", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 39, n° 3, pp. 514-522, 2008.

[37] F. Z. Arrakhiz, M. El Achaby, A. C. Kakou, S. Vaudreuil, K. Benmoussa, R. Bouhfid, O. Fassi-Fehri and A. Qaiss, "Mechanical properties of high density polyethylene reinforced with chemically modified coir fibers: impact of chemical treatments", *Materials & Design,* vol. 37, pp. 379-383, 2012.

[38] V. A. Alvarez and A. Vázquez, "Influence of fiber chemical modification procedure on the mechanical properties and water absorption of MaterBi-Y/sisal fiber composites", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 37, n° 10, pp. 1672-1680, 2006.

[39] C. Qin, N. Soykeabkaew, N. Xiuyuan and T. Peijs, "The effect of fibre volume fraction and mercerization on the properties of all-cellulose composites", *Carbohydrate Polymers,* vol. 71, n° 3, pp. 458-467, 2008.

[40] R. Narendar, K. P. Dasan and M. Nair, "Development of coir pith/nylon fabric/epoxy hybrid composites: Mechanical and ageing studies", *Materials & Design (1980-2015),* vol. 54, pp. 644-651, 2014.

[41] A. P. Haseena, G. Unnikrishnan and G. Kalaprasad, "Dielectric properties of short sisal/coir hybrid fibre reinforced natural rubber composites", *Composite Interfaces,* vol. 14, n° 7-9, pp. 763-786, 2007.

[42] C. A. S. Hill, H. P. S. A. Khalil and M. D. Hale, "A study of the potential of acetylation to improve the properties of plant fibres", *Industrial Crops and Products,* vol. 8, n° 1, pp. 53-63, 1998.

[43] C. Li, D. G. Heidt, P. Dalerba, C. F. Burant, L. Zhang, V. Adsay, M. Wicha, M. F. Clarke and D. M. Simeone, "Identification of pancreatic cancer stem cells", *Cancer research,* vol. 67, n° 3, pp. 1030-1037, 2007.

[44] A. Gharbi, R. B. Hassen and S. Boufi, "Composite materials from unsaturated polyester resin and olive nuts residue: the effect of silane treatment", *Industrial Crops and Products,* vol. 62, pp. 491-498, 2014.

[45] L. Avérous, "Biodegradable multiphase systems based on plasticized starch: a review", *Journal of Macromolecular Science, Part C: Polymer Reviews,* vol. 44, n° 3, pp. 231-274, 2004.

[46] K. Van de Velde and P. Kiekens, "Biopolymers: overview of several properties and consequences on their applications", *Polymer testing,* vol. 21, n° 4, pp. 433-442, 2002.

[47] H. L. Boudjema, "Elaboration de matériaux composites biodégradables issus de ressources renouvelables", *Thèse de Doctorat*, Université d'Oran, Algéire, 2015.

[48] C. Baley, Y. Grohens and I. Pillin, "Etat de l'art sur les matériaux composites biodégradables", *Revue des composites et des matériaux avancés,* vol. 14, n° 2, pp. 135-166, 2005.

[49] A. Keller, "Compounding and mechanical properties of biodegradable hemp fibre composites", *Composites Science and Technology,* vol. 63, n° 9, pp. 1307-1316, 2003.

[50] A. N. Netravali and S. Chabba, "Composites get greener", *Materials today,* vol. 4, n° 6, pp. 22-29, 2003.

[51] S. C. Jana and A. Prieto, "Natural fiber composites of high-temperature thermoplastic polymers: Effects of coupling agents", *Journal of applied polymer science,* vol. 86, n° 9, pp. 2168-2173, 2002.

[52] R. Joffe, J. Andersons and L. Wallström, "Strength and adhesion characteristics of elementary flax fibres with different surface treatments", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 34, n° 7, pp. 603-612, 2003.

[53] S. Taj, M. A. Munawar and S. Khan, "Natural fiber-reinforced polymer composites", *Proceedings-Pakistan Academy of Sciences,* vol. 44, n° 2, p. 129-144, 2007.

[54] A. Dufresne, D. Dupeyre and M. Paillet, "Lignocellulosic flour-reinforced poly (hydroxybutyrate-co-valerate) composites", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 87, n° 8, pp. 1302-1315, 2003.

[55] Z. N. Terzopoulou, G. Z. Papageorgiou, E. Papadopoulou, E. Athanassiadou, E. Alexopoulou and D. N. Bikiaris, "Green composites prepared from aliphatic polyesters and bast fibers", *Industrial Crops and Products,* vol. 68, pp. 60-79, 2015.

[56] M. Le Baillif and K. Oksman, "The influence of the extrusion process on bleached pulp fiber and its composites", in *Proceedings of the progress in wood and biofibreplastic composites conference, Toronto*, 2006.

[57] N. M. Stark, L. M. Matuana and C. M. Clemons, "Effect of processing method on surface and weathering characteristics of wood-flour/HDPE composites", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 93, n° 3, pp. 1021-1030, 5 8 2004.

[58] M. D. H. Beg, "The improvement of interfacial bonding, weathering and recycling of wood fibre reinforced polypropylene composites", *Ph.D Thesis*, University of Waikato, Hamilton, New Zealand, 2007.

[59] F. Michaud, "Rhéologie de panneaux composites bois/thermoplastiques sous chargement thermomécanique: aptitude au postformage", *Thèse de Doctorat*, Université Laval, Québec, 2003.

[60] K. Oksman and C. Clemons, "Mechanical properties and morphology of impact modified polypropylene-wood flour composites", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 67, n° 9, pp. 1503-1513, 1998.

[61] E. K. Gamstedt, P. Nygard and M. Lindström, "Transfer of knowledge from papermaking to manufacture of composite materials", in *Proceedings of the 3rd wood fibre polymer composites international symposium, Bordeaux*, 2007.

[62] S. Migneault, A. Koubaa, F. Erchiqui, A. Chaala, K. Englund, C. Krause and M. Wolcott, "Effect of fiber length on processing and properties of extruded wood-fiber/HDPE composites", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 110, n° 2, pp. 1085-1092, 2008.

[63] J. L. Julson, G. Subbarao, D. D. Stokke, H. H. Gieselman and K. Muthukumarappan, "Mechanical properties of biorenewable fiber/plastic composites", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 93, n° 5, pp. 2484-2493, 2004.

[64] G. A. Bibo and P. J. Hogg, "The role of reinforcement architecture on impact damage mechanisms and post-impact compression behaviour", *Journal of Materials Science,* vol. 31, n° 5, pp. 1115-1137, 1996.

[65] A. K. Bledzki, S. a. Reihmane and J. Gassan, "Thermoplastics reinforced with wood fillers: a literature review", *Polymer-Plastics Technology and Engineering,* vol. 37, n° 4, pp. 451-468, 1998.

[66] N. M. Stark and R. E. Rowlands, "Effects of wood fiber characteristics on mechanical properties of wood/polypropylene composites", *Wood and fiber science*, vol. 35, n° 2, pp. 167-174, 2003.

[67] Q. Lin, X. Zhou and G. Dai, "Effect of hydrothermal environment on moisture absorption and mechanical properties of wood flour–filled polypropylene composites", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 85, n° 14, pp. 2824-2832, 2002.

[68] R. A. Garcia, "Amélioration de la stabilité dimensionnelle des panneaux de fibre de bois MDF par traitements physico-chimiques", *Thèse de Doctorat*, Université Laval, Québec, 2005.

[69] T. Kundu, "Ultrasonic and electromagnetic NDE for structure and material characterization: engineering and biomedical applications", CRC Press, 2016.

[70] M. Scalerandi, A. S. Gliozzi, C. L. E. Bruno and P. Antonaci, "Nonequilibrium phenomena in damaged media and their effects on the elastic properties", *Journal of the Acoustical Society of America,* vol. 131, n° 6, pp. 4304-4315, 2012.

[71] J. Merotte, A. Le Duigou, A. Bourmaud, K. Behlouli and C. Baley, "Mechanical and acoustic behaviour of porosity controlled randomly dispersed flax/PP bio-composite", *Polymer Testing,* vol. 51, pp. 174-180, 2016.

[72] A. Castellano, P. Foti, A. Fraddosio, S. Marzano and M. D. Piccioni, "A new ultrasonic immersion technique for the evaluation of damage induced anisotropy in composite materials", 3rd *International Balkans Conference on Challenges of Civil Engineering (BCCCE)*, Tirana, Albania, 19-21 May 2016.

[73] A. K. Bledzki, V. E. Sperber and O. Faruk, "Natural and wood fibre reinforcement in polymers", *Rapra Review Reports*, vol. 13, n° 8, 2002.

[74] A. El-Sabbagh, L. Steuernagel and G. Ziegmann, "Ultrasonic testing of natural fibre polymer composites: effect of fibre content, humidity, stress on sound speed and comparison to glass fibre polymer composites", *Polymer bulletin,* vol. 70, n° 2, pp. 371-390, 2013.

Chapitre II

Elaboration et techniques de caractérisation des bio-composites

II.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les matériaux, les techniques et les dispositifs expérimentaux utilisés. Le processus de préparation et de traitement de la farine de bois d'olivier, ainsi que les protocoles de mise en œuvre utilisée dans la fabrication des composites polymère-bois ou WPC (Wood Polymer Composites). L'élaboration d'un matériau composite permet d'obtenir des propriétés meilleures que celles des constituants qui le composent. Ainsi, il est impératif de connaitre la composition et les propriétés des constituants, ainsi que les étapes de mise en œuvre pour comprendre les mécanismes d'interaction entre les constituants. Ce chapitre a pour objectif de s'intéresser à cette approche sur la base des caractéristiques physico-chimiques, thermiques et morphologiques du renfort, en l'occurrence de la farine de bois d'olivier (FBO), de la matrice, le polypropylène (PP), et du composite élaboré (PP/FBO). Il est important de préciser la distinction entre fibre (rapport diamètre / longueur très petit, donc facteur de forme important) et farine (quasi sphérique, donc facteur de forme proche de l'unité).

II.2 Matériaux

Les matériaux présentés ici sont ceux constituant le futur bio-composite étudié par la suite. Sur la base des travaux antérieurs, dont une partie a été présentée dons le chapitre précèdent, notre choix s'est porté en l'occurrence sur la matrice polymère « polypropylène » (PP) et le renfort « farine de bois d'olivier » (FBO).

II.2.1 Matrice

La matrice polymère choisie dans cette étude est le polypropylène de référence (PPH 9069), un homopolymère fourni par la société Total. C'est un polymère thermoplastique semi-cristallin de grande consommation. Sa formule chimique est connue par $(C_3H_6)_n$. Par la suite, la notation PP sera adoptée pour ce polypropylène. Les caractéristiques données sur la fiche technique de ce produit sont présentées dans le Tableau II.1 suivant.

Tableau II.1 : **Caractéristiques du polypropylène (PPH 9069).**

Caractéristiques	Valeurs	Unités	Méthode de test
MFI (230°C/2,16 kg)	25	g/10 min	ISO 1133
ρ (23°C)	0,905	g/cm^3	ISO 1183
T_f	165	°C	ISO 3146
E	1,6	GPa	ISO 527-2
R_m	32	MPa	ISO 527-2
A	9	%	ISO 527-2

MFI : Indice de fluidité à chaud ; ρ : Masse volumique ; T_f : Point de fusion ; E : Module d'Young ; R_m : Résistance à la traction ; A : Allongement à la rupture.

II.2.2 Renfort

Les renforts utilisées dans l'élaboration des bio-composites étudiés par la suite sont d'origine naturelle, en l'occurrence sous forme de farine de bois, issues des déchets des branches d'olivier. Ces derniers sont fournis par les industries de fabrication des produits artisanaux. L'usinage de bois d'olivier génère un volume important de déchets solides ; on distingue ainsi quatre grands types de sous-produits générés par la filière : les farines (~ 100 µm) ; les sciures (~ 1 mm) ; les copeaux (~ 1 cm) et les chutes (~ 10 cm). Le renfort utilisé dans cette étude est sous forme de farine de bois d'olivier (FBO). Ce dernier est fourni par une société tunisienne d'usinage de bois de Sfax. En effet, c'est le déchet absorbé par l'aspirateur lors de l'usinage d'une pièce en bois comme l'illustre la Figure II.1. La farine de bois d'olivier FBO a été récupérée de l'aspirateur (Figure II.1), puis, tamisée, étuvée à 80°C pendant 24 h et stockée dans des sacs pour la protéger de l'humidité.

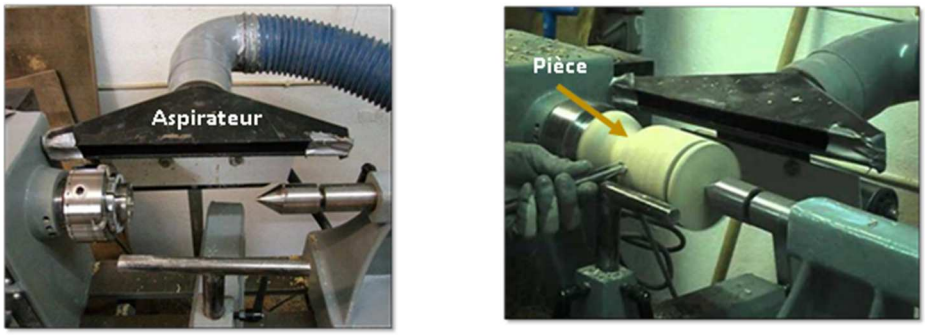


Figure II.1 : **Processus d'obtention de la farine de bois d'olivier.**

II.2.3 Traitement au silane

Dans la littérature, le traitement chimique avec le (3-aminopropyl) triéthoxysilane, dit aussi silane (Figure II.2) est souvent utilisé sur des fibres d'origine végétale [1, 2, 3].

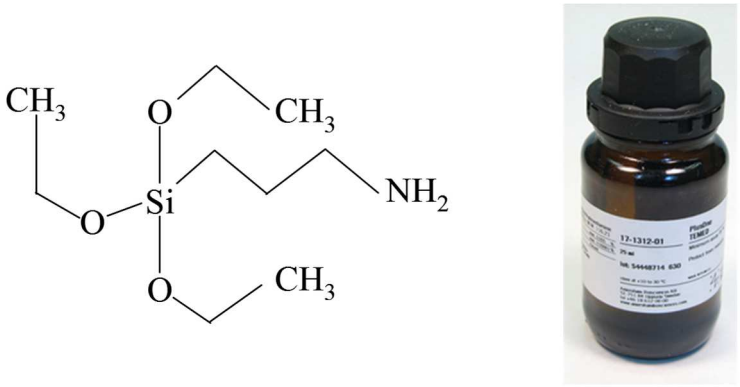


Figure II.2 : **Formule chimique du (3-aminopropyl) triéthoxysilane.**

La silanisation est un des traitements chimiques qui a pour but de faciliter l'adhésion entre les fibres naturelles et la matrice polymère. La procédure adoptée pour les traitements chimiques avec le silane est la suivante : tout d'abord la FBO a subi une gazéification afin d'éliminer les traces d'ester ; ces traces d'ester proviennent de liaisons glycosidiques, benzyl éther et benzyl ester, entre les lignines et les hémicelluloses. Ainsi, une solution éthanol/eau (60/40, v/v) a été préparée ; le pH a été ajusté entre 4 et 4,5 par l'ajout d'une goutte d'acide acétique glacial. Ensuite, le silane (3% en masse) a été ajouté. L'hydrolyse de la solution préparée a été effectuée pendant 2 h à température ambiante. Enfin, la FBO a été ajoutée et la suspension a été maintenue pendant 3 h à 70°C pour assurer l'adsorption de l'amino-silane sur les particules de la FBO. Ensuite, avant l'extrusion, la FBO est pré-séchée à 105°C pendant 24 h afin éliminer l'humidité et l'éthanol absorbés, et éviter ainsi la formation d'agglomérats. Une seule concentration de silane a été choisie et fixée. Gharbi et al. [4] ont comparé les résultats obtenus par le traitement des noyaux d'olives par différents taux de silane et ont obtenu les meilleurs résultats avec 3% de silane. C'est la raison pour laquelle nous avons retenu cette valeur. Ainsi, deux types de farines ont été élaborées puis utilisées comme charges de renforcement : celle non traitée (FBO) illustrée en Figure II.3 (a) et celle traitée à 3% avec l'amino-silane (FBOT) illustrée en Figure II.3 (b).

Figure II.3 : **(a) Farine de bois d'olivier brut (FBO) et (b) farine de bois d'olivier traitée (FBOT).**

II.3 Elaboration des matériaux bio-composites

Le processus de fabrication des matériaux bio-composites influe sur les propriétés du produit fini ; c'est donc une étape très importante. En effet, selon les performances recherchées du composite, on a déterminé les conditions et les paramètres de mise en œuvre. Le procédé d'élaboration utilisé dans ce travail est l'extrusion bi-vis associée à l'injection, fréquemment utilisé pour la mise en forme des mélanges à matrice thermoplastique.

II.3.1 Extrusion bi-vis

L'extrusion bi-vis (Figure II.4) est un procédé de formation et de mélange de matière se présentant initialement à l'état granulaire ou en poudre et les transforme en profilé ou granulé [5]. Cette méthode est couramment employée dans les industries de la plasturgie [6]. C'est une méthode qui permet d'incorporer les fibres aux thermoplastiques fondus à l'aide d'un système rotatif de deux vis d'Archimède dans un fourreau régulé en température.

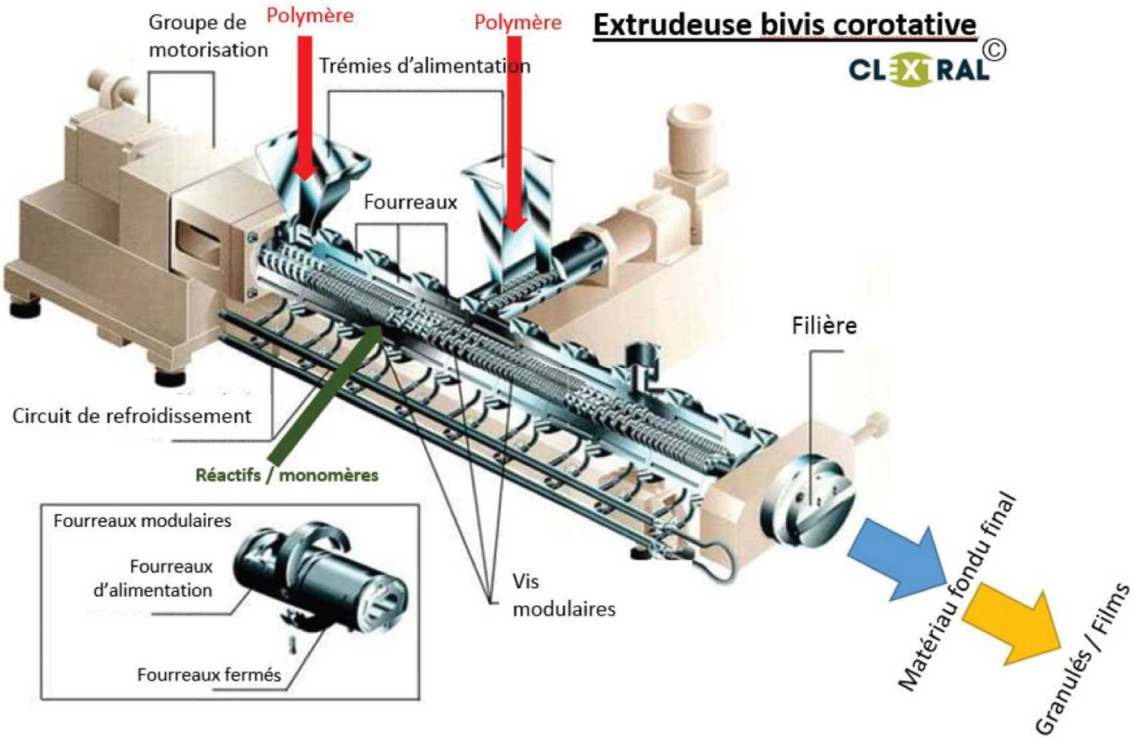


Figure II.4 : **Extrudeuse bi-vis [5].**

L'extrudeuse bi-vis est caractérisée par les vis modulables, elle permet une entrée rapide dans la zone d'alimentation des produits plus variés (en termes de granulométrie, rhéologie et teneur en eau. Elle assure une combinaison aisée avec d'autres opérations pour une production en continu.

Les extrudeuses bi-vis sont classées en fonction des caractéristiques des vis (sens de rotation et l'interpénétration (Figure II.5) [7].

L'interpénétration des vis permet un mélange efficace, un échange thermique matière-fourreau important et un temps de nettoyage réduit (chacun des vis éliminant le produit des filets de l'autre) [7].

Dans le cas d'une extrudeuse bi-vis, le sens de rotation des vis co-rotatives est illustré dans la Figure II.5. Dans ce cas, le chemin parcouru par la matière augmente et l'échauffement est plus régulier parce que la matière dans ce cas a tendance à parcourir un chemin en huit. Dans le cas d'une rotation contre-rotative, illustré dans la Figure II.5, la matière subit un malaxage très important qui facilite la gélification.

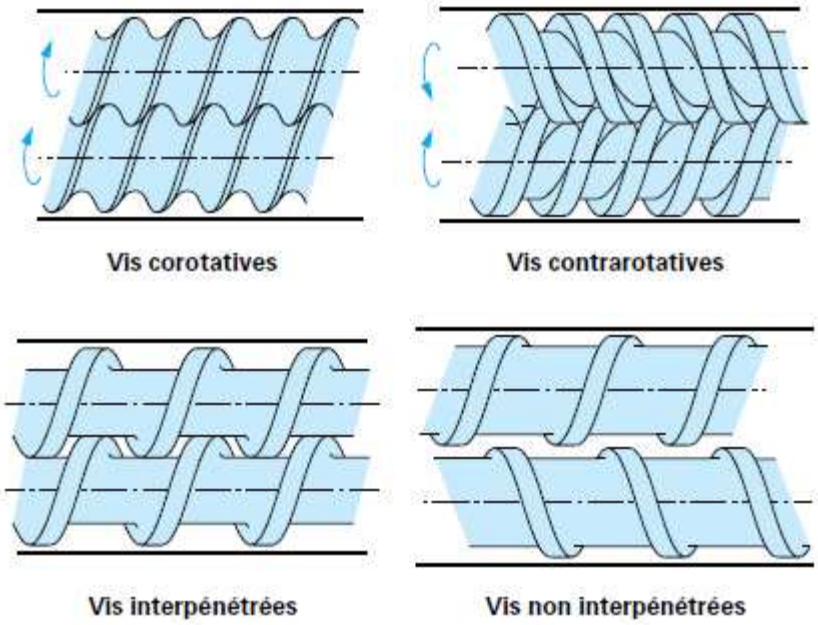


Figure II.5 : **Principale configuration des extrudeuses bi-vis [6].**

Entre autres différences caractéristiques entre les extrudeuses bi-vis (Figure II.6) on peut citer :

- le nombre de filets par vis,
- le type de vis (parallèles ou coniques),
- le profil de vis modulable ou non.

Figure II.6 : **Formes des vis dans les extrudeuses bi-vis [6, 8].**

Le choix de la configuration du profil de vis dépend du matériau que l'on souhaite élaborer [9]. Dans notre cas, il s'agit d'élaborer des mélanges à base d'un thermoplastique de PP et de fibres naturelles de FBO de granulométrie très fine, afin d'assurer une bonne distribution et une homogénéisation entre les fibres et la matrice polymère fondue. On peut augmenter le cisaillement appliqué à la matière pour favoriser les zones de malaxage, ou bien on peut jouer sur les emplacements des divers éléments constituant le profil de vis dans le but de favoriser la dispersion des fibres.

Pour notre application, l'extrudeuse bi-vis co-rotative interpénétrée est celle qui convient. En effet, elle présente les caractéristiques les plus utiles concernant les mélanges distributifs et dispersifs. Cependant, l'homogénéisation du bio-composite élaboré ne dépend pas seulement du type d'extrudeuse utilisé, mais aussi des paramètres d'écoulement du mélange dans l'extrudeuse (temps de séjour, taux de cisaillement…) qui sont déterminés par les paramètres opératoires de mise en œuvre (débit d'alimentation, vitesse de rotation de vis, température fourreau…) et par le profil de vis. En effet, la géométrie du profil de vis est complexe, à cause de la grande variété des éléments que l'on peut disposer le long de la vis.

II.3.2 Conditions d'extrusion des bio-composites

Les granulés de PP et la FBO ont été introduits dans une extrudeuse bi-vis (DSM Xplore Netherlands), équipée de deux vis modulaires co-rotatives, à filets conjugués et interpénétrés (Figure II.7). L'extrusion a été faite à l'université de Bejaia, Algérie.

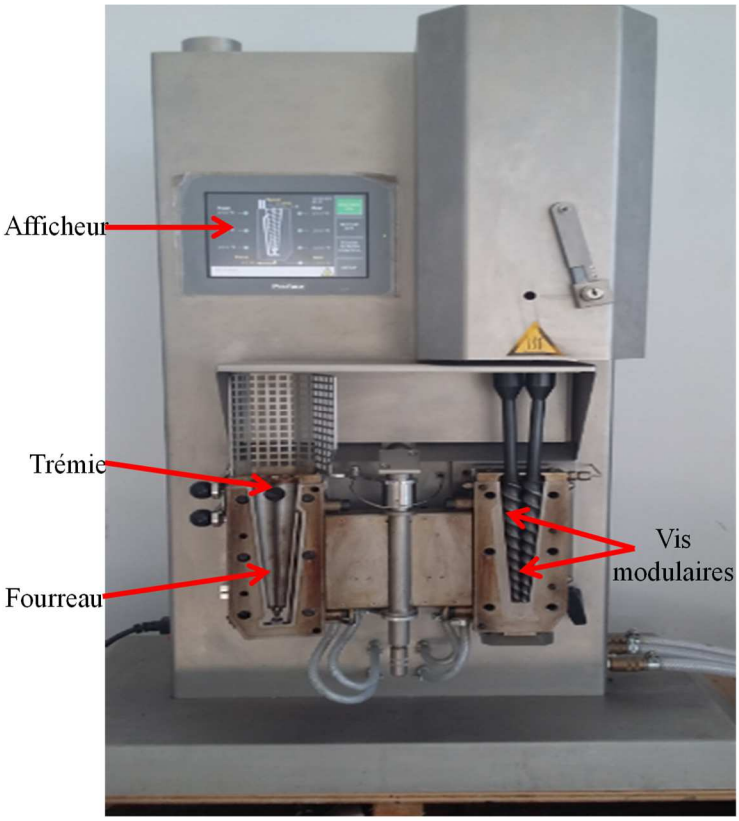


Figure II.7 : **Extrudeuse bi-vis.**

Les paramètres d'extrusion de cette machine sont les suivants : les vis sont de diamètre 10 mm et réglées à une vitesse de rotation de 100 tr/min. Avant passage dans l'extrudeuse, les fibres naturelles sont étuvées sous vide à 105°C pendant 24 heures. En entrée d'extrudeuse, la FBO est mélangée avec le PP manuellement à froid. Le mélange est extrudé à travers une matrice cylindrique de diamètre 1 mm à un débit de 200 g/h. En sortie de filière, l'extrudât sous forme de jonc est refroidi, puis découpé en granulés qui sont à leur tour séchés pendant 24 h à 60°C (Figure II.8).

Figure II.8 : **Matières premières et étapes de fabrication du composite PP/FBO.**

II.3.3 Compositions et nomenclature des formulations préparées

Dans notre étude, les matériaux bio-composites élaborés sont composés d'une matrice polymère (PP, polypropylène) renfermant l'un des deux types de farine de bois d'olivier, notamment la farine brute (F, farine de bois d'olivier) ou bien traitée avec un agent de couplage (C, 3% de silane). Ainsi, des mélanges aux différents taux de charge en fibres (10%, 20% et 30% en masse) ont été préparés. En conséquence, nous allons nous intéresser à l'étude de l'effet des deux paramètres, à savoir le taux de fibres présent et l'effet du traitement chimique avec le silane, sur les propriétés des bio-composites élaborés. Le Tableau II.2 représente la nomenclature adoptée pour les différentes formulations préparées.

Tableau II.2 : **Nomenclature des différents bio-composites préparés.**

Formulation	PP	10F/0C	20F/0C	30F/0C	7F/3C	17F/3C	27F/3C
PP	100	90	80	70	90	80	70
FBO	0	10	20	30	7	17	27
Silane	0	0	0	0	3	3	3

II.3.4 Préparation des éprouvettes injectées

Dans le but de caractériser ces matériaux composites PP/FBO élaborés aux différentes compositions comme indiqué précédemment, des éprouvettes ont été préparées en utilisant le procédé de moulage par injection (Figure II.9) [10].

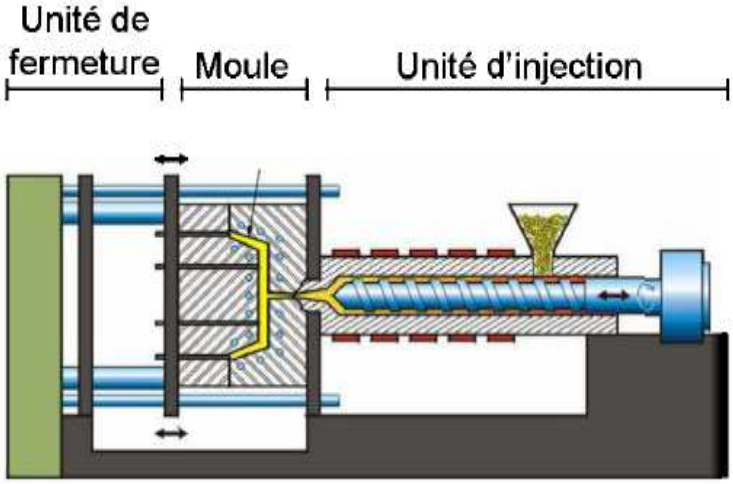


Figure II.9 : **Presse d'injection [10].**

Cette technique consiste à ramollir la matière introduite sous forme de granulés et à l'injecter sous pression à travers une buse vers l'empreinte d'un moule. La machine de moulage utilisée est une presse de marque Demag (Plastic Group Extra 50-200).

L'injection est produite à une température de 180°C et une pression de 100 bars pour réaliser les échantillons de bio-composites nécessaires aux essais, sous forme de plaques et des éprouvettes de traction pour tous les mélanges. Cette technique permet de réaliser des plaques d'épaisseur e_p = 4 mm et de dimension largeur l = 100 mm et longueur L = 120 mm pour les essais ultrasonores (Figure II.10). Dans le même temps, des éprouvettes normalisées au format normalisé ISO 1/2 ont été moulées conformément aux conditions d'essai spécifiées dans la norme ISO 527-2, pour des essais de traction conventionnels. Les détails de dimensions des éprouvettes haltères sont données dans l'Annexe 1 relative aux essais de traction.

0% 10% 20% 30%

Figure II.10 : **Plaques de dimensions L×l×e_p = 120×100×4 mm^3 de bio-composites PP/FBO avec une fraction massique croissante de FBO de 0 à 30%.**

II.4 Techniques de caractérisation

La farine de bois d'olivier et le bio-composite élaboré ont été caractérisés :

- Caractérisation morphologique
- Caractérisation granulométrique
- Analyse chimique
- Analyse structurale
- Caractérisation thermique

Cette étape de caractérisation est primordiale pour créer un nouveau matériau dont les propriétés sont connues et maitrisées.

II.4.1 Caractérisation morphologique

Dans cette étude, la caractérisation morphologique des FBO a été effectuée en utilisant un microscope électronique à balayage (MEB) et un microscope électronique à balayage couplé avec un spectromètre de rayon X à sélection d'énergie (MEB-EDX).

Les images obtenues via le MEB et les analyses associées par spectrométrie X vont permettre d'apporter des indications qualitatives et quantitatives concernant l'amélioration de la cohésion entre les particules de farine de bois (FBO) et la matrice polymère (PP).

II.4.1.1 Microscope électronique à balayage (MEB)

II.4.1.1.1 Dispositif expérimental

Les caractérisations morphologiques des fibres de FBO ont été réalisées par un mini MEB de marque JEOL JSM-5400 avec une tension d'accélération de 15 kV. L'observation est effectuée sur la farine de bois d'olivier traité notée (FBOT) et non traité notée (FBO) Les échantillons sont traités tout d'abord avec l'azote liquide afin d'éviter toute déformation plastique et altérations de la morphologie. Ils ont ensuite été métallisés à l'or pour éviter le chargement des échantillons sous le faisceau d'électrons afin de faciliter l'écoulement des charges électriques. La Figure II.11 montre le dispositif expérimental utilisé.

Figure II.11 : **Dispositif expérimental du MEB.**

II.4.1.1.2 Caractérisation morphologique par MEB

Comme la majorité des renforts à base naturel, la farine de bois d'olivier est un matériau composite renforcé par des fibrilles (plusieurs fibres élémentaires) de cellulose liées entre elles longitudinalement, de la lignine et d'autres matériaux non cellulosiques. L'ensemble est recouvert régulièrement par des cires et des impuretés [11, 12]. La Figure II.12 présente les micrographies obtenues par le MEB. Les observations ont été réalisées directement sur la surface de la farine de bois d'olivier traitée et non traitée. Les différentes images montrent les transformations des fibres suite au traitement chimique avec le silane (Figure II.12 (a'), (b') et (c')). La surface de farine de bois d'olivier brute (Figure II.12 (a), (b) et (c)) est lisse, tandis que celle de la FBOT montre des fibrilles exposées.

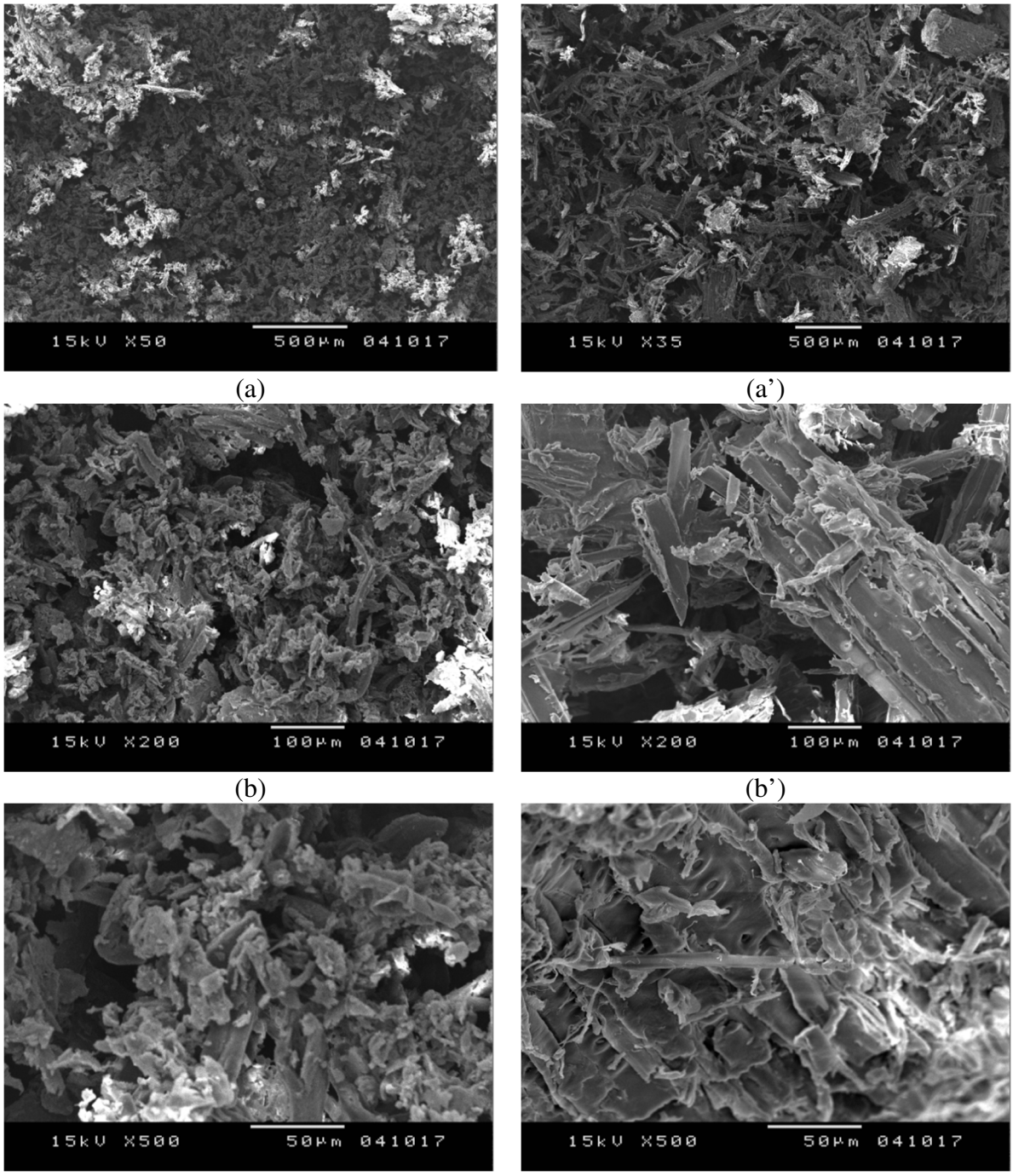


Figure II.12 : **Images MEB (a, b, c) FBO non traitée, (a', b', c') FBO traitée.**

La diminution du taux de matière non cellulosique comme la lignine, l'hémicellulose et la cire grâce au traitement effectué agit positivement sur la rugosité de la surface des fibres qui augmente visiblement selon la micrographie [13]. Cette augmentation améliore l'adhésion entre les fibres naturelles et la matrice polymère et contribue à l'effet renforçant des fibres.

II.4.1.2 Microscope électronique à balayage couplé avec un spectromètre de rayon X à sélection d'énergie (MEB-EDX)

II.4.1.2.1 Dispositif expérimental

L'analyse au microscope électronique à balayage couplé avec un spectromètre à rayons X à sélection d'énergie (MEB-EDX) (Figure II.13) en mode automatique permet de compter des particules de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres à plusieurs centaines de microns. La composition chimique peut être analysée sur des tailles de particules de l'ordre de 0,3 µm. Cette méthode admet d'obtenir une statistique sur une importante population de particules (typiquement 500 à 10000 particules).

Elle donne une idée sur la composition chimique globale d'un échantillon, par l'obtention d'un spectre et de cartographies des composants de l'échantillon. Le spectre EDX représente des pics d'énergie caractéristiques des éléments chimiques présents [14].

Pour déterminer l'efficacité du traitement avec l'amino-silane, la texture et la composition chimique des microfibres est analysée au MEB-EDX et ceci via l'évaluation de la quantité de silicium dans la farine de bois d'olivier traité.

Figure II.13 : **Dispositif expérimental de MEB-EDX.**

II.4.1.2.2 Caractérisation morphologique par MEB-EDX

Les observations réalisées au MEB-EDX ont été faites sur des FBO et des FBOT. Les micrographies obtenues sont présentées sur la Figure II.14.

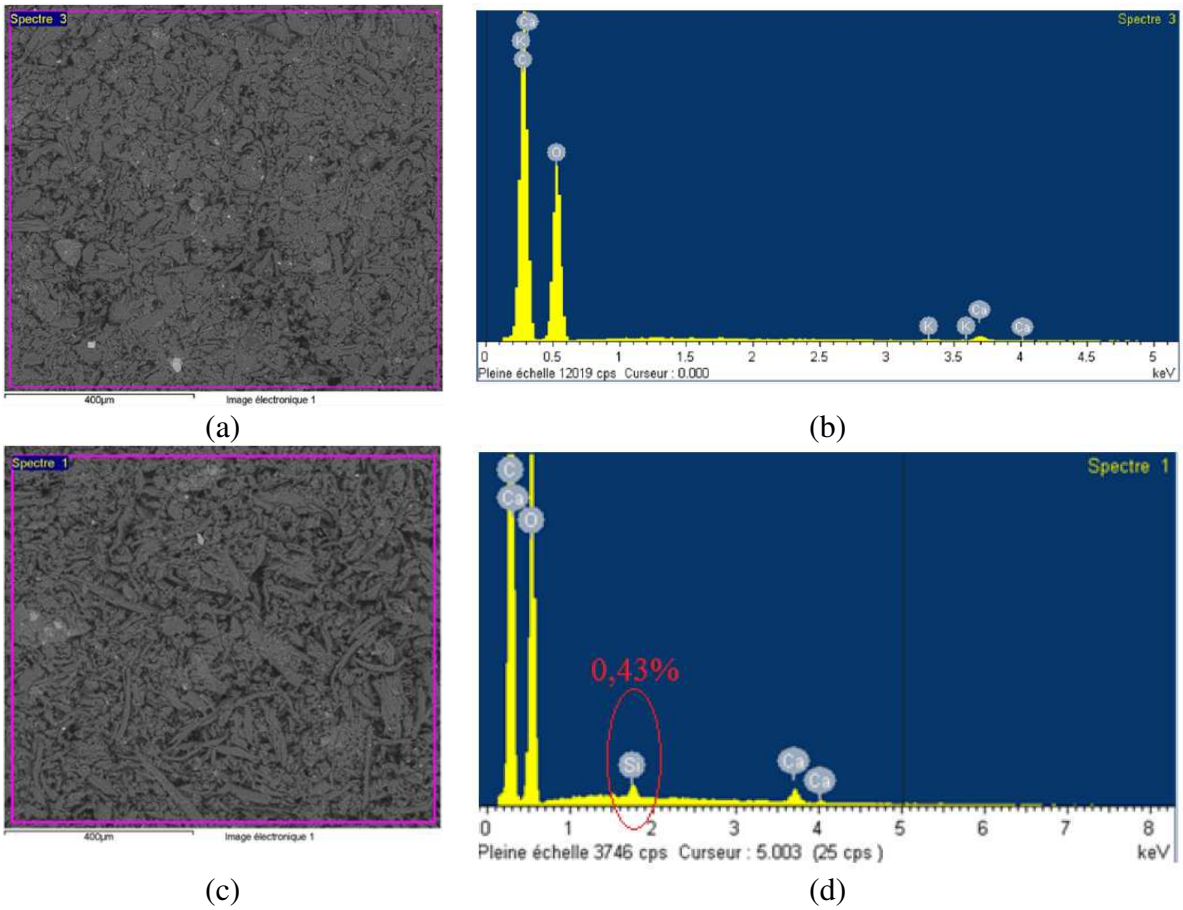


Figure II.14 : **Analyse MEB–EDX de la farine de bois d'olivier (a, b) brute, (c, d) traitée.**

L'analyse par les rayons X est retranscrite sous forme de spectre, où apparaissent des pics d'intensité variable pour caractériser les éléments existants présentés sur la Figure II.14 (b, d).

L'examen des spectres des deux types de farine de bois fait apparaître un pic supplémentaire à 1,8 keV dans la Figure II.14 (d) qui montre la présence de la molécule de silicium résultante du traitement chimique effectué à la farine de bois d'olivier. Ces résultats confirment la présence d'une réaction chimique qui a eu lieu entre la farine de bois d'olivier et l'amino-silane ; l'analyse MEB-EDX indique ainsi 0,43% de silicium dans la farine traitée.

II.4.1.2.3 Caractérisation granulométrique

La granulométrie est une procédure qui consiste à mesurer les dimensions des grains, déterminer leur forme et étudier leur répartition dans différents intervalles dimensionnels. Dans notre étude, la granulométrie laser est la technique utilisée pour effectuer l'analyse granulométrique. Elle permet la mesure des tailles comprises entre 0,05 et 900 µm, ce qui est bien plus précis qu'une analyse granulométrique par tamisage. Elle convient particulièrement aux suspensions de polymères, ou à tout type de poudre. La diffraction laser mesure les distributions granulométriques des particules en mesurant la variation angulaire de l'intensité de lumière diffusée lorsqu'un faisceau laser traverse un échantillon de particules dispersées. Les grosses particules diffusent la lumière à de petits angles par rapport au faisceau laser et les petites particules diffusent la lumière à des angles supérieurs (Figure II.15). Les données relatives à l'intensité diffusée en fonction de l'angle sont analysées pour calculer la taille des particules qui ont créé l'image de diffraction et ceci grâce à la théorie de Mie [15]. La taille des particules est représentée par le diamètre de la sphère équivalente, ayant même volume que la particule. La théorie de Mie suppose que les propriétés optiques de l'échantillon mesuré (indice de réfraction et partie imaginaire) et du dispersant (indice de réfraction) soient connus.

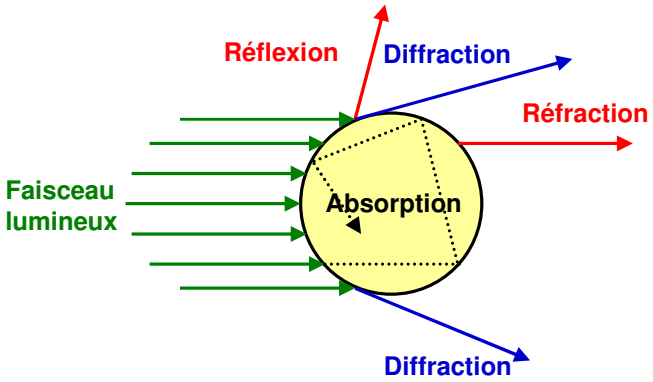


Figure II.15 : **Principe de granulométrie laser.**

Les informations obtenues par analyse granulométrique laser sur la taille des grains de FBO sont présentées sur la Figure II.16.

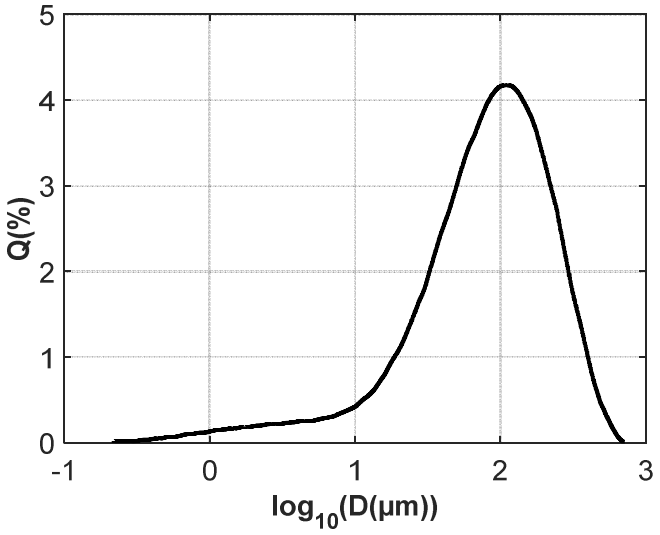


Figure II.16 : **Distribution granulométrique de la FBO.**

La distribution granulométrique (Figure II.16) montre une distribution homogène du fait de la présence d'une seule population avec une taille moyenne de 115 µm.

Les résultats de l'analyse de la farine de bois d'olivier sont présentés dans le Tableau II.3.

Tableau II.3 : **Résultat de l'analyse granulométrique de la FBO.**

	Mode	$D(v\ ;\ 0{,}1)$	$D(v\ ;\ 0{,}5)$	$D(v\ ;\ 0{,}9)$	$D(4\ ;\ 3)$
Ǿ(µm)	110,4	17,4	84,6	254,9	116,0

- Mode : diamètre moyen de la classe la plus fréquentée. Il correspond au maximum de la courbe des fréquences relatives, et au point d'inflexion de la courbe des fréquences cumulées ;
- $D(v\ ;\ 0{,}1)$: taille de particules pour laquelle 10% de l'échantillon se trouve en dessous de cette dimension ;
- $D(v\ ;\ 0{,}5)$: taille de particules pour laquelle 50% de l'échantillon se trouve en dessous de cette dimension ;
- $D(v\ ;\ 0{,}9)$: taille de particules pour laquelle 90% de l'échantillon se trouve en dessous de cette dimension ;

- $D(4\ ;\ 3)$: diamètre moyen en volume ;
- Span : renseigne sur la largeur de la distribution.

$$Span = \frac{D(v;0,9) - D(v;0,1)}{D(v;0,5)} \qquad \text{(II.1)}$$

Les résultats montrent que 50% des grains ont un diamètre inférieur ou égal à 84,6 µm, 10% ont un diamètre inférieur à 17,4 µm et 90% ont un diamètre inférieur à 254,9 µm. Le span est estimé à 2,8. L'amplitude se situe autour de 110,4 µm. Il est à rappeler que les recherches dans le domaine des composites ont montré que plus la taille des charges est fine, plus les propriétés mécaniques seront bonnes [16, 17].

II.4.2 Composition chimique de la farine de bois d'olivier

Afin de déterminer la composition chimique de la farine de bois d'olivier, nous avons calculé son taux d'humidité, de cendre et de matière organique. Ensuite, nous avons défini le taux de la matière organique de chaque constituant, c'est-à-dire les taux en lignine, hémicellulose et cellulose en présence dans les fibres.

L'humidité du bois est le rapport de la masse d'eau contenue dans le bois sur la masse de bois sec selon la norme EN 13183. La méthode la plus fiable pour déterminer l'humidité du bois, est la mesure par différence de masses. Un échantillon est pesé, sa masse humide est notée m_0. Cet échantillon est ensuite complètement séché dans une étuve à 103°C (± 2°C). L'échantillon est alors pesé régulièrement jusqu'à stabilisation de son poids, sa masse anhydre est notée m_1. La masse d'eau est déduite par la différence de celle du bois humide et de celle du bois sec. Ainsi, le taux d'humidité est déterminé par l'équation (II.2) suivante :

$$H(\%) = \frac{m_{eau}}{m_{bois\ sec}} = \frac{m_0 - m_1}{m_1} \qquad \text{(II.2)}$$

De manière complémentaire, on définit le taux de matière solide $S(\%)$:

$$S(\%) = 1 - H(\%) \qquad \text{(II.3)}$$

Par ailleurs, le taux de cendre informe sur le taux de matière minérale contenue dans la farine de bois d'olivier. C'est une poudre résultant de la combustion des fibres. Deux échantillons de FBO séchés et étuvés à 100°C pendant 24 heures, sont placés dans deux creusets en céramique, puis calcinés à 500° C pendant 5 heures jusqu'à la formation de cendres blanches.

La moyenne des rapports de masse finale m_2 sur la masse initiale m_0 de matière solide sèche donne le taux de cendres comme indique l'équation (II.4).

$$C(\%) = \frac{m_0 - m_2}{m_0} \qquad \text{(II.4)}$$

Le taux de matière organique $O(\%)$ est défini par la différence entre le taux de matière solide $S(\%)$ et le taux de cendres $C(\%)$:

$$O(\%) = S(\%) - C(\%) \qquad \text{(II.5)}$$

Un échantillon a été pesé, sa masse humide est noté m_0 et il a été par la suite séché et pesé régulièrement jusqu'à stabilisation de son poids.

La farine de bois d'olivier présente initialement un taux d'humidité élevé, il est donc impératif de l'abaisser par étuvage, avant mise en œuvre du composite, afin de bien maitriser la quantité d'eau résiduelle dans le mélange. Ainsi, un échantillon de masse initiale $m_0 = 2$ g de FBO, se trouve réduit à $m_1 = 1{,}783$ g après déshydratation, soit $H(\%) = 12\%$. Ensuite, le taux de cendre a été évalué à $C(\%) = 3\%$. Le taux de matière de organique $O(\%)$ est déduit par complément à 100% de la somme du taux d'humidité $H(\%)$ et du taux de cendre $C(\%)$. Ainsi, la composition de farine de bois d'olivier brute est présentée comme suit (Figure II.17).

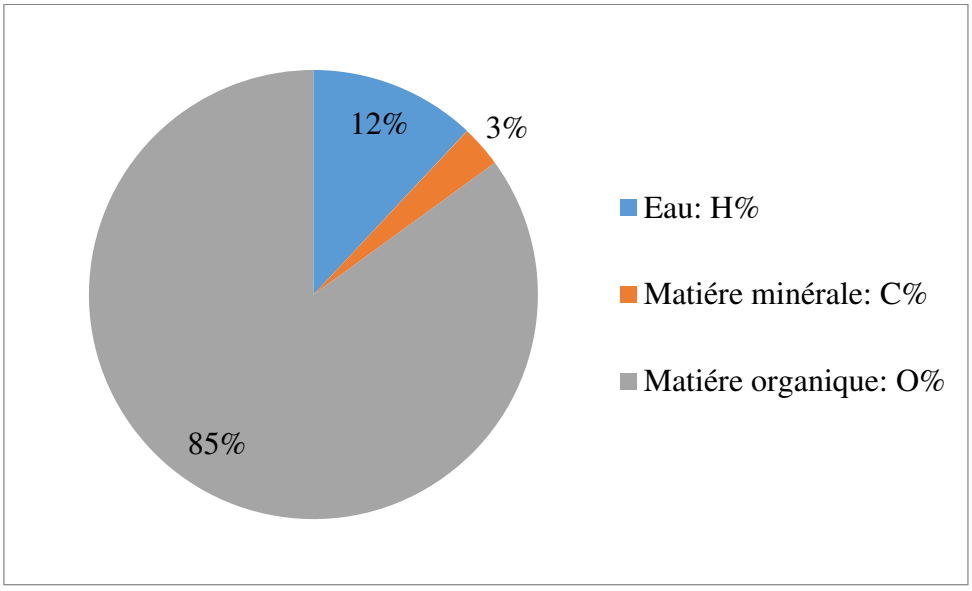


Figure II.17 : **Composition de la farine de bois d'olivier.**

La composition chimique de la matière organique de la farine de bois d'olivier utilisée comme charge renforçant a été déterminée par réalisation d'une série d'extractions pour isoler les différentes substances contenues dans les fibres tel que : la cellulose, l'hémicellulose et la lignine. Tous les tests ont été basés sur des procédures décrites dans la littérature [18]. Les taux en hémicellulose, lignine et cellulose ont été calculés. Pour cette raison, la FBO a été séchée à 80°C pendant 24 heures dans une étuve sous vide pour en éliminer l'humidité ; cette opération d'étuvage permet d'obtenir une masse de fibres sèches. Par la suite, dans le but d'éliminer les graisses et les cires, les fibres sont imprégnées dans une solution de toluène/éthanol à une température de 60°C pendant 6 heures. Ensuite, elles sont lavées à l'éthanol puis séchées à une température de 80°C pendant 24 heures dans une étuve à vide. Pour enlever la lignine des fibres, les fibres prétraitées avec la solution toluène/éthanol, sont mises dans une solution de chlorite de sodium et portées à ébullition pendant 2 heures. Elles sont alors plongées pendant 45 min dans une solution de bisulfate de sodium à 5%. Ainsi, les taux d'holocellulose (cellulose et hémicellulose) et de lignine existants dans les fibres peuvent être évalués à condition de sécher et peser la quantité d'échantillon restante après ce traitement car la totalité de la lignine a été éliminée. Enfin, pour déterminer le taux de cellulose et d'hémicellulose, l'holocellulose a été introduite dans une solution de NaOH (17,5%) pendant une heure. Par la suite, elle a été lavée pour enlever l'excès de soude, puis séchée dans une étuve à 105°C. La masse du résidu sec correspond au taux de cellulose car avec ce traitement la totalité de l'hémicellulose a été éliminée. Le Tableau II.4 donne la composition chimique dans la farine de bois d'olivier brute et traitée. Dans le cas de la FBO brute, les taux en cellulose, hémicellulose et lignine brutes sont respectivement mesurés à 47,9%, 29,2% et 21,9% en masse, conformément à ceux relevés par [4, 19]. Après traitement chimique avec le silane suivi par l'étape de gazéification et rinçage des fibres, le Tableau II.4 montre que les teneurs en hémicellulose et en lignine diminuent, ce qui provoque corrélativement l'augmentation du taux de cellulose dans les fibres traitées.

Tableau II.4 : **Répartition massique par composant de la FBO brute et traitée.**

Composant	Non traitée	Traitée
Cellulose (%)	47,9	78,5
Hémicellulose (%)	29,2	10,4
Lignine (%)	21,9	4,9

II.4.3 Analyse structurale

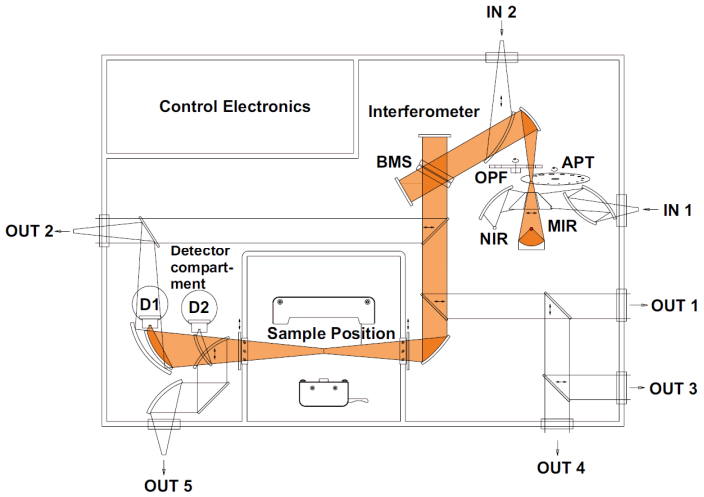
Ce type d'analyse est mené via deux techniques : la spectrométrie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) et la diffraction des rayons X (DRX).

II.4.3.1 Spectrométrie infrarouge à transformé de Fourier (FTIR)

II.4.3.1.1 Technique et dispositif expérimental

La spectrométrie infrarouge est mise en œuvre dans le but d'identifier et de mettre en évidence les liaisons chimiques existantes dans un matériau. Elle permet de déterminer la nature chimique d'un matériau grâce à ses capacités d'absorption de la lumière. Un rayonnement infrarouge est envoyé sur l'échantillon, puis il est analysé par l'intermédiaire d'un spectromètre afin de déterminer les longueurs d'ondes absorbées par le matériau et les niveaux de cette absorption. Chaque bande d'absorption coïncide à un mode de vibration d'une liaison chimique qui se trouve soit sous forme interatomique, soit entre groupements fonctionnels, soit entre groupements ioniques.

(a)



(b)

Figure II.18 : **Spectromètre infrarouge VERTEX 70.**

Cette méthode de caractérisation par interférométrie, simple dans son principe demeure relativement complexe dans sa mise en œuvre et présente de nombreuses améliorations dans les compensations apportées avec les évolutions techniques (Figure II.18 (a)). Ce modèle de spectromètre FTIR VERTEX 70 (Figure II.18 (b)) dispose d'une étendue de mesure dont le nombre d'ondes va de 4000 à 400 cm^{-1} avec une moyenne de 64 balayages et un pas de 4 cm^{-1}. Préalablement à son analyse, la farine de bois d'olivier a été étuvée à 104°C pendant 24 heures, puis 180 mg de bromure de potassium (KBr) anhydre qui présente un support qui n'absorbe pas dans l'IR moyen et 4 mg de l'échantillon sec ont été bien broyés et pressés à l'aide d'une presse de laboratoire sous pression de 10 tonnes pendant 5 min. KBr est utilisé le plus couramment, parce qu'il est transparent jusqu'à 400 cm^{-1}. Une pastille d'environ 5 mm de diamètre est obtenue. Les étapes sont présentées dans la Figure II.19.

Figure II.19 : **Etape de préparation des pastilles.**

II.4.3.1.2 Analyse des résultats

La Figure II.20 illustre le spectre infrarouge (IR) obtenu pour la farine de bois d'olivier brute. Le Tableau II.5 synthétise les nombres d'ondes des principales bandes d'absorption, associées aux constituants de la fibre. La Figure II.21 illustre la différence des spectres IR obtenus pour les fibres brutes et relativement à celles traitées.

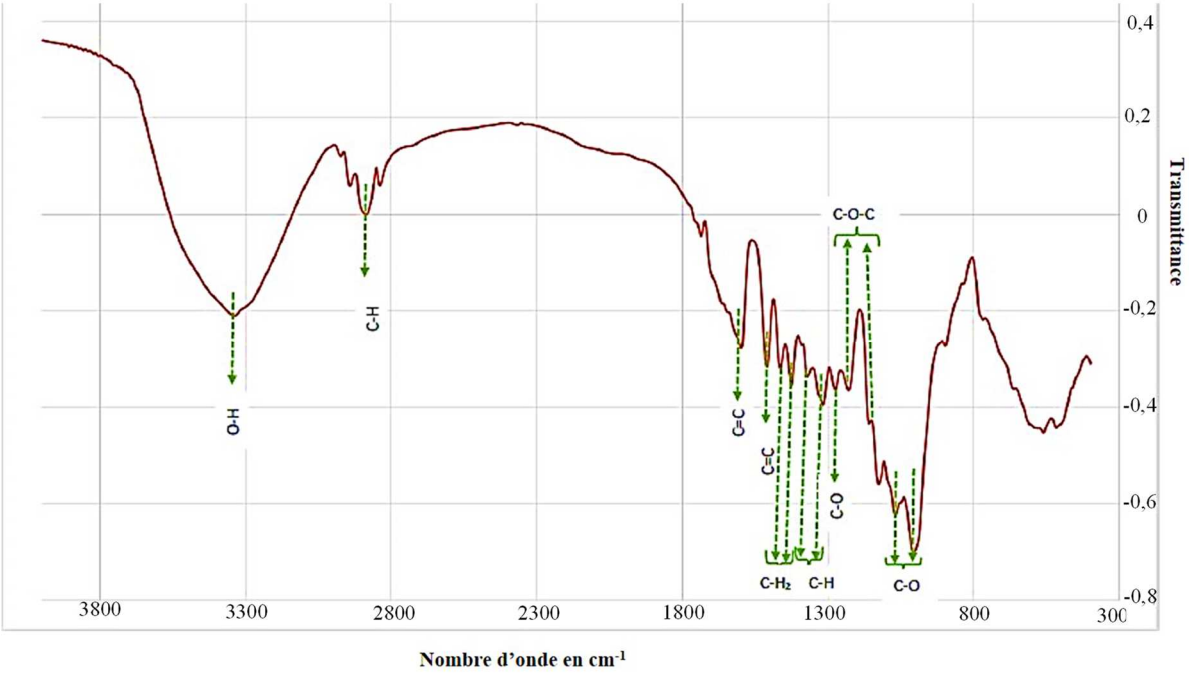


Figure II.20 : **Spectre IR de la farine de bois d'olivier brute.**

Tableau II.5 : **Pics d'absorption du spectre infrarouge de la farine de bois d'olivier brute.**

Nombre d'onde (cm^{-1})	Liaison	Composant	Référence
3100-3800	O-H	Cellulose	[20, 21, 22]
2910-2850	C-H	Cellulose - Hémicellulose	[20, 21, 22]
1740	C=O	Groupe ester	[20]
1640	H_2O	Eau	[21, 23, 24]
1600-1510	C=C	Lignine	[20, 22]
1460-1420	C-H	Pectine - Lignine - Hémicellulose	[22, 20, 23]
1370-1320	$C-H_2$	Polysaccharides	[22, 23, 25]
1260	C-H	Hémicellulose	[24]
1225-1155	C-O-C	Cellulose - Hémicellulose	[25]
1055	C-O	Cellulose - Hémicellulose	[22, 25, 23]
1035	C-O	Lignine	[22, 25, 23]

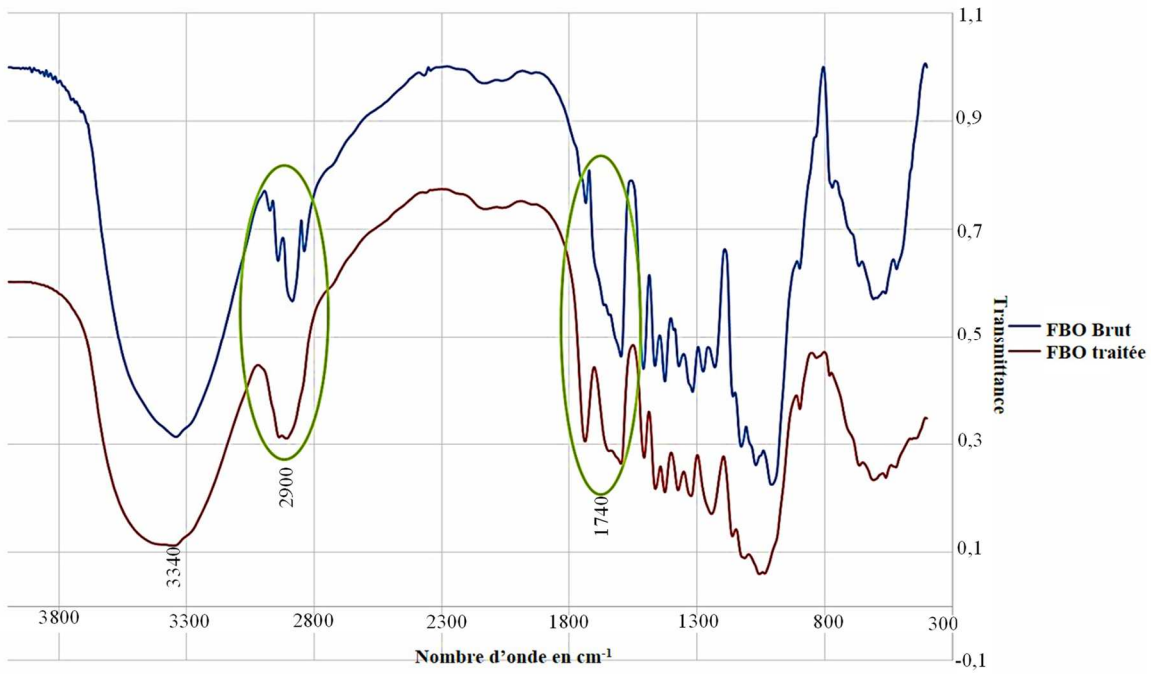


Figure II.21 : **Comparaison des spectres IR de la farine de bois d'olivier brute et traitée.**

Le traitement chimique avec le silane entraîne l'endommagement de certains composants de farine de bois d'olivier, notamment la lignine et l'hémicellulose, qui seront presque totalement dissous et extraits de la fibre. Les conséquences de ces effets sont bien discernables sur les spectres IR de la Figure II.21. En effet, la comparaison des deux spectres des fibres brutes et traitées, montre la disparition dans les spectres des fibres traitées des pics à 1510 et 1460 cm^{-1}, attribués à la lignine. Cela est dû à la délignification due surtout au traitement chimique. Ainsi, le traitement chimique de la farine de bois d'olivier réagit avec les constituants de la lignine, provoquant son extraction des fibres [13].

En parallèle, on remarque une bande à 1740 cm^{-1} dans le spectre des fibres traitées et non traité, cette bande est associée à une fonction ester (Tableau II.5). On remarque (Figure II.21) une diminution de l'intensité de bande à 2910 et 2850 cm^{-1} qui présente la vibration de valence du groupement C-H de la liaison CH_2. De plus, l'intensité du pic d'absorption situé entre 3100 et 3800 cm^{-1}, attribuée aux groupements hydroxyles de la cellulose, augmente après traitement ; ceci confirme l'accroissement du taux de cellulose dans les fibres traitées [13, 20, 18].

II.4.3.2 Diffraction des rayons X

II.4.3.2.1 Technique et dispositif expérimentale

La Diffractométrie à Rayon X (DRX) consiste à déterminer la structure cristalline de composés minéraux ou organiques elle permet d'appliquer un rayonnement de la longueur d'onde (0,1 nm < λ < 10 nm) sur un échantillon orienté ou non. Lorsqu'un faisceau de photons X interagit avec un échantillon cristallin, une partie du rayonnement est diffractée selon des angles θ bien définis, dont les valeurs sont directement reliées aux distances d entre plans atomiques ou moléculaires par la formule de Bragg :

$$n\lambda = 2d_{hkl} \sin\theta \qquad \text{(II.6)}$$

Où n est un nombre entier correspondant à l'ordre de la diffraction ; λ (m) la longueur d'onde du rayonnement utilisé ; d_{hkl} (m) la distance entre les plans réticulaires d'une même famille désignée conventionnellement par les indices de Miller (h, k, l) ; θ (°) l'angle de diffraction.

Le rayonnement électromagnétique émis par une source de cuivre pénètre le cristal. Il y a absorption d'une partie de l'énergie et excitation des atomes avec émissions de radiations dans toutes les directions [26]. Les radiations émises par des plans atomiques qui sont en phase vont engendrer un faisceau cohérent qui pourra être détecté.

L'analyse a été réalisée à l'aide d'un diffractomètre Panalytical Xpert-Pro, équipé d'un tube à anticathode de cuivre opérant sur une radiation de $K\alpha$l de cuivre ($\lambda_{CuK\alpha1}$ = 1,540598 Å). Cette a radiation a été produite sous une tension 40 kV, une intensité de 40 mA et l'angle 2θ passe de 5 à 60°. Un échantillon de chacun des deux types de FBO a été analysée.

II.4.3.2.2 Analyse des résultats

La comparaison des résultats de diffractométrie à Rayon X (DRX) de la farine de bois d'olivier brute et traitée avec le silane est illustrée sur la Figure II.22. Sur ces spectres, il existe principalement deux pics qui sont remarquables sur les deux types de farines. Le premier, large et multiple, aux angles de Bragg 14,88° et 16,09°, correspond aux plans cristallographiques (1-10) et (110). Le second étroit à 22,86° est associé au plan cristallographique (200). Ces deux pics sont caractéristiques de la cellulose I [27, 28, 29, 30].

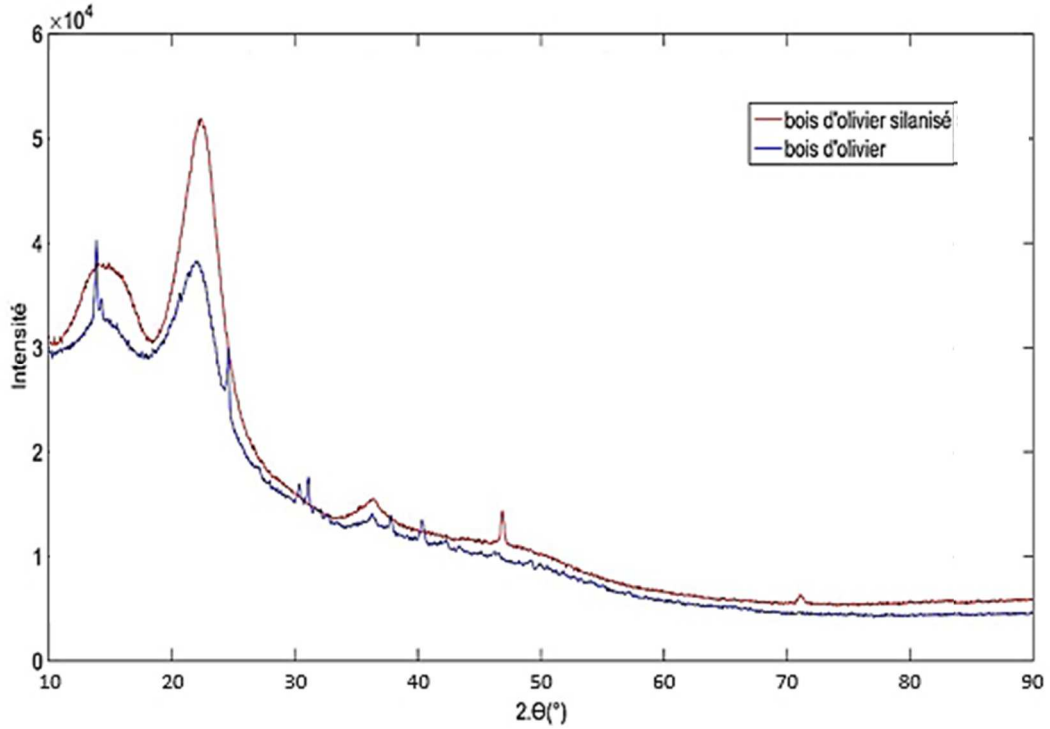


Figure II.22 : **DRX de FBO brute et traitée à 3% de silane.**

L'indice de cristallinité *CrI* de la farine de bois d'olivier peut être estimé par la méthode de Segal [31]. Cet indice est déterminé d'après l'expression suivante :

$$CrI(\%) = 100 \times \frac{I_{200} - I_{am}}{I_{200}} \qquad \text{(II.7)}$$

où I_{200} et I_{am} sont les intensités des raies 200 (I_{200}, $2\theta = 22{,}8°$), et 110 (I_{am}, $2\theta = 18{,}0°$), et I_{200}, représente à la fois le matériau amorphe et cristallin alors que I_{am} représente seulement la partie amorphe. Cette méthode suppose que la contribution de la partie amorphe est la même pour les angles à 18,0° et à 22,8°, et que la cellulose cristalline ne contribue pas à l'intensité diffractée à 18°. De fait, la détermination de l'indice de cristallinité reste discutable car il ne prend en compte que les intensités des raies et non l'intensité intégrée des pics de diffraction. Néanmoins, cette méthode reste largement utilisée et se retrouve dans de nombreux travaux [32, 33, 34]. L'indice de cristallinité *CrI* augmente après le traitement chimique, passant de 59,5% pour la farine brute à 66,7% pour la farine traitée. Cette augmentation est la conséquence de l'élimination des composants amorphes suite au traitement réalisé sur la farine de bois d'olivier [33, 35].

II.4.4 Caractérisation thermique

La caractérisation thermique est effectuée par l'analyse thermogravimétrique (ATG).

II.4.4.1 L'analyse thermogravimétrique (ATG) : Technique et dispositif expérimental

L'analyse thermogravimétrique (ATG) est une technique qui permet de mesurer la variation de masse d'un échantillon en fonction du temps, de la température ou d'un profil de température donné. Elle consiste à évaluer toute perte de masse ou des changements de phase lors de la décomposition, déshydratation ou oxydation du matériau. Ces ATG ont été faites à l'aide d'un équipement Perkin Elmer Pyris-1 (Figure II.23) sous un flux d'azote jusqu'à 800°C et avec une vitesse de montée en température de 10°C/min. L'objectif est d'étudier la stabilité thermique de nos échantillons (fibres seules, polymère vierge, et matériaux composites).

Figure II.23 : **Appareil ATG Pyris-1 (Perkin Elmer).**

II.4.4.2 Analyse des résultats

Une analyse thermogravimétrique a été réalisée pour étudier la stabilité thermique des deux types de FBO brute et traitée (Figure II.24). La dérivée de l'ATG relativement à la température, nommée DTG permet une analyse des caractéristiques thermiques. Les inflexions et minimums de cette courbe permettent d'identifier les phénomènes de perte de masse.

(a)

(b)

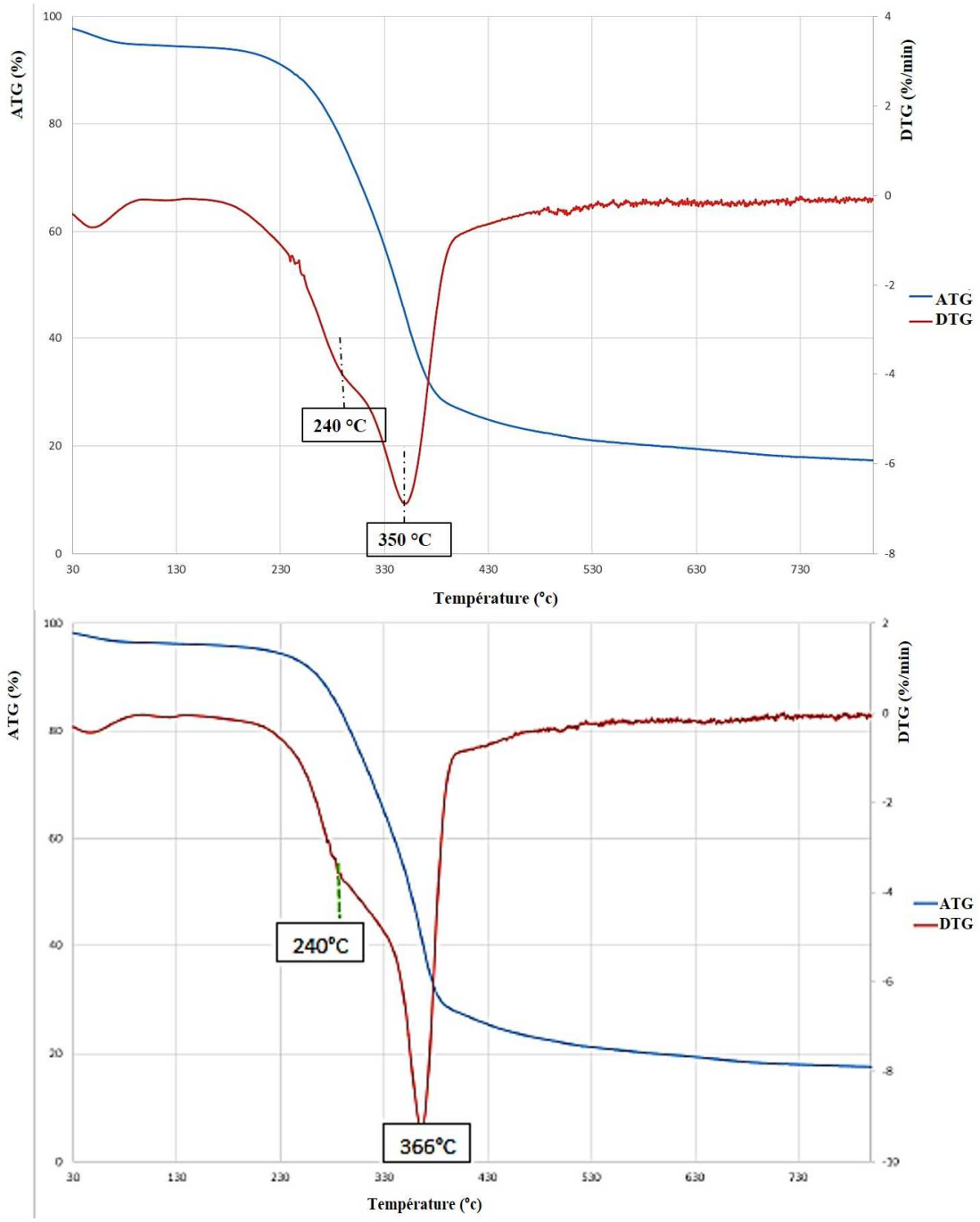


Figure II.24 : **Courbes ATG et DTG de la FBO (a) brute et (b) traitée.**

Le Tableau II.6 donne les différentes températures de dégradation obtenues pour les fibres avant et après traitement, ainsi que la perte de masse de l'échantillon en fin d'expérience.

Tableau II.6 : **Températures de dégradations de la FBO.**

	T_d (°C)	T_m (°C)	P (%)
FBO brute	240	350	77,5
FBO traitée	240	366	76

T_d : température du début de dégradation ;
T_m : température maximale de dégradation ;
P : taux de perte de masse.

Dans l'intervalle de température [25°C ; 100°C], les FBO traitée et non traitée présentent une perte de masse très faible à cause de l'évaporation de l'eau présente dans les fibres [33, 36, 37]. La quantité d'humidité présente dans la FBO brute est plus importante que celle présente dans la FBO traitée. En effet, cette diminution de l'adsorption d'eau après traitement chimique pourrait être liée à l'augmentation de la cristallinité, observée en diffraction des rayons X [38]. Dans l'intervalle de température [230°C ; 430°C], c'est la zone principale de décomposition, les FBO brute et traitée commencent à se décomposer à environ 240°C.

On remarque au niveau des courbes de DTG obtenues un pic situé dans l'intervalle de températures 330-430°C, ce pic est associé à la dégradation de la cellulose et de la lignine [33, 39]. Les FBO traitées présentent des températures de dégradation plus élevées qu'avant traitement. On peut raisonnablement supposer que le traitement chimique avec le silane améliore la stabilité thermique des fibres naturelles.

La température de mise en œuvre des composites à base des FBO ne doit donc pas dépasser 240°C, que ce soit pour la FBO brute ou la FBO traitée.

II.4.5 Caractérisation morphologique et thermique des bio-composites élaborés

II.4.5.1 Etude des propriétés morphologiques

Pour l'analyse morphologique, on a utilisé une microscopie électronique à balayage (MEB). Cette technique permet tout d'abord d'identifier l'état de dispersion des fibres. De plus, l'analyse par MEB permet de détecter l'existence de vides ou des bulles d'air à l'interface

fibre / matrice et finalement de fournir des indications sur la répartition des fibres dans la matrice, sur la formation ou non d'agrégats et sur l'orientation et la disposition des fibres dans le composite. En outre, la comparaison des cartographies MEB de la matrice seule non chargée avec celles obtenues pour les composites élaborés avec une FBO traitée ou non facilite l'identification des fibres.

La morphologie des composite à base de polypropylène et de farine de bois d'olivier brute ou traitée, a été étudiée au MEB (HIROX SH-4000M), selon le protocole décrit précédemment. Le PP seul ainsi que les différents mélanges PP/FBO traités ou non, avec un taux de renfort de l'ordre de 30% en masse, sont présentés sur la Figure II.25. Pour les échantillons analysés, nous avons choisi d'effectuer les observations avec deux échelles de 50 µm et 10 µm qui correspondent respectivement aux grossissements ×500 et ×2000.

Au faible grossissement (×500), pour les bio-composites élaborés avec de la FBO brute ou de la FBO traitée (Figure II.25 (b), (c)), on observe une dispersion homogène de fibres dans la matrice polymère. Cela n'empêche pas la présence de quelques cavités résultantes de l'emplacement des fibres après la rupture. En passant du bio-composite à base de fibres brutes (Figure II.25 (b)) à celui chargé en fibres traitées (Figure II.25 (c)), le nombre de ces cavités diminuent. Par conséquent, on peut distinguer l'amélioration de l'adhésion entres les fibres et la matrice par ajout de l'agent de couplage (traitement avec le silane).

Dans le bio-composite chargé par la FBO brute, on remarque que les fibres sont décollées et tirées de la matrice PP. Comme le montre la photo (b') de la Figure II.25, les surfaces des fibres sont lisses et propres, ce qui montre la mauvaise adhérence interfaciale entre les fibres et la matrice. D'autre part, la photo (c') de la Figure II.25 montre que pour le bio-composite chargé par la FBO traitées les fibres sont étroitement liées à la matrice avec une surface caractérisée par un revêtement d'une couche de la matrice polymère (PP). En effet, on peut voir que la fracture s'est produite au niveau de la section transversale des fibres elles-mêmes. Cela confirme qu'il existe un transfert des contraintes depuis la matrice jusqu'à la charge, du fait de l'adhésion entre fibres et matrice. Les fibres participent donc dans ce cas à l'énergie nécessaire à la rupture et assurent ainsi une bonne cohésion de l'ensemble du matériau composite.

Ces résultats sont en accord avec des études antérieures qui ont confirmé que le traitement chimique avec le silane des fibres naturelles utilisées comme renforts, améliore la cohésion entre les fibres et la matrice des matériaux bio-composites correspondants.

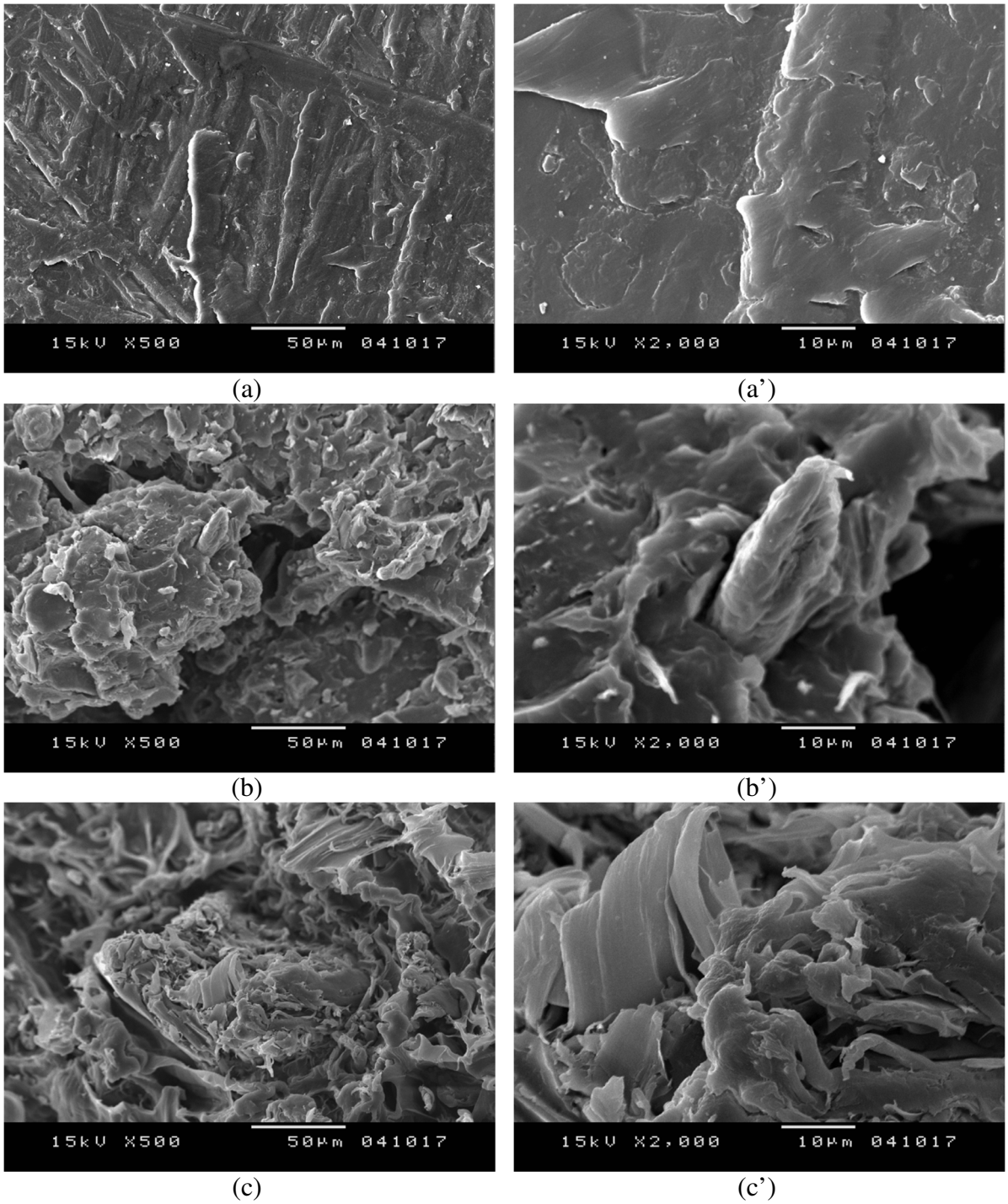
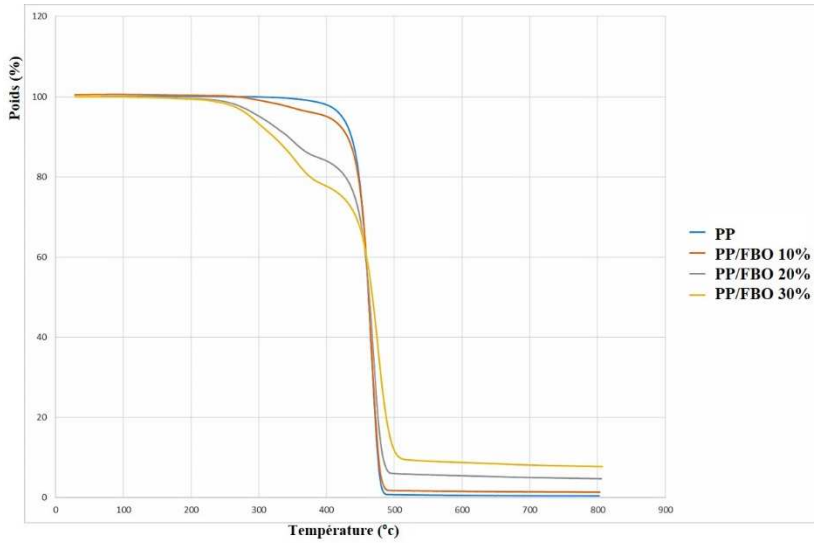


Figure II.25 : **Photos MEB des surfaces de rupture du (a) PP (×500), (a') PP (×2000), (b) PP/FBO brute (30%) (×500), (b') PP/FBO brute (30%) (×2000), (c)PP/FBO traitée (30%) (×500), (c') PP/FBO traitée (30%) (×2000).**

II.4.5.2 Etude des propriétés thermiques

Les bio-composites chargés avec de la FBO brute et de la FBO traitée ont été analysés par ATG (analyse thermogravimétrique) dans le but de mettre en évidence l'effet du traitement chimique de la charge et du taux du renfort sur la stabilité thermique du matériau. Les Figures II.26 (a) et (b) représentent les courbes ATG du PP et des bio-composites chargés respectivement par les FBO brute et traitée, à des teneurs de fibre de 10%, 20%, 30%.

(a)



(b)

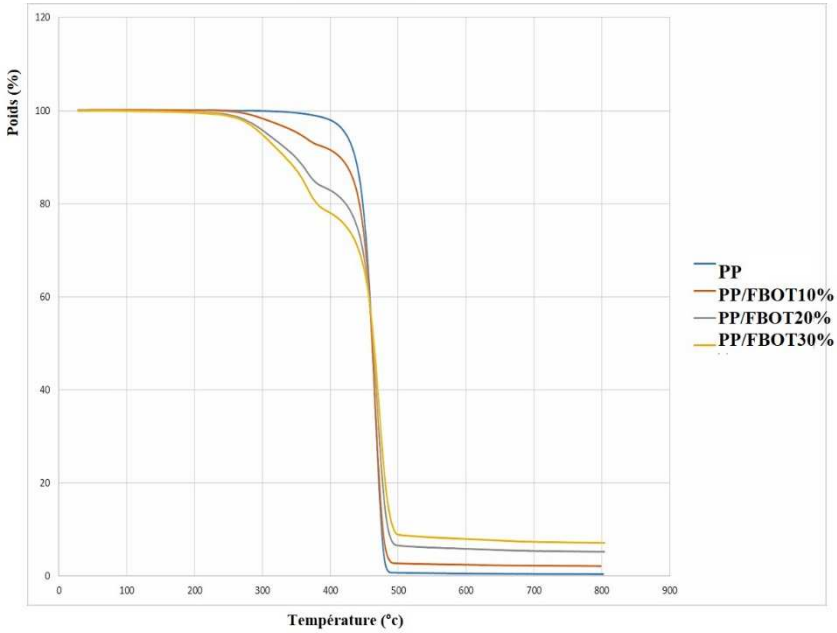


Figure II.26 : **Courbe ATG du PP et de bio-composite PP/FBO avec une composition de 10, 20, 30% de (a) FBO brute et (b) FBO traitée.**

L'addition de 10%, 20% et 30% de FBO non traitée augmente notablement les températures de dégradation de 5, 3, et 9°C respectivement, par rapport à la matrice seule. Cet effet reste comparable avec la teneur en FBO traitée, pour lesquelles la température varie de 0, 3, et 6°C avec l'addition de 10%, 20%, 30% de FBO traitée, respectivement. Dans notre cas, ni l'ajout de teneur en FBO, ni le traitement chimique n'ont agi de manière significative sur la stabilité thermique du composite PP/FBO.

La littérature [40, 41] indique que la concentration du traitement chimique est un facteur influant de manière significative sur la stabilité thermique des composites vu sa capacité à éliminer l'hémicellulose, la lignine et les impuretés de la fibre. Ce traitement chimique devrait permettre une amélioration de la stabilité thermique des fibres. Dans notre étude, le traitement des fibres a été insuffisant pour affecter la stabilité thermique du bio-composite.

II.5 Conclusion

Le matériau de notre étude est un bio-composite de type PP/FBO, constitué du polypropylène renforcé par la farine de bois d'olivier. Dans ce chapitre, nous avons présenté les processus de caractérisation de la FBO brute ou avec traitement, tout en détaillant le protocole utilisé pour le traitement. Les micrographies MEB des deux types de farines ont révélé une augmentation de la rugosité des fibres traitées par rapport à celles non traitées du fait de l'élimination des constituants non cellulosiques. L'analyse chimique révèle qu'après traitement chimique, les teneurs en hémicellulose et en lignine diminuent, ce qui provoque l'augmentation relative du taux de cellulose dans les fibres traitées. L'analyse de la microstructure des fibres par diffraction des rayons X a montré que le degré de cristallinité augmente après traitement avec le silane.

Enfin, nous avons caractérisé morphologiquement et thermiquement les bio-composites élaborés. Les images MEB ont montré une bonne adhésion entre la matrice et les fibres traitées ou non traitées. Ainsi, la cohésion à l'interface fibre / matrice semble s'améliorer avec le traitement chimique. L'analyse thermogravimétrique a montré que les bio-composites fabriqués sont très semblables en terme de stabilité thermique, que les fibres soient traitées ou non. La caractérisation de ces composites PP/FBO fait l'objet des chapitres suivants.

Bibliographie

[1] M. S. Sreekala, M. G. Kumaran et S. Thomas, "Oil palm fibers: Morphology, chemical composition, surface modification, and mechanical properties", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 66, n° 15, pp. 821-835, 1997.

[2] M. Z. Rong, M. Q. Zhang, Y. Liu, G. C. Yang et H. M. Zeng, "The effect of fiber treatment on the mechanical properties of unidirectional sisal-reinforced epoxy composites", *Composites Science and technology,* vol. 61, n° 110, pp. 1437-1447, 2001.

[3] N. H. Tung, H. Yamamoto, T. Matsuoka et T. Fujii, "Effect of surface treatment on interfacial strength between bamboo fiber and PP resin", *JSME International Journal Series A Solid Mechanics and Material Engineering,* vol. 47, n° 14, pp. 561-565, 2004.

[4] A. Gharbi, R. B. Hassen et S. Boufi, "Composite materials from unsaturated polyester resin and olive nuts residue: the effect of silane treatment", *Industrial Crops and Products,* vol. 62, pp. 491-498, 2014.

[5] V. Bounor-Legaré, F. Becquart et F. Fenouillot, "L'extrusion réactive, Une voie privilégiée pour la synthèse de nouveaux matériaux polymères et composites", *L'Actualité Chimique, Société chimique de France*, pp.47-58, 2007.

[6] B. Vergnes et M. Chapet, "Extrusion: Procédés d'extrusion bivis", *Techniques de l'ingénieur. Plastiques et composites,* AM3653, pp. 1-24, 2001.

[7] A. Barbarit, "Extrusion", *Techniques de l'ingénieur,* A3650A, pp. 1-20, 1987.

[8] S. Roustel, "Cuisson-extrusion des aliments", *Techniques de l'ingénieur. Agroalimentaire,* vol. 2, F3120, pp. 1-16, 2000.

[9] B. Amar, K. Salem, D. Hocine, I. Chadia et M. J. Juan, "Study and characterization of composites materials based on polypropylene loaded with olive husk flour", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 122, n° 12, pp. 1382-1394, 2011.

[10] R. Gosselin, "Injection de mousses composites bois/plastiques d'origine post-consommation", *Master of Science Dissertation*, Université de Laval, Québec, 2005.

[11] V. Fiore, T. Scalici et A. Valenza, "Characterization of a new natural fiber from Arundo donax L. as potential reinforcement of polymer composites", *Carbohydrate polymers,* vol. 106, pp. 77-83, 2014.

[12] L. Y. Mwaikambo et M. P. Ansell, "Chemical modification of hemp, sisal, jute, and kapok fibers by alkalization", *Journal of applied polymer science,* vol. 84, n° 112, pp. 2222-2234, 2002.

[13] R. Narendar et K. P. Dasan, "Chemical treatments of coir pith: Morphology, chemical composition, thermal and water retention behavior", *Composites Part B: Engineering,* vol. 56, pp. 770-779, 2014.

[14] M. Abd Mutalib, M. A. Rahman, M. H. D. Othman, A.F. Ismail, J. Jaafar, "Scanning electron microscopy (SEM) and energy-dispersive X-ray (EDX) spectroscopy", In *Membrane characterization*. Elsevier, chap. 9, pp. 161-179, 2017.

[15] F. Guimberteau, F. Leal Calderon, "Granulometrie des émulsions de bitume", *Bulletin des Laboratoires des Ponts et Chaussées*, vol. 222, ref. 4203, pp. 13-22, 1999.

[16] S. Migneault, A. Koubaa, F. Erchiqui, A. Chaala, K. Englund et M. P. Wolcott, "Effects of processing method and fiber size on the structure and properties of wood-plastic composites", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 40, n° 11, pp. 80-85, 2009.

[17] S. Migneault, A. Koubaa, F. Erchiqui, A. Chaala, K. Englund, C. Krause et M. Wolcott, "Effect of fiber length on processing and properties of extruded wood-fiber/HDPE composites", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 110, n° 12, pp. 1085-1092, 2008.

[18] J. Jayaramudu, B. R. Guduri et A. V. Rajulu, "Characterization of new natural cellulosic fabric Grewia tilifolia", *Carbohydrate polymers,* vol. 79, n° 14, pp. 847-851, 2010.

[19] I. Naghmouchi, P. Mutjé et S. Boufi, "Olive stones flour as reinforcement in polypropylene composites: A step forward in the valorization of the solid waste from the olive oil industry", *Industrial Crops and Products,* vol. 72, pp. 183-191, 2015.

[20] V. A. Alvarez et A. Vázquez, "Influence of fiber chemical modification procedure on the mechanical properties and water absorption of MaterBi-Y/sisal fiber composites", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 37, n° 110, pp. 1672-1680, 2006.

[21] M. C. Paiva, I. Ammar, A. R. Campos, R. B. Cheikh et A. M. Cunha, "Alfa fibres: Mechanical, morphological and interfacial characterization", *Composites Science and Technology,* vol. 67, n° 16, pp. 1132-1138, 2007.

[22] C.-M. Popescu, P. T. Larsson, N. Olaru et C. Vasile, "Spectroscopic study of acetylated kraft pulp fibers", *Carbohydrate polymers,* vol. 88, n° 12, pp. 530-536, 2012.

[23] M. C. Silva, O. R. Lopes, J. L. Colodette, A. O. Porto, J. Rieumont, D. Chaussy, M. N. Belgacem et G. G. Silva, "Characterization of three non-product materials from a bleached eucalyptus kraft pulp mill, in view of valorising them as a source of cellulose fibres", *Industrial Crops and Products,* vol. 27, n° 13, pp. 288-295, 2008.

[24] N. Lopattananon, K. Panawarangkul, K. Sahakaro et B. Ellis, "Performance of pineapple leaf fiber–natural rubber composites: the effect of fiber surface treatments", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 102, n° 12, pp. 1974-1984, 2006.

[25] S. Y. Oh, D. I. Yoo, Y. Shin, H. C. Kim, H. Y. Kim, Y. S. Chung, W. H. Park et J. H. Youk, "Crystalline structure analysis of cellulose treated with sodium hydroxide and carbon dioxide by means of X-ray diffraction and FTIR spectroscopy", *Carbohydrate research,* vol. 340, n° 115, pp. 2376-2391, 2005.

[26] P. Gravereau. "Introduction à la pratique de la diffraction des rayons X par les poudres. 3rd cycle. Diffraction des rayons X par les poudres", Université Bordeaux 1, France. 2011.

[27] A. D. French et M. S. Cintrón, "Cellulose polymorphy, crystallite size, and the Segal crystallinity index", *Cellulose,* vol. 20, n° 11, pp. 583-588, 2013.

[28] Y. Li, G. Li, Y. Zou, Q. Zhou et X. Lian, "Preparation and characterization of cellulose nanofibers from partly mercerized cotton by mixed acid hydrolysis", *Cellulose,* vol. 21, n° 11, pp. 301-309, 2014.

[29] Y. Yue, C. Zhou, A. D. French, G. Xia, G. Han, Q. Wang et Q. Wu, "Comparative properties of cellulose nano-crystals from native and mercerized cotton fibers", *Cellulose,* vol. 19, n° 14, pp. 1173-1187, 2012.

[30] R. Zuluaga, J. L. Putaux, J. Cruz, J. Vélez, I. Mondragon et P. Gañán, "Cellulose microfibrils from banana rachis: Effect of alkaline treatments on structural and morphological features», *Carbohydrate Polymers,* vol. 76, n° 11, pp. 51-59, 2009.

[31] L. Segal, J. J. Creely, A. E. Martin Jr et C. M. Conrad, "An empirical method for estimating the degree of crystallinity of native cellulose using the X-ray diffractometer", *Textile Research Journal,* vol. 29, n° 110, pp. 786-794, 1959.

[32] A. Thygesen, J. Oddershede, H. Lilholt, A. B. Thomsen et K. Ståhl, "On the determination of crystallinity and cellulose content in plant fibres", *Cellulose,* vol. 12, n° 16, p. 563-576, 2005.

[33] M. Le Troedec, D. Sedan, C. Peyratout, J. P. Bonnet, A. Smith, R. Guinebretiere, V. Gloaguen et P. Krausz, "Influence of various chemical treatments on the composition and structure of hemp fibres", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 39, n° 13, pp. 514-522, 2008.

[34] H. Kargarzadeh, I. Ahmad, I. Abdullah, A. Dufresne, S. Y. Zainudin et R. M. Sheltami, "Effects of hydrolysis conditions on the morphology, crystallinity, and thermal stability of cellulose nanocrystals extracted from kenaf bast fibers", *Cellulose,* vol. 19, n° 13, pp. 855-866, 2012.

[35] J. Jayaramudu, A. Maity, E. R. Sadiku, B. R. Guduri, A. V. Rajulu, C. V. V. Ramana et R. Li, "Structure and properties of new natural cellulose fabrics from Cordia dichotoma", *Carbohydrate polymers,* vol. 86, n° 14, pp. 1623-1629, 2011.

[36] M. N. K. Chowdhury, M. D. H. Beg, M. R. Khan et M. F. Mina, "Modification of oil palm empty fruit bunch fibers by nanoparticle impregnation and alkali treatment", *Cellulose,* vol. 20, n° 13, pp. 1477-1490, 2013.

[37] S. Ouajai et R. A. Shanks, "Composition, structure and thermal degradation of hemp cellulose after chemical treatments", *Polymer Degradation and Stability,* vol. 89, n° 12, pp. 327-335, 2005.

[38] D. Ray, B. K. Sarkar, R. K. Basak et A. K. Rana, "Study of the thermal behavior of alkali-treated jute fibers", *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 85, n° 112, pp. 2594-2599, 2002.

[39] M. M. Kabir, H. Wang, K. T. Lau et F. Cardona, "Effects of chemical treatments on hemp fibre structure", *Applied Surface Science,* vol. 276, pp. 13-23, 2013.

[40] F. Shukor, A. Hassan, M. S. Islam, M. Mokhtar et M. Hasan, "Effect of ammonium polyphosphate on flame retardancy, thermal stability and mechanical properties of alkali treated kenaf fiber filled PLA bio-composites", *Materials & Design,* vol. 54, pp. 425-429, 2014.

[41] M. R. Manshor, H. Anuar, M. N. N. Aimi, M. I. A. Fitrie, W. B. W. Nazri, S. M. Sapuan, Y. A. El-Shekeil et M. U. Wahit, "Mechanical, thermal and morphological properties of durian skin fibre reinforced PLA bio-composites", *Materials & Design,* vol. 59, pp. 279-286, 2014.

Chapitre III

Caractérisation ultrasonore et mécanique du bio-composite

III.1 Introduction

Dans ce chapitre, les mesures non destructives ultrasonores et destructives mécaniques sont présentées et comparées afin d'en établir la correspondance et les limite L'effet de la teneur en farine de bois sur les propriétés mécaniques du composite et son traitement chimique (addition d'un agent de couplage amino-silane) ont été étudiés par ultrasons et par un essai de traction mécanique. Les propriétés élastiques des composites étudiés sont discutées. Les résultats de mesure différent selon la méthode utilisée, mais les tendances restent comparables.

III.2 Caractérisation ultrasonore

Concernant les mesures par ultrasons, les plaques composites sont immergées dans un réservoir d'eau pendant le temps de la mesure qui ne dépasse pas 20 min, afin d'éviter l'absorption d'eau par les échantillons lors de l'essai.

Dans cette partie, la configuration étudiée correspond à une structure tri couches : eau (indice 1), la plaque en PP/FBO (indice 2), eau (indice 3).

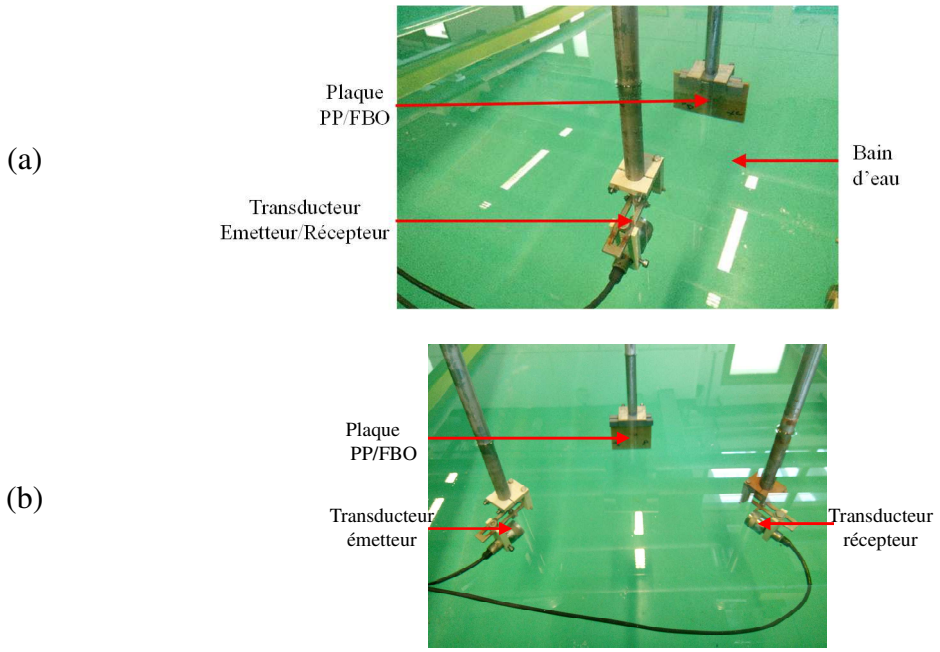


Figure III.1 : **Configuration expérimentale pour les mesures de (a) la vitesse longitudinale c_L, (b) la vitesse transversale c_T.**

La Figure III.1 illustre le dispositif expérimental utilisé. Sur la Figure III.1 (a), l'onde incidente se propage sous une incidence normale par rapport à la plaque ; il correspond au cas de la mesure de la vitesse d'onde longitudinale c_L. Sur la Figure III.1 (b), l'onde incidente se propage avec une l'incidence oblique θ par rapport à la plaque PP/FBO. Cela nous permet de mesurer la vitesse d'onde transversale c_T pour $\theta_L^c \leq \theta \leq \theta_T^c$ avec θ_L^c où θ_T^c sont les angles critiques longitudinale et transversal respectivement.

III.2.1 Ondes longitudinales

III.2.1.1 Mesure du temps de vol

Le calcul de la vitesse de propagation de l'onde dans un matériau par des mesures de temps de vol se fait à partir des deux premiers échos réfléchis par les parois de la plaque.

La méthode impulsion-écho aboutit à des échos aller-retour $s_n(t)$ correspondant à la convolution d'une impulsion $g(t)$ avec la fonction aller-retour $p_n(t)$ dans l'épaisseur d_p de la plaque.

$$s_n(t) = g(t) * p_n(t) = g(t) * \left(T_{12} R_{23} T_{21} . \left(R_{12} R_{23} . e^{-2\alpha_L d_p} \right)^n . \delta\left(t - n \frac{2d_p}{c_L} \right) \right) \qquad \text{(III.1)}$$

où T_{ij} et R_{ij} sont les coefficients de transmission et de réflexion [1] du milieu indexé de i à j, respectivement, $\{i, j\} \in \{1, 2, 3\}$ et $\delta(t)$ est la fonction de Dirac.

Ainsi, on déduit la vitesse d'onde longitudinale c_L et l'atténuation longitudinale α_L :

$$\begin{cases} c_L = \dfrac{2d_p}{\text{tof}(s_2(t)) - \text{tof}(s_1(t))} \\ \alpha_L = \dfrac{1}{2d_p} \ln\left(\dfrac{\max(s_2(t))}{R_{12} R_{23} . \max(s_1(t))} \right) \end{cases} \qquad \text{(III.2)}$$

où $tof_{(sn(t))}$ est le temps de vol et $max_{(sn(t))}$ est l'amplitude maximale du nième écho considéré, noté $s_n(t)$. La Figure III.2, représente l'allure du signal réfléchi par un échantillon à 10% de FBO non traitée. On observe principalement deux échos, liés aux interfaces. Le premier écho $s_1(t)$ arrivant au temps t_{1L} est dû à la réflexion de l'onde sur la surface de la plaque qui est face au transducteur et est situé autour de 0,8 µs. Le deuxième écho $s_2(t)$ arrivant au temps t_{2L} est dû à la réflexion d'onde sur le fond de la plaque situé autour de 3,8 µs. Le troisième observé autour de 6,8 µs résulte d'un aller-retour supplémentaire dans l'épaisseur de la plaque.

Le transducteur plan utilisé possède une fréquence centrale à 2,25 MHz (Annexe 2).

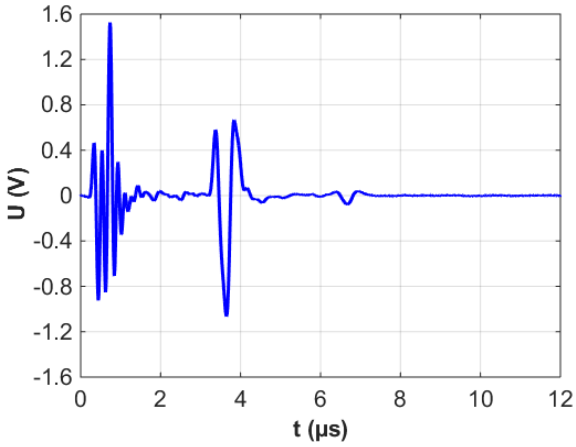


Figure III.2 : **Spectre de rétrodiffusion dans un échantillon de PP/FBO 10% à incidence normale pour la vitesse de l'onde longitudinale c_L.**

III.2.1.2 Méthode spectrale

Le spectre de rétrodiffusion est obtenu par transformée de Fourier des échos multiples régulièrement espacés, via la FFT du signal rétrodiffusé par un échantillon (Figure III.3). Le spectre de rétrodiffusion ainsi calculé présente des minima régulièrement espacés.

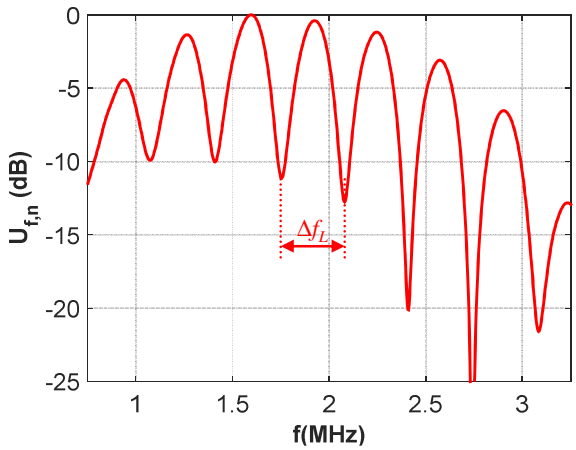


Figure III.3 : **Spectre de rétrodiffusion dans un échantillon de PP/FBO 10% à incidence normale pour la vitesse de l'onde longitudinale c_L.**

L'analyse spectrale nous permet de trouver les propriétés ultrasonores avec la transformée de Fourier (FFT) des échos aller-retour. Plus précisément, cette méthode consiste à appliquer la transformée de Fourier (FFT) sur le signal $s(t)$ contenant les deux premiers échos aller-retour, $s_1(t)$ et $s_2(t)$. Comme décrit par l'équation (III.3), ces échos sont retardés de $\tau_L = 2d_p/c_L$ et ce délai entre les deux échos peut être extrait du spectre calculé $S(f)$:

$$s(t) = A_1.s_0(t - t_1) + A_2.s_0(t - t_2) \qquad \text{(III.3)}$$

Avec $\begin{cases} A_2 = K.A_1 \\ t_2 - t_1 = \tau_L \end{cases}$ et $\begin{cases} K = R_{12}R_{23}.e^{-2\alpha_L d_p} \\ \tau_L = \dfrac{2d_p}{c_L} \end{cases}$

Le résultat de la FFT donne :

$$\underline{S}(f) = \underline{S}_1(f).\underline{W}(f) = \underline{S}_1(f).(1 + K.e^{+j2\pi f\tau_L}) \qquad \text{(III.4)}$$

Avec $S_1(f)$ est le spectre du signal $s_1(t)$, et $W(f)$ est la fonction de pondération.

Puisque $|K|$ <<1, le module de cette fonction de pondération peut être écrit comme suit :

$$\left|\underline{P}(f)\right| \xrightarrow{K<<1} 1 + K\cos(2\pi f\tau_L) \qquad \text{(III.5)}$$

Par conséquent, le module de spectre complexe $|S(f)|$ (Figure III.3) présente des minimums régulièrement espacés avec un intervalle de fréquence $\Delta f_L = 1/\tau_L = c_L/(2d_p)$. Ainsi, la vitesse d'onde longitudinale c_L [2] dans la plaque peut être déduit de l'équation suivante :

$$c_L = 2d_p.\Delta f_L \qquad \text{(III.6)}$$

III.2.2 Ondes transversales

Pour les mesures de la vitesse transversale des plaques (Figure III.4), deux transducteurs 1 MHz (Annexe 2) sont utilisés, l'un étant l'émetteur et l'autre le récepteur. L'onde incidente se propage en incidence oblique. L'angle, référencé par rapport à la normale de la plaque, formé par les faisceaux générés ou reçus par les deux transducteurs est défini selon la loi de Snell-Descartes. Dans cette étude, nous avons déterminé un angle critique longitudinal $\theta_L^c = 34°$ au-delà duquel les ondes longitudinales ne se propagent pas alors que les ondes transversales se propagent encore. Par conséquent, les mesures sont effectuées avec un angle d'incidence $\theta = 40°$.

Ainsi, nous obtenons un spectre présentant des minima régulièrement espacés avec l'intervalle de fréquence Δf_T (Figure III.4). En conséquence, en incidence oblique, au-delà de l'angle critique longitudinal θ_L^c, la méthode spectrale nous permet de calculer la vitesse de propagation transverse c_T [3] à partir de l'équation suivante :

$$c_T = \frac{2d_p.\Delta f_T}{\sqrt{1+\left(2d_p.\Delta f_T \frac{\sin\theta}{c_e}\right)^2}} \qquad \text{(III.7)}$$

où c_e est la vitesse dans l'eau avec compensation de température en cas de besoin [4].

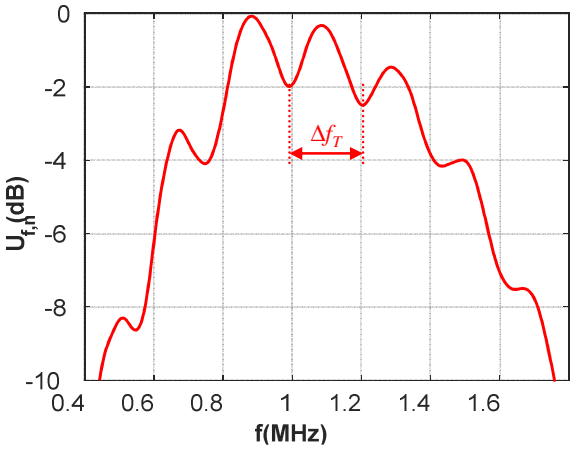


Figure III.4 : **Spectre de rétrodiffusion dans un échantillon de PP/FBO 10% au-delà du premier angle critique pour la vitesse d'onde transversale c_T.**

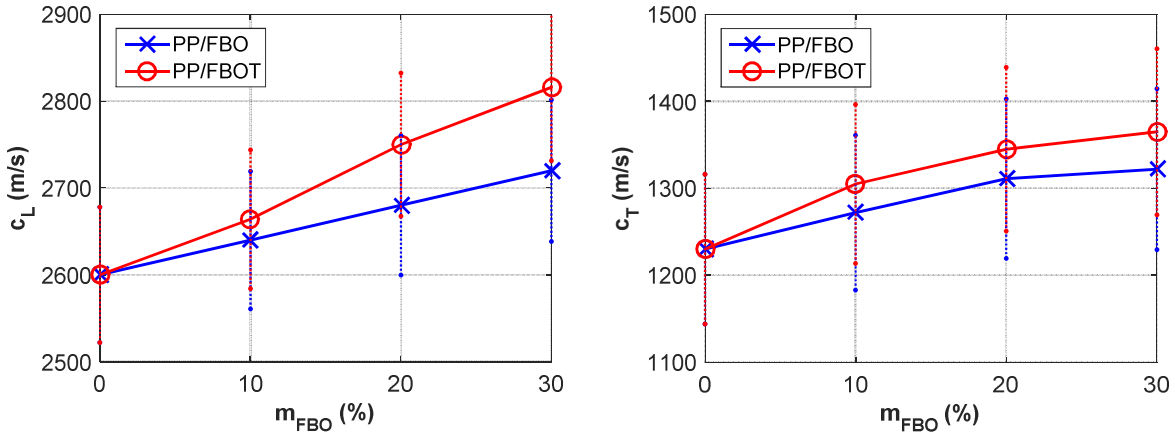
III.2.3 Résultats

En utilisant les équations (III.6) et (III.7), la méthode spectrale est utilisée pour traiter les échos obtenus afin d'évaluer les propriétés du composite. Il en résulte que la vitesse d'onde longitudinale c_L (Figure III.3) et la vitesse d'onde transversale c_T (Figure III.4) sont déduites [5, 6], respectivement.

Les Figures III.5 (a) et (b) montrent l'évolution à la hausse des vitesses d'onde longitudinale c_L et transverse c_T respectivement, en fonction du taux renforts FBO. Ainsi, c_L varie de 2600 à 2750 m/s et c_T de 1272 à 1322 m/s lorsque la fraction massique du renfort m_{FBO} croît de 0 à

30% Cette évolution de décalage par ultrasons peut être utilisée pour évaluer l'homogénéité des renforts en prenant des mesures en plusieurs points à différents points de l'échantillon [7]. Néanmoins, ces résultats de mesures doivent être considérés dans un intervalle de confiance ; cet intervalle a été évalué sur la base d'une évaluation des incertitudes. D'une part, l'incertitude sur l'épaisseur des plaques a été évaluée à 2% au centre de la plaque. D'autre part, les mesures des intervalles de fréquence Δf_L et Δf_T ont été évalués constants sur la largeur de bande du transducteur à 2% et 6% près, respectivement. Par conséquent, l'incertitude maximale globale est illustrée par des barres d'erreur de $\Delta c_L / c_L \approx 4\%$ et $\Delta c_T / c_T \approx 8\%$ sur les valeurs évaluées de c_L et c_T, respectivement.

Comme l'illustrent les Figures III.5 (a) et (b), respectivement pour les vitesses c_L et c_T des plaques composites PP/FBOT, fabriquées en utilisant la FBO traitées avec l'amino-silane, sont supérieures à celles des plaques PP /FBO, fabriquées en utilisant la FBO brute. Ceci s'explique par l'amélioration de la cohésion du composite résultant du traitement avec l'agent de couplage qu'est l'amino-silane. Même si l'ajout d'agent de couplage ne modifie pas significativement la densité (Tableau III.1), son intérêt consiste à augmenter la cohésion entre les deux composants : renfort et matrice. L'effet direct est l'augmentation des vitesses ultrasonores c_L et c_T. Nous montrerons ci-après que cela entraîne également une augmentation du module d'Young E_u.



(a) (b)

Figure III.5 : **Vitesses des ondes ultrasonores {c_L, c_T} en fonction de la fraction massique de renfort m_{FBO} (%) pour les bio-composites PP/FBO et PP/FBOT : (a) vitesse longitudinale c_L et (b) vitesse transversale c_T.**

En faisant l'hypothèse que les échantillons caractérisés se comportent comme des plaques homogènes et isotropes, on peut estimer les valeurs dites "ultrasonores" du module d'Young E_u et du coefficient de Poisson ν_u à partir de la densité ρ et celles du rapport c_T / c_L grâce aux relations suivantes [8, 9] :

$$\begin{cases} E_u = \rho c_T^2 \dfrac{3c_L^2 - 4c_T^2}{c_L^2 - c_T^2} = \rho c_L^2 \dfrac{3 - 4(c_T / c_L)^2}{1 - (c_T / c_L)^2} (c_T / c_L)^2 \\ \nu_u = \dfrac{1}{2} \dfrac{c_L^2 - 2c_T^2}{c_L^2 - c_T^2} = \dfrac{1}{2} \dfrac{1 - 2(c_T / c_L)^2}{1 - (c_T / c_L)^2} \end{cases} \quad \text{(III.8)}$$

où $\{E_u, \nu_u\}$ sont le module de Young et le coefficient de Poisson déduits des mesures ultrasonores, $\{c_L, c_T\}$ sont les mesures ultrasonores des vitesses longitudinale et transversale et ρ est la masse volumique.

Ces paramètres sont connus par leur sensibilité par rapport au processus de fabrication, en particulier pour les matériaux polymères [10]. Cette équivalence (équation (III.8)) permet d'étudier indirectement l'effet de la teneur en renfort et du traitement chimique par l'amino-silane sur les propriétés mécaniques élastiques des composites en étudiant les vitesses des ondes longitudinales et transversales.

Dans cette étude, trois constituants sont en présence : la matrice PP, le renfort FBO et la charge silane. Les masses volumiques associées sont respectivement données par :

- $\rho_{Matrice} = \rho_{PP} = 905\ kg/m^3$,
- $\rho_{Renfort} = \rho_{FBO} = 1213\ kg/m^3$,
- $\rho_{Charge} = \rho_{Silane} = 1340\ kg/m^3$.

Comme le résume le Tableau III.1, les densités des échantillons constitués de renfort traité et non traités, connaissant les densités des différents constituants, ont été déterminées à l'aide de la règle de mélange indiquée ci-dessus :

$$\rho = \left(\sum_i \frac{m_{f,i}}{\rho_i} \right)^{-1} \quad \text{(III.9)}$$

où $m_{f,i}$ est la fraction massique et ρ_i est la densité, où $i \in \{Matrice, Renfort, Charge\}$.

Les valeurs obtenues pour chaque composition étudiée sont résumées dans le Tableau III.1 suivant :

Tableau III.1 : **Effet du renfort en FBO (F) et de l'agent de couplage (C) sur la densité ρ.**

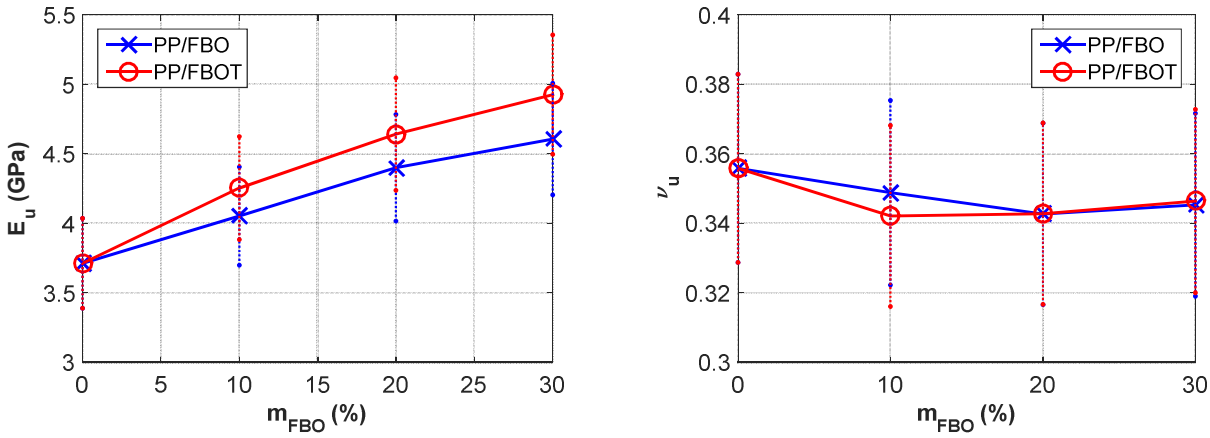
PP chargé	PP	10F/0C	20F/0C	30F/0C	7F/3C	17F/3C	27F/3C
ρ_{th} (kg/m^3)	905	928	953	979	930	955	981
ρ_{exp} (kg/m^3)	904	952	958	980	934	934	966
c_T/c_L	0,473	0,482	0,489	0,486	0,490	0,489	0,485
E_u (GPa)	3,71	4,05	4,40	4,61	4,25	4,64	4,93
ν_u	0,356	0,348	0,343	0,345	0,342	0,343	0,347

ρ_{th} (kg/m^3) : densité théorique; ρ_{exp} (kg/m^3) : densité expérimentale;
c_T / c_L : rapport expérimental de vitesse des ondes transversales et longitudinales;
constantes élastiques déduites : E_u (GPa): module d'Young et ν_u : coefficient de Poisson.

Comme résumé dans ce tableau, les valeurs obtenues expérimentalement ρ_{exp} présentent moins de 3% d'erreur relative comparé avec celles théoriques ρ_{th} (équation (III.9)).

En conséquence, les mesures ultrasonores (Figure III.5) nous ont permis de calculer le coefficient de Poisson ν_u (équation (III.8)) du composite PP/FBO. Cela est lié aux vitesses ultrasonores, à la densité et aux propriétés mécaniques [11] pour une plaque supposée homogène. On peut observer que les variations du coefficient de Poisson ν_u en fonction de la fraction massique de renfort m_{FBO}, ne sont pas vraiment significatives (Figure III.6 (b)). Les mesures montrent que le rapport de vitesse des ondes est presque constant $c_T / c_L \approx 0{,}48$, lorsque la charge de la charge FBO se situe dans la plage [0, 30%]. En développant les expressions de $\{E_u, \nu_u\}$ (équation (III.8)) en fonction de c_T / c_L au voisinage de 1/2, on obtient :

$$\begin{cases} E_{u,1} \approx \dfrac{2}{3}\rho c_L^2\left(1+\dfrac{10}{3}\left(\dfrac{c_T}{c_L}-\dfrac{1}{2}\right)\right) \\ \nu_{u,1} \approx \dfrac{1}{3}\left(1-\dfrac{8}{3}\left(\dfrac{c_T}{c_L}-\dfrac{1}{2}\right)\right) \end{cases} \qquad \text{(III.10)}$$



(a) (b)

Figure III.6 : **Propriétés élastiques mécaniques {E_u, ν_u} en fonction de la fraction massique de renfort m_{FBO} (%) pour les bio-composites PP/FBO et PP/FBOT : (a) module d'Young E_u (GPa) et (b) coefficient de Poisson ν_u.**

Les correspondances entre les variables élastiques mécaniques {E_u, ν_u} et ultrasonores {c_L, c_T} (équation (III.8)) sont valables pour les matériaux considérés élastiques, homogènes et isotropes. Dans le cas présent, il s'agit d'une hypothèse qui est vérifiée si l'on considère que l'onde ultrasonore a une longueur d'onde importante par rapport aux dimensions des renforts de FBO. En raison de cette hypothèse, l'effet de la qualité de l'interface renfort / matrice (rugosité, hétérogénéités) et le pourcentage de trous (taux de porosité) ne sont pas observables par ultrasons, mais sont le résultat réel d'une homogénéisation. L'évolution du module d'Young E_u en fonction de la fraction massique du renfort m_{FBO}, montre que le renfort en FBO conduit à rigidifier le composite résultant (Figure III.6 (a)). Les valeurs expérimentales du module d'Young mesurées par ultrasons E_u (Figure III.6 (a)) montrent une augmentation presque proportionnelle à la fraction massique des FBO, à la fois pour les plaques traitées et non traitées. En effet, le module d'Young E_u augmente de 3,7 GPa pour le PP à 4,6 GPa et 4,9 GPa pour des charges de 30% FBO et 30% FBOT, respectivement. Enfin, le coefficient de Poisson ν_u (Figure III.6 (b)) ne montre de variation significative selon la fraction massique des renfort m_{FBO}, avec une valeur centrée à 0,348±0,006, ce qui était attendu (équation (III.10)) avec $c_T / c_L \approx 0{,}48$.

III.3 Caractérisation mécanique

Pour la caractérisation mécanique, Nous avons réalisé des éprouvettes normalisées (ISO ½) (Figure III.7) avec la même matière et les mêmes portions de renfort de nos plaques de composites. Ces éprouvettes ont été soumises à des essais de traction au moyen d'une machine de traction préparée conformément aux conditions d'essai normalisées ISO 527-1&2 [12, 13] avec une machine de traction appropriée (Figure III.8).

Figure III.7 : **Eprouvettes PP/FBO avec m_{FBO} = 10% avant et après l'essai de traction.**

III.3.1 Dispositif de mesure

Comme illustré sur la Figure III.8, des essais de traction sont effectués sur un appareil MTS Criterion avec une cellule de charge de 1 kN. Ces tests sont effectués sur des échantillons de demie taille fabriqués conformément à l'ISO 527-2 [12]. Les conditions d'essai de traction sont effectuées selon la norme ISO 527-1 [13] c'est-à-dire que la vitesse de translation de la traverse est réglée à 1 mm / min. Afin de s'assurer d'une bonne reproductibilité, cinq échantillons ont été successivement placés entre deux supports et testé dans les mêmes conditions expérimentales. La mesure de déformation est obtenue à l'aide d'un extensomètre laser. Comme défini dans l'ISO 527-1, le module d'Young est évalué comme la pente moyenne des courbes contrainte-déformation entre 0,05% et 0,25% de déformation

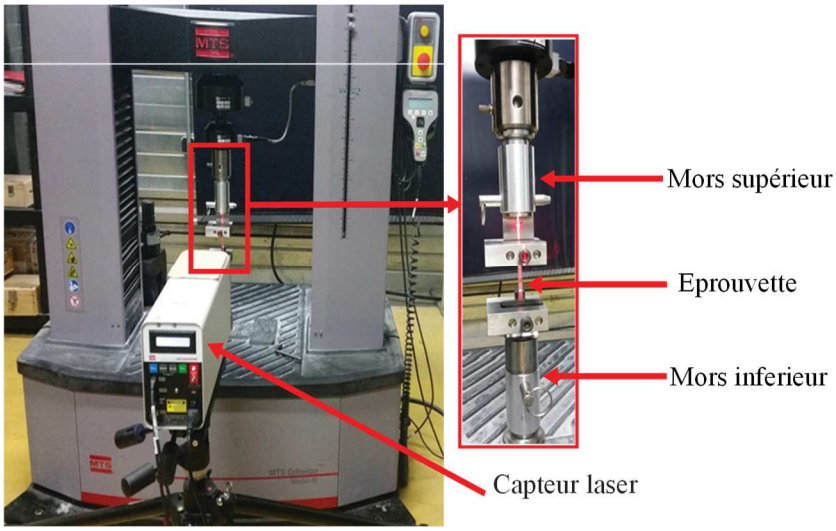
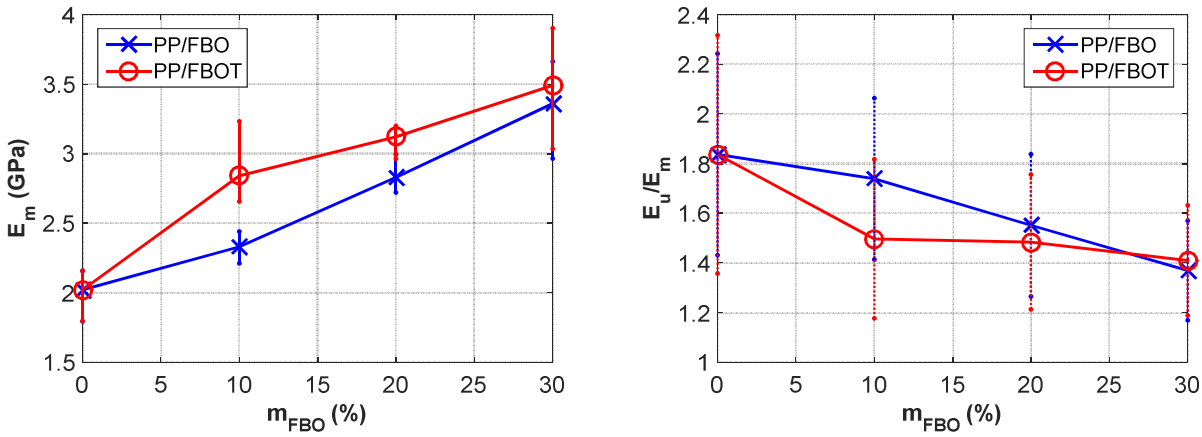


Figure III.8 : **Dispositif de traction.**

III.3.2 Mesures mécaniques

Suite aux essais de traction, le module d'Young mécanique E_m (Figure III.9 (a)) a été déterminé, sur la base d'une moyenne réalisée sur 4 éprouvettes de PP/FBO et PP/FBOT. L'erreur relative mesurée a été estimée à ±10%. Ces mesures ont ensuite été comparées avec le module d'Young ultrasonore E_u (Figure III.9 (b)). Pour cette raison, le rapport E_u/E_m entre les modules ultrasonore E_u et mécanique E_m a été tracé en fonction de la teneur de FBO.



(a) (b)

Figure III.9 : **Module d'Young en fonction de la fraction massique de renfort m_{FBO} (%) pour les bio-composites PP/FBO et PP/FBOT : (a) module d'Young mécanique E_m (GPa) et (b) rapport des modules d'Young ultrasonore et mécanique E_u / E_m.**

Comme pour les essais ultrasonores, plus la fraction massique de renfort m_{FBO} (%) augmente, plus le module d'Young E_m (GPa) est élevé (Figure III.9 (a)), i.e. la rigidité des plaques est accrue. La croissance observée est estimée pour le PP/FBO par régression linéaire autour de $\partial(E_m/E_{m,ref})/\partial m_{FBO} \approx 2$, en d'autres termes, une variation de charge massique $m_{FBO} = 10\%$ entraine une augmentation de $E_m \approx 1{,}2.E_{m,ref} \approx 2{,}4$ GPa. De même, les plaques avec traitement au silane PP/FBOT possèdent un module d'Young plus important que celles non traitées PP/FBO. Ce résultat est conforme à la tendance observée par ultrasons pour l'évolution de la vitesse longitudinale c_L plus élevée pour les plaques PP/FBOT que pour celles PP/FBO. Néanmoins, comme illustré par la Figure III.9 (b), même si les valeurs sont du même ordre de grandeur, elles sont différentes. Un facteur de corrélation peut être établi afin de remplacer le contrôle destructif mécanique par le contrôle non destructif par ultrasons. Le rapport E_u/E_m diminue de 1,8 à 1,4. La Figure III.10 montre que cette différence est due à la définition du module de Young E, qui est communément évaluée comme étant la pente $[\partial\sigma/\partial\varepsilon]_{\varepsilon\to 0}$ à l'origine de la courbe d'essai de traction $\sigma(\varepsilon)$ (Figure III.10 (a)). D'une part, le module d'Young dans sa définition mécanique E_m selon ISO 527-1 [13] est donné par :

$$E_m = \frac{\sigma_2 - \sigma_1}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1} \qquad \text{(III.11)}$$

où $\{\sigma_1, \sigma_2\}$ sont les valeurs de contrainte mesurées à la déformation normalisée $\{\varepsilon_1 = 0{,}05\%;\ \varepsilon_2 = 0{,}25\%\}$, avec une vitesse de déformation $\partial\varepsilon/\partial t$ de 1 mm/min sur un échantillon de 58 mm de longueur, i.e. $2{,}87.10^{-4}$ s^{-1}.

D'autre part, dans le domaine ultrasonore, E_u est évalué dans une plage de déformation inférieure à 0,05% (Figure III.10 (b)). En ce qui concerne la diminution des pentes dans les courbes de traction (Figure III.10 (a)), les valeurs du module d'Young ultrasonore E_u sont systématiquement plus importantes que les mesures mécaniques E_m (Figure III.10 (c)).

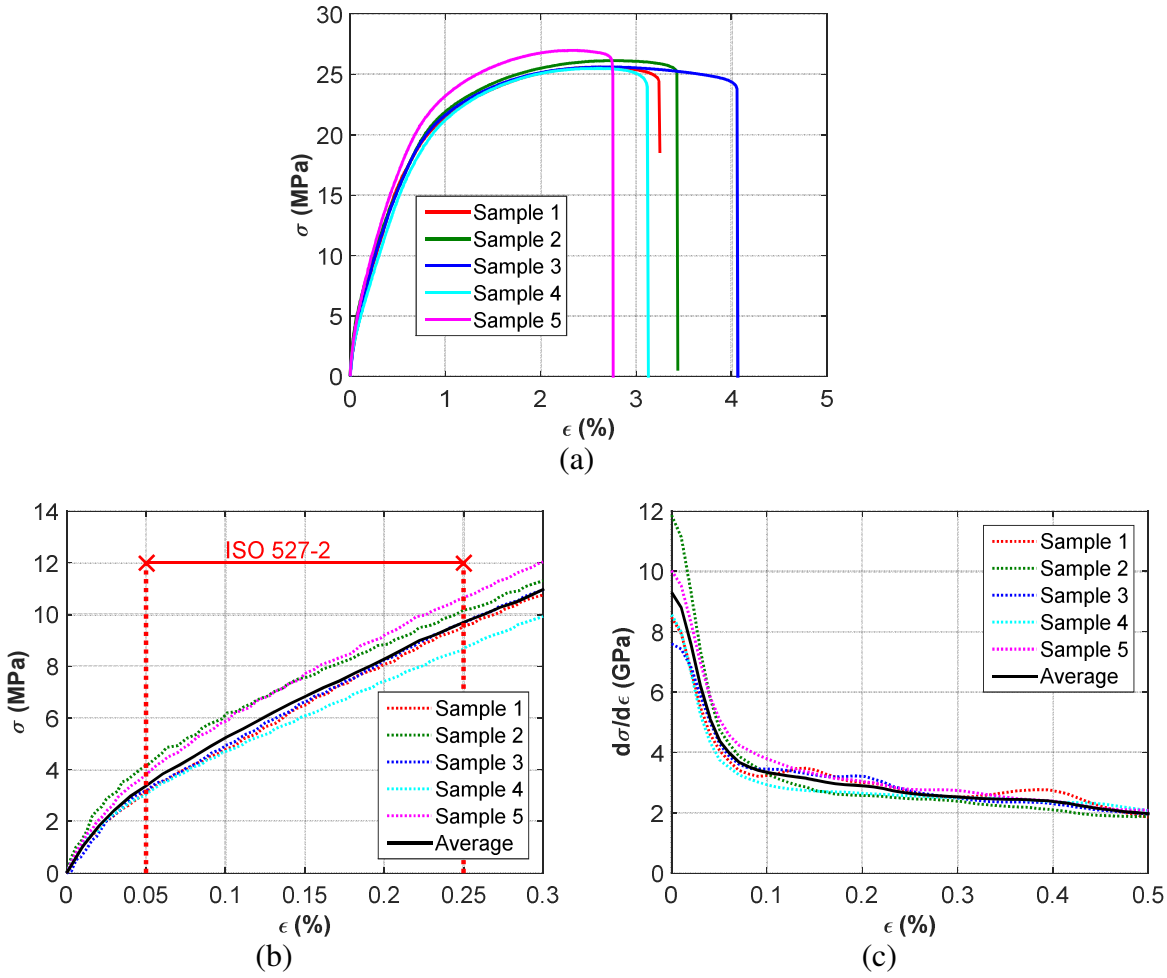


Figure III.10 : **Résultats des essais de traction mécanique sur un PP/FBO à 30% de FBO (a) σ(ε) pour ε compris entre 0 et 5% ; (b) σ(ε) pour ε compris entre 0 et 0,3% et (c) pente associée dσ/dε pour ε compris entre 0 et 0,5%.**

Comme l'illustre la Figure III.10 (a), la courbe de traction $\sigma(\varepsilon)$ ne semble pas présenter de comportement linéaire pour les faibles valeurs de déformation, c'est-à-dire que $\varepsilon < 0{,}5\%$. On peut observer l'évolution classique attendue pour un polymère thermoplastique, c'est-à-dire un comportement non linéaire. Cette observation est confirmée à la Figure III.10 (b) dans la plage de déformation [0 ; 0,5%]. Le tracé de la pente $\partial\sigma/\partial\varepsilon$ est également réalisé et illustré à la Figure III.10 (c). On observe qu'il décroît de façon monotone, alors qu'un palier constant est attendu en élasticité linéaire. Plus précisément, la courbe de pente $\partial\sigma/\partial\varepsilon$ présente une première diminution rapide dans la plage $\varepsilon \in$ [0% ; 0,05%], puis une diminution modérée et constante dans la plage $\varepsilon \in$ [0,1% ; 0,5%].

Ces résultats sont attendus et peuvent être expliqués par le fait que ni le domaine de déformation [ε_{min}, ε_{max}] (Figure III.11) [12, 13, 14], ni la vitesse de déformation $\partial\varepsilon/\partial t$ [16, 17] ne sont les mêmes pour les deux méthodes. A cela, on peut aussi ajouter le fait que bien que les compositions et procédés d'élaboration soient strictement les mêmes pour les éprouvettes et les plaques, les géométries, les épaisseurs et les sections de sollicitations sont différentes pour les essais ultrasonores et mécaniques. Pour ce qui est de la décroissance observée du rapport des modules d'Young E_u / E_m (Figure III.9 (b)), elle peut s'expliquer par le fait que l'augmentation de la fraction massique de renfort m_{FBO} a pour effet d'augmenter la rigidité du matériau bio-composite et d'en étendre le comportement élastique linéaire (Figure III.11).

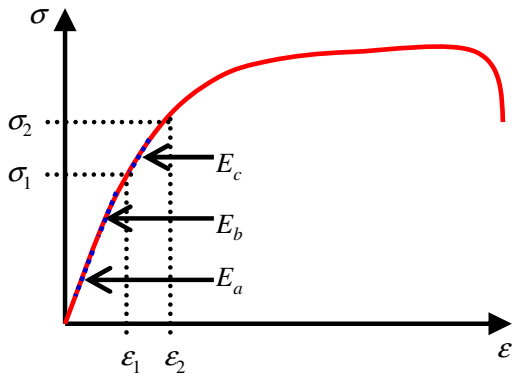


Figure III.11 : **Courbe de déformation élasto-plastique σ(ε).**

Pour la méthode mécanique, le domaine d'identification du module d'Young E_c (Figure III.9) est celui défini selon la norme ISO 527-1 par les contraintes [σ_1, σ_2] mesurées pour des déformations [ε_1, ε_2] = [0,05 % ; 0,25 %]. Pour la méthode ultrasonore, le domaine de sollicitation n'est pas connu précisément, mais se situe dans une zone de petites déformations compris entre ε_{a1} = 0 % et $\varepsilon_{a2} < \varepsilon_1$ = 0,05 %, et le module d'Young mesuré E_a, celui correspondant à cette déformation infinitésimale.

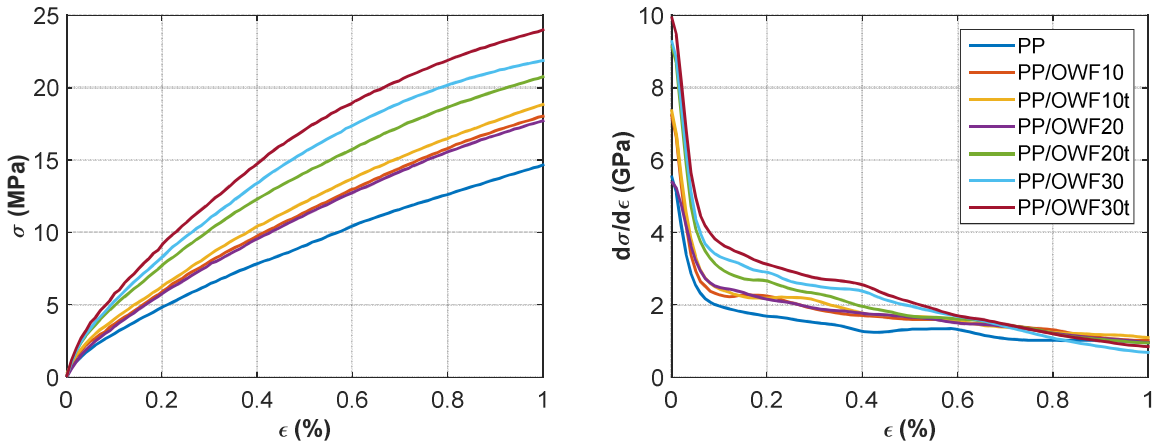
Cette évolution du module d'Young normalement défini par une constante $E = \partial\sigma/\partial\varepsilon$ dans la zone linéaire évolue ici de façon décroissante, comme l'illustre la Figure III.11. Ce comportement élasto-plastique pour lequel la courbe de déformation $\sigma(\varepsilon)$ ne présente pas de zone strictement linéaire est typique de nombreux polymères. Ainsi, dans ce domaine des

petites déformations, la pente de la courbe de traction mesurée $[\partial\sigma/\partial\varepsilon]_a = E_a$ est plus importante que celle du domaine de déformations supérieures $[\partial\sigma/\partial\varepsilon]_c = E_c$. Cela illustre encore la différence entre les valeurs des deux méthodes ultrasonore et mécanique, donnant un module d'Young ultrasonore E_u supérieur à celui dit mécanique E_m.

Même si ce comportement élastique non linéaire a déjà été mis en évidence [13, 12, 18], en particulier pour les matériaux polymères thermoplastiques, une discussion sur le sujet reste à développer. C'est l'objet de la discussion qui suit.

III.4 Discussion

Quelle que soit la fraction massique de FBO dans les échantillons, pour m_{FBO} variant de 0 à 30% on observe cette tendance. Par conséquence, la courbe de traction $\sigma(\varepsilon)$ (Figure III.12 (a)) montre une augmentation non linéaire en plus, la pente $\partial\sigma/\partial\varepsilon$ (Figure III.12 (b)) montre également une diminution non linéaire. Ce comportement non linéaire des polymères est bien connu et peut être lié aux modèles viscoélastiques de la fonction contrainte-déformation $\sigma(\varepsilon)$ [19, 20].



(a) **(b)**

Figure III.12 : **Effet la fraction massique de FBO dans les composites sur (a) la contrainte σ et (b) la contrainte sur la pente de déformation dσ/dε, en fonction de la déformation ε.**

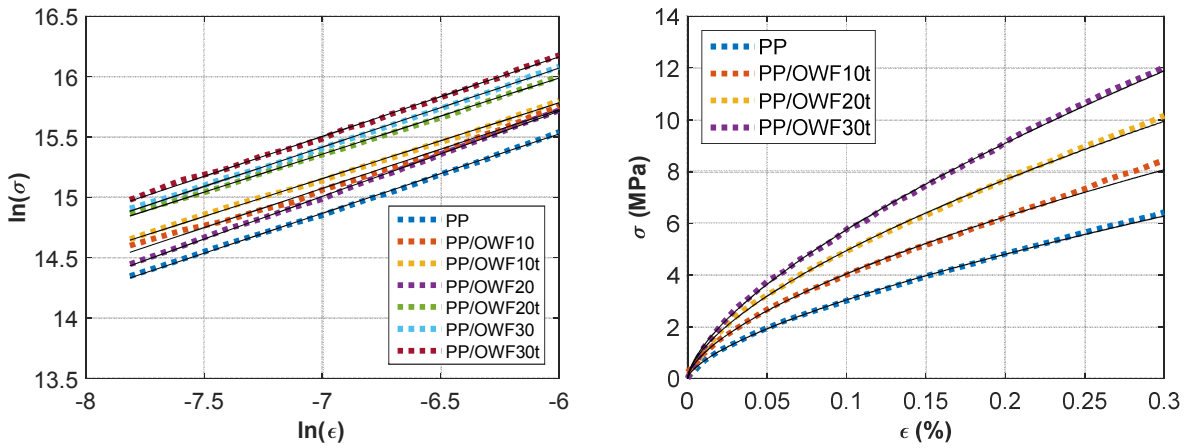
En conséquence, la viscoélasticité conduit à reconsidérer la fonction élastique standard contrainte-déformation impliquant le Module d'Young E dépendant de la fréquence et de la température [21, 22, 23]. En particulier, ces dépendances à la fréquence et à la température du module de Young ont été évalués pour le polypropylène [22].

De plus, vu la viscoélasticité, la vitesse de déformation $\partial\varepsilon/\partial t$ ainsi que la température T sont des paramètres clés pour l'évaluation du module d'Young E. Ceci a été démontré expérimentalement, modélisé et discuté par Mulliken et Boyce [24], Siviour et Jordan [25] et Cho et al. [26]. En effet, une attention particulière a été portée à cette étude pour maintenir la vitesse de déformation $\partial\varepsilon/\partial t$ et la température T constantes de sorte que leur influence peut être considérée négligeable.

Une première approche conduit à considérer que le comportement non linéaire de la courbe de traction $\sigma(\varepsilon)$ peut être ajusté par une loi de puissance, où le facteur de puissance est inférieur à un. C'est typiquement ce que propose la loi de Hollomon :

$$\sigma = K.\varepsilon^{n} \qquad \text{(III.12)}$$

En utilisant cette loi de puissance, les données expérimentales sont associées à une telle relation (Figure III.13 (a)). La loi de Hollomon résultant de l'ensemble des deux paramètres $\{K,\ n\}$ est illustrée à la Figure III.13 (b) par le tracé des courbes de traction, y compris la plage de déformation $\varepsilon \in$ [0,05% ; 0,25%] correspondant à la norme ISO 527-2.



(a) (b)

Figure III.13 : **Contrainte σ en fonction de la déformation ε: (a) Tracé en échelle ln-ln (b) en échelle linéaire.**

La régression linéaire des courbes en échelle ln-ln s'écrit :

$$\ln(\sigma) = \ln(k) + n.\ln(\varepsilon) \qquad \text{(III.13)}$$

Cette fonction est illustrée dans la plage de déformation $\varepsilon \in$ [0,05% ; 0,25%] (Figure III.13 (a)) et permet d'obtenir les deux paramètres inconnus, à savoir l'ordonnée à l'origine correspondant à la valeur logarithmique de la rigidité K (Figure III.14 (a)) et la pente correspondant au paramètre de loi de puissance n (Figure III.14 (b)). La rigidité K varie de 0,29 à 0,55 GPa et le paramètre de loi de puissance n est compris entre 0,63 et 0,67.

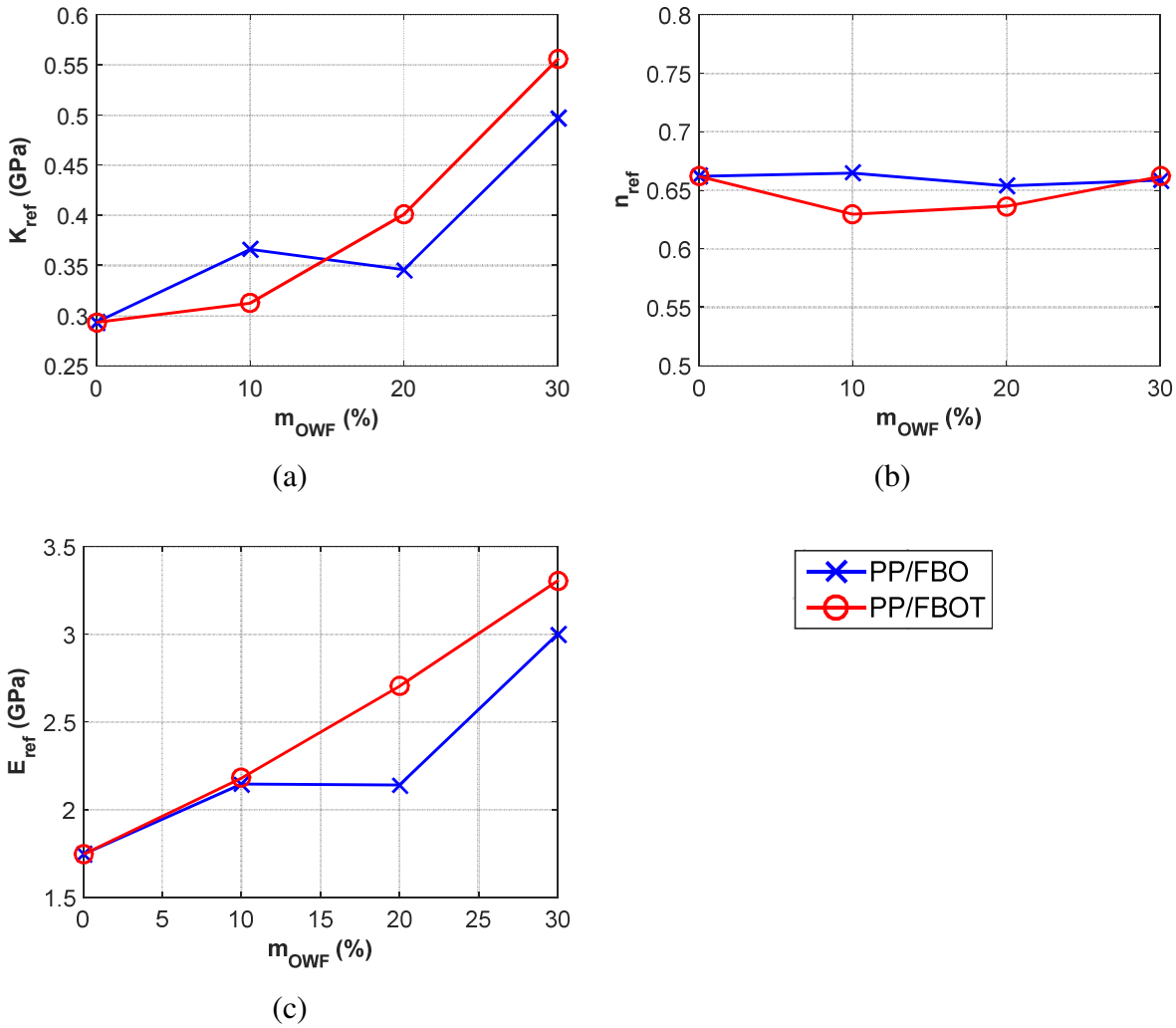


Figure III.14 : **Paramètres d'Hollomon {K_{ref}, n_{ref}} ajustés pour ε ∈ [0,05%, 0,25%] en fonction de m_{FBO} (%): (a) K_{ref}, (b) n_{ref} et (c) module élastique E_{ref} correspondants.**

Un ajustement de la loi de Hollomon autour d'un point de référence $\varepsilon_{ref} = 0{,}15\%$ conduit à relier un module de Young évalué E_{ref} de référence (Figure III.14 (c)) aux paramètres de la loi de Hollomon $\{K_{ref}, n_{ref}\}$. En effet, E_{ref} est défini par l'équation suivante :

$$E_{ref} = \left[\frac{\partial\sigma}{\partial\varepsilon}\right]_{\varepsilon_{ref}} = K_{ref}.n_{ref}.(\varepsilon_{ref})^{n_{ref}-1} \qquad \text{(III.14)}$$

À partir de ces résultats, on peut constater que le paramètre de puissance n_{ref} est très proche de 2/3 (à ±5%) et que, par conséquent, le module élastique de référence effectif E_{ref} peut être approximé par :

$$E_{ref} \approx \frac{2}{3} K_{ref}.(\varepsilon_{ref})^{-\frac{1}{3}} \qquad \text{(III.15)}$$

En conséquence, le module élastique E est une fonction décroissante de la déformation ε. Les valeurs obtenues pour le paramètre de module élastique E_{ref} variant de 1,7 à 3,3 GPa sont presque identiques à celles obtenues à partir de l'évaluation classique du module de Young E_m, de 2 à 3,5 GPa, sous-estimant celles obtenues à partir de mesures ultrasonores E_u de 3,7 à 4,9 GPa.

Cette approche basée sur la loi d'Hollomon a permis de faire le lien entre l'approche de l'élasticité classique (loi de Hooke) et les relevés expérimentaux présentés dans ce chapitre et corroborés par de nombreux auteurs qui ont pu travailler sur des matériaux similaires.

III.5 Conclusion

Dans cette étude, l'influence de la teneur en renfort issu de ressources naturelles de FBO dans une matrice PP a été étudiée, ainsi que l'effet du traitement chimique de la FBO. Ils sont corrélés au module d'Young du matériau composite. Deux types d'essais ont été réalisés : d'une part, une évaluation non destructive par ultrasons ; d'autre part, un essai mécanique destructif conventionnel, en suivant la procédure décrite dans l'ISO 527-1 pour la norme d'essai de traction pour les polymères.

Les propriétés élastiques des compositions PP/FBO étudiées ont été discutées et les évaluations ultrasonores et destructives ont donné des tendances similaires, même si les valeurs mesurées diffèrent. Les résultats peuvent être résumés comme suit :

- l'augmentation de la teneur en renfort et l'ajout d'un agent de couplage améliorent la rigidité des matériaux composites ;
- la rigidité est quantifiée et comparée par l'évaluation du module d'Young, soit par mesure ultrasonore (non destructives), soit par essai de traction mécanique (destructif) ;
- un facteur de corrélation entre les modules d'Young estimés est établi entre les valeurs ultrasonores (pour $\varepsilon < 0{,}05\%$) et les valeurs mécaniques (pour $0{,}05 < \varepsilon < 0{,}25\%$) ;
- les mesures par ultrasons montrent que les vitesses longitudinale et transversale augmentent dans les mêmes proportions, d'une part avec la teneur en renfort, d'autre part, avec l'ajout d'un agent de couplage.

Il est montré que dans le cas des tests mécaniques, la courbe contrainte σ en fonction de la contrainte ε n'est pas linéaire. Les composites étudiés sont des polymères thermoplastiques et sont connus pour leurs propriétés non linéaires. Plus précisément, ces courbes sont adaptées avec la loi puissance de Hollomon dans une large plage de déformations. Afin de comparer les propriétés élastiques linéaires classiques, nous avons évalué le module d'Young conformément à la norme ISO 527-1 dans une plage de déformation standard. Cette norme indique que le module de Young est évalué par la pente moyenne de la courbe de traction $\sigma(\varepsilon)$ dans la plage de référence de 0,05 à 0,25%. Une identification est effectuée entre les paramètres de la loi de Hollomon $\{K_{ref}, n_{ref}\}$ et le module d'Young estimé E_{ref} sur cette même plage de déformation et montre un bon accord.

Bibliographie

[1] J. M. Conoir, "Séries de Debye et interférences dans une plaque élastique", *Journal de Physique IV,* vol. 2, n° 1C1, pp. 695- 704, 1992.

[2] F. Simonetti et P. Cawley, "Ultrasonic interferometry for the measurement of shear velocity and attenuation in viscoelastic solids", *Journal of the Acoustical Society of America,* vol. 115, n° 11, pp. 157-164, 1 2004.

[3] J. Laperre, W. Thys, O. Lenoir et J. L. Izbicki, "Experimental determination of the transversal wave velocity in plates", *Journal d'Acoustqiue,* vol. 5, pp. 161-170, 1992.

[4] N. Bilaniuk et G. S. Wong, "Speed of sound in pure water as a function of temperature", *Journal of the Acoustical Society of America,* vol. 93, n° 13, pp. 1609-1612, 1993.

[5] E. Juliac, J. Arman et D. Harran, "Ultrasonic interferences in polymer plates", *Journal of the Acoustical Society of America,* vol. 104, n° 13, pp. 1232-1241, 9 1998.

[6] H. A. Waterman, "Determination of the complex moduli of viscoelastic materials with the ultrasonic pulse method (Part I)", *Kolloid-Zeitschrift und Zeitschrift für Polymere,* vol. 192, n° 11-2, pp. 1-8, 1963.

[7] A. El-Sabbagh, L. Steuernagel et G. Ziegmann, "Ultrasonic testing of natural fibre polymer composites: effect of fibre content, humidity, stress on sound speed and comparison to glass fibre polymer composites", *Polymer bulletin,* vol. 70, n° 12, pp. 371-390, 2013.

[8] H. A. Afifi, "Ultrasonic pulse echo studies of the physical properties of PMMA, PS, and PVC", *Polymer-Plastics Technology and Engineering,* vol. 42, n° 12, pp. 193-205, 2003.

[9] Y. Benveniste et G. W. Milton, "The effective medium and the average field approximations vis-a-vis the Hashin–Shtrikman bounds. I. The self-consistent scheme in matrix-based composites", *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 58, n° 17, pp. 1026-1038, 2010.

[10] A. M. Zihlif, R. A. Duckett et I. M. Ward, "The determination of the lateral compliances and Poisson's ratios for highly oriented polyethylene sheets", *Journal of Materials Science,* vol. 17, n° 14, pp. 1125-1130, 1982.

[11] C. H. Gür, "Investigation of microstructure–ultrasonic velocity relationship in SiCp-reinforced aluminium metal matrix composites", *Materials Science and Engineering: A,* vol. 361, n° 11-2, pp. 29-35, 2003.

[12] ISO 527-2:2012, "Plastiques - Détermination des propriétés en traction - Partie 2: Conditions d'essai des plastiques pour moulage et extrusion", 2012.

[13] ISO 527-1:2012, "Plastiques - Détermination des propriétés en traction - Partie 1: Principes généraux", 2012.

[14] M. F. Ashby et D. R. H. Jones, "Engineering materials 1: An introduction to properties, applications and design", Elsevier, 2012.

[15] B. J. Yang, B. R. Kim et H.-K. Lee, "Predictions of viscoelastic strain rate dependent behavior of fiber-reinforced polymeric composites", *Composite Structures,* vol. 94, n° 14, pp. 1420-1429, 2012.

[16] D. Notta-Cuvier, M. Nciri, F. Lauro, R. Delille, F. Chaari, F. Robache, G. Haugou et Y. Maalej, "Coupled influence of strain rate and heterogeneous fibre orientation on the mechanical behaviour of short-glass-fibre reinforced polypropylene", *Mechanics of Materials,* vol. 100, pp. 186-197, 2016.

[17] N. Bouhamed, S. Souissi, P. Marechal, M. B. Amar, O. Lenoir, R. Leger et A. Bergeret, "Ultrasound evaluation of the mechanical properties as an investigation tool for the wood-polymer composites including olive wood flour", *Mechanics of Materials,* p. 103445, 2020.

[18] F. Khan, C. Yeakle et S. Gomaa, "Characterization of the mechanical properties of a new grade of ultra high molecular weight polyethylene and modeling with the viscoplasticity based on overstress", *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials,* vol. 6, pp. 174-180, 2012.

[19] J. Kolařík et A. Pegoretti, "Non-linear tensile creep of polypropylene: Time-strain superposition and creep prediction", *Polymer,* vol. 47, n° 11, pp. 346-356, 2006.

[20] W. M. Madigosky et G. F. Lee, "Improved resonance technique for materials characterization", *Journal of the Acoustical Society of America,* vol. 73, n° 14, pp. 1374-1377, 1983.

[21] N. Lagakos, J. Jarzynski, J. H. Cole et J. A. Bucaro, "Frequency and temperature dependence of elastic moduli of polymers", *Journal of Applied Physics,* vol. 59, n° 112, pp. 4017-4031, 1986.

[22] F. M. Guillot et D. H. Trivett, "A dynamic Young's modulus measurement system for highly compliant polymers", *Journal of the Acoustical Society of America,* vol. 114, n° 13, pp. 1334-1345, 2003.

[23] A. D. Mulliken et M. C. Boyce, "Mechanics of the rate-dependent elastic–plastic deformation of glassy polymers from low to high strain rates", *International Journal of Solids and Structures,* vol. 43, n° 15, pp. 1331-1356, 2006.

[24] C. R. Siviour et J. L. Jordan, "High Strain Rate Mechanics of Polymers: A Review", *Journal of Dynamic Behavior of Materials,* vol. 2, n° 11, pp. 15-32, 2016.

[25] H. Cho, S. Mayer, E. Pöselt, M. Susoff, P. J. in't Veld, G. C. Rutledge et M. C. Boyce, "Deformation mechanisms of thermoplastic elastomers: Stress-strain behavior and constitutive modeling", *Polymer,* vol. 128, pp. 87-99, 2017.

[26] N. H. Tung, H. Yamamoto, T. Matsuoka et T. Fujii, "Effect of surface treatment on interfacial strength between bamboo fiber and PP resin", *International Journal Series A: Solid Mechanics and Material Engineering,* vol. 47, n° 14, pp. 561-565, 2004.

Chapitre IV

Cartographies ultrasonores et tomographie des rayons X des plaques de bio-composite

IV.1 Introduction

Dans ce chapitre, la répartition des charges dans les plaques est analysée au moyen de deux méthodes : la réflectométrie ultrasonore et la tomographie par rayons X. Sous certaines hypothèses, ces mesures peuvent être reliées à l'estimation du niveau d'homogénéité des plaques et de la dispersion du FBO dans la matrice. Ces estimations peuvent être comparées pour les différentes plaques en fonction du taux de fibres.

L'objectif de ces analyses vise donc à évaluer l'état intérieur de la composition des plaques. Diffèrent types de cartographies ultrasonores sont présentées : mesure des temps de vol et mesure d'atténuation dans les plaques. Connaissant l'épaisseur de la plaque, ces mesures permettent d'estimer la vitesse et l'atténuation longitudinales qui se propagent dans les plaques. Ces résultats nous permettent d'analyser la répartition des charges dans une plaque, de détecter la présence de défauts et d'évaluer leur taux par une méthode non destructive.

Enfin, des résultats provenant de mesures de tomographie par rayons X sont présentés, permettant d'obtenir des plans de coupe des plaques. Ces mesures ont alors permis d'estimer la dispersion des fibres, les taux de porosités et d'agglomérats et donc l'homogénéité pour les différentes plaques en fonction du taux de fibres.

IV.2 Représentation des signaux ultrasonores

Cette caractérisation ultrasonore des plaques PP/FBO vise à établir une cartographie (x, y) permettant d'estimer l'homogénéité des propriétés, et éventuellement de quantifier les dimensions des défauts et des hétérogénéités. Dans le domaine de l'END/CND ultrasonore, les représentations des signaux sont connues par les dénominations A-scan, B-scan et C-scan.

Les définitions de ces différentes dénominations sont rappelées ici.

IV.2.1 A-scan

La représentation la plus élémentaire d'un signal ultrasonore consiste à représenter l'amplitude du signal en fonction du temps à une position (x, y) donnée, afin de visualiser les différents échos propres à l'émission d'ultrason. Ainsi les échos réfléchis par un échantillon sont contenus dans un signal $s_A(t)$, fonction du temps.

Une alternative consiste à représenter la valeur absolue $s_{A,abs}(t) = |s_A(t)|$ ou l'enveloppe $s_{A,env}(t) = |\text{Hilbert}\{s_A(t)\}|$. Dans un A-scan, le transducteur est fixe, il émet une onde ultrasonore dans l'échantillon, puis il permet ensuite de relever les échos réfléchis. Dans le cas d'un milieu caractérisé par une vitesse de propagation uniforme, une variante consiste à convertir l'axe du temps en une profondeur : $s_A(z) = s_A(c.t/2)$.

La Figure IV.1 schématise ce type de représentation dans le cas d'une évaluation par un transducteur ultrasonore.

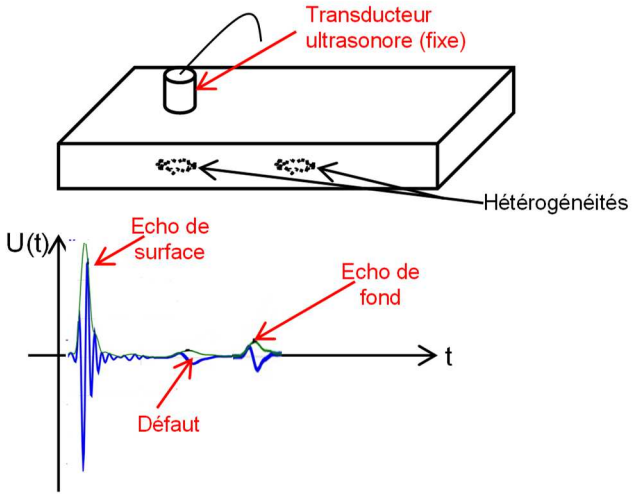
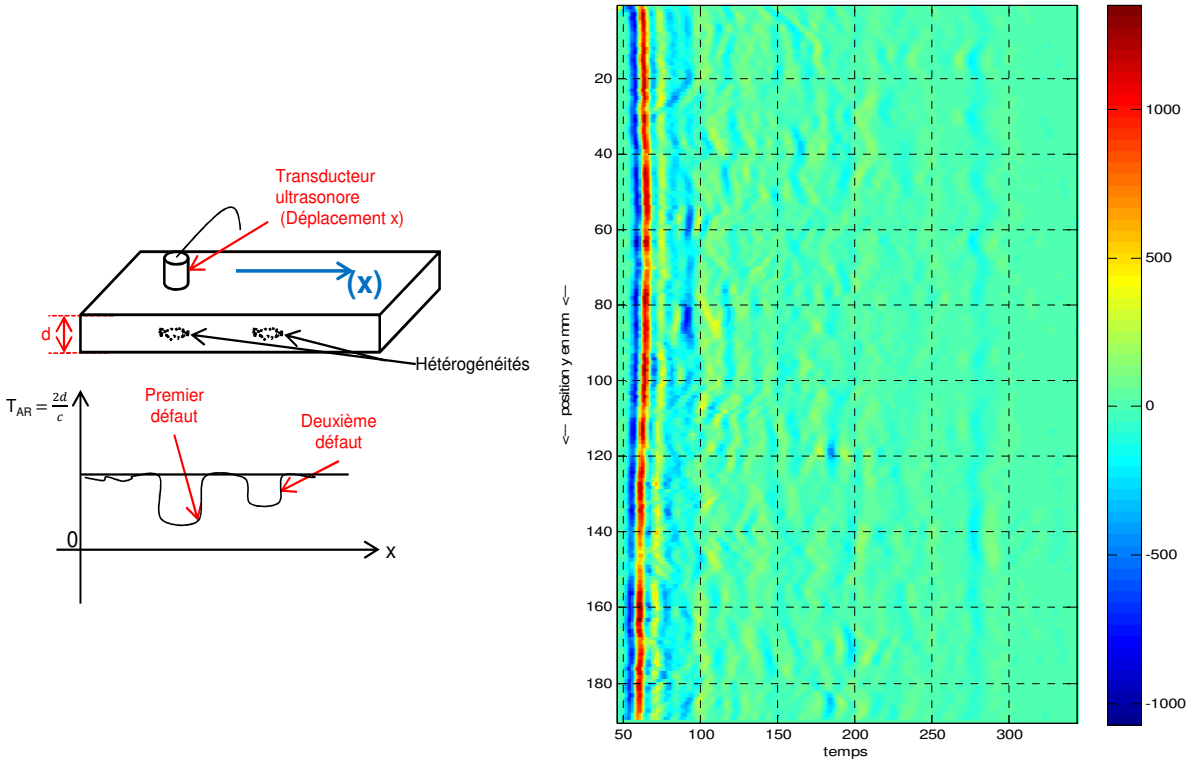


Figure IV.1 : **Représentation A-scan dans le cas d'une évaluation par un transducteur ultrasonore [3, 4].**

IV.2.2 B-scans

Un B-scan est une agglomération de plusieurs A-scans chacun associé à une position x, dans un B-scan le transducteur se déplace dans une direction donnée x. Similairement au A-scan, un B-scan représente les variations de l'amplitude $s_B(x, t)$ en fonction de la position x et du temps t, ou celles de la valeur absolue $s_{B,abs}(x, t) = |s_B(x, t)|$ ou l'enveloppe $s_{B,env}(x, t) = |\text{Hilbert}\{s_B(x, t)\}|$. Dans le cas d'un milieu caractérisé par une vitesse de propagation uniforme, une variante consiste à convertir l'axe du temps en une profondeur : $s_B(x, z) = s_B(x, c.t/2)$. On peut donc représenter un B-scan comme une image géométrique (longueur vs épaisseur) avec une échelle de couleur (amplitude).

La Figure IV.2 (a) illustre schématiquement ce type de représentation, et la Figure IV.2 (b) présente le cas d'étude d'un composite époxy/carbone, laissant paraitre des réflexions internes.



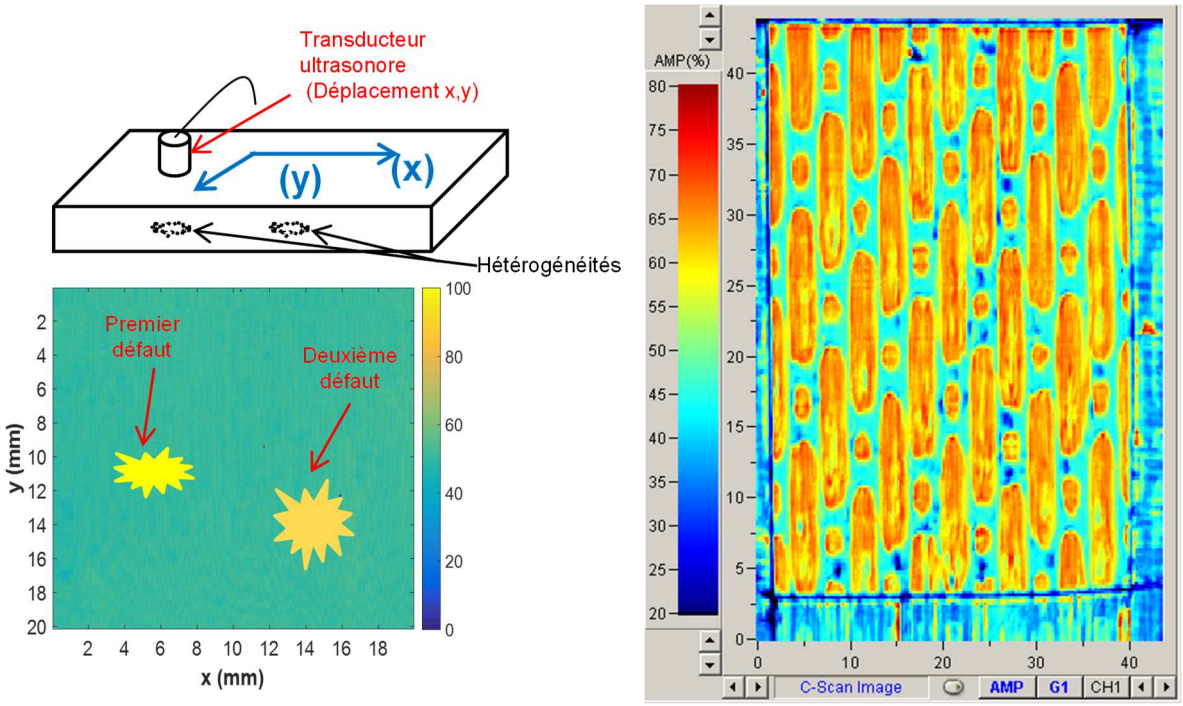
(a) (b)

Figure IV.2 : **B-scan : (a) schéma de principe : amplitude en fonction de (x, t) [3, 4] ; (b) illustration : échos $s_B(x, t)$ de surface d'un composite époxy/carbone, obtenue avec un transducteur 15 MHz focalisant (Annexe 2).**

IV.2.3 C-scans

Un C-scan est une image qui représente l'amplitude du signal réfléchi dans une zone de balayage (x, y). Une valeur de l'amplitude est codée pour chaque point d'inspection (x, y) avec un niveau de couleur. Un C-scan est donc une image d'amplitude $s_C(x, y)$ (longueur vs largeur) donnant une information dans un plan de coupe situé à une profondeur donnée, soit typiquement une information moyennée pour l'écho de surface ou l'écho de fond. Généralement, l'amplitude considérée résulte de l'enveloppe du signal : $s_C(x, y) = \max\{|\text{Hilbert}\{s(x, y, t)\}|\}_{[t_{\min} < t < t_{\max}]}$.

La Figure IV.3 (a) illustre schématiquement ce type de représentation, et la Figure IV.3 (b) présente le cas d'étude d'un composite époxy/carbone, dont les torons de fibres présentent une plus grande échogénicité ultrasonore.



(a) (b)

Figure IV.3 : **C-scan : (a) schéma de principe : amplitude en fonction de (x, y) ; (b) illustration : amplitudes sc(x, y) des échos de surface d'un composite époxy/carbone, obtenue avec un transducteur 15 MHz focalisant (Annexe 2).**

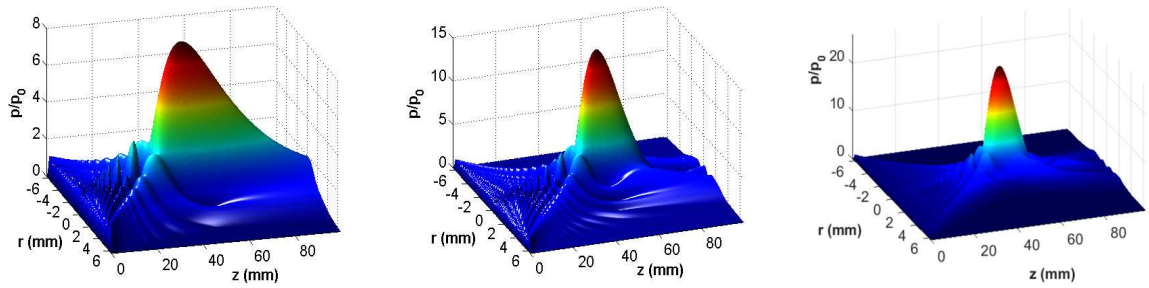
IV.3 Cartographies ultrasonores des vitesses longitudinales des ondes ultrasonores

IV.3.1 Configuration

On a choisi pour cette étude ultrasonore la méthode de réflexion d'un signal impulsionnel. Cette méthode présente l'avantage de nécessiter peu de réglages : perpendicularité du faisceau ultrasonore et distance à la surface supérieure de la plaque inspectée.

Le choix du transducteur dépend du plusieurs facteurs tels que la fréquence et la profondeur du champ. En effet, une basse fréquence est nécessaire pour un « bon » rapport signal sur bruit ou RSB élevé (en anglais : Signal to Noise Ratio ou SNR). Ce rapport est d'autant plus grand que le bruit est négligeable. Par ailleurs, une haute fréquence est nécessaire pour une bonne résolution. Enfin, les champs ultrasonores rayonnés présentent des amplitudes plus ou moins fortes en fonction de la position (x, y) dans les plaques et de la profondeur z.

Ainsi, la Figure VI.4 illustre les champs de pression normalisés, $p(r, z)/p_0$, en fonction de la position radiale r et de la profondeur z, rayonnés par les transducteurs focalisés à 5 MHz (Figure IV.4 (a)), 10 MHz (Figure IV.4 (b)) et 15 MHz (Figure IV.4 (c)). On peut y observer nettement l'effet de la fréquence dont l'augmentation a pour résultat d'affiner la zone de focalisation (profondeur de champ et résolution latérale) et donc l'information élémentaire relevée sur la plaque inspectée.



(a) (b) (c)

Figure IV.4 : **Champs rayonnés par les transducteurs focalisés à (a) 5 MHz (a), (b) 10 MHz (b) et (c) 15 MHz (c).**

Pour notre étude, les enregistrements ont été effectués avec un transducteur mono-élément focalisant de fréquence f_0 = 15 MHz, de distance focale F = 2" = 50,8 mm, de bande passante relative à –6 dB $\Delta f_{6,r}$ = 45% et de diamètre D = 0,5" = 12,7 mm (Annexe 2). Le champ rayonné est analogue à celui de la Figure IV.4(c).

Pour réaliser les cartographies C-scans des plaques, on dispose le transducteur à immersion à 55 mm au-dessus de la plaque étudiée. Cette distance correspond à l'estimation qui peut être obtenue en étudiant le champ rayonné dans l'axe, tel que l'illustre la Figure IV.5 dans le cas d'une cible ponctuelle. On peut y relever un maximum pour une position du transducteur par rapport à la cible aux environs de 50 mm. Expérimentalement, ce maximum est obtenu pour 55 mm du fait que la réflexion résulte d'une cible plane et donc des interférences obtenues sur une zone plus importante, définie par un domaine d'intégration (X, Y). Cela se traduit en terme de diffraction ultrasonore par :

$$\overline{p}(x, y) = \frac{1}{XY} \iint_{X,Y} p(x', y').dx'.dy' \qquad \text{(IV.1)}$$

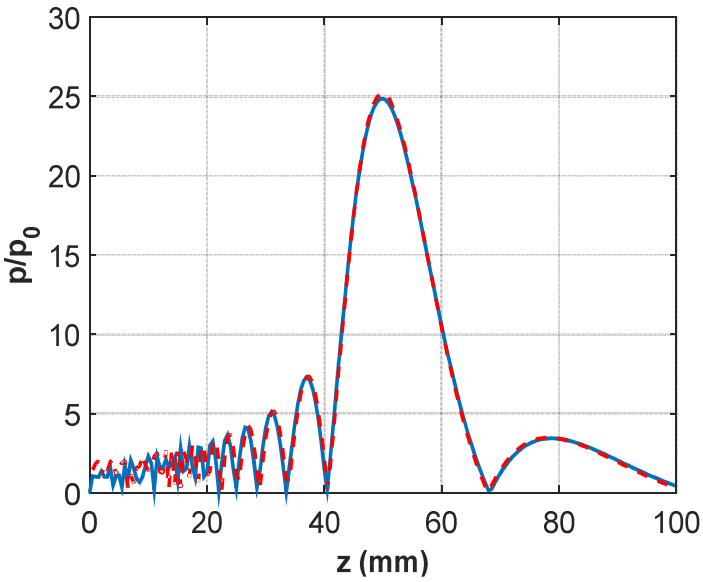


Figure IV.5 : **Champ rayonné dans l'axe du transducteur : expression analytique (bleu continu) et par décomposition en surfaces élémentaires (rouge pointillé).**

On réalise ensuite un balayage (x, y) sur une zone précise avec ce transducteur (Figure IV.6).

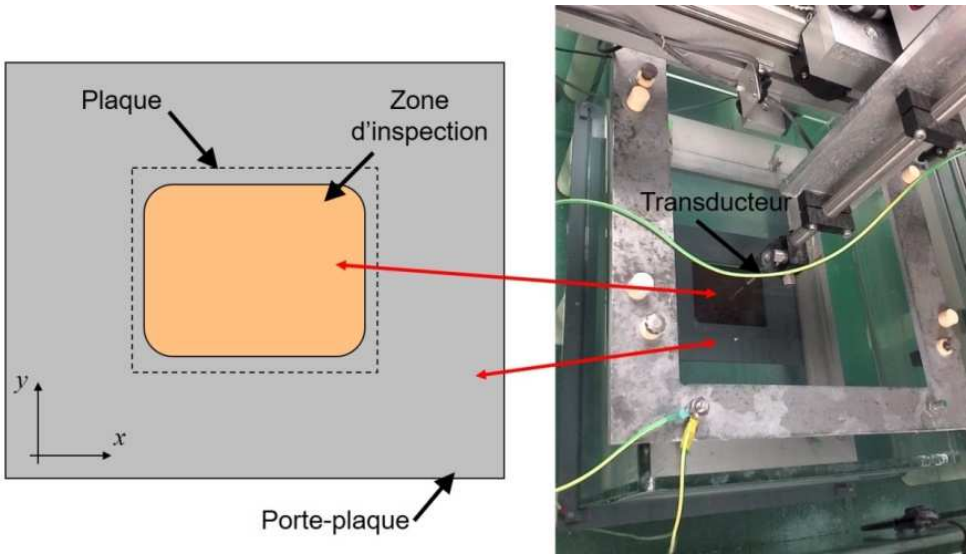


Figure IV.6 : **Montage expérimental.**

La plaque est fixée sur un porte-plaque pour assurer sa planéité et empêcher le déplacement de la plaque lors de l'essai. Le porte-plaque couvre aussi les bordures des plaques (zones de concentration de l'effet de bord). Aussi, les expériences sont faites sur un carré de 20×20 mm², loin des bordures et au milieu de la plaque, permettant de définir une même zone d'inspection pour toutes les plaques.

Le matériel utilisé (Figure VI.7) comprend un ordinateur dans lequel est installé un logiciel qui permet de piloter les trois axes (x, y, z). Il pilote aussi un générateur de signaux et reçoit les échos réfléchis par la plaque. On peut réaliser des enregistrements de signaux de type A-scans, B-scans et C-scans, et stocker les résultats via un logiciel d'acquisition et traitement du signal (UTwin d'Eurosonics). Ce logiciel permet l'utilisation d'un dispositif de commande (Mistras) qui permet le déplacement sur les trois axes en cliquant sur des flèches. Les vitesses selon les trois axes sont indépendantes. Le C-scan est réalisé avec un balayage fin, en cohérence avec la résolution du transducteur. En l'occurrence, un pas de déplacement mécanique de 0,1 mm a été choisi. L'excitation électrique consiste en une impulsion d'amplitude 10 V, Le gain est de 18 dB et une moyenne sur 10 acquisitions. L'eau de la cuve est maintenue à une température constante et homogène par un système de double cuve. En effet la cuve extérieure est chauffée avec deux résistances chauffantes ce qui assure l'homogénéisation de la température dans la cuve intérieure. La température moyenne θ (en °C) dans l'eau influe sur la vitesse de propagation dans l'eau c_{eau} , avec une sensibilité de l'ordre de 3,2 m/s/°C :

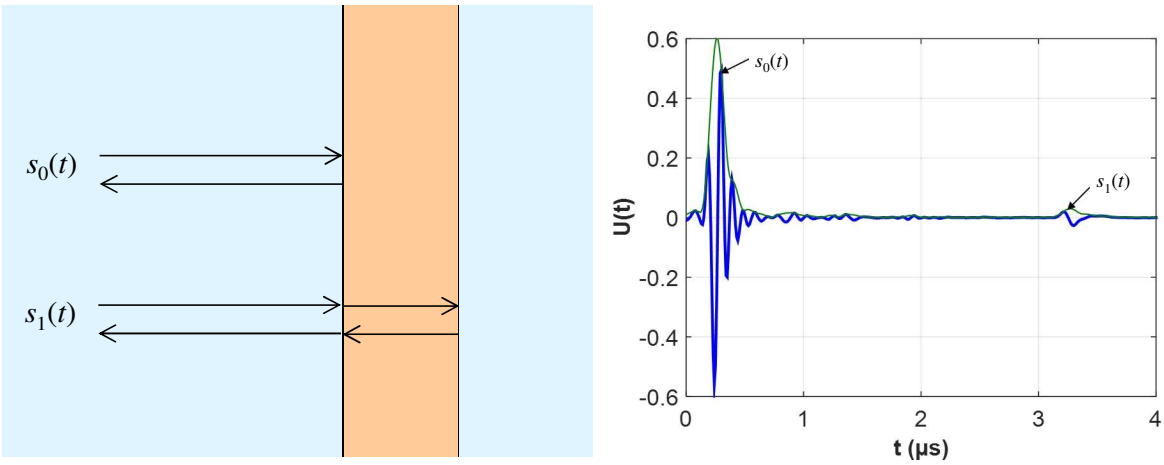
$$c_{eau} = 1420 + 3,225.\theta \qquad \text{(IV.2)}$$

Les acquisitions des signaux sont réalisées via un oscilloscope Yokogawa qui permet une numérisation sur 12 bits, et une moyenne sur 1024 acquisitions. Une station de travail complète le dispositif (Figure IV.7).

(a) (b)

Figure IV.7 : **Montage expérimental : (a) vue d'ensemble incluant le système d'émission-réception et celui de commande des axes moteurs, (b) cuve avec déplacements (x, y, z).**

En chaque point de mesure un signal A-scan est enregistré. Les signaux acquis sont de la forme de celui de la Figure IV.8 (b).



(a) (b)

Figure IV.8 : **Signal obtenu par réflectométrie sur une plaque de PP/FBO 10% : (a) échos d'interfaces $s_0(t)$ et $s_1(t)$; (b) signal global s(t), incluant les échos d'interfaces.**

En chaque point de mesure un signal A-scan est enregistré. Les signaux acquis sont de la forme de celui de la Figure IV.8 (b). Le signal temporel (en bleu) présente des oscillations à la fréquence centrale du transducteur. L'enveloppe y est calculée et représentée (en vert) afin de permettre une détermination précise du temps de vol. Ces signaux sont traités par le logiciel Matlab pour évaluer les valeurs de la vitesse des ondes longitudinales à partir des mesures du temps de vol entre deux échos. Chaque signal obtenu contient au moins deux échos successifs (Figure IV.8 (b)). L'écho de réflexion de surface $s_0(t)$ est généralement l'écho d'amplitude la plus forte. Il est ensuite suivi de nombreuses réflexions internes, et l'écho de fond $s_1(t)$ résulte de la réflexion à l'arrière de la plaque (Figure IV.8 (a)). A l'aide d'un logiciel de traitement du signal spécifique, des paramètres sont extraits du signal global acquis tel que le maximum d'amplitude et le temps de vol correspondant. Ces quantités scalaires positives sont stockées pour chaque point (x, y). En conséquence, ces échos de réflexion de surface $s_0(t)$ et d'écho de fond $s_1(t)$ contiennent des informations sur les propriétés ultrasonores du point insoné (x, y), avec une taille de tache focale qui peut être liée aux caractéristiques du transducteur. Ces valeurs obtenues lors du balayage x-y fournissent les points d'une cartographie. Le deuxième écho, généralement d'amplitude inférieure au le premier permet de localiser la diminution d'amplitude lors du trajet aller-retour dans l'épaisseur de la plaque. Cette réduction d'amplitude est la cause des effets combinés de l'atténuation intrinsèque, de la porosité, des réflexions internes et de la rugosité des interfaces [5].

IV.3.2 Détectabilité

En tant que paramètre clé, la longueur d'onde de l'onde ultrasonore d'émission conditionne la taille des réflecteurs qui peuvent être détectés dans le milieu insoné. Afin de pouvoir dissocier les signaux impulsion-écho, cela implique que la plaque PP/FBO soit suffisamment épaisse pour éviter le chevauchement des échos. Une estimation de la résolution peut être exprimée en fonction de la fréquence centrale du transducteur f_0 = 15 MHz et d'une largeur de bande relative $\Delta f_{6,r}$ = 45%. En particulier, pour un écho à enveloppe gaussienne, sa durée à mi-hauteur t_6 peut être directement liée à la fréquence centrale du transducteur f_0 et à la bande passante relative $\Delta f_{6,r} = \Delta f_6/f_0$:

$$t_6 \approx \frac{0,88}{f_0.\Delta f_{6,r}} \qquad \text{(IV.3)}$$

Cette hypothèse donne une bonne estimation des caractéristiques de la réponse impulsionnelle du transducteur. Ainsi, la limite de détection théorique donne une résolution axiale $\Delta z_6 \approx c_w.t_6/2 = 0{,}44.\lambda_0/\Delta f_{6,r}$, soit approximativement $\Delta z_6 \approx \lambda_0$ dans le cas présent, du fait que la bande passante relative a été mesurée à $\Delta f_{6,r} = 45\%$

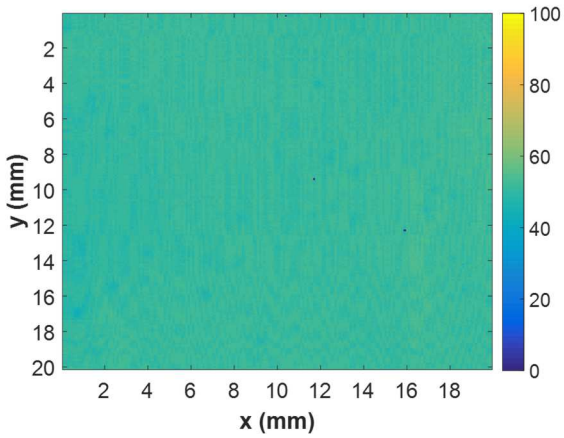
En complément, la taille théorique de la zone d'insonation correspond à la résolution radiale impulsion-écho et est donnée par $\Delta r_6 \approx \lambda_0 F/D$. Le transducteur utilisé dans cette étude est un transducteur focalisant qui donne un rapport $f_{num} = F/D = 4$, assurant une résolution radial $\Delta r_6 \approx 4\lambda_0$.

IV.3.3 C- Scans

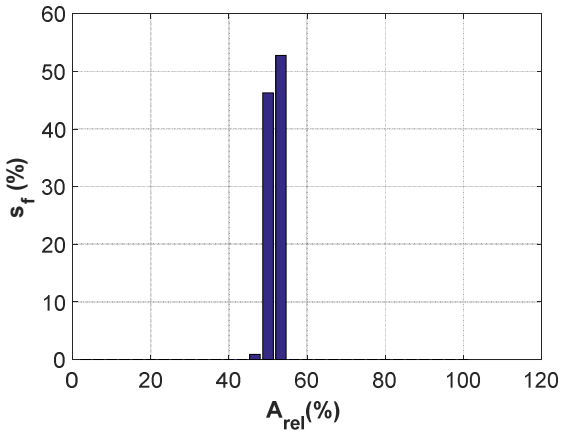
Des cartographies limitées à 20×20 mm^2 sont représentées sur la Figures VI.9 (a) à (d). Les maxima des échos de surface sont représentés pour la plaque en polypropylène sur la Figure IV.9 (a), pour la plaque PP/FBO 10% sur la Figure IV.9 (b), pour la plaque PP/FBO 20% sur la Figure IV.9 (c), pour la plaque PP/FBO 30% sur la Figure IV.9 (d). Le C-scan de l'écho de surface renseigne sur la première couche rencontrée par le faisceau. Les niveaux de couleur signifient une réflexion forte (jaune) à faible (bleu). Par la suite, les maxima des échos sont séparés en trois zones : amplitude élevée (jaune), amplitude moyenne (vert) et faible amplitude (bleu). Les maxima de l'écho de fond ne présentent pas le même motif que celui des maxima de l'écho de surface car le faisceau ultrasonore est moyenné en raison du trajet aller-retour dans l'épaisseur de la plaque. De plus, les fibres de bois dispersées de façon aléatoire provoquent une multi-diffusion et créent des zones de porosités diverses. Ainsi, le signal faible (bleu) reflète principalement l'atténuation intrinsèque et la diffusion par les manques de matière.

Les histogrammes de la fraction surfacique $s_f(\%)$ indiquent la distribution des amplitudes relatives (de 0 à 100%) A_{rel} (%) normalisées pour chaque acquisition et sont représentés sur la Figures VI.9 (a') à (d'). Etant donnée l'homogénéité de la cartographie de l'écho de surface, la Figure IV.9 (a') présente l'histogramme de la plaque en polypropylène qui montre un domaine restreint d'amplitude qui est maximale entre 50% et 55%.

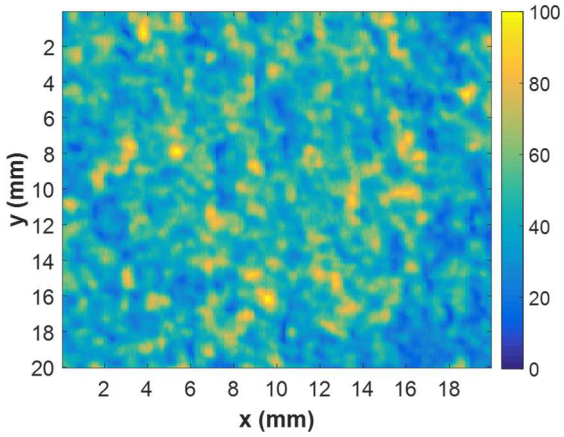
Cette très faible dispersion confirme l'homogénéité, la planéité, et le bon état de surface de cette plaque. La Figure IV.9 (b') expose l'histogramme de la plaque PP/FBO 10%, on remarque que le domaine est très large et compris de 5% à 90%, avec un maximum de la distribution l'amplitude est observée à 40%. Cette grande dispersion d'amplitude est due à l'hétérogénéité du matériau du fait de la mauvaise dispersion de la farine de bois d'olivier et de la présence de bulles d'air. Cela est clairement visible sur C-scan dont les variations paraissent aléatoires (bleu, vert et jaune).



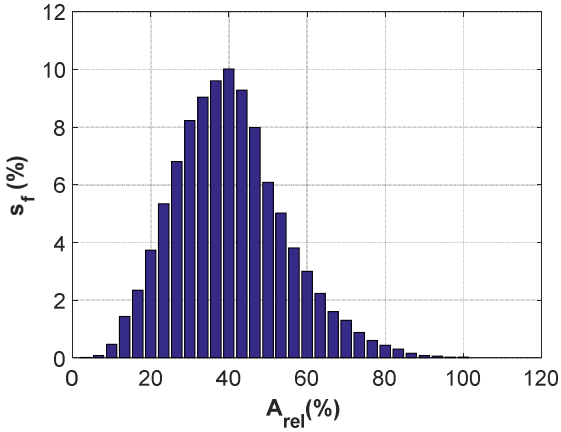
(a)



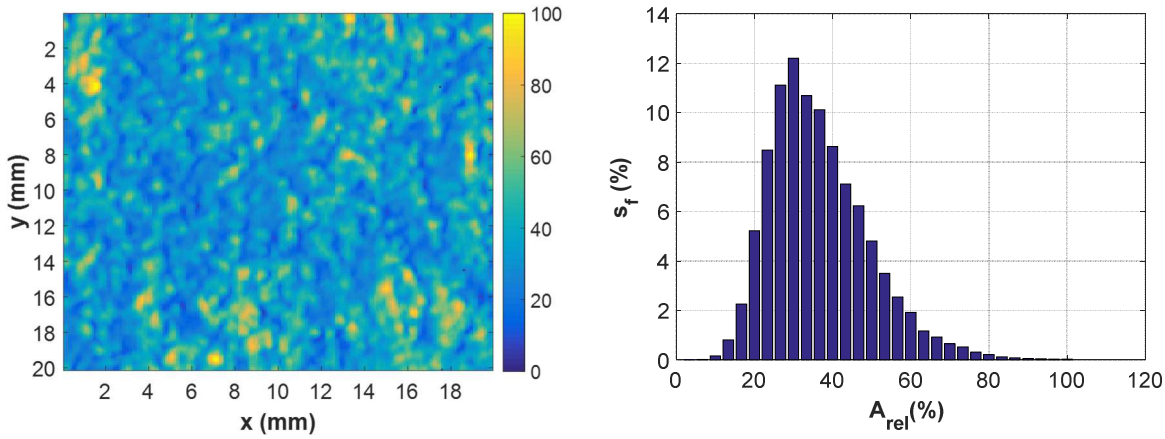
(a')



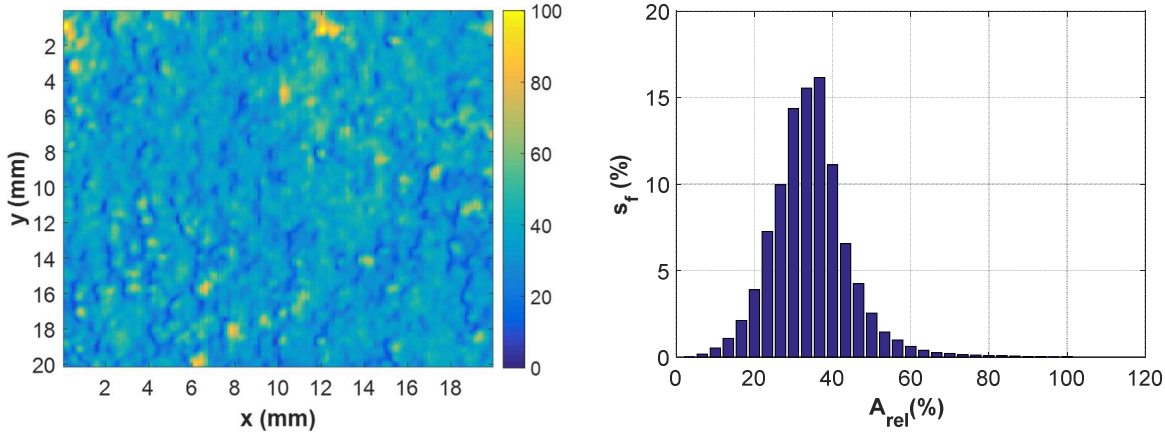
(b)



(b')



(c) (c')



(d) (d')

Figure IV.9 : **Amplitudes des échos de surfaces (a), (b), (c), (d) : C-scans, et (a'), (b'), (c'), (d') : histogrammes de la fraction surfacique s_f(%) pour les plaques de (a), (a') :PP ; (b), (b') :PP/FBO10 ; (c), (c') :PP/FBO20; (d), (d') :PP/FBO30.**

IV.3.4 Traitements des données

Dans le domaine temporel, le temps de vol $t_2 - t_1$ et le rapport d'amplitude A_1 / A_2 sont évalués à partir des deux premiers échos aller-retour $s_1(t)$ et $s_2(t)$. Ces échos aller-retour dans la plaque peuvent être écrits sous une forme proche comme suit :

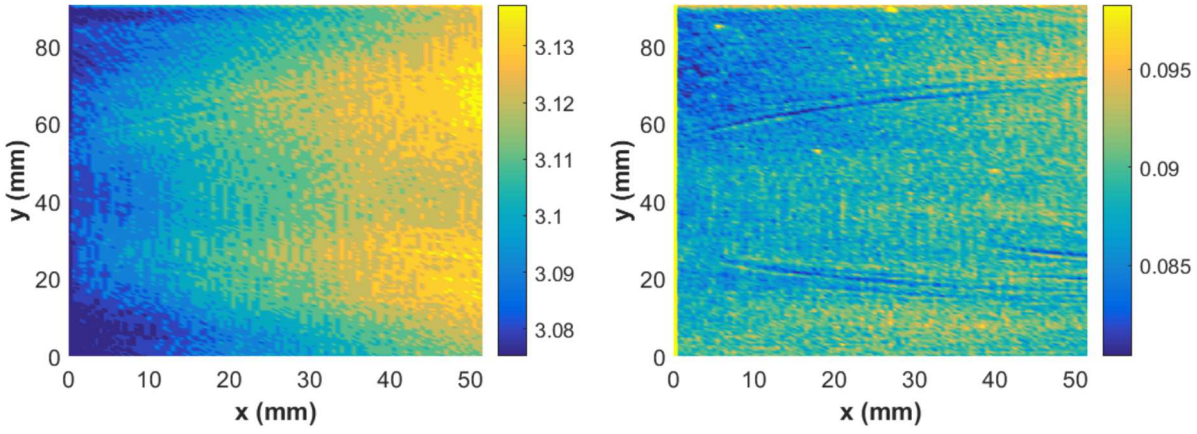
$$s_n(t) = A_0 . s_{in}(t - \tau_w - t_n) . e^{-2\alpha_w d_w} . e^{-2n\alpha_p d_p} T_{wp} R_{pw} T_{pw} (R_{wp} R_{pw})^{n-1} \qquad \text{(IV.4)}$$

où $\tau_w = 2d_w/c_w$ correspond au retard de propagation dans l'eau; $t_n = 2nd_p/c_p$ correspond au temps de propagation du $n^{ième}$ aller-retour dans la plaque étudiée; $\{\alpha_w, \alpha_p\}$ sont respectivement l'atténuation dans l'eau et dans la plaque; $\{d_w, d_p\}$ sont respectivement les distances de propagation dans l'eau et dans l'épaisseur de la plaque; $\{T_{ij}, R_{ij}\}$ avec $\{i, j\} \in \{w, p\}$ sont les coefficients de transmission et de réflexion [6] du milieu indexé i ou j, respectivement.

Puisque $R_{pw} = -R_{wp}$, en utilisant l'ensemble $\{t_n, A_n\}$ avec $n = \{1, 2\}$, t_n le temps de vol et A_n l'amplitude du $n^{ième}$ écho aller-retour dans la plaque étudiée, la vitesse des ondes longitudinales c_{p21} et l'atténuation α_{p21} dans la plaque s'exprime comme suit :

$$\begin{cases} c_{p21} = \dfrac{2d_p}{t_2 - t_1} \\ \alpha_{p21} = \dfrac{1}{2d_p} \log\left(\dfrac{A_1}{A_2} \left| R_{wp} \right|^2 \right) \end{cases} \qquad \text{(IV.5)}$$

La Figure IV.10 illustre les données brutes extraites des mesures C-scan (x, y), c'est-à-dire les mesures de temps de vol et d'amplitude. En particulier ici, les résultats intermédiaires qui nous intéressent sont la différence des temps de vol t_2–t_1 (Figure IV.10 (a)) et le rapport des amplitudes A_2/A_1 (Figure IV.10 (b)).



(a) (b)

Figure IV.10 : **Cartographies C-scans de la plaque de PP : (a) différence des temps de vol t_2–t_1 (µs) (b) rapport des amplitudes A_2/A_1.**

Ces données sont ensuite traitées (équation IV.5) pour obtenir la vitesse des ondes longitudinales c_{p21} et l'atténuation α_{p21} dans la plaque. Il en résulte des cartographies C-scans de la plaque de PP en termes de vitesse et d'atténuation (Figure IV.11).

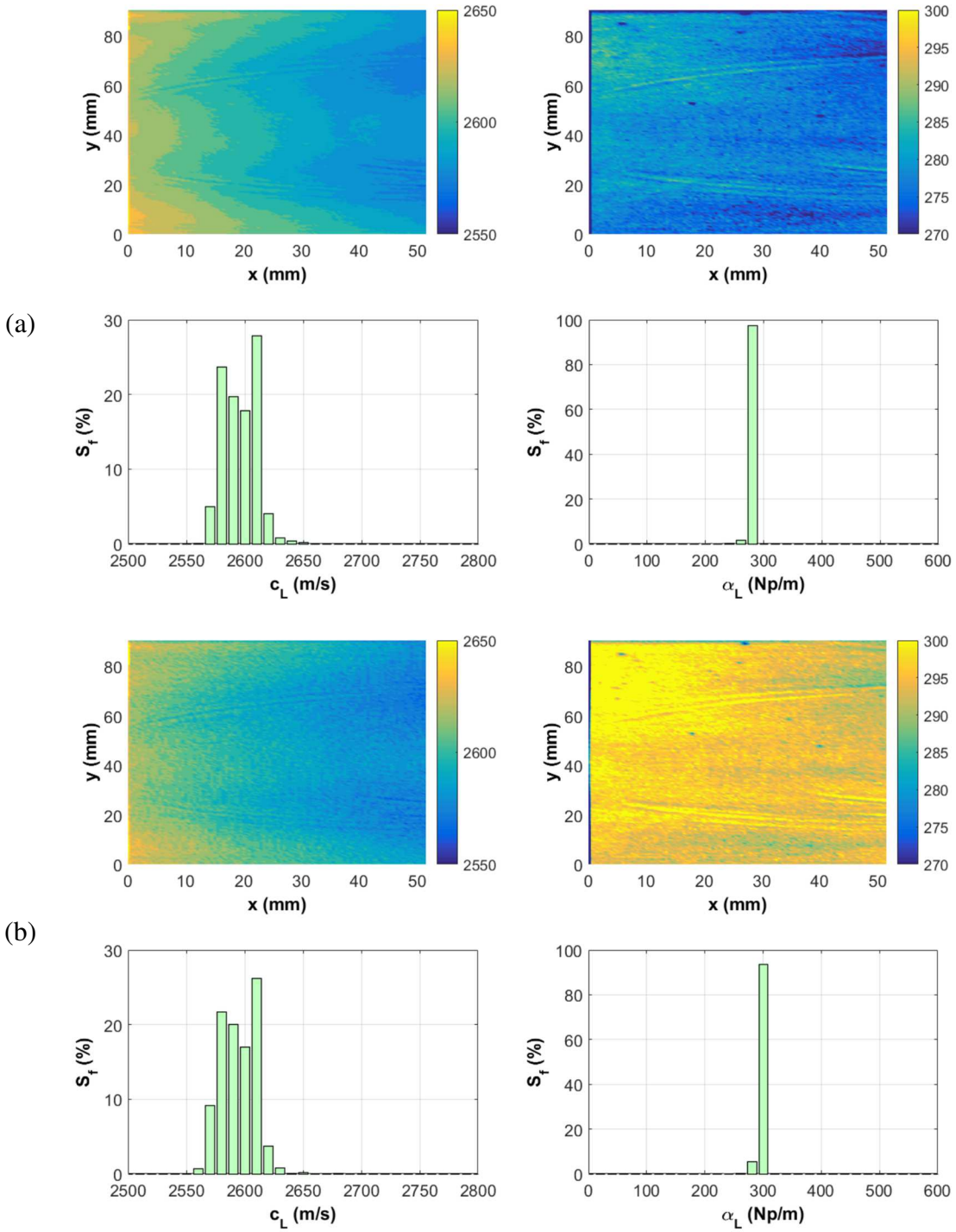


Figure IV.11 : **Cartographies et histogrammes de la fraction surfacique des vitesses et des atténuations longitudinales de la plaque de PP obtenues via des mesures des temps de vol et d'amplitudes par des méthodes de (a) corrélation et (b) enveloppe.**

Comme l'illustrent les résultats obtenus, les valeurs sont très sensibles à la méthode de mesure utilisée : corrélation (Figure IV.11 (a)) ou enveloppe (Figure IV.11 (b)), en particulier pour ce qui est de la mesure de l'atténuation.

Une estimation alternative peut être écrite à partir de l'écho spéculaire noté $s_0(t)$, qui dépend directement du coefficient de réflexion à l'interface entre la plaque et l'eau R_{wp} :

$$s_0(t) = A_0.s_{in}\left(t-\tau_w\right).R_{wp} \tag{IV.6}$$

En conséquence, la vitesse d'onde longitudinale c_{p10} et l'atténuation α_{p10} dans la plaque peuvent être exprimées comme suit :

$$\begin{cases} c_{p10} = \dfrac{2d_p}{t_1 - t_0} \\ \alpha_{p10} = \dfrac{1}{2d_p}\log\left(\dfrac{A_0}{A_1}T_{wp}T_{pw}\right) \end{cases} \tag{IV.7}$$

IV.3.5 Méthode de corrélation croisée

Une approche efficace pour estimer la vitesse des ondes longitudinales c_p et l'atténuation α_p consiste à utilisés la fonction de corrélation croisée. Dans le cas de signaux à enveloppe gaussienne, les échos $g_n(t)$ (équation (IV.8)) peuvent s'écrire :

$$g_n(t) = \frac{G_n}{\sigma_{t,n}\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{t-\tau_w-t_n}{\sigma_{t,n}}\right)^2} e^{+j2\pi f_0(t-\tau_w-t_n)} e^{-2n\alpha_p d_p} \tag{IV.8}$$

où $G_n = A_0T_{wp}R_{pw}T_{pw}(R_{wp}R_{pw})^{n-1}$ doit être lié à l'amplitude de l'équation (IV.3).

Par conséquent, l'enveloppe gaussienne $e_n(t)$ associée aux échos $g_n(t)$ est définie comme suit :

$$e_n(t) = \frac{G_n}{\sigma_{t,n}\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{t-\tau_w-t_n}{\sigma_{t,n}}\right)^2} e^{-2n\alpha_p d_p} \tag{IV.9}$$

La corrélation croisée entre les deux signaux $e_1(t)$ et $e_2(t)$ est classiquement donnée par :

$$cor_{e1,e2}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} e_1(\tau).e_2(t-\tau).d\tau \tag{IV.10}$$

où $e_1(t)$ et $e_2(t)$ sont les enveloppes des signaux gaussiens $s_1(t)$ et $s_2(t)$ respectivement.

La dissipation ayant un effet sur la bande passante du spectre [7] l'écart type des deux signaux gaussiens $s_1(t)$ et $s_2(t)$ est caractérisé par $\sigma_t = \sigma_{t,1} = K_{21}.\sigma_{t,2}$, il en résulte :

$$\begin{cases} cor_{e1,e1}(t) = \dfrac{G_1^2}{\sigma_t\sqrt{2}\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{t}{\sigma_t\sqrt{2}}\right)^2} \\ cor_{e2,e1}(t) = \dfrac{G_1 G_2}{\sigma_t\sqrt{1+K_{21}^{\ 2}}\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{t-(t_2-t_1)}{\sigma_t\sqrt{1+K_{21}^{\ 2}}}\right)^2} e^{-2\alpha_p d_p} \end{cases} \quad \text{(IV.11)}$$

Les dates des maxima des fonctions de corrélation $cor_{e1,e1}(t)$ et $cor_{e2,e1}(t)$ sont centrées respectivement sur 0 et $t_{c21} = t_2 - t_1$. Ce temps de vol avec le noyau de corrélation croisée $cor_{e2,e1}(t)$ donne une estimation de la vitesse d'onde c_{p21c}. De plus, les maxima des corrélations max($cor_{e1,e1}(t)$) et max ($cor_{e2,e1}(t)$) conduisent à une estimation de l'atténuation α_{p21c} :

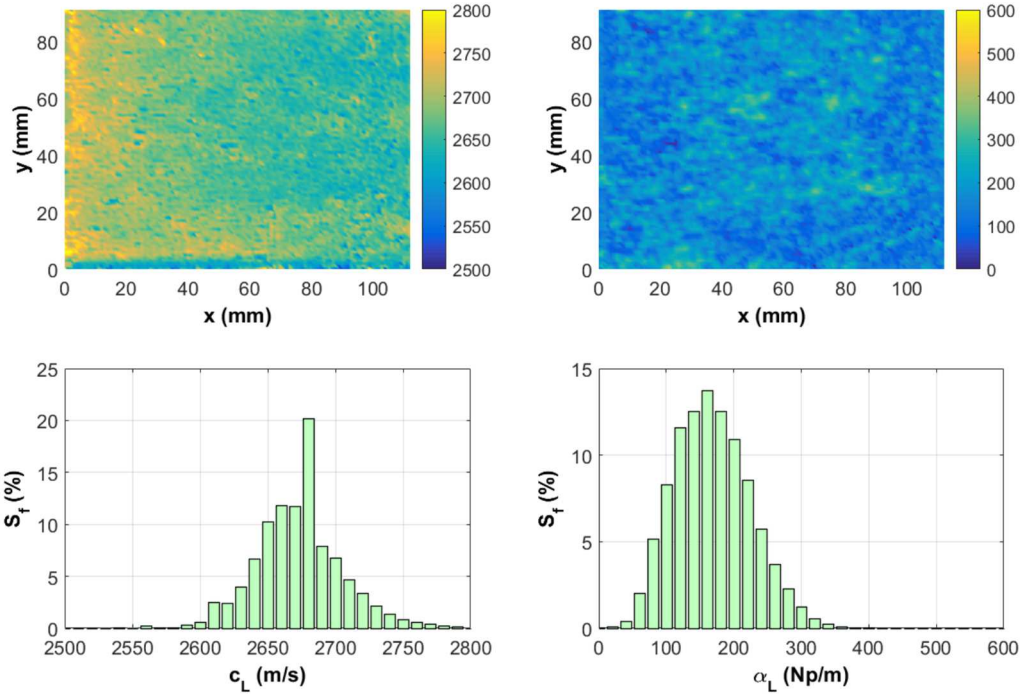
$$\begin{cases} c_{p21c} = \dfrac{2d_p}{t_{21c}} \\ \alpha_{p21c} = \dfrac{1}{2d_p}\log\left(\dfrac{\max(cor_{e1,e1})}{\max(cor_{e2,e1})}\sqrt{\dfrac{1+K_{21}^2}{2}}\left|R_{wp}\right|^2\right) \end{cases} \quad \text{(IV.12)}$$

De même, à partir de $s_0(t)$ et $s_1(t)$, on obtient :

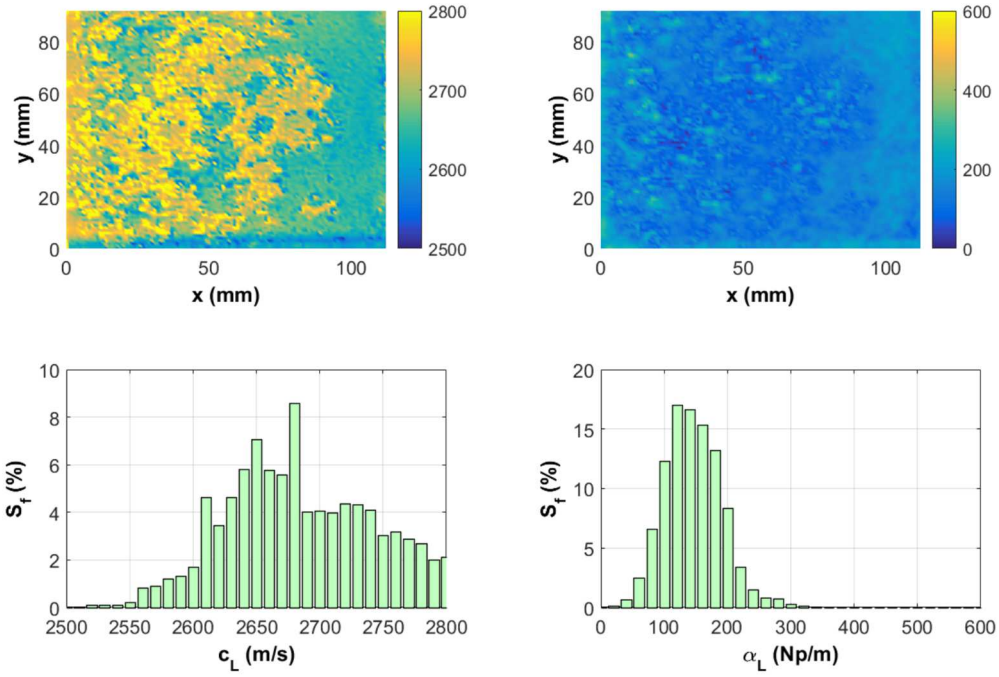
$$\begin{cases} c_{p10c} = \dfrac{2d_p}{t_{10c}} \\ \alpha_{p10c} = \dfrac{1}{2d_p}\log\left(\dfrac{\max(cor_{e0,e0})}{\max(cor_{e1,e0})}\sqrt{\dfrac{1+K_{10}^2}{2}}T_{wp}T_{pw}\right) \end{cases} \quad \text{(IV.13)}$$

Comme cela a été démontré sur la base de résultats expérimentaux antérieurs [7], cette estimation des vitesses et atténuations par corrélation permet d'obtenir des résultats robustes vis-à-vis du niveau de bruit, mais aussi de la distorsion du signal du fait des milieux très atténuants. Pour illustration, des cartographies C-scan des vitesses et atténuations longitudinales obtenues par la méthode de corrélation sont représentées pour différentes plaques avec des taux de charges de FBO de 10% (Figure IV.12 (a)), 20% (Figure IV.12 (b)) et 30% (Figure IV.12 (c)). En complément, une analyse de la distribution des propriétés a été faite avec des représentations en histogrammes de la fraction surfacique des vitesses et des atténuations longitudinales. Ces résultats sont révélateurs d'une relativement importante dispersion des propriétés, en particulier dès que le taux de charge de FBO dépasse les 20%.

(a)



(b)



(c)

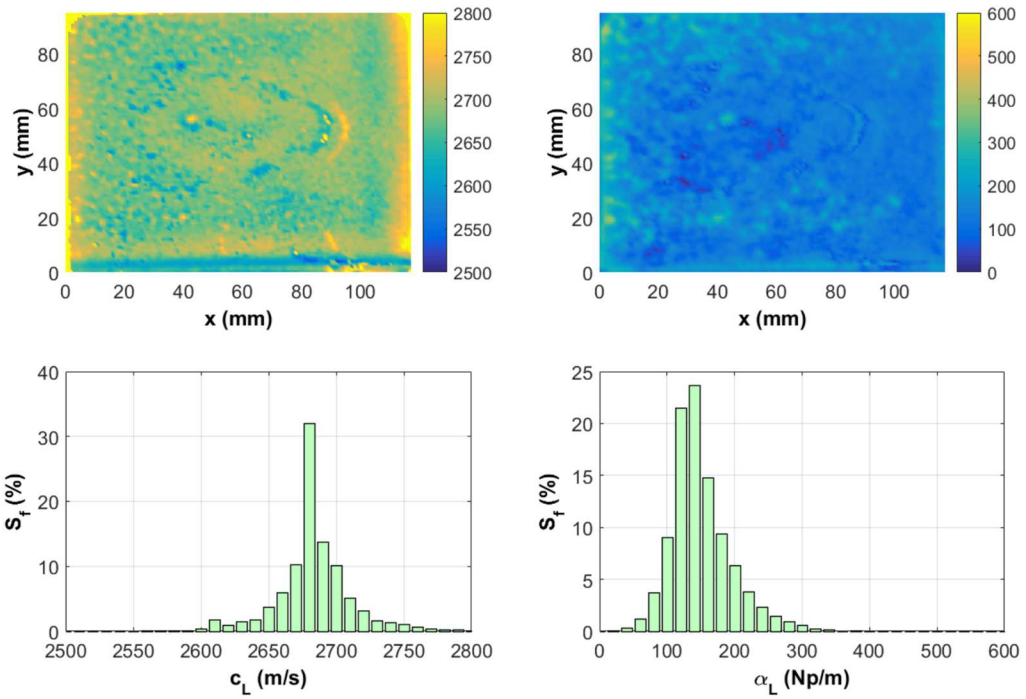


Figure IV.12 : **Cartographies et histogrammes de la fraction surfacique des vitesses et des atténuations longitudinales obtenue par la méthode de corrélation des plaques : (a) PP/FBO10 ; (b) PP/FBO20 ; (c) PP/FBO30.**

IV.3.6 Mesure d'impédance acoustique de surface

Pour les matériaux très hétérogènes, l'écho spéculaire, c'est-à-dire réfléchi par la surface de la plaque, varie en fonction de l'impédance acoustique de la surface. Par conséquent, cette dernière peut être extraite de cette amplitude d'écho par rapport à une valeur de référence. Ainsi, dans les mêmes conditions de fonctionnement, le rapport entre l'amplitude du signal obtenu pour deux matériaux donne une image de l'impédance acoustique de surface de la plaque Z_p étudiée à travers le coefficient de réflexion R_{wp} :

$$R_{wp} = R_{wp,ref} \frac{\max\{s_0(t)\}}{\max\{s_{0,ref}(t)\}} \qquad \text{(IV.14)}$$

Du fait d'une zone de balayage (x, y), le coefficient de réflexion $R_{wp}(x, y)$ donne une estimation de l'impédance acoustique de surface de la plaque $Z_p(x, y)$:

$$Z_p(x, y) = Z_w \frac{1 - R_{wp}(x, y)}{1 + R_{wp}(x, y)} \qquad \text{(IV.15)}$$

En utilisant le premier écho aller-retour (n = 1) dans l'épaisseur de la plaque (équation (IV.3)), une estimation de la vitesse des ondes dans la plaque $c_p(x,y)$ peut être déduite :

$$c_{p10c}(x,y) = \frac{2d_p(x,y)}{t_{10c}(x,y)} \qquad \text{(IV.16)}$$

Ensuite, la densité locale $\rho_p(x,y)$ peut être évaluée par le rapport entre l'impédance acoustique de surface de la plaque $Z_p(x,y)$ et la vitesse des ondes dans la plaque $c_p(x,y)$:

$$\rho_p(x,y) = \frac{Z_p(x,y)}{c_p(x,y)} \qquad \text{(IV.17)}$$

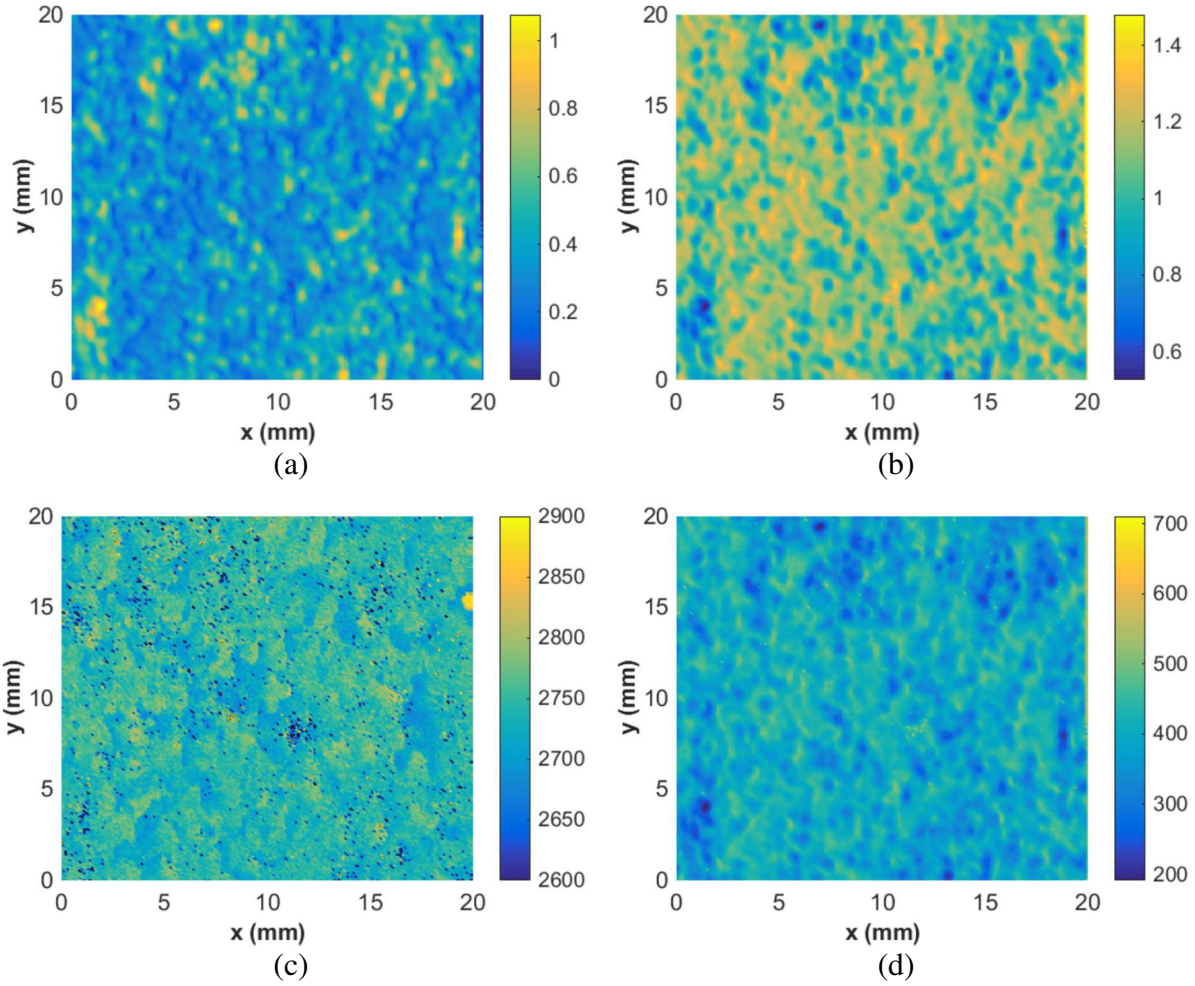


Figure IV.13 : **Cartographies d'une plaque PP/FBO20 : (a) Amplitude de l'écho spéculaire A_1 (%) ; (b) Impédance acoustique Z_p (MRa) ; (c) vitesse longitudinale c_p (m/s) ; (d) Masse volumique ρ_p (kg/m^3).**

Les cartographies obtenues (Figure IV.13 (a)) montrent des résultats numériques cohérents avec ceux attendus en terme de vitesse longitudinale (Figure IV.13 (c)) via la mesure locale du temps de vol. Cependant, les autres caractéristiques présentées diffèrent de celles attendues, que ce soit pour l'impédance acoustique (Figure IV.13 (b)) estimée via l'équation (IV.15) ou la masse volumique (Figure IV.13 (d)) déduite de l'impédance acoustique via l'équation (IV.17).

IV.4 Cartographie par rayons X

IV.4.1 Généralité

La tomographie par rayon X est une technique qui permet la reconstruction d'images « en coupe » d'un échantillon (Figure IV.14). Cette technique est basée sur l'analyse multidirectionnelle de l'interaction d'un faisceau de rayons X avec un objet. Un détecteur permet la réception du faisceau résiduel transmis après traversée d'objet pour visualiser sa microstructure dans plusieurs positions angulaires appelées projections.

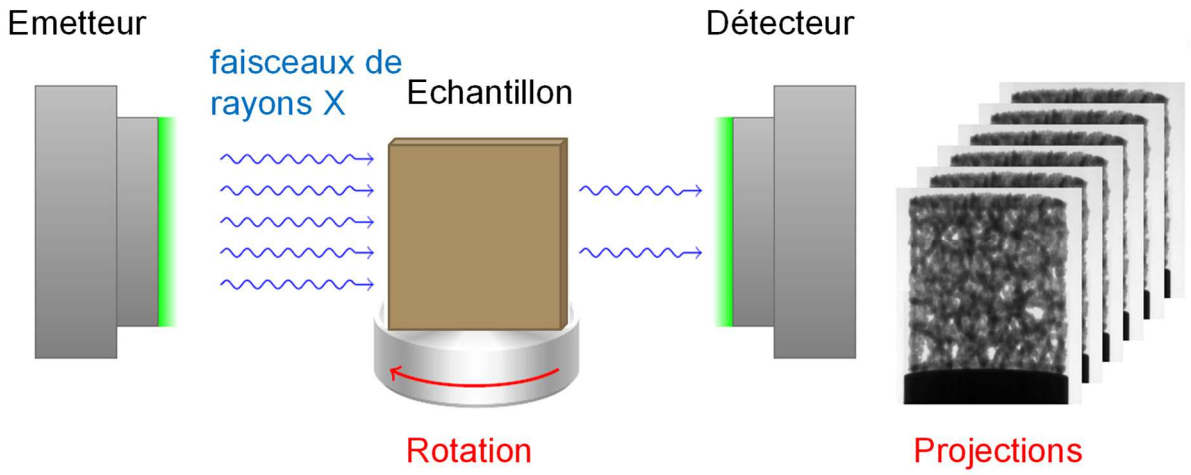


Figure IV.14 : **Principe de tomographie par rayon X (d'après [8]).**

L'imagerie tomographique est basée sur la transformée de Radon publiée par en 1917 [9]. Il a suggéré une formulation mathématique permettant la reconstruction d'un échantillon en fonction des projections. Cela repose sur le théorème de la coupe de Fourier qui présente un principe fondamental de l'imagerie tomographique car il relie les projections d'objets dans le domaine spatial et les distributions dans l'espace dans le domaine fréquentiel. La Figure IV.15 illustre une interprétation graphique de ce théorème.

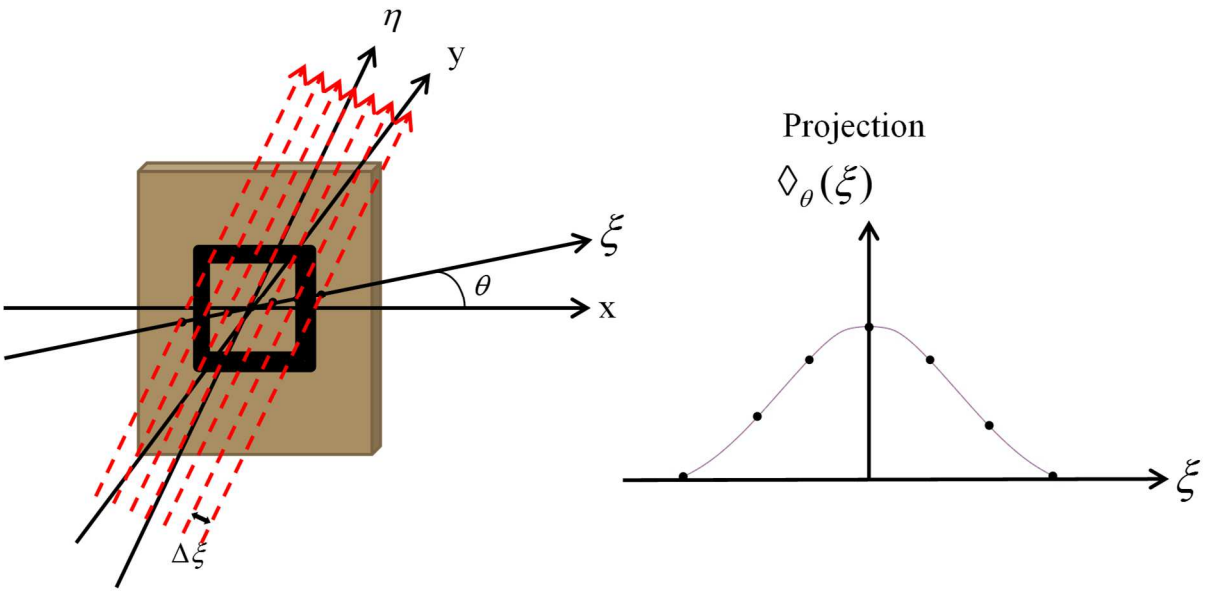


Figure IV.15 : **Présentation graphique du théorème de la coupe de Fourier.**

Le contexte mathématique est expliqué d'après Rupitsch [10] comme suit : pour un angle $\theta \in [0, \pi]$, donné, le signal reçu pour une position ξ donnée résulte de l'intégration sur le parcours <u>selon η</u> :

$$\Diamond_\theta(\xi) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\xi,\eta).d\eta \qquad \text{(IV.18)}$$

D'un point de vue continu, on démontre que :

$$f(x, y) = \int_0^{\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} TF\{\Diamond_\theta(\xi)\}.|\upsilon|.e^{j2\pi\upsilon(x.\cos\theta+y.\sin\theta)}.d\upsilon.d\theta \qquad \text{(IV.19)}$$

D'un point de vue discret, on démontre que :

$$f(x,y)=\frac{\pi}{N_{proj}}\Delta\xi.\sum_{i=1}^{N_{proj}} IFFT\left\{FFT\left\{\Diamond_{\theta_i}(m.\Delta\xi)\right\}.FFT\left\{h_{ck}(m.\Delta\xi)\right\}.win(\upsilon)\right\} \quad \text{(IV.20)}$$

Le fenêtrage dans le domaine fréquentiel $win(\upsilon)$ permet de réaliser un filtrage des données avant la reconstruction spatiale.

Les données acquises lors de la prise de mesure sont collectées suivant différentes orientations. Avec ces données, un traitement informatique permet la construction volumique de l'objet. L'interaction entre les rayons et la densité des différents matériaux traversés permet une visualisation en niveaux de gris des différents constituants de l'objet, Chaque niveau traduit, point par point, le coefficient d'atténuation local du faisceau incident après avoir été calibré et étalonné et finalement traduit en échelle de densité.

La tomographie à rayons X permet donc d'entrer au cœur du matériau pour en estimer les variations d'absorption radiologique et les différences de composition. Elle permet aussi de localiser précisément toute hétérogénéité, inclusion ou trou existant.

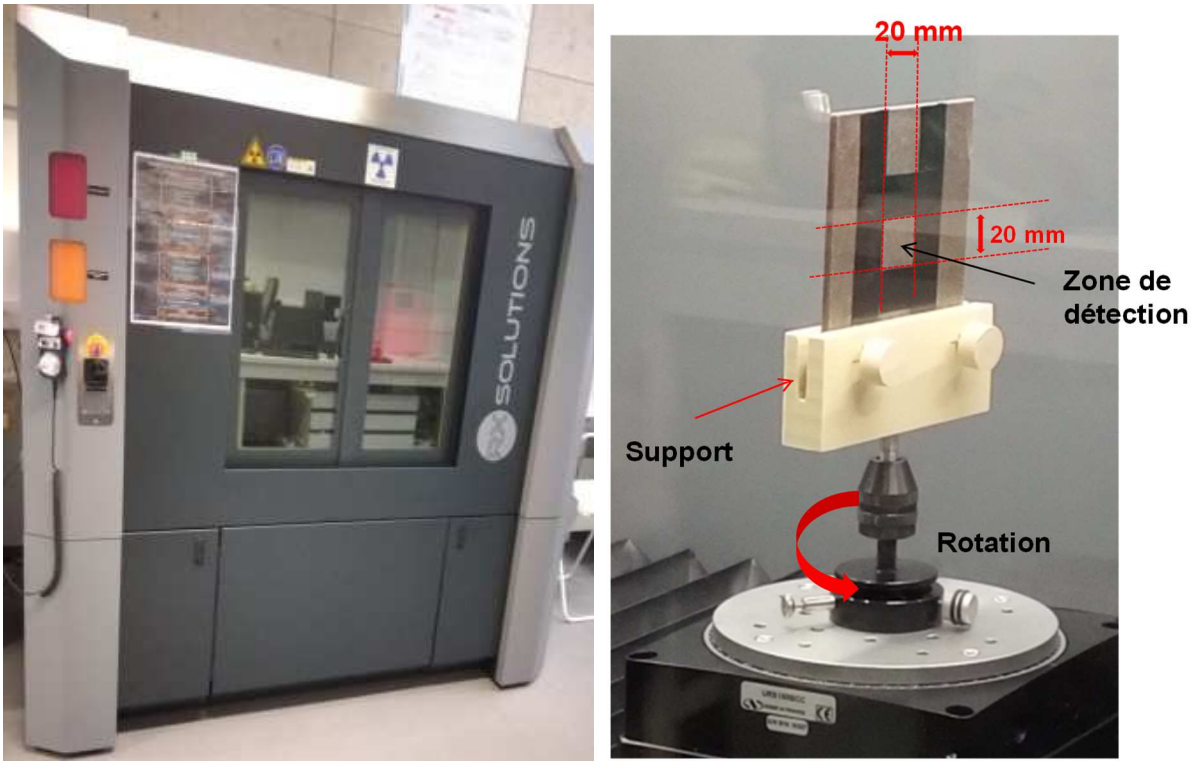
Plusieurs études ont été effectués à propos des problématiques liées aux matériaux composites, justifiant l'intérêt de cette technique pour ces matériaux [11, 12]. Les Figures IV.16 (a) et (b) montrent un exemple de résultat obtenu avec cette technique, sur un échantillon de composite PVC/bois [13].

(a) (b) (c)

Figure IV.16 : ***(a) Plan de coupe en niveaux de gris, (b) Plan de coupe avec seuillage (c) Imagerie volumique obtenue par tomographie à rayon X [13].***

IV.4.2 Configuration

La caractérisation des éprouvettes par tomographie à rayon X a été réalisée à l'aide d'un tomographe RX Solutions Figure IV.17 (a) sur une partie bien déterminée des plaques en PP, PP/FBO 10%, PP/FBO 20% et PP/FBO 30%. Le volume observé par le tomographe est de 20×20×4 mm^3 comme illustré sur la Figure IV.17 (b). Cette taille nous a permis d'avoir une résolution de 21 µm, suffisante pour l'analyse de la distribution des fibres et des porosités dans nos plaques. Le tomographe est composé d'un tube à rayon X (émetteur), d'un détecteur numérique et d'un jeu d'axes mécaniques (support de l'éprouvette), enfermés dans une cabine de radioprotection. La Figure IV.17 (b) montre la disposition de l'éprouvette dans le tomographe. Une unité informatique est nécessaire pour guider le tomographe et reconstituer les images tomographiques. Ce tomographe est capable de descendre jusqu'à une résolution de 5 µm. Aucun traitement n'a été effectué sur les plaques.



(a) (b)

Figure IV.17 : **(a) Tomographe aux rayons X, (b) positionnement de l'échantillon en rotation.**

IV.4.3 Mise au point-tomographie

Les conditions expérimentales sont enregistrées dans un fichier donné lors de chaque essai. Le tube est alimenté en 85 kV et 348 mA. Pour chaque plaque (Figure IV.17(b)), un secteur est matérialisé par des bandes de scotch noir, bien visibles sur les images finales. Le nombre de coupe était 1347 et le nombre d'image par tour est fixé 1440 images (soit 8 points/degré), ce qui donne un pas angulaire de 0,25°. Le réglage a été fait avec une hauteur volume de l'ordre de 28,3 mm, un diamètre volume égal à 38,2 mm et une taille Voxel de 21 µm.

IV.4.4 C-scans

Cette technique permet l'observation de la dispersion de la farine de bois et des bulles d'air dans les plaques bio-composites sans la dégradation de l'échantillon. En outre, cette technique permet de reconstituer la distribution volumique de chaque composant du bio-composite. Le logiciel utilisé pour le traitement des données influe directement sur cette reconstruction. Pour ces études, le logiciel open source de traitement d'images Image J a été utilisé afin de visualiser, éditer, traiter et analyser les images ou des piles d'images (stacks) codées en niveaux de gris sur 8 bits, 16 bits ou 32 bits (Figure IV.18), ainsi que des images couleurs dans de nombreux formats de fichiers : TIFF, GIF, JPEG, BMP, PNG, DCM…

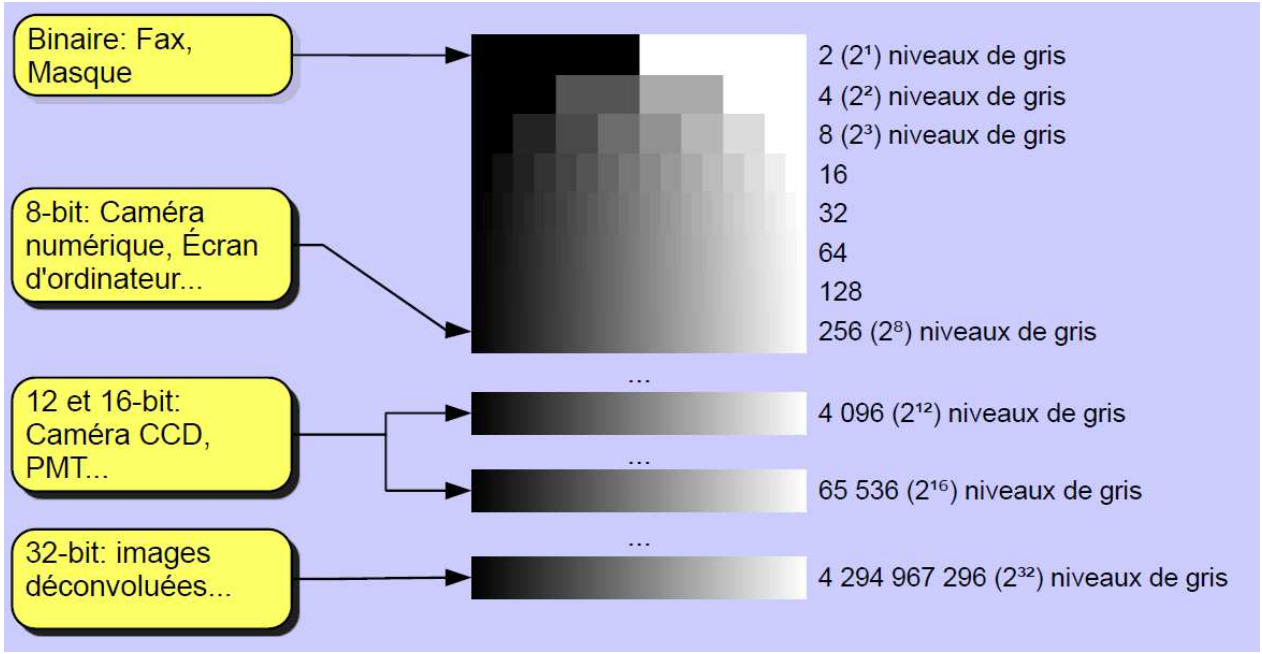
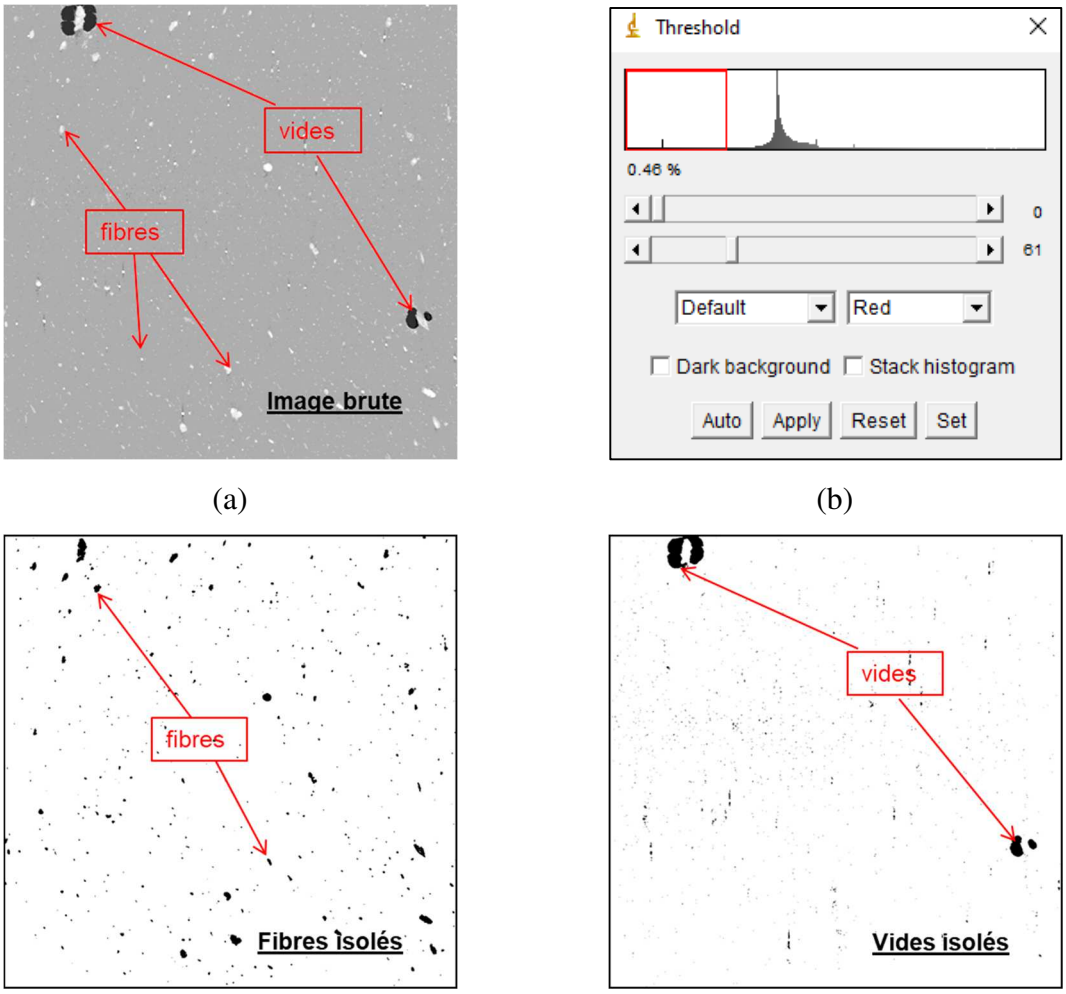


Figure IV.18 : **Niveaux de gris dans le logiciel « Image J » [14].**

Les images brutes obtenues par la tomographie des rayons X se présentent sous forme d'images à plusieurs niveaux de gris. Chaque composant des bio-composites possède un coefficient bien déterminé d'absorption et de transmission des rayons X, ce qui permet de distinguer chaque constituant via un niveau de gris. Un exemple d'image brute est exposé sur la Figure IV.19 (a), sur laquelle on a déjà distingué les fibres, la matrice et les trous via la variété des niveaux de gris. Cette image a subi par la suite un traitement à l'aide de l'histogramme généré via Image J comme illustré par Figure IV.19 (b). La sélection des intervalles de niveau de gris sur l'histogramme a permis d'isoler les fibres comme illustré par la Figure IV.19 (c) et les vides sur la Figure IV.19 (d).



(a) (b)

(c) (d)

Figure IV.19 : **Etapes de traitement d'une image brute.**

D'après les images brutes (Figure IV.19 (a)), différentes densités de matière peuvent être identifiées : les trous ("vides" ou bulles d'air) en noir, les fibres de bois en blanc et le polypropylène (PP) en gris. L'épaisseur entre deux plans successifs est de l'ordre d'un pixel (21 microns). Le traitement fait est le suivant :

- Utiliser les tranches (slices) Y, les convertir en 8 bits et ajuster le contraste.
- Faire une rotation assurant l'horizontalité des différents plans afin de les rendre parallèles.
- Réaliser un découpage (plus grand que la plaque).
- Disposer de vues perpendiculaires aux premières mais inclinées, les redresser par une petite rotation et un nouveau découpage conduit à des plans parallèles à la plaque.
- Faire un nouvel ensemble (stack) ne contenant que les plans de la plaque en utilisant la commande « stack-tools-make a substack ».

La détermination des taux de chaque matière se fait de façon rapide en utilisant la commande « adjust threshold » (Figure IV.19 (b)). On positionne les valeurs seuils minimum et maximum afin de définir des domaines de niveaux de gris (0-s1) (s1-s2) (s2-255). Entre 0 et s1, on retrouve les trous (noir devient rouge). Le taux de ces niveaux de gris est donné sur l'histogramme, à gauche. Entre s2 et 255, les particules de bois de taille supérieure au pixel ont été identifiées (blanc devient rouge). Entre s1 et s2, on fait apparaître le polypropylène (PP) et les particules de petite taille (non visibles). Le choix de s1 et s2 est important et reste délicat… Pour ce choix, on peut faire défiler tous les tranches et vérifier que l'action conduit aux mêmes résultats. Le Tableau IV.1 présente les taux de trous, des fibres de bois et des mélanges PP et fibres de bois dans toutes les plaques bio-composites examinées par le tomographe des rayons X. Il faut noter que la présence des trous est limitée au milieu de l'épaisseur de la plaque. Les grains de farine de bois sont répartis de façon aléatoire. Certaines particules de bois sont incluses dans un trou.

Tableau IV.1 : **Taux de trous, de FBO et du mélange PP/FBO dans les échantillons de plaques des bio-composites.**

Plaque	PP/FBO 10%	PP/FBO 20%	PP/FBO 30%
Trous (%)	0,02	0,08	1,28
PP + FBO (%)	99,54	99,58	97,99
Agglomérat FBO (%)	0,83	0,42	0,73

Le Tableau IV.1 montre que les taux de trous augmentent avec le taux de charge de FBO dans les composites, alors que les taux d'agglomérats de FBO diminuent.

IV.4.5 Analyse

Dans cette partie, les résultats de tomographie par RX sur la plaque PP/FBO 30% sont analysés. Le traitement des images est réalisé avec Image J comme décrit dans la partie précédente.

On présente tout d'abord une image très proche de la surface Figure IV.20 (a). Ce plan (slice) présente une absence de trous, c'est-à-dire qu'il n'y'a pas de zones noires de niveau proche de 0 sur la cartographie. Par contre, la présence de polypropylène est remarquable avec des niveaux de gris proches de 160, ainsi que des particules de fibres de bois avec des niveaux de gris proches de 224. Ces valeurs sont plus visibles sur l'histogramme présenté par la Figure IV.20 (c). Par la suite, on présente une image d'un plan proche de la mi-épaisseur (Figure IV.20(b)) où sont concentrés les trous c'est-à-dire des niveaux de gris proches de 50. Le polypropylène y est très majoritairement présent avec des niveaux de gris compris entre 150 et 200 et les particules de fibre de bois qui ont un niveau de gris de l'ordre de 220. L'histogramme présenté par la Figure IV.20 (d) montre bien la concentration des particules dans ces différents niveaux de gris.

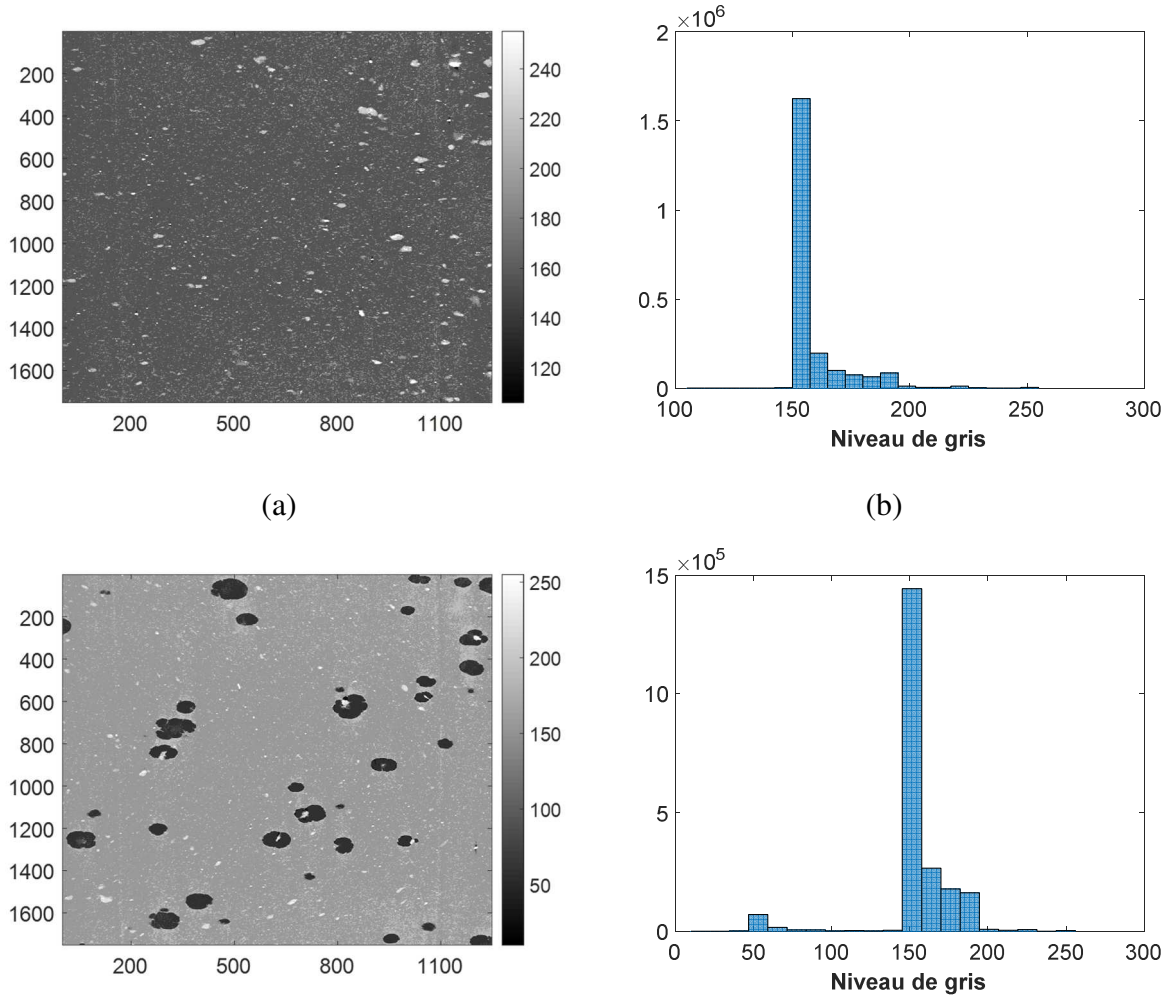


Figure IV.20 : **Image d'une plaque PP/FBO 30% (a) dans un plan très proche de la surface et (b) son histogramme de niveau de gris ; (c) dans plan proche de la mi-épaisseur et (d) son histogramme de niveau de gris.**

Après avoir présenté les niveaux de gris et leur interprétation, un traitement est opéré (binarisation) afin d'obtenir des images binaires (Figure IV.21), c'est à dire qu'elle ne comporte que deux niveaux : 0 ou 1. Les trous sont alors blancs (par convention) afin d'être mesurés par la fonction 3D.

Cette fonction 3D d'Image J permet de calculer le volume de chaque trou. On entend par trou un ensemble de voxels voisins. Ce traitement se décompose en trois étapes :

- On définit tout d'abord les options de calcul (3D options) : ici le volume des trous est la seule grandeur à calculer (en nombre de voxels).

- On exécute par la suite la fonction (3D object counter suit) : elle est d'autant plus longue qu'il y a de trous à mesurer et que le volume de RAM est faible.
- On obtient un tableau des statistiques comme résultat. On le sauve sous forme .csv. Il peut ensuite être traité sous Matlab. Toutes les images proposées sont tirées de Matlab.

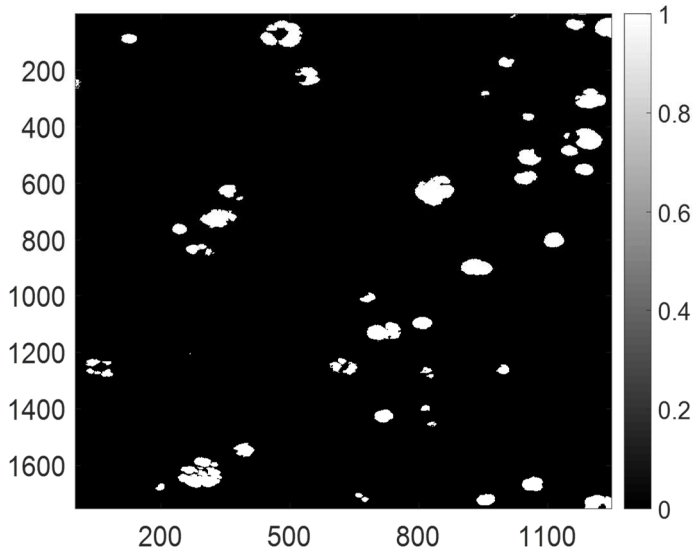
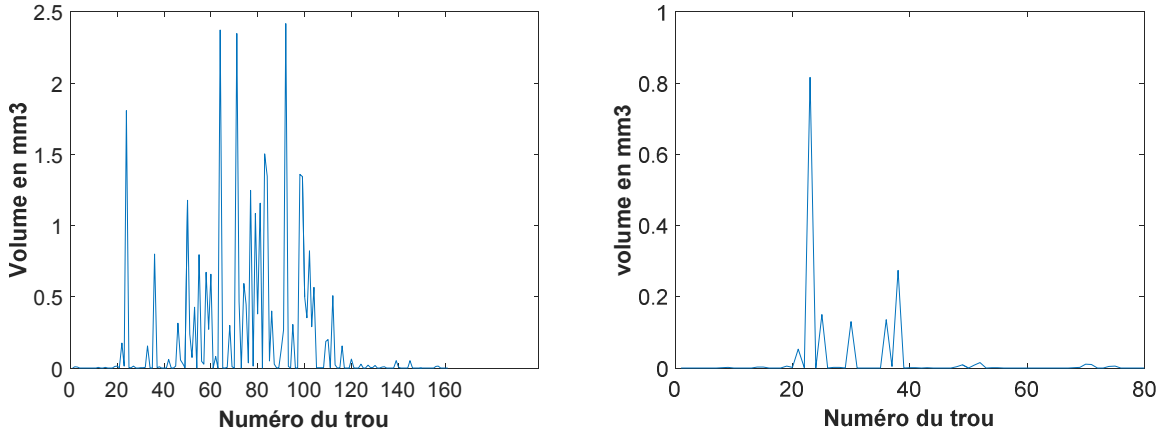


Figure IV.21 : **Exemple d'une image binaire d'un plan proche de la mi-épaisseur de la plaque PP/FBO 30%.**

La plaque PP/FBO 30% contient quelques bulles importantes. Leur répartition est donnée par la Figure IV.22 (a) (dans un ordre arbitraire). La taille d'un voxel étant de 9260 μm^3, nous pouvons estimer les quatre plus gros trous à 2,417 mm^3, 2,373 mm^3, 2,349 mm^3 et 1,808 mm^3. La même étude réalisée sur PP/FBO 20 % conduit à la Figure IV.22 (b). Les trous sont moins nombreux et ont un volume de 0,816 mm^3.



(a) (b)

Figure IV.22 : **Volumes des trous identifiés sur les plaques (a) PP/FBO 30% et (b) PP/FBO 20%.**

La même méthode peut s'appliquer à la farine de bois. Pour cela, on a choisi les niveaux de gris limites compris dans le troisième domaine c'est-à-dire entre 149 et 164 dans l'histogramme des images PP/FBO 30% donné par la Figure IV.23. Dans ce domaine, on trouve essentiellement des fibres de bois de petite dimensions. Leur sélection est réalisée de la même façon que pour les trous. La différence est que les fibres sont bien plus nombreuses et que le temps d'exécution s'en ressent (90 min au moins). Sur la Figure IV.23 on reporte les volumes calculés pour les 18272 volumes détectés. Les volumes des cinq trous les plus importants sont 0,3796 mm^3, 0,2911 mm^3, 0,2803 mm^3, 0,2011 mm^3 et 0,1623 mm^3. La moyenne de toutes les fibres de farine de bois est $1{,}29.10^{-3}$ mm^3.

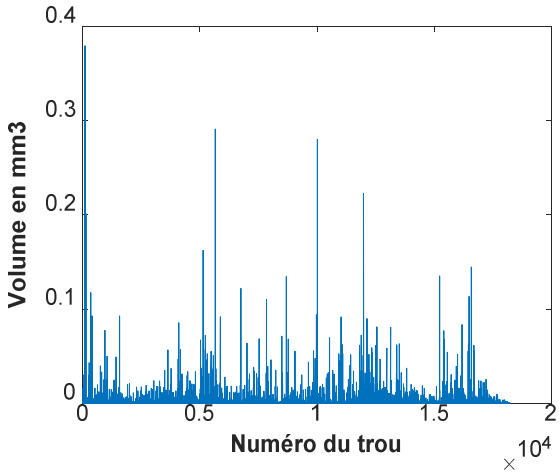


Figure IV.23 : **Répartition de volume de 18272 de fibre de farine de bois sur la plaque PP/FBO 30%**

IV.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons introduit deux techniques différentes afin d'analyser les plaques en bio-composites et évaluer leur état intérieur : la technique de la réflexion ultrasonore mono-élément et la technique de tomographie des rayons X.

La première technique fournit des cartographies de surfaces et de fond des zones bien déterminées des plaques. Ainsi le principe de la mesure par réflectométrie ultrasonore développée dans le chapitre précédent a été repris avec un transducteur haute fréquence focalisé, avec un balayage sur une zone définie. Cela conduit à des mesures locales de temps de vol qui permettent d'estimer la vitesse des ondes longitudinales qui se propagent dans les plaques. Ceci nous a permis de détecter la présence de défauts, d'évaluer leur taux. La grande variation des propriétés des vitesses et des atténuations quel que soit d'un point à un autre dans la même plaque ou dans les différentes plaques montrent une énorme hétérogénéité et des différentes formes de défauts comme la porosité, les bulles d'air et les amas de fibres ainsi que la rugosité de surface et la variation de l'épaisseur des plaques. Outre le taux de farine de bois qui varie selon les plaques, il existe surement quelques paramètres qui eux aussi varient.

La deuxième technique présente un grand avantage, elle confirme les conclusions obtenues sur l'hétérogénéité des plaques par ultrason. Les résultats obtenus avec cette méthode sont plus précis et nets, ils permettent une analyse détaillée des plaques étudiées. Les différents plans de coupe sur l'épaisseur de la plaque montrent une grande variation, les trous, les amas de bois et les zones homogènes sont bien distinguées et sont très variables d'un plan de coupe à un autre sur la même plaque.

Bibliographie

[1] D. W. Schindel, "Air-coupled ultrasonic measurements of adhesively bonded multi-layer structures", *Ultrasonics,* vol. 37, n° 13, pp. 185-200, 1999.

[2] E. Eren, S. Kurama et I. Solodov, "Characterization of porosity and defect imaging in ceramic tile using ultrasonic inspections", *Ceramics international,* vol. 38, n° 13, pp. 2145-2151, 2012.

[3] N. Samet, P. Marechal et H. Duflo, "Monitoring of an ascending air bubble in a viscous fluid/fiber matrix medium using a phased array transducer", *European Journal of Mechanics, B/Fluids,* vol. 54, pp. 45-52, 2015.

[4] N. Samet, P. Maréchal, and H. Duflo, "Ultrasonic imaging of bubble motion in a fiber preform" in *Proceedings of the Acoustics 2012 Nantes Conference*, pp.2601-2606, 2012.

[5] N. T. Duong, J. Duclos, P. Maréchal, and P. Pareige, "Cartographie ultrasonore d'une plaque de composite RTM: Estimation de l'atténuation locale", in *Congrès Français d'Acoustique (CFA) 2014* Poitiers, pp. 79–84, 2014.

[6] A. Khaled, P. Maréchal, O. Lenoir, M. Ech Cherif El Kettani, and D. Chenouni, "Study of the resonances of periodic plane media immersed in water: Theory and experiment", *Ultrasonics*, vol. 53, pp. 642–647, 2013.

[7] N. Ghodhbani, P. Maréchal et H. Duflo, "Ultrasonic broadband characterization of a viscous liquid: Methods and perturbation factors", *Ultrasonics*, vol. 56, pp. 308-317, 2015

[8] L. Salvo et P. Lhuissier, "Tomographie appliquée à l'étude des matériaux", MécaMat, colloque Aussois, 2018.

[9] J. Radon, "Über die bestimmung von funktionen durch ihre integralwerte längs gewisser mannigfaltigkeiten", *Reports on the proceedings of the Royal Saxonian Academy of Sciences at Leipzig*, vol. 69, pp. 262-277, 1917.

[10] S. J. Rupitsch, "Characterization of Sound Fields Generated by Ultrasonic Transducers", in *Piezoelectric Sensors and Actuators*, pp. 341-406, 2019.

[11] E. Maire, A. Fazekas, L. Salvo, R. Dendievel, S. Youssef, P. Cloetens et J. M. Letang, "X-ray tomography applied to the characterization of cellular materials. Related finite element modeling problems", *Composites science and technology,* vol. 63, n° 116, pp. 2431-2443, 2003.

[12] E. Bayraktar, S. Antolonovich et C. Bathias, "Multiscale study of fatigue behaviour of composite materials by X-rays computed tomography", *International Journal of Fatigue,* vol. 28, n° 110, pp. 1322-1333, 2006.

[13] A. Balamoutoff, C. Barres, C. Gauthier, P. Hajji et J. Adrien, "Caractérisation de la dispersion et de l'orientation de la farine de bois dans des composites PVC/bois", 12ème Session du Club Image 3D Noesis, Lafarge à St Quentin Fallavier, 13 octobre 2011..

[14] G. Lapointe, "Analyse et manipulation d'images numériques avec Image J", Cours de Master Informatique Image-Vision-Interaction, Université de Lille, 2009.

Conclusion générale

Conclusion générale

L'objectif de ce travail a consisté à proposer, fabriquer et caractériser de nouveaux matériaux de base de fibres naturelles. En particulier, l'apport de méthodes de CND telles que la caractérisation ultrasonore a contribué à développer les connaissances relatives à ces nouveaux matériaux. L'étude menée a consisté à exploiter comme renfort une farine d'origine végétale résultant du travail du bois d'olivier (farine de bois d'olivier, FBO) et à l'incorporer dans une matrice polymère (polypropylène, PP). Cette combinaison PP/FBO a permis d'élaborer des nouveaux matériaux bio-composites, et ce travail de thèse d'en explorer quelques propriétés physico-chimiques, élastiques, et d'en évaluer l'homogénéité.

Dans le premier chapitre, une étude bibliographique a été menée et une analyse des matières premières a permis de les caractériser avant la fabrication des échantillons. Afin d'améliorer la cohésion des fibres et de la matrice, un agent de couplage a été testé en traitement de la farine de bois d'olivier. Pour cela, sur la base de travaux référencés et synthétisés dans le premier chapitre, le choix s'est porté sur l'amino-silane avec une concentration massique de 3%. Avec la finalité de discriminer le rôle de la modification chimique induite sur les fibres traitées, nous avons opté des techniques de caractérisation physico-chimiques, morphologiques et thermiques. Les images obtenues par microscope à balayage électronique (MEB) ont montré une augmentation de la rugosité pour la FBO traitée relativement à celle restée brute. Ces résultats sont conformes avec celle obtenue par l'analyse de la composition chimique des deux farines de bois : FBO traitée et FBO brute. L'analyse granulométrie a montré une distribution centrée à 110 µm, bornée par le premier décile à 17 µm et le dernier à 255 µm. L'analyse de la microstructure des fibres par diffraction des rayons X a montré que le degré de cristallinité augmente après traitement avec le traitement par l'amino-silane. Les fibres traitées présentent des températures de dégradation plus élevées qu'avant traitement, confirmant l'amélioration de la stabilité thermique des fibres naturelles. L'analyse thermique a montré aussi que la température de mise en œuvre des composites à base des FBO ne doit donc pas dépasser 240°C.

Dans le deuxième chapitre, la mise en œuvre des plaques et éprouvettes en bio-composites a été abordée, sur la base fibreuse de FBO sous sa forme traitée ou non, et la matrice de PP. Les éprouvettes ont été réalisées selon une techniques d'élaboration répandue en plasturgie : extrusion bivis alimentée en PP et FBO avec une teneur de FBO de 0 à 30%, puis injection de

l'extrudat PP/FBO pour donner forme aux échantillons. Les micrographies MEB ont montré une adhérence importante entre le PP et la FBO, qu'elle soit traitée ou non. Cependant, la cohésion à l'interface fibre/matrice semble s'améliorer avec le traitement chimique.

Le troisième chapitre a exposé l'effet du taux de fibres dans la matrice et celui du traitement chimique de ces fibres sur les propriétés mécaniques des bio-composite. Deux types d'essais ont été réalisés : Evaluation non destructive par ultrasons et évaluation destructive par essai de traction mécanique. Les deux essais ont conduit à des tendances similaires, discutées et comparables en terme de valeurs obtenues lors de la mesure. Les résultats de ces mesures ont montré que la rigidité des bio-composites a été améliorée avec l'augmentation de la teneur en fibres et l'ajout d'un agent de couplage. Cette étude a permis de faire ressortie un coefficient de proportionnalité entre les modules d'Young estimés définis dans des zones de petites déformations, mais sur des plages de valeurs différentes : $\varepsilon < 0{,}05$ % pour les mesures ultrasonores et sur une plage de déformation de $0{,}05 < \varepsilon < 0{,}25\%$ pour les mesures mécaniques. Les mesures par ultrasons montrent que les vitesses longitudinale et transversale augmentent dans les mêmes proportions, d'une part avec la teneur en fibres, d'autre part, avec l'ajout d'un agent de couplage. Dans le cas des essais mécaniques, la courbe contrainte σ en fonction de la contrainte ε n'est pas linéaire, contrairement à la classique loi de Hooke. C'est un effet relevé sur de nombreux polymères thermoplastiques connus pour leurs propriétés non linéaires, dont le polypropylène matrice dans la composition des composites étudiés. Plus précisément, ces courbes de traction ont été identifiées et ajustées selon la loi de puissance, dite de Hollomon dans la plage de déformation de $0{,}05 < \varepsilon < 0{,}25\%$. Ainsi, le module d'Young a été évalué conformément à la norme ISO 527-1 dans une plage de déformation de référence de 0,05 à 0,25% pour comparer les propriétés élastiques dites linéaires classiques. Les valeurs identifiées via les paramètres de la loi de Hollomon (K_{ref}, n_{ref}) et du module d'Young E_{ref} résultant sont comparées en bon accord avec celles données par la norme ISO 527-1.

Dans la dernière partie, nous avons cherché à évaluer l'état intérieur de nos composite pour évaluer l'homogénéité de la répartition des fibres dans la plaques et la dispersion des fibres. Pour cela nous avons mis en œuvre deux techniques : la premières est ultrasonore, basée sur la réflexion à travers l'épaisseur de l'échantillon, et deuxième est basée sur de la tomographie à rayons X. La réflexion ultrasonore mono-élément nous a permis de détecter la présence de défauts de répartition de matière dans le plan. La grande variation spatiale des propriétés de vitesses et d'atténuation montre une hétérogénéité importante et des défauts variables tels que

la porosité, les bulles d'air et les amas de fibre, ainsi que la rugosité de surface. La tomographie à rayons X confirme les conclusions obtenues sur l'hétérogénéité des plaques par ultrason, et permet d'en extraire des plans de coupe selon l'épaisseur.

Cette étude a permis de dégager l'influence du traitement et du taux des fibres sur les propriétés mécaniques du composite et sur leur dispersion homogène dans la matrice. Ces paramètres liés aux matières premières constituant les matériaux composites ont un impact majeur sur les propriétés mécaniques. Cependant, les paramètres liés au procédé et aux conditions de fabrication des échantillons doivent eux aussi faire l'objet d'une attention toute particulière. Concernant les essais de caractérisation, il existe de nombreux paramètres d'influence dont la vitesse de déformation $\partial\varepsilon/\partial t$ et température T, tels que les prend en compte la relation de Johnson-Cook.

En perspective à ces premiers résultats, des campagnes de mesures supplémentaires pourraient être envisagées avec des capteurs de contact pour une mesure locale et une caractérisation de l'homogénéité des échantillons. D'autre méthodes de caractérisation peuvent être envisagées telles que la DMA (Dynamic Mechanical Analysis) ou encore des tests de flexion dans la gamme des basses fréquences pour faire le lien entre mesures statiques et mesures ultrasonores. Par ailleurs, il pourra être utile de caractériser plus précisément les effets du procédé de mise en œuvre sur la répartition et la dispersion des fibres dans la matrice plus précisément lors de l'injection. Enfin, des matrices de type biopolymère telles que le PLA ; le PBAT ou le PCL couplées aux mêmes fibres de farine de bois d'olivier pourraient avantageusement conduire à des bio-composites biodégradables.

Annexes

Annexe 1 : Essais de traction

Dans la famille des normes ISO 527, les normes ISO 527-1 [1] et ISO 527-2 [2] décrivent les moyens et fixent les méthodes d'essai de traction en vue d'extraire les propriétés élasto-plastiques d'un matériau plastique. La norme ISO 527-1 en fixe les principes généraux, tandis que la norme ISO 527-2 en précise les conditions d'essai des plastiques pour moulage et extrusion.

Pour cela, une éprouvette est soumise à un effort de traction suivant son axe, en vue de déterminer des caractéristiques mécaniques dont celles élastiques : contrainte de traction, allongement, module de traction, module d'élasticité, coefficient de Poisson… Cet essai est en principe destructif et permet aussi d'évaluer le point de rupture. La norme préconise des machines à vitesse de traction constante (commandées en déplacement). En général, les efforts sont mesurés par jauges de contraintes. Les allongements sont mesurés soit par le déplacement de la traverse, soit par un extensomètre. Le dispositif d'attache des éprouvettes est conçu de telle sorte qu'au moindre effort l'éprouvette s'alignera dans l'axe de l'effort de traction.

Dans le cas de la plupart des matériaux métalliques, la loi de Hooke $\sigma = E.\varepsilon$, est vérifiée, reliant la contrainte σ (Pa) à la déformation ε (%) via le module d'Young E, constant.

Dans le cas des polymères (Figure A1.1), cette loi de Hooke $\sigma = E.\varepsilon$, n'est pas strictement vérifiée, c'est pourquoi son évaluation demande une définition précise. En effet, le comportement est de type viscoélastique, et la courbe $\sigma(\varepsilon)$ ne montre pas de zone linéaire au début de la courbe. Une normalisation s'est imposée pour définir le module d'élasticité E_m, sur une zone de déformation précise, telle que décrite dans la norme ISO 527-1 [1] :

$$E_m = \frac{\sigma_2 - \sigma_1}{\varepsilon_2 - \varepsilon_1} \qquad \text{(A1.1)}$$

où $\{\sigma_1, \sigma_2\}$ sont les valeurs de contrainte mesurées à la déformation normalisée $\{\varepsilon_1 = 0{,}05\%;\ \varepsilon_2 = 0{,}25\%\}$, avec une vitesse de déformation $\partial\varepsilon/\partial t$ comprise entre 1 et 500 mm/min. Dans le cas où l'on cherche à obtenir une évaluation des propriétés élastiques en régime quasi-statique, la vitesse de déformation $\partial\varepsilon/\partial t$; est choisie à sa valeur minimale, soit $\partial\varepsilon/\partial t$ = 1 mm/min.

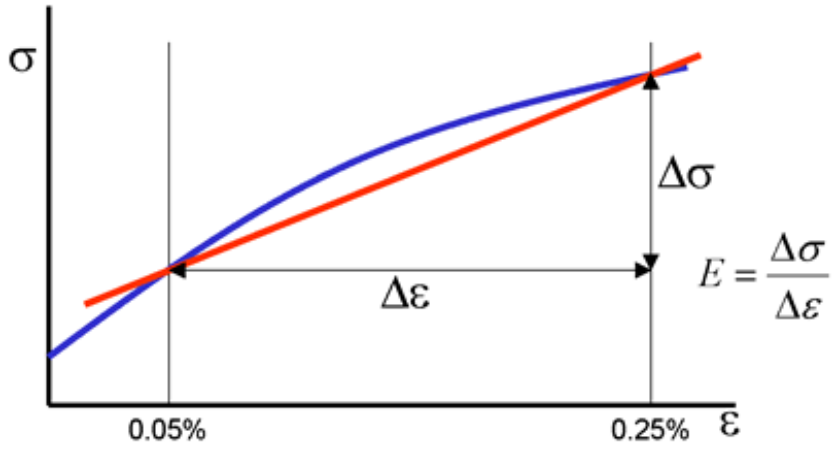
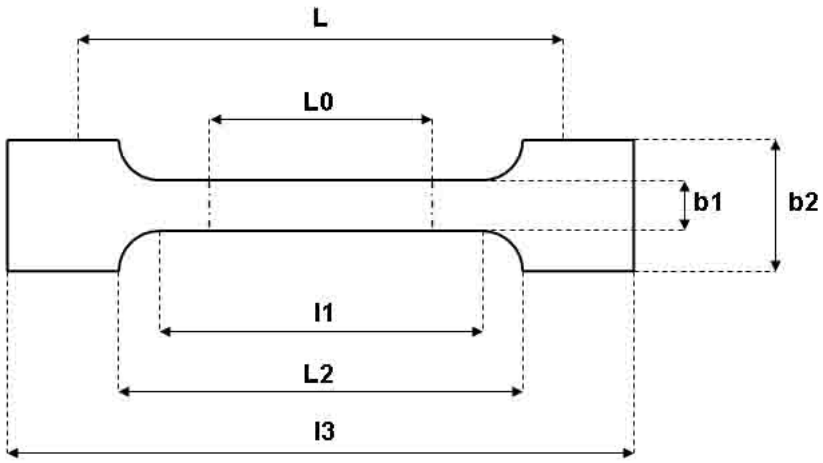


Figure A1.1 : **Evaluation du module d'élasticité Em résultant de l'essai de traction σ(ε), pour ε compris entre 0,05% et 0,25%, selon la norme ISO 527-1.**

Les géométries et les dimensions des éprouvettes polymères destinées aux essais de traction sont détaillées par la norme ISO 527-2 (Figure A1.2). Les dimensions normalisées des éprouvettes, dont certaines sont variables, sont soumises à une tolérance (Tableau A1.1).



Légende :

- **L0 :** **Longueur de référence ;**
- **L :** **Ecartement entre outillages ;**
- **l1 :** **Longueur de la partie calibrée étroite ;**
- **L2 :** **Ecartement entre les parties parallèles larges ;**
- **l3 :** **Longueur totale ;**
- **b2 :** **Largeur dans la zone d'épaulement ;**
- **b1 :** **Largeur dans la zone de la longueur de référence ;**
- **h :** **Epaisseur de l'éprouvette.**

Figure A1.2 : **Nomenclature des dimensions des éprouvettes normalisées, selon la norme ISO 527-2.**

Tableau A1.1 : **Dimensions normalisées (mm) des éprouvettes de forme haltère pour les essais de traction selon la norme ISO 527-2 [2].**

Type	I3	I1	b2	b1	h	L0	L
1A	> 150	80 ± 4	20±0,2	10±0,2	4±0,2	50 ± 0,5	115
1B	> 150	60 ± 0,5	20±0,2	10±0,2	4±0,2	50 ± 0,5	L2 +5 ; L2 = 106 à 120
1BA	> 75	30 ± 0,5	10±0,5	5±0,5	> 2	25 ± 0,5	L2 +2 ; L2 = 58±2
1BB	> 30	12 ± 0,5	4±0,2	2±0,2	> 2	10±0,2	L2 +1 ; L2 = 23±2
5A	> 75	25 ± 1	12,5±1	4±0,1	> 2	20 ± 0,5	50 ± 2
5B	> 35	12 ± 0,5	6±0,5	2±0,1	> 1	10±0,2	20 ± 2

Les normes ISO 527-1/-2 [1-2] fixent des conditions d'essai semblables à celles de l'ASTM D638 [3], délivrant des résultats comparables, avec des variations dans la forme des éprouvettes, la vitesse de traction et la méthode d'évaluation du coefficient élastique à partir du résultat de l'essai de traction.

Ainsi, les caractéristiques viscoélastiques évaluées sur les polymères sont très sensibles à la vitesse de déformation, aboutissant à des propriétés mécaniques variables selon les conditions de sollicitation. Pour cette raison, ces essais normalisés constituent une base reproductible pour la comparaison de tels matériaux.

Bibliographie

[1] ISO 527-1:2012, "Plastiques - Détermination des propriétés en traction - Partie 1: Principes généraux", 2012.

[2] ISO 527-2:2012, "Plastiques - Détermination des propriétés en traction - Partie 2: Conditions d'essai des plastiques pour moulage et extrusion", 2012.

[3] ASTM D638 - 14, "Standard Test Method for Tensile Properties of Plastics", 2014.

Annexe 2 : Transducteurs ultrasonores

Parmi les nombreuses mesures réalisées dans le cadre de cette thèse, seuls quelques résultats d'illustration ont été présentés, en particulier dans le Chapitre IV. Les transducteurs à disposition sont listés dans le Tableau A2.1 ci-dessous. Les différents types de transducteur (bande passante plus ou moins large) sont décrits dans la Figure A2.1. Le choix a été fait de travailler, selon les besoins de l'étude, avec des transducteurs plans ou bien focalisés, aussi bien avec des transducteurs à 5, 10 ou 15 MHz choisis parmi ceux proposés par le constructeur (Figure A2.2). Chacune des combinaisons permet une résolution latérale et axiale différente, et un niveau de détail plus ou moins développé.

Tableau A2.1 : **Tableau résumant les transducteurs utilisés au cours de ta thèse.**

Type de mesure	f (MHz)	D (mm)	F (mm)	$BP_{6,r}$ (%)
Vitesse c_L	2,25 MHz	19 mm	-	80%
Vitesse c_T	1 MHz	19 mm	-	80%
C-scan $\{c_L , \alpha_L\}$	5 MHz	12,7 mm	-	80%
C-scan $\{c_L , \alpha_L\}$	5 MHz	12,7 mm	50,8 mm	50%
C-scan $\{c_L , \alpha_L\}$	10 MHz	12,7 mm	-	80%
C-scan $\{c_L , \alpha_L\}$	10 MHz	12,7 mm	50,8 mm	50%
C-scan $\{c_L , \alpha_L\}$	15 MHz	12,7 mm	-	80%
C-scan $\{c_L , \alpha_L\}$	15 MHz	12,7 mm	50,8 mm	45%

f (MHz) : Fréquence centrale de résonance ; D (mm) : Diamètre de la zone active ; F (mm) : Distance focale géométrique ; $BP_{6,r}$ (%) : Bande passante relative à –6dB.

Figure A2.1 : **Fiche technique relative à la bande passante des transducteurs utilisés. Extrait de la documentation technique Olympus/Panametrics [1].**

Transducer Selection

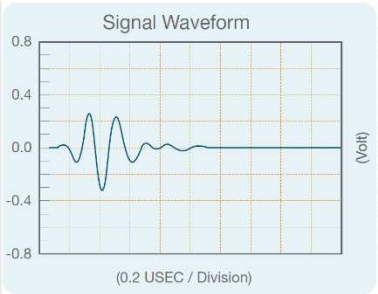
The transducer is one of the most critical components of any ultrasonic system. A great deal of attention should be paid to selecting the proper transducer for the application.

The system's performance as a whole is important. Variations in instrument characteristics and settings as well as material properties and coupling conditions play a major role in system performance.

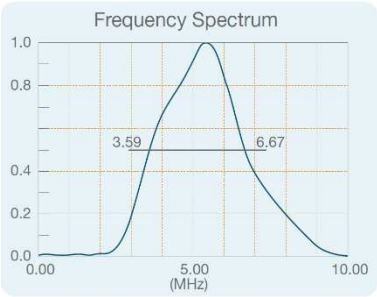
We have developed three different series of transducers to respond to the need for variety. Each series has its own unique characteristics.

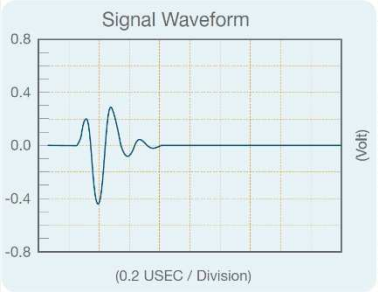
The transducer configuration also has an impact on system performance. Consideration should be given to the use of focused transducers, transducers with wear surfaces that are appropriate for the test material, and the choice of the appropriate frequency and element diameter.

The summaries below provide a general description of the performance characteristics of each transducer series. While these guidelines are useful, each application is unique and performance will be dependent on electronics, cabling, and transducer configuration, frequency, and element diameter.

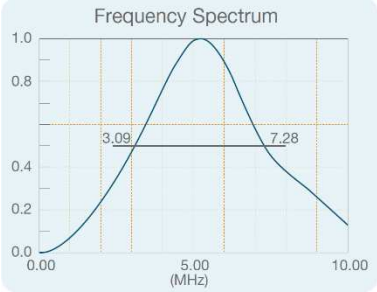


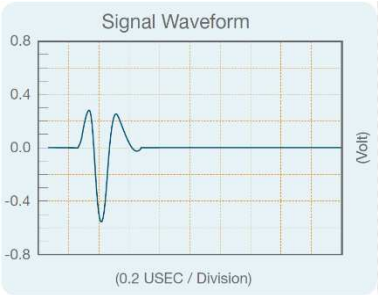
Accuscan® "S" Series
The Accuscan S series provides excellent sensitivity in those situations where axial resolution is not of primary importance. Typically, this series will have a longer waveform duration and a relatively narrow frequency bandwidth.



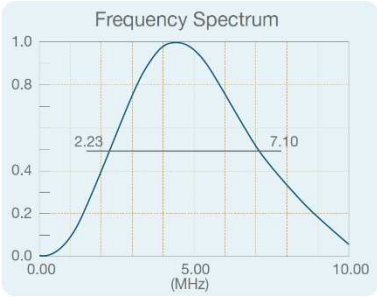


Centrascan® Series
The piezocomposite element Centrascan series transducers provide excellent sensitivity with a high signal-to-noise ratio in difficult-to-penetrate materials. They have exceptional acoustic matching to plastics and other low-impedance materials.





Videoscan® Series
Videoscan transducers are untuned and provide heavily damped broadband performance. They are the best choice in applications where good axial or distance resolution is necessary or in tests that require improved signal-to-noise in attenuating or scattering materials.

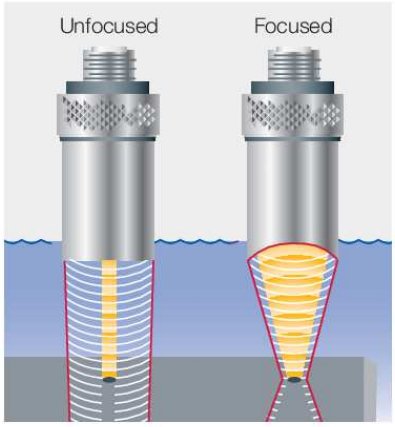


Immersion Transducers: Immersion transducers are single element longitudinal wave transducers whose wear face is impedance matched to water. Immersion transducers have sealed cases allowing them to be completely submerged under water when used with a waterproof cable. By using water as both a couplant and delay line, immersion transducers are ideal for use in scanning applications where consistent coupling to the part is essential. As an additional option, immersion transducers can also be focused to increase the sound intensity in a specific area and decrease the spot size of the sound beam. For additional information on immersion transducers and an in-depth explanation of focusing, please see the immersion probe sections on page 22 and our technical notes.

Figure A2.2 : **Caractéristiques techniques des transducteurs utilisés. Extrait de catalogue Olympus/Panametrics [1].**

Immersion Transducers

An immersion transducer is a single element longitudinal wave transducer with a ¼ wavelength layer acoustically matched to water. It is specifically designed to transmit ultrasound in applications where the test part is partially or wholly immersed.



Advantages

- The immersion technique provides uniform coupling
- Quarter wavelength matching layer increases sound energy output
- Corrosion resistant 303 stainless steel case with chrome-plated brass connectors
- Proprietary RF shielding for improved signal-to-noise characteristics in critical applications
- All immersion transducers, except paintbrush, can be focused spherically (spot) or cylindrically (line) (see the immersion transducers section of our technical notes)
- Customer specified focal length concentrates the sound beam to increase sensitivity to small reflectors

Applications

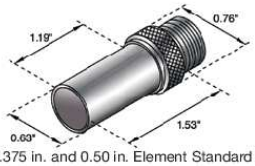
- Automated scanning
- On-line thickness gaging
- High-speed flaw detection in pipe, bar, tube, plate, and other similar components
- Time-of-flight and amplitude based-imaging
- Through-transmission testing
- Material analysis and velocity measurements

Usage Note: Transducers should not be submerged for periods exceeding 8 hours. Allow 16 hours of dry time to ensure the life of the unit.

Standard Case

- Knurled case with Straight UHF connector (SU)
- Contact us for nonknurled case design and availability of other connector styles
- Frequencies ranging from 1.0 to 25 MHz

0.25 in. Element Standard Case Style



0.375 in. and 0.50 in. Element Standard Case Style

For more technical information, please refer to the Focusing Configurations and Table of Near Field Distance found in the "Ultrasonic Transducer Technical Notes".

If a focus is required, select a focal length between min. and max.

Frequency	Nominal Element Size		Unfocused Transducer Part Numbers			Point Target Focus (in inches)*	
MHz	in.	mm	ACCUSCAN-S	CENTRASCAN	VIDEOSCAN	Min.	Max.
1.0	0.50	13	A303S-SU	—	V303-SU	0.60	0.80
2.25	0.50	13	A306S-SU	C306-SU	V306-SU	0.80	1.90
	0.375	10	—	C325-SU	V325-SU	0.50	1.06
	0.25	6	—	C323-SU	V323-SU	0.35	0.45
3.5	0.50	13	A382S-SU	C382-SU	V382-SU	0.83	2.95
	0.375	10	—	C383-SU	V383-SU	0.60	1.65
	0.25	6	—	C384-SU	V384-SU	0.39	0.70
5.0	0.50	13	A309S-SU	C309-SU	V309-SU	0.75	4.20
	0.375	10	A326S-SU	C326-SU	V326-SU	0.60	2.35
	0.25	6	A310S-SU	C310-SU	V310-SU	0.43	1.00
7.5	0.50	13	A320S-SU	—	V320-SU	0.75	6.30
10	0.50	13	A311S-SU	—	V311-SU	0.75	8.40
	0.375	10	A327S-SU	—	V327-SU	0.60	4.75
	0.25	6	A312S-SU	—	V312-SU	0.46	2.10
15	0.50	13	A319S-SU	—	V319-SU	0.75	11.75
	0.375	10	—	—	V328-SU	0.60	7.10
	0.25	6	A313S-SU	—	V313-SU	0.50	3.15
20	0.25	6	—	—	V317-SU	0.50	4.20
	0.125	3	—	—	V316-SU	0.25	1.00
25	0.25	6	—	—	V324-SU	0.50	5.25

* Please select a specific focus between min. and max.

Bibliographie

[1] Olympus, "Ultrasonic Transducers: Specifications", pp.1-40, 2019.