



Développement d'éléments en biocomposite à base de fibre végétale pour la réhabilitation énergétique des bâtiments.

Mustapha Nouri

► To cite this version:

Mustapha Nouri. Développement d'éléments en biocomposite à base de fibre végétale pour la réhabilitation énergétique des bâtiments.. Génie civil. École centrale de Nantes, 2020. Français. NNT : 2020ECDN0038 . tel-03178355

HAL Id: tel-03178355

<https://theses.hal.science/tel-03178355>

Submitted on 23 Mar 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.

THESE DE DOCTORAT DE

L'ÉCOLE CENTRALE DE NANTES

ÉCOLE DOCTORALE N° 602

Sciences pour l'Ingénieur

Spécialité : Génie civil

Par

Mustapha NOURI

**Développement d'éléments en biocomposite à base de fibre végétale
pour la réhabilitation énergétique des bâtiments**

Thèse présentée et soutenue à l'icam, le 14/12/2020

Unité de recherche : UMR 6183, Institut de recherche en Génie Civil et Mécanique (GeM)

Rapporteurs avant soutenance :

Laetitia VAN SCHOORS
Sofiane AMZIANE

Directrice de recherche, Université Gustave Eiffel, Marne-la-Vallée
Professeur des universités, Polytech Clermont Ferrand

Composition du Jury :

Président : Rafik BELARBI

Professeur des universités, La Rochelle Université

Examineurs : Ammar YAHIA

Professeur, Université de Sherbrooke, Canada

Johnny BEAUGRAND

Directeur de recherche, Institut National de la Recherche Agronomique,
Nantes

Dir. de thèse : Frédéric GRONDIN

Professeur des universités, École Centrale de Nantes

Co-encadrant : Mahfoud TAHLAITI

Chargé de recherche, ICAM de Nantes

Remerciement

Ces travaux de thèse ont été effectués à l'Institut Catholique d'Arts et Métiers (ICAM) site de Nantes et à l'École Centrale de Nantes (ECN) au sein de l'institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique (GeM) dans le cadre de projet de R&D CIPTAP.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à monsieur **Sofiane AMZIANE**, professeur des universités à l'université Clermont Auvergne, et madame **Laetitia VAN SCHOORS**, directrice de recherches à IFSTTAR, pour m'avoir fait l'honneur d'être rapporteurs de cette thèse.

Je suis très sensible à l'honneur que me fait monsieur **Ammar YAHIA**, professeur des universités à l'université de Sherbrooke, monsieur **Rafik BELARBI**, professeur des universités à l'université de La Rochelle, monsieur **Johnny BEAUGRAND**, directeur de recherche à l'INRA, d'avoir accepté d'examiner mes travaux de thèse.

Je veux aussi exprimer ma gratitude à mon directeur de thèse **Frédéric GRONDIN**, Professeur des Universités à l'institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique, et mon co-directeur de thèse **Mahfoud TAHLAITI**, enseignant chercheur à l'ICAM de Nantes, pour m'avoir donné la possibilité d'effectuer ces travaux. C'est à eux que je dois l'aboutissement de ce travail grâce à leur soutien constant et leur aide qu'ils m'ont apportés tout le long de cette étude.

Je souhaite également remercier monsieur **Hervé LESOURNE**, Responsable de la Recherche à l'ICAM de Nantes et monsieur **Bruno SOULLARD** le directeur de l'ICAM de Nantes et monsieur **Patrice CARTRAUD** directeur de GeM de m'avoir accueilli sur leur site.

J'adresse mes remerciements chaleureux une autre fois à monsieur **Johnny BEAUGRAND** et monsieur **Rafik BELARBI** pour leurs précieuses aide et collaboration ainsi que leur expertise apportée sur mes travaux de thèse. Sans oublier mon collègue **Ferhat BENMAHIDDINE**, doctorant à l'université de La Rochelle, pour l'aide qui m'a apportée pour la réalisation les essais d'adsorption/désorption de vapeur d'eau et tous les stagiaires que j'ai encadrés durant ces trois années **Ismail GRIBALLAH**, **Lara ALAM**, **Camille ROY**.

J'adresse mes plus vifs remerciements aux enseignants de l'ICAM qui n'ont pas hésité pour me venir en aide à chaque fois qui ont été sollicité notamment **Éric LEGAL LASALLE**, **Isabelle GUILLANTON**, **Christelle FRIBOURG**, **Olivier QUENARD**.

J'ai également une pensée pour tous les techniciens qui m'ont aidé de loin ou de près pour la réalisation de ces travaux à leur tête **Alex LEJEAU** (ICAM), **Sylvain KERDUDOU** (ICAM), **Yoann ETOURNEAU** (ICAM), **Christian LEGOFF** (ICAM), **Karl EOT** (ICAM), **Vincent WISNIEWSKI** (ENC), **Yannick BENOIT** (ENC), **Camille ALVARDO** (INRA, BIA).

A mes **camarades de travail** coulage de bureau avec lesquels j'ai partagé toutes ces années.

En fin, je souhaite rendre hommage à **mes parents** qui m'ont soutenu sans faille durant toute ma scolarité. Leur fierté et leurs encouragements ont été, au-delà de cette thèse, un repère inaliénable et une force me poussant toujours vers l'avant. A **mes frères** qui ont été toujours là pour me soutenir. A **ma fiancée** qui a été sans cesse présente pour moi dans les moments les plus difficiles. Je n'oublie pas non plus le restant de **ma grande famille** pour leur soutien moral.

Table des matières

Introduction Générale.....	1
Partie A: Fibres de Diss, extraction et caractérisations	
Chapitre I : Etat de l’art sur les propriétés des fibres naturelles	4
I.1. Généralité	4
I.1.1. Composition chimique	5
I.1.2. Structure des fibres naturelles	8
I.1.3. Localisation des fibres au sein de la plante.....	9
I.2. Extraction des fibres végétales	10
I.2.1. Rouissage	10
I.2.2. Mécanisme d’extraction.....	12
I.3. Traitements des fibres végétales	15
I.3.1. Méthodes chimiques	15
I.3.2. Méthodes physiques.....	21
I.4. Comportement hygrothermique des fibres végétales	22
I.4.1. Généralité.....	22
I.4.2. Vieillissement hydrique des fibres naturelles	26
I.5. Plante de Diss	35
Chapitre II : Matériels et méthodes de caractérisations.....	36
II.1. Méthodes de mesures physiques	36
II.1.1. ... pour la masse volumique	36
II.1.2. ... pour la Sorption Dynamique de Vapeur D’eau (DVS).....	37
II.1.3. ... pour l’absorption d’eau par immersion.....	38
II.2. Méthodes d’analyses par microscopie.....	39

II.2.1.	Microscope optique.....	39
II.2.2.	Microscope électronique à balayage.....	41
II.3.	Méthodes d'analyses chimiques.....	41
II.3.1.	Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR).....	41
II.3.2.	Composition chimique des fibres.....	42
II.4.	Analyse thermogravimétrique (ATG).....	43
II.5.	Protocole des essais de traction.....	43
Chapitre III : Extraction, traitements et Caractérisations de la fibre de Diss.....		46
III.1.	Plante de Diss	46
III.1.1.	Morphologie de la feuille de Diss	46
III.1.2.	Extraction des fibres de Diss.....	47
III.1.3.	Traitements des fibres de Diss	50
III.2.	Morphologie des Fibres de Diss	51
III.3.	Composition chimique de Diss.....	55
III.3.1.	Composition chimique des fibres de Diss brutes	56
III.3.2.	Effet des traitements sur la composition chimique des fibres de Diss	57
III.4.	Stabilité thermique des fibres de Diss	61
III.5.	Propriétés mécaniques des fibres de Diss.....	63
III.6.	Bilan :	67
Chapitre IV : Comportement hygrothermique des fibres de Diss		68
IV.1.	Identification des sites d'adsorption par FTIR	68
IV.2.	Absorption par immersion d'eau	70
IV.3.	Isotherme de sorption	71
IV.4.	Modèles mathématiques	73
IV.4.1.	Calcul des isothermes d'adsorption.....	73
IV.4.2.	Calcul des cinétiques de sorption.....	76

IV.5. Bilan.....	84
Partie B : Composites à base des fibres de Diss : caractérisation et évaluation environnementales	
Chapitre I : Etat de l’art sur les biocomposites	85
I.1 Généralités sur les biocomposites	85
I.1. Propriétés mécaniques des biocomposites	87
I.1.1. Paramètres qui influencent les propriétés mécaniques des biocomposites.....	87
I.1.2. Approches d’estimation des propriétés mécaniques effectives des biocomposites à fibres orientées aléatoirement	90
I.2. Vieillessement hydro/hygrothermique des biocomposites	91
I.2.1. Comportement diffusif des biocomposites	92
I.2.2. Facteurs influençant le comportement diffusif des biocomposites.....	93
I.2.3. Vieillessements Hydro/hygrothermique	96
I.3. Analyse de cycle de Vie	99
I.3.1. Introduction.....	99
I.3.2. Définition de l’approche ACV	101
I.3.3. Méthodologie de l’ACV	102
I.3.4. Biocomposites et leur cycle de vie.....	105
Chapitre II : Méthodes de caractérisations et mise en œuvre des biocomposites.....	110
II.1. Mesures physiques	110
II.1.1. Masse volumique	110
II.2. Absorption d’eau par immersion.....	111
II.3. Microscopie.....	112
II.4. Analyses thermiques	112
II.5. Essais mécaniques	113
II.5.1. Essais de traction.....	113

II.5.2.	Essais de flexion	114
II.5.3.	Essais de choc Charpy	114
II.6.	Essais du vieillissement cyclique par immersion dans l'eau.....	115
II.7.	Protocole de mise en forme des biocomposites	116
II.7.1.	Choix de la matrice	116
II.7.2.	Méthode de mise en forme des biocomposites	117
Chapitre III: Caractérisation mécanique des composites à base des fibres de Diss.....		122
III.1.	Evaluation de l'effet des traitements sur les propriétés des composites.....	122
III.1.1.	Microstructure	122
III.1.2.	Masse volumique et porosité.....	124
III.1.3.	Propriétés mécaniques des biocomposites	127
III.2.	Caractérisation mécanique des composites à base des NTFD.....	137
III.2.1.	Microstructure	137
III.2.2.	Masse volumique et porosité.....	139
III.2.3.	Propriété en traction	140
III.2.4.	Propriété en flexion	143
III.3.	Approche numérique pour évaluer l'adhérence entre les fibres et la matrice	145
III.3.1.	Paramètres géométriques.....	145
III.3.2.	Méthodologie d'implémentation sous Digimat-FE.....	146
III.3.3.	Résultats et discussions	148
III.4.	Bilan.....	151
Chapitre IV : Vieillissement hydrothermique des composites à base de fibres de Diss		152
IV.1.	Vieillissement par immersion dans l'eau.....	152
IV.1.1.	Evaluation du taux d'adsorption par immersion dans l'eau.....	152
IV.1.2.	Comportement diffusif des biocomposites à base des fibres de Diss	154

IV.2.	Evaluation de l'effet de bords sur le comportement diffusif des biocomposites par une approche numérique à deux échelles.....	160
IV.2.1.	Identification du coefficient de diffusion de la matrice	160
IV.2.2.	Identification des coefficients de diffusion de la couche active suivant l'épaisseur	162
IV.2.3.	Identification des coefficients de diffusion à travers la couche active suivant la largeur	167
IV.2.4.	Identification du comportement diffusif des biocomposites par le modèle mésoscopique.....	169
IV.3.	Vieillessement cyclique par immersion dans l'eau	174
IV.3.1.	Evaluation du taux d'adsorption en fonction des cycles séchage/saturation	174
IV.3.2.	Microstructure des composites vieillis.....	177
IV.3.3.	Propriétés mécaniques.....	178
IV.4.	Bilan.....	183
Chapitre V : Analyse de cycle de vie comparative des panneaux de bardage biosourcés.		184
V.1.	Champs et objets d'étude	184
V.1.1.	Unité fonctionnelle et critères de sélection.....	185
V.1.2.	Système d'allocation.....	187
V.1.3.	Séquestration biogénique du dioxyde de carbone.....	188
V.1.4.	Catégories d'impacts et méthodes de caractérisation	188
V.2.	Analyse d'inventaires.....	189
V.2.1.	Scénarii de référence de la production des fibres	189
V.2.2.	Scénarii de la confection des composites.....	194
V.3.	Résultats et discussion.....	195
V.3.1.	Identification des impacts par normalisation	195
V.3.2.	Etude comparative des contributeurs	196

V.3.3. Optimisation du scénario de référence des Panneaux en NPP-30%	200
V.4. Bilan	203
Conclusions et perspectives	204

Table des figures

Figure A.I. 1 : Structure chimique de (a) la cellulose (b) les hémicelluloses et (c) la lignine [31].	6
Figure A.I. 2 : Formation d'un coude par la présence du rhamnose [41].	8
Figure A.I. 3 : Schéma de la structure en paroi de fibre végétale : 1) Orientation des fibrilles dans les différents parois cellulaires [39] ;2) coupe transversale (A), coupe longitudinale (B)[33].	8
Figure A.I. 4 : a) vue macroscopique de la section transversale d'une tige de Lin (Variété Eden) [47]. b) croquis de la coupe transversale d'une feuille de sisal [48]. b) Vue macroscopique multi-échelle de la section transversale de la canne de bambou [45].	9
Figure A.I. 5 : Images prise par microscopie électronique à balayage. a) : tige de lin non-rouie : les faisceaux de fibres (F), l'xylème secondaire (S) et l'épiderme (flèches). B) tige après un rouissage enzymatique, montrant une séparation significative des fibres de l'épiderme après le rouissage [55].	11
Figure A.I. 6 : (a) Machine d'extraction de PALF [21], (b) décortiqueuse des feuilles d'ananas [48] et (c) décortiqueuse des feuilles de sisal [62].	13
Figure A.I. 7 : Observation par microscope électronique à balayage de la surface des fibres de Kénaf : (a) non traité, (b)traitées par NaOH, (c) traitées au silane et (d) traitées par NaOH-silane [70].	17
Figure A.I. 8 : Ensemble des réactions pendant le traitement au silane [81].	19
Figure A.I. 9 : Courbes gravimétriques typiques d'absorption d'un fluide : (LF) comportement de Fick, (A) comportement de pseudo-Fick, (B) diffusion en 2 étapes, (C) diffusion avec endommagement mécanique, (D) diffusion avec endommagement chimique [102].	24
Figure A.I. 10 : Classification de l'IUPAC : des isothermes de physisorption (1) et des boucle d'hystérésis (2) [97].	26
Figure A.I. 11 : Changement de la teneur en humidité d'un film nanocomposite et un film de guar en fonction l'HR, montrant une hystérésis [120].	27

Figure A.I. 12 : Courbes d'adsorption et de désorption d'humidité en fonction de l'HR pour des échantillons de cellulose de différents degrés de modification. Mesures effectuées à 25 ° C et 65 ° C. plus le degré d'oxydation (ox) est important moins la cristallinité l'est [117].	29
Figure A.I. 13 : 1) Absorption en immersion des différentes fibres végétales [129]. 2) Teneur en eau absorbée par (a) le chanvre, (b) le gombo et (c) les fibres de noix de bétel en fonction de la racine carrée du temps à différentes températures [131].	30
Figure A.I. 14 : a) Evolution des coefficients de diffusion de l'eau D_1 et D_2 en fonction a_w pour la sorption de vapeur d'eau à 25 ° C de fibre de lin [105]. b) Sorption de vapeur d'eau dans des fibres d'agave non traitées à 25 ° C : évolution des coefficients de diffusion D_1 et D_2 en fonction de l'activité de l'eau à l'équilibre [123]. c) Evolution de D_1 en fonction de l'activité de l'eau des fibres de lin. [114]	31
Figure A.I. 15 : Evolution linéaire du coefficient de diffusion de l'eau au sein des fibres de Lin en fonction de l'humidité relative [103]	32
Figure A.I. 16 : Courbes de sorption de l'eau liquide pour les fibres d'Agave non traitées et traitées à 25 ° C: (a) première mesure; (b) deuxième mesure (test de reproductibilité) [113].	33
Figure A.I. 17 : Plante de Diss, l'entrée du Campus SophiaTech, Sophia Antipolis.	35
Figure A.II.1: Principe de la méthode du pycnomètre pour la mesure de la masse volumique des fibres de Diss.	36
Figure A.II.2: Equipement SPS de ProUmid de mesures des courbes d'isothermes de Sorption de vapeur d'eau.	38
Figure A.II.3 : Microscope optique infinity 2 - Olympus BH2.	40
Figure A.II.4 : Microscope électronique à balayage, JEOL 6060 LA.	41
Figure A.II.5 : Spectromètre Perkin Elmer.	42
Figure A.II.6 : Analyseur thermique simultané NETZSCH STA 449 F3 Jupiter.	43
Figure A.II.7 : Machines universelle Instron : a) modèle 3366, b) modèle 5566.	43
Figure A.II.8 : Méthode utilisée pour l'essai de traction des fibres de Diss.	44
Figure A.III. 1: Vues microscopiques de la section transversale d'une feuille de Diss : (a) X50, (b) X200 traitée avec Acridine orange.	46

Figure A.III. 2: Clichés MEB de différentes feuilles de Diss rouies et non rouies : FNR : non roui. FRE3, FRE6, FRE9 et FRE24 : feuilles de Diss rouies à l'eau respectivement, pendant 3, 6, 9 et 24 jours. RS : feuilles de Diss rouies par NaOH. M : matrice d'enrobage, FE : fibre élémentaire, EE : épiderme extérieur, EI : épiderme intérieur, FC : faisceaux conducteurs...	49
Figure A.III. 3: Méthode d'extraction manuelle des fibres de Diss.....	50
Figure A.III. 4: Observations par microscope optique de la section transversale des faisceaux des fibres de Diss. FE : fibre élémentaire. EI : épiderme intérieur. FC : faisceaux conducteurs.	52
Figure A.III. 5: Observations par MEB sur la surface des TFD : 1) non traitées ((a), (b) et (c)). 2) traitées thermiquement à 140°C ((a), (b) et (c)). 3) traitées avec NaOH ((a), (b) et (c)). 4) traitées au silane ((a),(b) et (c)). 5) traitées à l'acide acétique ((a), (b) et (C)). EI : épiderme intérieur. E : épine. IM : impureté. FE : fibre élémentaire. R : résidus. [152].	54
Figure A.III. 6 : Variation des diamètres des fibres traitées et non traitées [152].	55
Figure A.III. 7 : Teneur relative des carbohydrates dans les feuilles et les fibres de Diss. Glc : Glucose, GalA : Acide galacturonique, Xyl : xylose, Gal : Galactose, Rha : Rhamnose, Ara : Arabinose [152].....	57
Figure A.III. 8 : Spectres infrarouges des TFD traitées et non traitées [152].	60
Figure A.III. 9: Courbes TG (a) et DTG (b) pour les fibres de Diss non traitées.	62
Figure A.III. 10 : Contraintes de traction et module d'Young des TFD non traités et traités, incertitude type élargie ($k = 2$) [152].	65
Figure A.IV. 1: Spectres de FTIR des UTFD conditionnées dans des environnements à humidité relative différente.....	69
Figure A.IV. 2: Courbes d'absorption d'eau des fibres de Diss traitées et non traitée, avec un coefficient de variance $<10\%$	70
Figure A.IV. 3. Isotherme d'adsorption-désorption des fibres de Diss traitées.....	72
Figure A.IV. 4: Isothermes de sorption des fibres de Diss traitées issues des différents modèles mathématiques	74
Figure A.IV. 5 : Évolution des paramètres Md et Mh du modèle numériques H-H des différentes fibres traitées.....	75

Figure A.IV. 6 : Données cinétiques enregistrées dans le cas des NTFD pour une augmentation de a_w de 0.68 à 0.78.	77
Figure A.IV. 7 : Variations de D1 et D2 en fonction de a_w dans un échelle semi-logarithmique.	78
Figure A.IV. 8 : Méthodologie utilisée pour déterminer le grand et le petit diamètres (L et D) des fibres de Diss : a) cliché obtenus par microscope optique, b) image traitée par ImageJ...	80
Figure A.IV. 9 : Géométries discrétisées des fibres de Diss modélisées sur Abaqus : a) circulaire, b) Ellipsoïdale.	81
Figure A.IV.10 : Courbes d'adsorption d'eau par immersion des différentes fibres étudiées décrites par $D_{num.circul}$ et leurs données expérimentales.	82
Figure A.IV.11 : Courbes d'adsorption d'eau par immersion des différentes fibres étudiées décrites par $D_{num.ellips}$ et leurs données expérimentales.	83
Figure B.I. 1 : Résistance à la traction des composites Areca/PP en fonction du taux de chargement des fibres traitée et non traitées [78].	89
Figure B.I. 2 : Clichés MEB des faciès de rupture de composite Kraft/PP (40% en poids de fibres) avec et sans MA-g-PP [191].	90
Figure B.I. 3 : Illustration de l'équivalence de l'énergie de déformation entre les volumes hétérogènes et homogénéisés [203].	91
Figure B.I. 4 : Evolution de la teneur en humidité des composites (fibres de Kraft/PP) en fonction de la durée d'immersion dans l'eau lors un vieillissement hygrothermique à des températures de 30, 50 et 70 °C (Ligne pointillée : avec 4% en poids de MAPP. Ligne continue : sans MAPP) [191].	94
Figure B.I. 5 : Mécanisme de dégradation lors d'un vieillissement hygrothermique [236].	97
Figure B.I. 6: Evaluation de l'effets du vieillissement hygrothermique sur les clichés MEB des faciès de rupture des biocomposites Kraft (40%)/PP (40% en poids de fibres) : (a) des composites non-vieilli avec 4% en poids de MAPP et (b) des composites vieillis à 70 C avec 4% en poids de MAPP [191].	97
Figure B.I. 7 : Evolution des propriétés mécaniques de traction des composites Lin/ Elium en fonction de l'humidité[238].	98

Figure B.I. 8 ; Facies de rupture du composite Lin/Elum avant et après vieillissement [238].	98
Figure B.I. 9 : Représentation schématique d'un cycle de vie générique d'un produit (les flèches pleines représentent les flux de matières et d'énergie, tandis que les flèches en pointillés représentent les flux d'information) [244]	101
Figure B.I. 10 : Synthèse des étapes de cycle de vie conformément aux normes NF EN ISO 14040 [240] et NF EN ISO 14044 [241].	102
Figure B.I. 11 : Catégories de dommages de capot frontal d'une véhicule type buggy lors: a) la phase de production, b) le cycle de vie complet [247].	106
Figure B.I. 12 : Etude de sensibilité de cycle de vie d'un matériau biosourcé à base des fibres de Kenaf [250].	108
Figure B.II. 1 : Balance Sartorius dotée d'un dispositif de mesure en suspension : a) pesée dans l'air, b) pesée dans l'éthanol.	110
Figure B.II.2 : Echantillon utilisé pour l'essais d'absorption d'eau des biocomposites.....	111
Figure B.II.3: Vidéo-microscope 3D, HIROX RH-2000.....	112
Figure B.II.4 : DSC Perkin Elmer 4000.....	113
Figure B.II.5 : Eprouvettes des essais mécaniques : a) Emporte-pièce pour les éprouvettes Type 1B, b) Emporte- pièce pour les éprouvettes de flexion.....	113
Figure B.II.6 : Appareil CEAST 6545 utilisé pour l'essai de choc Charpy.....	115
Figure B.II.7 : Presse hydraulique utilisée pour la mise en forme des biocomposites.	117
Figure B.II.8: Moule dédié à la confection des plaques (TFD/PP).....	117
Figure B.II.9 : Multicouche PP/TFD avant le moulage par thermocompression.	118
Figure B.II.10 : Composite fibres de Diss/PP produit en utilisant : a) un grillage de téflon, b) sans grillage de téflon.	118
Figure B.II.11 : Thermogramme de PP pendant un cycle chauffage/refroidissement.....	119
Figure B.II.12 : Programme pression/température adapté pour le procès de thermocompression.	120

Figure B.III.1 : Observations MEB menées sur le plan transversal de APP-10%. A : couche active, P : peau, PP : polypropylène, F : fibres de Diss, M : matrice d'enrobage, I : Interface fibre matrice.	122
<i>Figure B.III. 2 : PP : Observations MEB menées sur la couche active de ATFD-10%. PP : polypropylène, F : fibres de Diss, I : Interface fibre patrice, E : épine, D : discontinuité....</i>	<i>123</i>
<i>Figure B.III. 3 : Evolution expérimentale et théorique de la masse volumique des UPP.</i>	<i>125</i>
Figure B.III. 4 : Evolution du taux de porosité en fonction du taux de fibres.	125
Figure B.III. 5 :Masse volumiques des composite à 10% de chargement en fibres.	126
Figure B.III. 6 : Courbe de traction de PP.	128
Figure B.III. 7 : Courbes de traction des composites chargés, à 10% en masse, par les fibres de Diss.	129
Figure B.III. 8 : Propriétés en traction (module et contrainte) de PP et des composites renforcés par les différentes fibres de Diss.	131
Figure B.III. 9 : Clichés MEB des faciès de rupture de différents composites. ZRA : zone de rupture adhésive, DF : Déchaussement des fibres. EE : empreintes des épines. E : épines. RF : rupture de fibre. DM : déchirure de la matrice.	132
Figure B.III. 10 : Courbes de flexion contrainte/déformation de la ligne inférieure de PP et les composites chargés à 10% en fibres de Diss.	134
Figure B.III. 11 : Répartition des contraintes dans matériau supposé homogène en comparaisons avec la section transversale des composites à 10% de chargement en fibres de Diss.	135
Figure B.III. 12 : Propriété en flexion de PP et les composites à 10% de chargement en fibres de Diss.....	135
Figure B.III. 13 : Evolution de la résilience en fonction du taux de chargement en UTFD..	136
Figure B.III. 14 : Résiliences de PP et les composites à 10% de chargement en fibres de Diss.	136
<i>Figure B.III.15 : Clichés MEB des NPP-20%. ZA : région d'agglomération. A : couche active, P : peau, PP : polypropylène, F : fibres de Diss, M : matrice d'enrobage, I : Interface fibre matrice.</i>	<i>137</i>

<i>Figure B.III.16 : Clichés MEB des NPP-30%. A : couche active, P : peau, PP : polypropylène, F : fibres de Diss, M : matrice d'enrobage, I : Interface fibre matrice. MF : microfissure. IM : impureté.</i>	138
<i>Figure B.III.17 : Clichés MEB des NPP-40%. A : couche active, P : peau, PP : polypropylène, F : fibres de Diss, MF : microfissure. PO : porosité.</i>	139
Figure B.III. 18 : Evolution de la masse volumique des NPP en fonction du taux de chargement.	140
Figure B.III. 19 : Courbe de traction des NPP.	141
Figure B.III. 20 : Courbe de traction des NPP-30%, et LPP-30% et CPP-%.	142
Figure B.III. 21 : Propriétés mécaniques en traction des NPP-30%, CPP-30% et LPP-30%.	143
Figure B.III. 22 : Propriétés mécaniques en flexion des NPP.	144
Figure B.III. 23 : Propriétés mécaniques en flexion des NPP-30%, LPP-30% et CPP-30%.	144
Figure B.III. 24 : Microstrucure des composites NPP-10% observée par vidéo-microscope 3D HIROX RH-2000.	145
Figure B.III. 25 : Paramètres geométriques des NTFD considérés pour alimenter le modèle numérique.	146
Figure B.III. 26 : VER des NPP : a) NPP-10%. b) NPP-20%. c) NPP-30%. d) NPP-40%... ..	148
Figure B.III. 27 : Evolution de modules pour le modèle numérique et l'expérimentation en fonction du taux de chargement massique en fibres.	149
Figure B.III. 28 : Efficacité d'adhérence mécanique fibres/matrice en se reposant sur les résultats du modèle numérique	150
Figure B.IV. 1 : Evolution de l'absorption d'eau des UPP en fonction du taux de chargement en fibres.	153
Figure B.IV.2 : Taux de saturation théoriques et expérimentaux des différents composites renforcés par les fibres de Diss traitées.	154
Figure B.IV. 3 : Courbes de diffusion de PP et des composites renforcés par les fibres non traitées.	155

Figure B.IV. 4 : Courbe de Diffusion des différents composites renforcés par les fibres traitées.	156
Figure B.IV. 5 : Evolution du coefficient de diffusion des UPP en fonction du taux de chargement en fibres.	158
Figure B.IV. 6 : Coefficient de diffusion de PP et des biocomposites renforcés par les fibres traitées.	159
Figure B.IV. 7 : Effet de bords constaté sur l'échantillons NPP-10% (2).	159
Figure B.IV. 8 : Conditions aux limites appliquées sur la géométrie de PP.	161
Figure B.IV. 9 : Maillage de la géométrie de la feuille PP.	161
Figure B.IV. 10 : Illustration de la méthode de calcul inverse par approche numérique pour le PP.	162
Figure B.IV.11 : Comparaison des résultats expérimentaux de PP (1) et PP (3) avec la courbe d'absorption numérique.	162
Figure B.IV. 12: Méthodologie adoptée pour l'identification de comportement diffusive à travers la couche active suivant l'épaisseur.	163
Figure B.IV. 13 : Modélisation de l'interface dans le modèle numérique.	164
Figure B.IV. 14 : Maillage considéré pour la modélisation de diffusion à travers l'épaisseur.	164
Figure B.IV.15 : Evolution de la concentration d'eau au sein de la couche active au niveau de la zone fibres/matrice : a) avec interface, b) sans interface.	165
Figure B.IV.16 : Courbes de diffusion à travers l'épaisseur avec et sans la considération de l'interface.	166
Figure B.IV.17 : Méthodologie adoptée pour l'identification de comportement diffusive à travers la couche active suivant la largeur.	167
Figure B.IV. 18 : Illustration de la diffusion à travers la fibre lorsque l'interface est considérée ou non en fonction de la direction de diffusion de composite. La géométrie en noir représente la fibre et en blanc l'interface.	168
Figure B.IV.19 : Courbes d'absorption normalisées pour la diffusion à travers la largeur de la couche active.	169

Figure B.IV.20 : Géométrie considérée pour le modèle mésoscopique.	170
Figure B.IV. 21 : Courbe de l'évolution du taux d'adsorption normalisé de la couche active au sein du composite et isolée.	171
Figure B.IV. 22 : Comparaison des résultats expérimentaux de NPP-10% (1) avec la courbe de cas 3.	172
Figure B.IV.23 : Comparaison des résultats expérimentaux de NPP-10% (2) avec la courbe de cas 5.	172
Figure B.IV. 24 : Comparaison des résultats expérimentaux de NPP-10% (3) avec la courbe de cas 4.	173
Figure B.IV. 25 : Modèle à deux échelles représentatif de la diffusion à travers l'épaisseur de l'échantillon NPP-10% (1).	173
Figure B.IV. 26 : Evolution du taux d'adsorption de PP en fonction des cycles de vieillissement.	175
Figure B.IV. 27 : Evolution du taux d'adsorption des biocomposites en fonction des cycles de vieillissement à 60°C.	175
Figure B.IV. 28 : Evolution du taux d'adsorption des biocomposites en fonction des cycles de vieillissement à 90°C.	176
Figure B.IV. 29 : Clichés de la section transversale (1) et le plan de la couche active (2) après : un cycle (a), trois cycles (b) et cinq cycle (c) de vieillissement à 60°C, et à cinq cycles de vieillissement à 90°C (d). P: parasite. FD : fibre détériorée.	178
Figure B.IV.30 : Evolution de module de Young des différents biocomposites à 10% de chargement et la matrice PP en fonction des cycles séchage/saturation et la température de vieillissement.	179
Figure B.IV.31 : Evolution de module de flexion des différents biocomposites à 10% de chargement et la matrice PP en fonction des cycles séchage/saturation et la température de vieillissement	180
Figure B.IV.32 : Evolution de la contrainte en flexion des différents biocomposite à 10% de chargement et la matrice PP en fonction des cycles séchage/saturation et la température de vieillissement.	181

Figure B.V. 1: Etapes considérées dans la production des bardages. T : représente le transport.	185
Figure B.V. 2 : Définition des régions climatiques de vent [269].....	186
Figure B.V. 3 : Schéma du panneau de bardage.	187
Figure B.V. 4: Zone de présence de la plante de Diss, en vert, selon l'inventaire national du patrimoine naturel (INPN) : https://inpn.mnhn.fr/viewer-carto/especes/82173	192
Figure B.V. 5 : Impacts de la phase de production des panneaux normalisés.	195
Figure B.V. 6 : Identification des contributeurs de la phase de production pour les différents panneaux étudiés sur l'ensemble des catégories d'impacts.	197
Figure B.V. 7 : Identification des contributeurs de la phase de production des panneaux des différents composites vis-à-vis la demande d'énergie cumulée.	199
Figure B.V. 8 : Evaluation de l'effet des différents scénarios sur l'ensemble des catégories d'impacts.....	201

Table des tableaux

Tableau A.I. 1 : Composition chimique, le degré de cristallinité ainsi que degré de polymérisations de cellulose (DP) des différentes fibres naturelles.	5
Tableau A.I. 2 : Description mathématique des modèles GAB, GDW, HH.....	28
Tableau A.I. 3 : Paramètres de diffusion des fibres végétales sous différentes conditions de vieillissement.	34
Tableau A.III. 1 : Composition chimique des feuilles et fibres de Diss exprimées en matière sèche [150]......	56
Tableau A.III. 2 :Principales bandes d'absorption présentent dans le spectre IR des fibres végétales [69], [70], [147] [148], [154] [155].....	58
Tableau A.III. 3 : Récapitulatif des résultats de la pyrolyse des TFD traitées et non traitées [150]......	63
Tableau A.IV. 1 : Valeurs des critères de performance et les paramètres des différents modèles.	74
Tableau A.IV. 2 : Point de saturation (FSP) des différentes fibres de Diss traitées.	76
Tableau A.IV. 3 : Coefficient de diffusion des différentes fibres de Diss lors de l'adsorption d'eau.....	78
Tableau A.IV. 4 : Paramètres géométriques des fibres de Diss : forme circulaire et ellipsoïdale.	80
Tableau A.IV. 5 : Coefficients de diffusion numériques pour les différentes géométries et les fibres étudiées.	81
Tableau B.I.1: Avantages et inconvénients des matrices thermodurcissable et thermoplastique [25]......	86
Tableau B.I. 2 : Coefficient de diffusion de PP et des composites fibres végétale/PP rapporté dans la littérature.....	95
Tableau B.I. 3 : Catégories d'impact les plus utilisées dans l'étude ACV [246].	104
Tableau B.I. 4 : Récapitulatif de quelques études d'ACV sur les matériaux biosourcés remportées de la littérature.....	107

Tableau B.II.1 : Récapitulatif des plaques composites étudiées et les méthodes de caractérisation appliquées.	121
Tableau B.III. 1 : Propriétés en traction de PP et des composites renforcés par les différentes fibres de Diss.....	130
Tableau B.III. 2 : Masse volumique et taux de porosité théorique des NPP.	140
Tableau B.III. 3 : Propriétés de traction des NPP.	142
Tableau B.III. 4 : Propriétés mécaniques et physiques des phases.	147
Tableau B.IV. 1 : Coefficients de diffusion des différents biocomposites.	157
Tableau B.IV.2 : Cas d'étude considérés pour le modèle mésoscopique.	170
Tableau B.IV.3 : Coefficients de diffusion effectif (1D) pour les cas étudiés.....	171
Tableau B.V. 1: Paramètres de site et de bâtiment de références pour le calcul de la dépression causée par le vent.	186
Tableau B.V. 2 : Propriétés mécaniques et physique des panneaux étudiés.....	187
Tableau B.V. 3 : Vérification de critère de la flèche pour les différents panneaux étudiés. .	187
Tableau B.V. 4 : Procédés agricole de la phase de culture de Lin et de Chanvre.	190
Tableau B.V. 5: Allocation des produits d'extraction des fibres de Lin et de Chanvre considérée dans l'étude.	191
Tableau B.V. 6 : Consommation d'énergie dans le processus d'extraction des fibres de Lin et de Chanvre pour 1 kg.	191
Tableau B.V. 7: Consommation d'énergie adoptée pour la phase d'extraction des fibres de Diss.	193
Tableau B.V. 8 : Impacts de la phase de production des panneaux normalisés	196
Tableau B.V. 9 : Scénarios adoptés pour l'optimisation de la phase de production des panneaux à base des fibres de Diss.	201

Introduction Générale

La réduction des consommations d'énergie est un enjeu majeur pour faire face à la pénurie des ressources énergétiques fossiles et au problème du changement climatique dans le monde. En France, le secteur du bâtiment (résidentiel et tertiaire) est le premier consommateur d'énergie avec 46% de l'énergie finale consommée par an (144 Mtep en 2017) [1]. Cela entraîne l'émission de 81 Mt eqCO₂ de gaz à effet de serre (GES), soit 18% des émissions en France (en 2019) [2] ; dépassant par-conséquent son budget de carbone 2015-2018 fixé par la stratégie nationale Bas-Carbone (SNBC) [3], soit de 34 Mt eqCO₂ [2]. Malgré leur ampleur, ces émissions restent clairement au-dessous du niveau de 1990. En effet, depuis le premier choc pétrolier en 1973, le secteur du bâtiment, notamment le résidentiel, a fait l'objet de recours réglementaires afin de contenir la consommation excessive d'énergie par l'instauration des réglementations thermiques successives (RT 1974, 1982, 1988, 2000, 2005, 2012). Cela a abouti à une réduction de 14% d'émission de GES en 2017 par-rapport à 1990 [3].

Initialement, les réglementations avaient un intérêt purement économique afin d'anticiper les crises pétrolières. Cette attention a pris plus tard un aspect environnemental, après la signature du premier accord international qui vise à réduire les émissions des GES, le protocole de Kyoto (1997). En France, la volonté politique dans la lutte contre le changement climatique a été nettement visible sur les nouvelles réglementations qui suivent cette date. Tout d'abord la réglementation actuelle (RT 2012) qui exige une réduction d'environ 26% et 33% par rapport aux précédentes exigences réglementaires (RT 2000 et RT 2005). D'autre part, des nouvelles restrictions ont été appliquées pour la rénovation des bâtiments existants afin d'améliorer leur efficacité énergétique.

Récemment, d'autres objectifs beaucoup plus ambitieux ont été ciblés avec la signature des accords de Paris (2015), avec en particulier la réduction de la consommation énergétique finale en France de 20% en 2030 et de 50% en 2050 par-rapport à 2012 ; ainsi que de réduire de 40% les émissions de GES en 2030 et 75% en 2050 par-rapport à 1990 [4]. Pour le secteur du bâtiment, la Stratégie Nationale Bas-Carbone (SNBC) vise à atteindre le standard Bâtiment Basse Consommation (BBC) sur tout le secteur d'ici 2050 [3], soit une consommation de 80 kWh/m²/an pour les logements rénovés. Cela signifie que la plupart des logements et bâtiments tertiaires, 75 % du parc existant, subiront des rénovations majeures. De ce fait, la loi relative à la transition énergétique pour la croissance verte (LTECV) a mis comme objectif la

réhabilitation énergétique de 500 000 logements par an à compter de 2017 dans le secteur résidentiel [5]. En outre, avec l'entrée en vigueur de la « prochaine » réglementation (RT 2020), les émissions relatives aux matériaux de construction et rénovation, estimé actuellement à 5% des GES émis en France [6], vont être limitées. Afin d'y parvenir, l'utilisation des produits dits « bas carbone » qui permettent le stockage de carbone, comme les matériaux biosourcés, va être favorisée et le cycle de vie du bâtiment sera considéré en fixant un seuil d'émission des GES. Par conséquent, les futurs matériaux doivent obéir à ces attentes et le défi est donc de renforcer la part des matériaux biosourcés dans le marché des matériaux de construction en exploitant des nouvelles ressources naturelles. C'est dans ce cadre que s'inscrit cette thèse.

L'objectif de la présente étude est d'utiliser des nouvelles ressources naturelles afin de formuler des panneaux de bardage en biocomposite pour la réhabilitation énergétique des bâtiments en développant en amont des perspectives pour une éventuelle industrialisation. Il existe dans le monde une large variété des plantes contenant des fibres intéressantes pour différentes applications industrielles, donnant aux fabricants un vaste choix selon les applications souhaitées. La variété de ces plantes change d'une région à l'autre, parmi elles des plantes qui sont cultivées (telles que le lin, le chanvre, le miscanthus et cetera) et d'autres qui poussent d'une manière sauvage prêtes à l'usage. L'utilisation de ces richesses locales, notamment la dernière catégorie, pourrait également enrichir le contexte écologique des fibres végétales en éliminant le coût environnemental du transport et de la culture. Cependant, une large gamme de ces plantes n'est pas encore exploitée dans le monde industriel et peu étudiée dans la littérature.

Ce travail met la lumière sur une plante prometteuse qui pourrait s'ajouter à la liste de ces plantes écologiques exploitées dans le marché des fibres végétales, le Diss. Cette plante a commencé récemment à attirer l'attention des chercheurs, notamment pour leur exploitation comme un renfort aux composites cimentaires [7], [8] et polymère [9], [10], [11] ainsi que pour le traitement des sols expansifs [12]. Cependant, comparativement aux autres fibres naturelles, ces fibres ne sont pas suffisamment étudiées, d'où leur absence dans le secteur industriel.

Les présents travaux sont portés principalement sur ces fibres qui se trouvent en abondance sur le contour méditerranéen. C'était l'une des ressources les plus utilisées auparavant par les habitants de cette région, notamment dans la construction des toits et des cordes en raison de sa disponibilité et les propriétés techniques qu'elles présentent.

Les recherches étant peu développées sur les propriétés de cette fibre et de son exploitation dans les matériaux biosourcés, ce mémoire de thèse présente ce travail en deux parties. La

première est dédiée à la caractérisation des fibres de Diss et elle est découpée en quatre chapitres. Tout d'abord, le premier chapitre récapitule les travaux de la littérature portés sur les fibres végétales dont leur composition chimique, leur méthode d'extraction, leurs traitements et leurs propriétés sont abordés de manière générale. Puis, le deuxième chapitre présente le matériel et les méthodes de caractérisation déployés dans cette partie pour caractériser la fibre de Diss. Ensuite, le troisième chapitre est consacré à la caractérisation physicochimique, thermique et mécanique des fibres de Diss. Afin de combler une lacune dans la littérature relative à l'extraction de ces fibres, une méthode adaptée à la nature de cette plante est proposée. Par ailleurs, leurs traitements par des méthodes chimiques ainsi que thermique ont été étudiées dans le but de favoriser leur utilisation comme renfort aux composites polymères. Enfin, le dernier chapitre de cette partie traite le comportement hygro/hydrothermique des fibres de Diss, ainsi que l'effet des traitements effectués sur leur caractère hydrophile. D'autre part, une attention particulière est portée sur la cinétique de diffusion des molécules d'eau au sein de ces fibres, ainsi que l'influence de leurs géométries considérées grâce à des approches numériques et analytiques basées sur la deuxième loi de Fick. Les résultats de ce chapitre ont été utilisés par la suite afin d'alimenter un modèle numérique multi-échelles des biocomposites.

La deuxième partie, quant à elle, est basée sur cinq chapitres. Un premier chapitre est destiné à fournir un état de l'art sur les biocomposites, en accordant une attention particulière sur leurs comportements mécanique et hydro/hydrothermique, ainsi que l'aspect écologique de leurs utilisations. Puis, un deuxième chapitre détaille les méthodes employées pour la caractérisation et la mise en œuvre des biocomposites à base de fibres de Diss. Le troisième chapitre présente les résultats de la caractérisation mécanique des composites renforcés par les fibres de Diss et l'évaluation de l'effet des traitements sur ses propriétés. Ensuite, dans le chapitre quatre, le comportement diffusif des différents biocomposites est discuté puis évalué par une étude numérique multi-échelles qui tient compte de l'effet de bords et de l'interface fibres/matrice. La durabilité de ces biocomposites est également abordée par une étude de vieillissement cyclique accéléré dans l'eau à différentes températures. Enfin, un cinquième chapitre propose des scénarii éco-responsables pour la production d'un matériau biosourcé à base de fibres de Diss destiné à être utilisé comme panneau de bardage dans les bâtiments. De ce fait, une étude d'analyse de cycle de vie (ACV), type de berceau à la porte, a été réalisée. Cette étude pourra être utilisée à la fois comme un outil d'aide à la décision pendant toutes les étapes de la conception, écoconception, ainsi que comme outil de comparaison entre les composites renforcés par d'autres fibres végétales.

Partie A :

Fibres de Diss, Extraction et caractérisation.

Sommaire

Chapitre I: Etat de l'art sur les propriétés des fibres naturelles	4
Chapitre II: Matériels et méthodes de Caractérisations.	36
Chapitre III: Extraction, traitements et caractérisations de la fibre de Diss.	46
Chapitre IV: Comportement hygrothermique des fibres de Diss	68

Chapitre I : Etat de l'art sur les propriétés des fibres naturelles

I.1. Généralité

L'épuisement des ressources naturelles, la pollution causée par l'industrie et les recommandations environnementales ont poussé les chercheurs et les industriels à explorer le développement des biomatériaux. Dans cette famille de matériaux et parmi les ressources naturelles prometteuses dans le domaine des matériaux de construction, on trouve les fibres cellulosiques. En effet, l'intégration des fibres végétales dans le domaine des matériaux composites comme alternative aux fibres synthétiques continue à susciter beaucoup d'intérêt de recherche et d'application. Ceci est dû principalement à leur neutralité par-rapport aux émissions de CO₂ dans l'atmosphère. Concrètement, la quantité de CO₂ émise dans l'atmosphère due à la combustion ou la biodégradation de ces plantes est égale à celle qu'elles ont absorbée pendant leur croissance [13]. De plus, ces fibres présentent d'autres avantages tels que leurs faibles coûts, biodégradabilité ainsi que le fait d'être renouvelables.

Par ailleurs, les fibres naturelles sont connues pour leurs faibles densités comparés aux fibres synthétiques, tout en affichant des propriétés spécifiques comparables à celles des fibres de verre par exemple. Cependant, la nature hydrophile de ces fibres végétales et la diversité de leurs propriétés mécaniques représentent des limitations quant à leur utilisation comme renfort pour les matériaux composites. Particulièrement quand il s'agit de matrice à caractère hydrophobe, ce qui soulève la question de la compatibilité entre le renfort et la matrice.

Dans le présent chapitre, nous allons aborder en premier temps d'une façon générale les sources des fibres, leurs compositions chimiques, morphologies, ainsi que leurs emplacements au sein des plantes. En deuxième temps, nous allons nous intéresser à leur extraction par différents processus existants, leurs traitements ainsi que leur comportement hygrothermique.

Il existe une large variété de plantes qui contiennent des fibres cellulosiques telles que le Lin, le Chanvre, Ramie, Kénaf, Sisal, Ananas, Coton, Bambou... Cette diversité les rend assez abondantes pour diverses applications et exploitations. Selon leur provenance, les fibres végétales peuvent être classées en trois catégories [14]: les fibres issues des poils séminaux de

graines (coton, kapok) ; les fibres libériennes extraites des tiges de plantes (lin, chanvre, jute, ortie, kénaf) ; et les fibres provenant de feuilles (sisal, abaca), de troncs (palmier) et d'enveloppes de fruit (noix de coco). Par conséquent, leur composition chimique peut varier d'une plante à l'autre ainsi que dans les différentes parties de la même plante. En outre, elle est influencée par la région géographique, l'âge et les conditions de croissance [6], [7]. La méthode employée pour déterminer leur composition chimique peut aussi affecter les résultats [8], [9]. Les fibres libériennes représentent la catégorie des fibres la plus cultivée et développée en France avec plus de 75 000 ha/an et 8 000 ha/an des surfaces implantées, respectivement, pour le lin et le chanvre [15].

1.1.1. Composition chimique

Les fibres végétales, appelées également dans la littérature les fibres cellulosiques ou lignocellulosiques, sont constituées principalement, comme leurs noms l'indique, de cellulose, lignine et hémicellulose. De plus, elles peuvent contenir de petites quantités d'autres substances telles que la pectine, la cire et les cendres [20] (Tableau A.I. 1).

Tableau A.I. 1 : Composition chimique, le degré de cristallinité ainsi que degré de polymérisations de cellulose (DP) des différentes fibres naturelles.

Fibre	Cellulose (%m)	Lignine (%m)	Hémicellulose (%m)	Pectine (%m)	Cire (%m)	Cendre (%m)	Autre (%m)	Degré de cristallinité (%)	DP
Jute [21]	61.0	13.2	15.9	0	0.9	0.5	1.56	55	1150
Lin [22]	70-75	10-15	15	-	-	-	-	-	-
Ramie [21]	86.9	0.5	3.9	0	0.3	1.1	2.1	70	5800
Sisal [23]	78	8	10		2	1	-	-	-
Ananas [21]	69.5	4.4	17.8	1.1	3.3	0.9	0.25	57.5	1178
Areca [24]	55.82	6.82	34.28	-	-	1.80	-	-	-
Kénaf [25]	53.18	8.18	14.33	8.86	0.46	7.36	-	-	
Typha [26]	35.8	17.6	21.4	-	-	-	25.2	-	-
Bambou [27]	47.1	20.2	16.1	9.6	5.9	1.1	-	-	-
Calotropis [28]	74	4.1	-	-	-	2.2	-	-	-

1.1.1.1. Cellulose

La cellulose est un polysaccharide, homopolymère de D-glucoses reliés entre eux par des liaisons glycosidiques β -(1-4) faisant une chaîne linéaire [29]. Le degré de polymérisations (DP) de cellulose peut atteindre 10 000 en ce qui concerne les fibres libériennes [30]. Ce composant majoritaire dans les fibres naturelles fournit la force, la rigidité et la stabilité structurelle de la fibre en raison de sa cristallinité [31]. En termes de propriétés thermiques, la

cellulose affiche une faible conductivité thermique, suivie par celles de l'hémicellulose et la lignine [32].

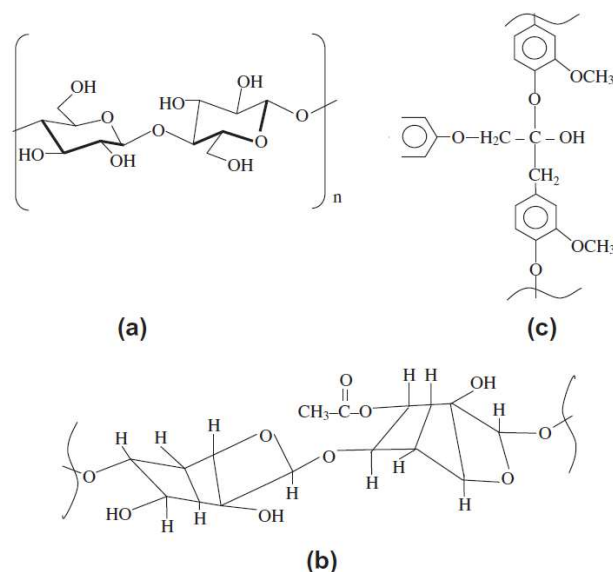


Figure A.I. 1 : Structure chimique de (a) la cellulose (b) les hémicelluloses et (c) la lignine [31].

La chaîne de cellulose possède dans chaque monomère trois fonctions hydroxyles, deux fonctions alcools secondaires en position 2 et 3 et une fonction alcool primaire en position 6 (Figure A.I. 1.a). Une partie de ces fonctions forme des liaisons hydrogènes inter-chaînes au sein de la macromolécule de la cellulose, tandis que l'autre forme des liaisons avec les autres composants. En termes de structure, la macromolécule de la cellulose est composée par des parties ordonnées (cristallines) et d'autres qui le sont moins (amorphes). Cette cristallinité est due aux liaisons hydrogènes inter-chaînes qui créent les arrangements ordonnés. Par conséquent, plus la cristallinité est importante, plus la cellulose est rigide [33]. Le taux de cristallinité varie en fonction de la nature de la fibre, sa position dans la plante et l'âge : plus la plante est âgée, plus la cristallinité est élevée [17]. D'autre part, la cellulose est insoluble dans l'eau, les alcalins (NaOH et KOH) et dans les acides dilués. Par contre, elle est facilement hydrolysable par les acides concentrés (sulfurique, nitrique), les bases (potasse, hydrazine), les sels (iodure de potassium) ou du N-méthylmorpholine-N-oxyde [34], [30].

1.1.1.2. Lignine

La lignine représente après la cellulose le bio-polymère le plus abondant sur terre avec environ 30 % du carbone organique de la biosphère [35]. La lignine est un polymère aromatique amorphe tridimensionnel de nature phénolique, dont la composition varie selon l'espèce végétale [36] (Figure A.I. 1.c). Elle est composée par des unités phénylpropanoïdes dérivées

principalement de trois alcools cinnamyls (monolignols): (p-coumarylique (H), coniferyl (G) et sinapyl (S)) [37]. La formation de lignine n'apparaît en grande quantité qu'à la fin de la vie cellulaire [35].

En plus de son rôle de cohésion au sein des cellules végétales [36], la lignine confie également aux polysaccharides une résistance à l'encrassement biologique en les protégeant contre la dégradation microbienne [38]. De plus, la lignine est le composant le moins hydrophile des fibres végétales [39]. Elle n'est pas hydrolysée par les acides [27]. Cependant, la lignine pourrait se dégrader au contact de certains champignons basidiomycètes [40], soluble à chaud dans la soude, aisément oxydée et facilement condensable avec du phénol [27].

l.1.1.3. Hémicellulose

L'hémicellulose est un polysaccharide complètement amorphe. Elle est composée d'une chaîne courte et ramifiée de sucre neutre, constituée principalement de pentoses (xylose et arabinose), de quelques hexoses (glucose, mannose, galactose et rhamnose) et d'une faible proportion d'acides uroniques (galacturonique et glucuronique) [35] (Figure A.I. 1.b). Son degré de polymérisation dépend de l'espèce végétale et il est compris entre 200 et 300 [27]. Les xylanes, les mannanes et les galactanes sont les hémicelluloses les plus communes dans la paroi des cellules, dont leurs chaînes principales sont constituées respectivement de xylose, de mannose et de galactose [41]. Son rôle consiste principalement à fournir une liaison entre la lignine et la cellulose ; ce composant pouvant être lié de manière covalente à la lignine [33], [41], [42]. L'hémicellulose a une structure ouverte contenant de nombreux groupes hydroxyles et acétyles d'où provient son caractère hydrophile [39]. Elle est soluble dans les alcalins, insoluble ou peu soluble dans l'eau et facilement hydrolysable dans l'acide [27] [33].

l.1.1.4. Pectine

Les pectines sont des polysaccharides comme les celluloses et les hémicelluloses. Elles sont constituées d'une chaîne principale d'acide galacturonique relié par des liaisons α -(1,4) [43]. Des molécules de rhamnose s'intercalent entre cette chaîne par des liaisons 1,2 et 1,4 formant une chaîne caractéristique en zigzag [36] (Figure A.I. 2). Certaines de ces molécules forment des branches constituées essentiellement d'arabinane et de galactane d'où découle la complexité de ce polymère naturel [41]. La structure de pectine est complètement amorphe, les pectines sont présentes dans la paroi primaire et dans la lamelle moyenne [44].

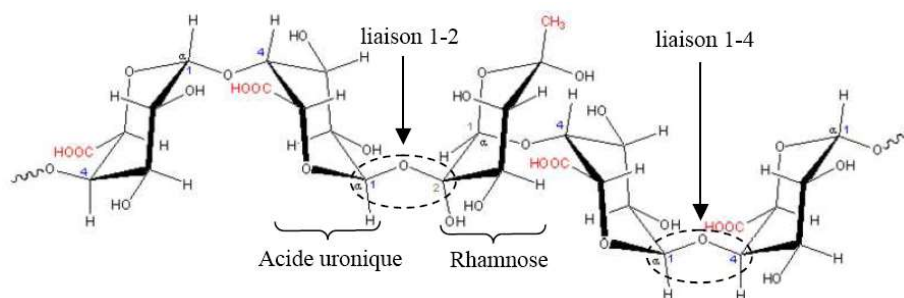
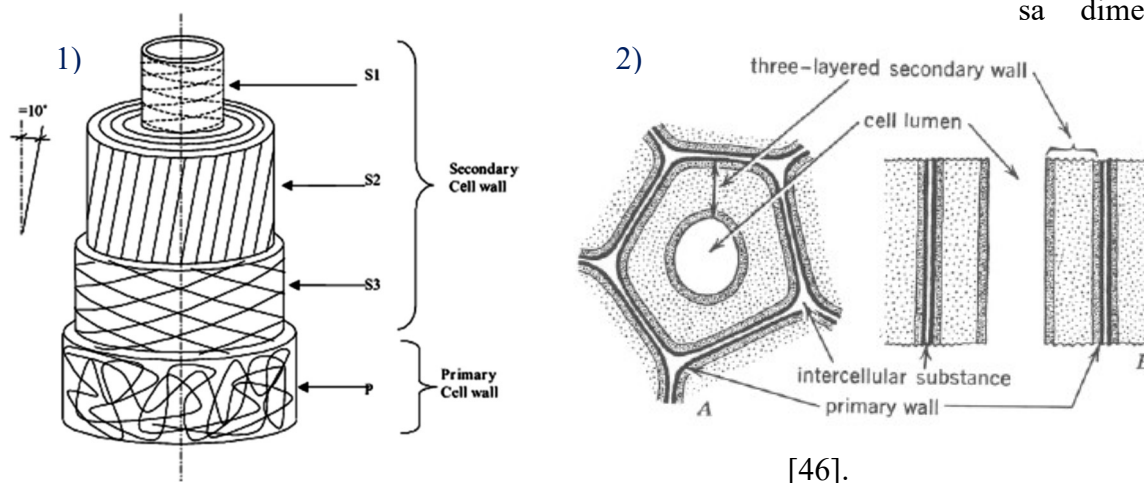


Figure A.I. 2 : Formation d'un coude par la présence du rhamnose [41].

I.1.2. Structure des fibres naturelles

Une fibre élémentaire peut être considérée comme un composite multicouches de microfibrilles enrobées dans des matrices naturelles d'hémicellulose, de lignine et de pectine [14]. En effet, les chaînes de cellulose s'associent de façon parallèle par l'interaction des groupes hydroxyles formant les microfibrilles. L'hémicellulose joue le rôle d'agent de couplage entre les microfibrilles et la matrice naturelle. Elle est probablement associée aux microfibrilles de cellulose par des liaisons hydrogènes [36], [39]. La matrice naturelle est typiquement composée de pectine dans la paroi primaire et de lignine dans la paroi secondaire [45]. Les fibrilles de cellulose sont orientées en hélice suivant un angle par-rapport à l'axe longitudinal de la fibre nommé angle micro-fibrillaire [14] (Figure A.I. 3.1). Celui-ci varie principalement en fonction de la paroi cellulaire, ainsi que le type de la plante. Il attribue aux fibres naturelles certaines propriétés mécaniques qui augmentent inversement proportionnel à sa dimension



[46].

Figure A.I. 3 : Schéma de la structure en paroi de fibre végétale : 1) Orientation des fibrilles dans les différents parois cellulaires [39] ; 2) coupe transversale (A), coupe longitudinale (B)[33].

La fibre élémentaire possède une structure polygonale à cinq côtés en parois concentriques creuse au milieu ; ce vide est appelé « lumen ». La structure de la fibre est composée de deux

types de parois ; une paroi primaire mince et une paroi secondaire épaisse qui est subdivisée en trois couches S1, S2 et S3 [35]. Ces couches se différencient par leurs compositions chimiques, leurs épaisseurs et leurs angles microfibrillaires. La couche S2 est la plus épaisse, elle se caractérise par un faible angle microfibrillaire [13].

Les fibres élémentaires contiguës sont liées entre elles par des substances intercellulaires formant un regroupement des fibres appelé faisceau, (Figure A.I. 3.2). Ces substances intercellulaires, riches en pectine, sont connues sous le nom de « lamelle moyenne » [13], [22]. Pendant la phase de croissance, la lamelle moyenne et la paroi primaire sont synthétisées en premier. Cependant, la paroi secondaire apparaît lorsque la cellule a achevé sa croissance [35].

I.1.3. Localisation des fibres au sein de la plante

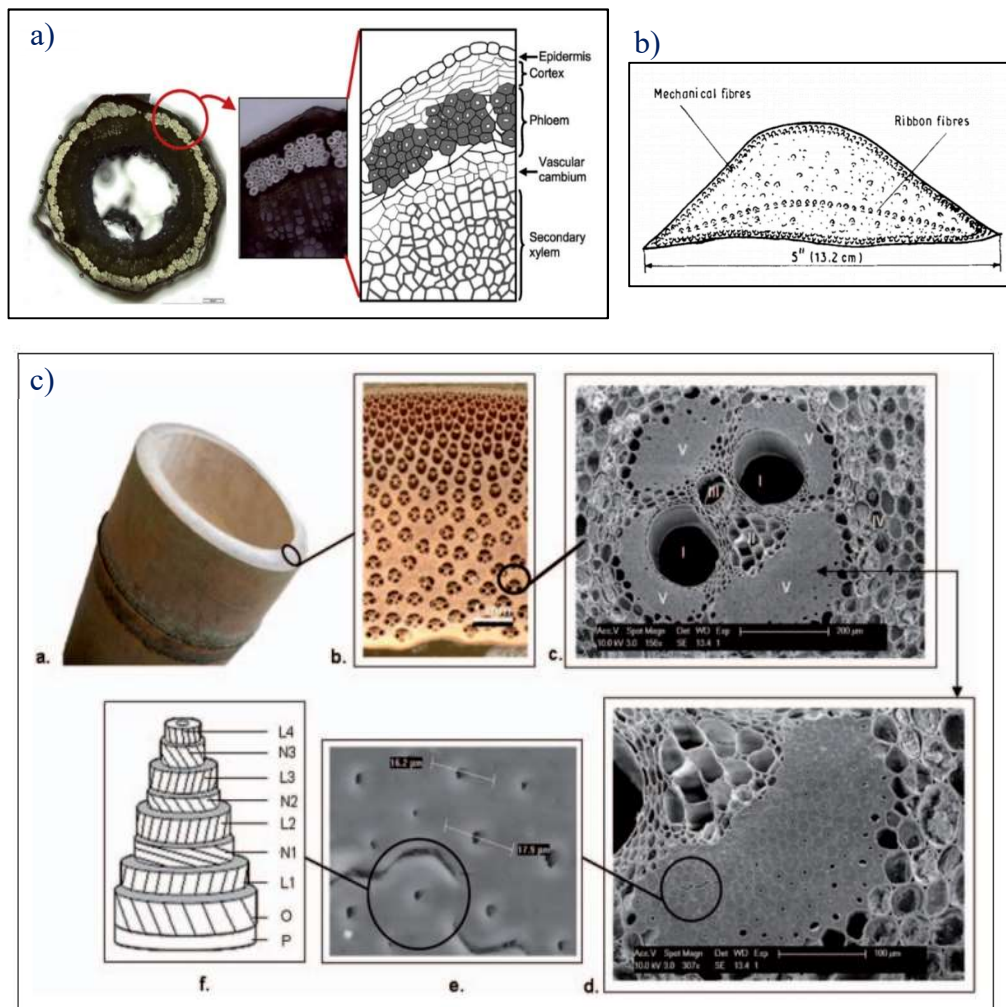


Figure A.I. 4 : a) vue macroscopique de la section transversale d'une tige de Lin (Variété Eden) [47]. b) croquis de la coupe transversale d'une feuille de sisal [48]. c) Vue macroscopique multi-échelle de la section transversale de la canne de bambou [45].

La localisation des fibres dépend de leur provenance. Les fibres libériennes à titre d'exemple, sont implantées dans une sorte d'anneau contenu positionné dans la partie

extérieure de la tige [49] (Figure A.I. 4.a). Dans le cas des feuilles ou des troncs les fibres sont généralement plantées un peu partout. Selon Bisanda et Ansell [48], il existe trois types de fibres pour les feuilles de sisal : des fibres extraites de la périphérie (appelées mécaniques), des fibres qui apparaissent autour des tissus conducteurs (Fibres de ruban) et des fibres situées entre les faisceaux vasculaires (fibre de xylème), (Figure A.I. 4.b) [23]. Le même constat a été souligné en ce qui concerne les fibres de bambou qui sont, plus ou moins, présentes sur toute la section de la canne [47] (Figure A.I. 4.C). Cette diversité pourrait mieux expliquer les différentes méthodes d'extractions employées pour chaque catégorie. Nous allons entamer dans la section suivante la relation entre la morphologie des plantes et la méthode d'extraction employée.

I.2. Extraction des fibres végétales

Comme il a été présenté précédemment, les faisceaux de fibres végétales sont liés à d'autres cellules de la plante par un ciment naturel riche en pectine. Avant d'entreprendre le processus d'extraction, la séparation des fibres du reste de la plante, il est préférable de dégrader ce ciment. Cette opération de dégradation, appelée le rouissage, est un prétraitement des tiges afin de faciliter l'opération d'extraction et minimiser le travail mécanique appliqué sur la tige [49].

I.2.1. Rouissage

Le rouissage est un processus de dégradation naturelle de la plante [44]. Il a pour but de faciliter la séparation des faisceaux de fibres et les cellules voisines en dégradant le ciment naturel qui les lie [50] (Figure A.I. 5). Ce ciment naturel comprend principalement de la pectine et de l'hémicellulose (mannane et xylane) [51]. En effet, lors du rouissage les plantes sont colonisées par des microorganismes tels que les bactéries et les champignons. Ces microorganismes produisent des enzymes, notamment la pectinase, la mannanase et la xylanase [51], qui dégradent principalement la pectine et l'hémicellulose [52].

Il existe plusieurs méthodes de rouissage : des rouissages traditionnels, comme celui aux champs et à l'eau (l'eau de rivière, l'eau tiède), ainsi que des rouissages récents notamment par des traitements chimiques et enzymatiques. De nos jours, le rouissage au champ est toujours utilisé ; il consiste à poser les tiges sur la terre sous forme d'andain, pendant une période qui varie de 20 à 70 jours [53]. Le rouissage à l'eau ne se limite qu'à l'eau tiède, en raison de la pollution des eaux par les produits de fermentation de la plante [44]. Ce dernier consiste à mettre les tiges dans une cuve remplie d'eau chauffée à une température de 30 à 40°C pendant

une durée qui dépend principalement du type de la plante. A titre d'exemple, la durée peut varier de 3 à 7 jours pour le lin [44] à 21 jours pour Alfa [54]. Dernièrement, des méthodes de rouissage plus contrôlables ont été développées, impliquant celles basées sur les traitements enzymatiques ou/et chimiques qui visent la dégradation des tissus non fibreux. Le rouissage chimique se fait par trempage de la tige dans une solution alcaline ou acide pour dégrader le ciment naturel sans abîmer la cellulose [26]. Le rouissage enzymatique, quant à lui, consiste à utiliser des microorganismes ou des enzymes ciblées pour dégrader les composants non cellulotiques [53].

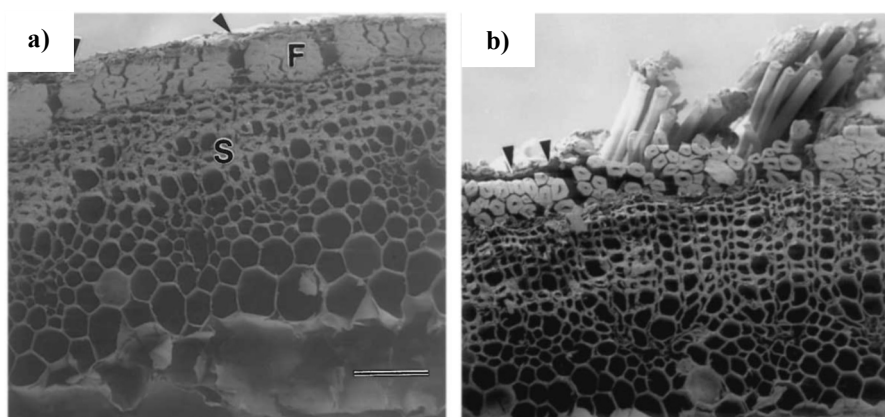


Figure A.I. 5 : Images prises par microscopie électronique à balayage. a) : tige de lin non-rouie : les faisceaux de fibres (F), l'xylème secondaire (S) et l'épiderme (flèches). B) tige après un rouissage enzymatique, montrant une séparation significative des fibres de l'épiderme après le rouissage [55].

Le rouissage a fait l'objet de plusieurs études ces dernières années [22], [25], [51], [53], [56]–[59]. En comparant les différents types de rouissage à celui au champ, les constats suivants ont été soulevés : le rouissage enzymatique améliore significativement les propriétés de la fibre ainsi que sa productivité et procure aux composites une meilleure résistance. De plus, ce rouissage pourrait être utilisé pour pallier les problèmes environnementaux que présente le rouissage chimique. Ce dernier semble plus efficace par-rapport à l'élimination des hémicelluloses et l'augmentation de la teneur en cellulose, mieux même que le rouissage enzymatique. Le rouissage à l'eau est rapide, homogène et permet de produire des fibres de qualité. Cependant, il nécessite un traitement spécifique de l'eau utilisée avant de le rejeter dans les cours d'eau.

La couleur peut être considérée comme indicateur pour contrôler le degré de rouissage. Elle change généralement de vert-jaune à gris foncé pour les fibres issues respectivement des tiges non rouies et rouies à cause de la colonisation des microorganismes. En ce qui concerne les fibres libériennes, deux critères sont appelés dans la littérature afin d'estimer le degré de rouissage : la couleur de la fibre qui change avec le degré de rouissage [56], [44], et la facilité

de détachement de bois (xylème secondaire) de la couche de liber par une manipulation manuelle [50].

1.2.2. Mécanisme d'extraction

Après la récolte et le rouissage, les tiges sont décortiquées afin d'en retirer les fibres, ce processus est connu communément par l'extraction.

Auparavant, le marché des fibres naturelles n'était ouvert qu'à l'industrie textile. Désormais, avec l'intégration des fibres naturelles dans le domaine des matériaux composites, l'intérêt porté à ces fibres est accru et la gamme des plantes utilisées est étendue. En conséquence, les méthodes d'extractions se développent de plus en plus afin de répondre à la diversité des plantes. Cette diversité, quant à elle, nécessite une variation des techniques d'extractions afin de préserver au mieux les propriétés des fibres extraites.

C'est une étape primordiale et sensible pour l'exploitation des fibres naturelles. Généralement, la procédure d'extraction se produit à l'échelle industrielle par la voie mécanique. Nous pouvons également parler d'une extraction enzymatique ou chimique si cette dernière ne nécessite pas l'intervention des actions mécaniques.

De nos jours, des lignes mécanisées, appelées lignes de teillage, sont utilisées afin de prélever les fibres libériennes. Elles nécessitent une intervention d'opérateurs uniquement en entrée et sortie de ligne [44]. Elles consistent à faire subir aux tiges trois actions mécaniques selon l'ordre chronologique suivant : le broyage (pour fragmenter le bois), le battage (pour enlever le bois de la ligne de teillage), et le peignage (afin de démêler, aligner et paralléliser les faisceaux) [60]. Plusieurs travaux visent à développer ce processus et l'adapter aux différentes plantes qui contiennent les fibres libériennes [19], [28], [50], [61].

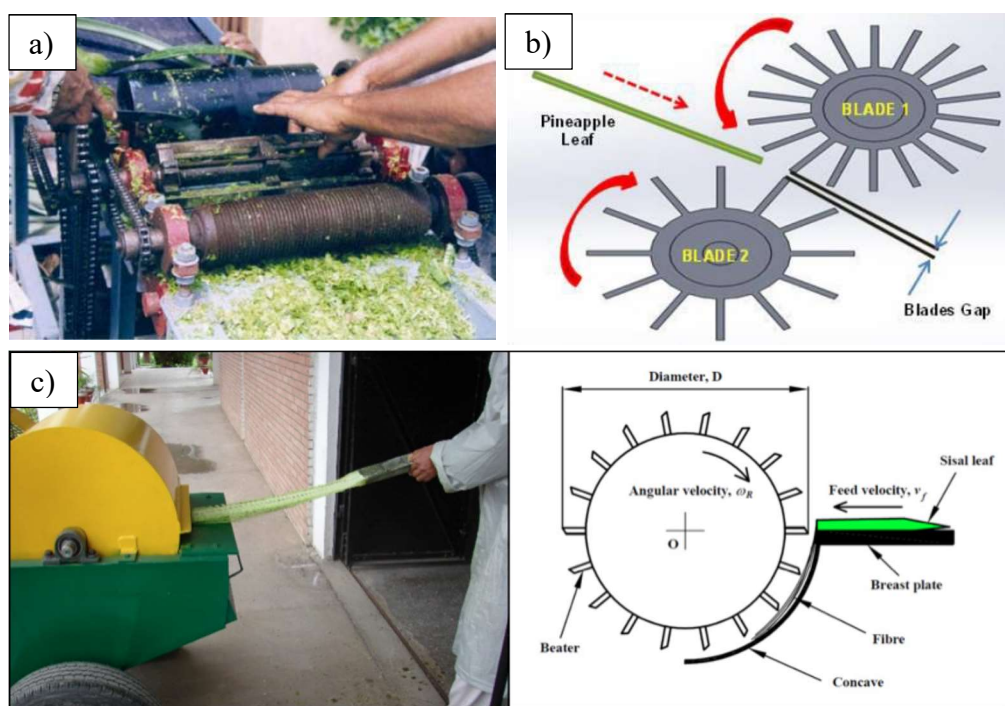


Figure A.I. 6 : (a) Machine d'extraction de PALF [21], (b) décortiqueuse des feuilles d'ananas [48] et (c) décortiqueuse des feuilles de sisal [62].

En ce qui concerne les fibres issues des feuilles, les méthodes d'extractions mécaniques n'ont pas connues une grande évolution au regard de la première catégorie. Ces plantes étaient exploitées par des méthodes manuelles qui consistaient principalement à gratter la couche cireuse des feuilles grâce à un outil de grattage en fixant la feuille sur une plaque rigide [63]. Récemment, plusieurs machines d'extractions mécaniques pour ces plantes ont été développées. Banik et al. [21] ont conçu une machine d'extraction pour les feuilles d'ananas (PALF), (Figure A.I. 6.a), afin d'enlever la couche cireuse contenue dans ces feuilles pour les préparer à un rouissage tardif. Le principe de fonctionnement de cette machine consiste à introduire les feuilles à travers un rouleau d'alimentation, puis de les faire passer à travers un rouleau de grattage, cela enlève la couche cireuse. Enfin les feuilles sont passées à travers un rouleau dentelé pour produire des rayures sur la surface de la feuille et facilite par la suite l'entrée des micro-organismes pendant le rouissage tardif. Dernièrement, Yusof et al. [48] ont également développé une machine d'extraction pour les feuilles d'ananas contenant deux grattoirs (Figure A.I. 6.b). Le principe est d'insérer les feuilles entre les lames des deux grattoirs, puis, en passant entre eux-ci, la feuille est en quelque sorte « grattée » et la couche cireuse extérieure enlevée pendant cette première étape. Au cours de la deuxième étape, lorsque la feuille est retirée, elle est grattée à nouveau. Les fibres issues de cette machine ont été comparées avec celles d'une extraction manuelle : le taux de production de la machine était environ dix fois plus élevé et la quantité de fibres est environ deux fois plus importante.

Récemment, Tanveer et al. [62] ont élaboré une machine d'extraction (décortiqueuse) pour les feuilles de sisal (Figure A.I. 6.c). Cette machine a une capacité de production de 15,94 Kg/h de fibres sèches et un rendement de 3.2% en termes de poids et une longueur de fibres atteignant environ 1.35 m. Son principe de fonctionnement consiste à introduire les feuilles de sisal entre un cylindre équipé par des lames tranchantes (grattoir) et une plaque de coupe courbée. L'action de grattoir sur les feuilles enlève la couche cireuse et révèle les faisceaux de fibre. Par ailleurs, S. Sarah et al. [64] ont mis en évidence une méthode d'extraction semi-mécanique appliquée aux fibres d'ananas. Elle consiste à utiliser une machine d'extraction (décortiqueuse), puis à mettre les fibres dans une solution de NaOH à 6% pour 24h. Les fibres produites ont présenté une meilleure résistance à la traction en les comparant à celles issues des autres méthodes.

En outre, d'autres méthodes comme le broyage et extraction chimique ont été employées. Kengkhetkit et al. [65] ont comparé deux différentes méthodes d'extraction par broyage avec une extraction manuelle par grattage et une autre par rouissage pour les feuilles d'ananas. La première méthode a été établie par broyage à boulets des feuilles dans un cylindre rigide en PVC avec des billes en acier et de l'eau. La deuxième méthode, quant à elle, a été faite par broyage à disque. Elle consiste à broyer les feuilles entre deux disques, l'un tournant (7700 tr/min) et l'autre fixé, pendant 10s sans nécessaire ajout d'eau. Les résultats ont montré que le meilleur rendement a été obtenu par les méthodes d'extraction par broyage avec des fibres plus fines. D'autre part, la méthode de broyage à disque semble fournir la résistance à la traction la plus élevée aux composites. Quoique, les composites chargés par les fibres issues de la méthode manuelle ont présenté un module de traction similaire à ceux chargés de fibres issues du broyage à disque. De leur côté, Ben Brahim et Ben Chikh [66] ont procédé à une méthode d'extraction chimique des fibres d'Alfa. Les tiges de la plante ont été immergées dans une solution de NaOH 3N pendant 2h à une température de 100°C, puis blanchies dans une solution de NaClO à 40% pendant 1h. Enfin, les fibres obtenues ont subi une opération de cardage pour les assouplir et les séparer. Bessadok et al. [67], quant à eux, ont également opté à une extraction chimique pour les fibres de la même plante. En utilisant un traitement dans le peroxyde d'hydrogène pendant 6h à 90°C puis un autre dans une solution 0,25M de NaOH pendant 4h à 50°C.

Au sujet des fibres de Diss quelques méthodes ont été employées. Merzoud et Habita [68] ont extrait les fibres de Diss en broyant des feuilles avec un broyeur à découpe parallèle. Bourahli [9], quant à lui, a utilisé lors de sa thèse un protocole d'extraction qui consiste à faire subir aux

feuilles de Diss un léger battage manuel pour extraire, ce qu'il a appelé, les faisceaux de fibres de Diss. Ces derniers ont subi de leur part un rouissage dans l'eau pendant 3 jours, puis séchés à l'air ambiant. Par la suite, les fibres sont extraites par deux opérations mécaniques : un teillage par battage puis un peignage à la carde. Le même auteur [69] a utilisé récemment un autre processus de décortication qui consiste dans un premier temps à broyer les feuilles de Diss par une roue tournante avec des couteaux émoussés donnant des fibres, puis, dans un deuxième temps ces dernières ont été peignées par une machine. De leur côté, Sarasini et al.[10] ont utilisé une méthode d'extraction chimique et enzymatique dont les feuilles de Diss coupées ont été traitées par une solution chimique qui contient 0.25N de KOH et 1% de $\text{Na}_2\text{O}_5\text{S}_2$ à 140 °C pendant une heure ainsi qu'une solution enzymatique pendant 1h à 50°C.

I.3. Traitements des fibres végétales

L'état de l'interface entre les fibres et la matrice joue un rôle prépondérant sur la transmission des charges mécaniques dans le composite. D'une part, les fibres naturelles contiennent des groupes hydroxyles libres sur leurs surfaces, provenant principalement de l'hémicellulose et pectine. Ce qui produit leurs caractères hydrophiles, tandis que la plupart des matrices polymères sont hydrophobes. En outre, la pectine et les substances cireuses recouvrent les groupes fonctionnels réactifs de la fibre brute et agissent comme une barrière à l'interaction entre les fibres et la matrice, en affectant le transport des contraintes mécaniques dans les composites [31]. Pour pallier cette incompatibilité, des traitements sont généralement effectués sur les fibres. Ils peuvent être de nature mécanique, chimique, enzymatique ou physique [17]. Par ailleurs, ces traitements permettent parfois d'apporter des améliorations supplémentaires aux performances intrinsèques des fibres, notamment leur résistance à la traction, à l'absorption d'humidité et leur stabilité thermique.

Bien qu'il existe de nombreuses méthodes de traitement (physique et chimique) [17], cette section s'attardera uniquement sur les méthodes chimiques qui sont les plus adoptées récemment dans la littérature pour les fibres végétales.

I.3.1. Méthodes chimiques

Les traitements chimiques les plus connus sont [31]: les alcalins, les silanes, l'acétylation, la benzoxylation, l'acrylation, l'acrylonitrile, l'acide maléique, le permanganate, le peroxyde, l'isocyanate, l'acide stéarique, le chlorite de sodium, la triazine. Ces traitements pourraient être classés selon leur modification portée sur la structure des fibres en trois catégories : des traitements de dissolution, de revêtement et par des agents de couplage. La

combinaison entre ces méthodes pourrait améliorer davantage les propriétés des fibres et des composites.

l.3.1.1. Traitements de dissolution

Ces traitements consistent généralement à immerger les fibres végétales dans une solution alcaline ou acide pendant un temps déterminé afin d'éliminer une certaine quantité des composants non-cellulosiques qui recouvrent la surface externe de la paroi cellulaire des fibres.

Le traitement à la soude, ou hydroxyde de sodium, est le plus utilisé dans cette catégorie. Ce traitement a pour but d'enlever une certaine quantité de matériaux non-cellulosiques tels que la lignine, l'hémicellulose et les substances cireuses qui couvrent l'interface de fibre naturelle, tout en donnant une surface propre et rugueuse [70] (Figure A.I. 7). En conséquence, cette surface facilite l'enclenchement mécanique des fibres et améliore leur capacité de mouillage avec la matrice polymère. Cela améliore les transferts des charges entre fibres/matrice et l'absorption d'énergie mécanique de composite [71]. A.N. Balaji et al. [72] pendant leurs travaux sur les fibres des feuilles de cactus de l'aloë vera saharienne ont constaté qu'après un traitement au NaOH à 5%, pendant 1h, les teneurs en hémicellulose et en cire sont réduites alors que la teneur en cellulose a augmenté. La concentration en lignine n'a, quant à elle, pas varié. Cependant, M. Asim et al. [70] ont démontré une élimination partielle de lignine après un traitement à 6% à la soude pendant 3h pour les fibres de feuilles d'ananas et kénaf. La même constatation a été soulevée par T. Motaung et al. [73] et P. Krishnaiah et al. [74].

Par ailleurs, l'élimination de la matrice naturelle (composants non-cellulosiques) conduit à une séparation des fibres unitaires de faisceau. De ce fait, le diamètre de ce dernier est réduit [70] [74], et la surface de contact efficace des fibres avec la matrice est augmentée ; ce qui améliore davantage l'adhérence avec la matrice [31], [75], [74]. Cette amélioration affecte les propriétés thermo-physiques des composites et contribue à une conductivité thermique plus élevée [76]. En outre, ce traitement permet de révéler les groupes fonctionnels réactifs sur la surface de fibre, en augmentant la quantité de cellulose exposée après la dégradation des composants non-cellulosiques de la surface. Cela améliore l'interaction chimique avec la matrice polymère [77], ainsi que la stabilité thermique [72], [74], [78].

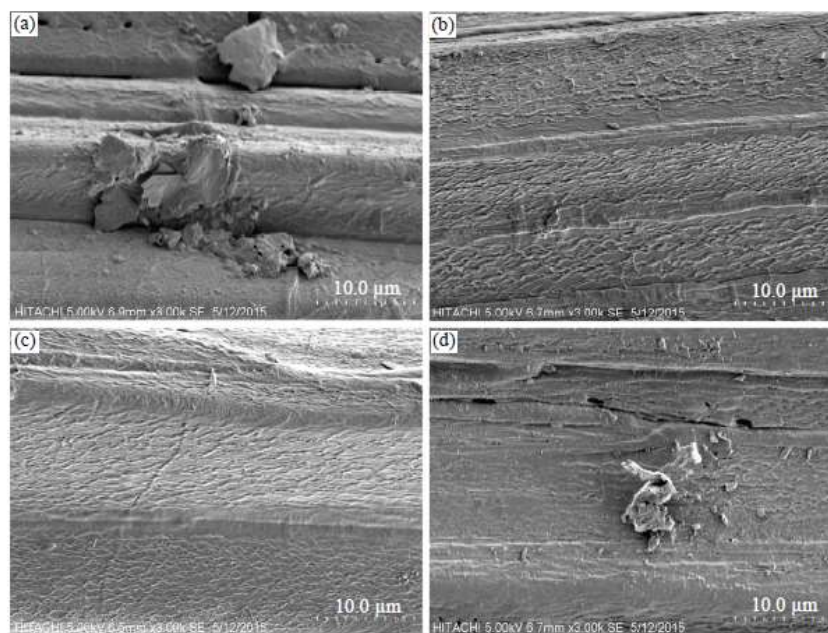


Figure A.I. 7 : Observation par microscope électronique à balayage de la surface des fibres de Kénaï : (a) non traité, (b) traitées par NaOH, (c) traitées au silane et (d) traitées par NaOH-silane [70].

D'autre part, l'élimination des matériaux non-cellulosiques de la fibre induit l'augmentation du taux de cellulose et sa cristallinité [73],[74]. De plus, elle conduit à un angle microfibrillaire moins important [72], permettant ainsi aux fibrilles de se réorienter facilement suivant la direction de la déformation de traction en donnant une meilleure distribution de la charge. Cela augmente leur résistance à la traction et leur module de Young produisant ainsi une meilleure résistance du composite. Une amélioration de la résistance à la traction, à la flexion, au choc et de la dureté est souvent rapportée pour les composites après un traitement au NaOH pour les fibres naturelles [18], [54], [70], [72]–[75], [78]–[80].

De même, lorsque les fibres sont traitées avec le NaOH, les groupes OH dans les régions cellulosiques réagissent avec les alcalins (H-OH) et sortent de la structure fibreuse sous forme d'eau (H_2O). Les molécules réactives restantes (Na), quant à elles, forment des groupements fibre-cellulose-O-Na [31],[79] ; ce qui améliore la résistance à l'humidité des fibres et des composites [72].

En revanche, un sur-traitement peut engendrer la délignification excessive de la fibre et la dégradation de cellulose ; ce qui conduit à une chute des performances mécaniques des fibres [31]. Le sur-traitement est obtenu par une forte concentration ou par une longue durée de traitement. De plus, l'augmentation de la température affecte aussi le traitement, puisqu'elle conduit à une accélération de la réaction chimique, diminuant ainsi la durée de traitement pour des conditions de température ambiante.

Plusieurs recherches récentes avaient pour objectif de déterminer la concentration et la durée idéales de traitement NaOH pour les fibres végétales. Nous constatons que les paramètres optimaux dépendent du type de fibres. K.J. Vishnu et al. [79] ont remarqué qu'une concentration de 15% est optimale pour avoir des bonnes performances des fibres et de composite de bananier. Dans la même lignée, P. Krishnaiah et al. [74] ont constaté que la meilleure concentration de NaOH pour traiter les fibres de sisal est de 7%. D'autre part, Do Thi Vi Vi [3] a estimé que la durée de 3 jours est optimale pour les fibres de bambou pour une concentration de 1% de NaOH. En outre, les recherches de T. Motaung al. [73] ont avéré que traiter les fibres de sisal et agave respectivement 3 et 5 fois avec une solution de NaOH à 2% pendant une heure est l'idéal pour leur utilisation dans le composite.

I.3.1.2. Traitements par agents de couplage

Cette méthode consiste à créer un pont de liaisons chimiques, entre les fibres et la matrice polymère, en utilisant des composants chimiques qui contiennent deux extrémités réactives, l'une réagit avec la fibre hydrophile, tandis que l'autre réagit avec la matrice hydrophobe. Cette co-réactivité assure une continuité moléculaire à travers l'interface du composite, permettant ainsi d'améliorer l'adhérence et les propriétés de composites.

Le traitement au silane est parmi les plus répandu de cette catégorie. En effet, le silane est une molécule multifonctionnelle [31] qui se compose d'un atome de silicium lié à différents groupes fonctionnels. Une extrémité de cette molécule contient des groupes alcoyles qui peuvent réagir par la suite avec la fibre naturelle, tandis que l'autre extrémité comprend des groupes fonctionnels organiques (tels que l'amino, le vinyle, le méthacryl, le mercapto, le glycidoxy, le chlore, l'azide et l'alkyle) pouvant réagir à leur tour avec la matrice polymère [81]. Un agent de couplage générique pourrait être représenté par la formule chimique suivante [81]:



Où R est un groupe alcoyle, X représente un groupe fonctionnel organique et R' est un pont alkyle reliant l'atome de silicium et le groupe fonctionnel.

Ce traitement consiste habituellement à tremper les fibres dans une solution d'un silane dilué dans un mélange eau / alcool [82]. En présence d'eau, les groupes alkoxydes se remplacent par les groupes -OH produisant du silanol et de l'alcool (Hydrolyse), (Figure A.I. 8.a). Par la suite, quelques groupes silanols peuvent se condenser en formant des liaisons siloxanes (Figure A.I.

8.b). Les silanols libres et condensés réagissent après avec les groupes -OH présents dans les parois cellulaires des fibres naturelles formant des liaisons covalentes stables (Figure A.I. 8.c et d) [71]. Les groupes fonctionnels organiques quant à eux, réagissent ultérieurement avec la matrice polymère.

Le choix du type de silane dépend généralement de la matrice utilisée. A titre d'exemple, les groupes fonctionnels organiques aminos peuvent réagir avec l'époxy et le polyéthylène alors que les vinyloxy réagissent avec le polyéthylène et le Polypropylène [81]. En ce sens, Z. Huang et al. [75] ont constaté que les composites de polyester et fibres de sisal traitées au 3-methacryloxypropyltrimethoxysilane (KH-570) présentent une meilleure résistance à la traction par-rapport aux composites de sisal traitées au 3-aminopropyltriethoxysilane (KH-550).

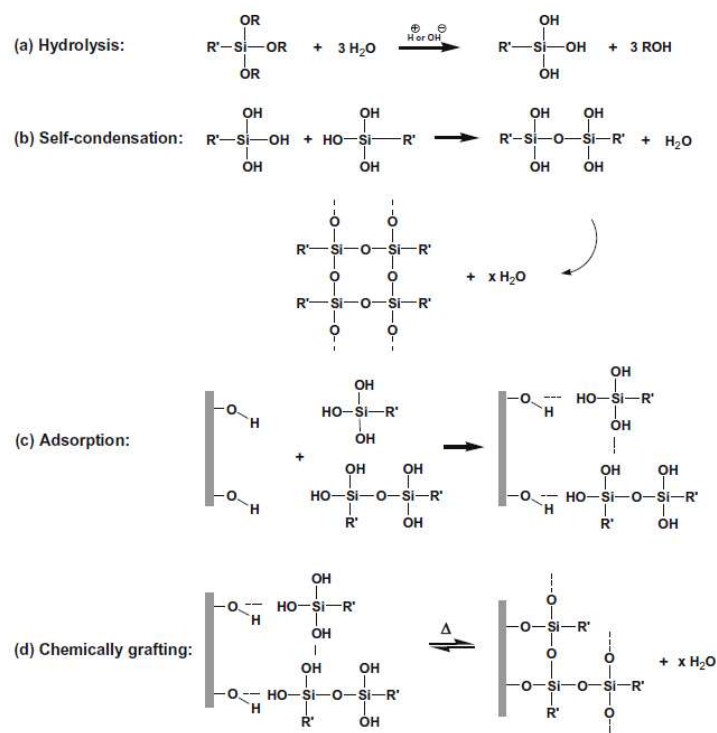


Figure A.I. 8 : Ensemble des réactions pendant le traitement au silane [81].

D'autre part, ce type de traitement produit une surface de fibres couverte par des groupes fonctionnels organiques donnant une surface plus propre que celle des fibres brutes. Dans ce cadre, M. Asim et al. [70] ont remarqué pendant leurs travaux, une absence partielle de lignine et complète de l'hémicellulose de la surface des fibres après le traitement au silane avec la présence des molécules de ce dernier (Figure A.I. 7.c). La même observation est soulevée par Z. Huang et al. [75]. En outre, M. Asim et al. [70] ont constaté que le traitement au silane réduit aussi la section des fibres naturelles, même davantage qu'un traitement NaOH ou un traitement

combiné NaOH/silane. De plus, ce revêtement empêche l'infiltration d'eau de manière efficace en réduisant l'absorption d'eau des composites [75].

Par ailleurs, le traitement au silane améliore aussi la résistance à la traction des fibres végétales et fournit des meilleures propriétés mécaniques au composite. Un traitement au silane à 2% a permis d'améliorer la résistance à la traction des fibres des feuilles d'ananas et Kénaf respectivement de 116 et 95% de plus que les fibres non traitées ;davantage qu'un traitement NaOH à 6% et du traitement combiné NaOH-silane [70]. De plus, ce traitement améliore la liaison fibres-matrice, qui conduit à une meilleure résistance et stabilité thermique au composite, ce qui est avéré dans plusieurs travaux scientifiques [83], [70],[75],[18],[80]. Il confère également aux fibres naturelles des propriétés hydrophiles à l'interface, ce qui améliore la résistance à l'absorption d'humidité [17].

I.3.1.3. Traitements de Revêtement

Le revêtement a pour objet de rendre les fibres plus hydrophobes pour une meilleure compatibilité avec les matrices polymériques des composites. Il consiste à couvrir les groupes hydroxyles de fibres qui ont un caractère hydrophile par des molécules qui ont un caractère hydrophobe.

L'acétylation est l'un des traitements le plus connu de cette catégorie. C'est une méthode connue d'estérification qui consiste à introduire les groupes fonctionnels acétyles ($-\text{CO}-\text{CH}_3$) dans la surface des fibres. Cela s'effectue par la substitution des atomes hydrogènes des groupes hydroxyles libres par ces groupes fonctionnels acétyles formant des groupes acétoxys ($-\text{O}-\text{CO}-\text{CH}_3$). En conséquence, la nature hydrophile de la fibre est diminuée et améliore la stabilité dimensionnelle des composites [31]. De plus, ce traitement fournit une topographie de surface rugueuse avec un nombre de vides plus faible qui permet un meilleur accrochage mécanique avec la matrice [31]. Bledzki et al. [84] ont constaté que le taux d'absorption d'humidité des fibres de lin a diminué proportionnellement avec l'augmentation du degré d'acétylation de ces fibres. La même constatation a été tirée par d'autres chercheurs [29].

I.3.1.4. Traitement combiné

Chimiquement, cette méthode consiste à combiner un traitement de dissolution avec un traitement de revêtement ou de couplage. Le premier a pour but d'éliminer les composants non-cellulosiques et de révéler les groupes réactifs afin que les molécules du deuxième traitement puissent réagir intensivement avec la fibre ; ce qui améliore la compatibilité entre les fibres et la matrice.

J. Mukaida et al. [85] ont constaté des améliorations pour les composites (chanvre/polyamide 1010) des fibres traitées avec les alcalins et le silane en comparaison des composites des fibres traitées seulement avec les alcalins. D'autre part, Y. Nishitani et al. [18] ont étudié l'effet des traitements combinés NaOH/silane sur le même type de composite (chanvre/polyamide 1010) en utilisant trois types de silane qui ont des groupes fonctionnels organiques différents (aminosilane, époxysilane, uréidosilane). Il a été constaté que les composites des fibres traitées avec l'uréidosilane ont donné de meilleures améliorations en termes de performances mécaniques en comparant avec les composites des fibres non traitées, tandis que les composites des fibres traitées avec l'époxysilane ont fourni des propriétés mécaniques similaires.

Cependant, l'efficacité de ce type de traitement n'est pas souvent apportée, en particulier pour une comparaison à l'échelle de la fibre. M. Asim et al. [70] ont étudié l'effet des traitements alcalin à 6%, silane à 2% et combiné avec ces deux traitements sur les fibres de kénaf et PALF. Ils en ont déduit que le traitement combiné a donné la résistance à la traction la plus faible aux fibres comparées aux autres traitements.

1.3.2. Méthodes physiques

Les traitements physiques sont des traitements qui modifient principalement les propriétés structurelles et interfaciales des fibres végétales sans modifier considérablement leur composition chimique [86].

Parmi ces traitements, ceux qui s'intéressent à changer l'énergie de la surface des fibres tels que les traitements Corona [87]–[89] et Plasma [90]–[92] et d'autres qui visent à procurer aux fibres végétales une stabilité structurelle comme le traitement thermique [93]–[95]. Par l'effet de la température, ce dernier permet un réarrangement de la structure cellulosique avec moins d'accessibilité aux groupes -OH, apportant à la fibre une amélioration de ses propriétés mécaniques et hygrothermiques.

Ragoubi et al. [87] ont constaté une amélioration de la résistance à la traction et le module de Young des composites Chanvre/PP, respectivement, de 32% et 13% après un traitement par Corona. D'autre part, Pizzi et al. [88] ont montré que des durées de 10 min et 15 min de traitement par Corona sont suffisantes pour atteindre les propriétés mécaniques optimales, respectivement, en flexion et en traction des composites de Lin / tannin mimosa-hexamine. En outre, Graupner et al. [91] ont attesté que le traitement par plasma des fibres de Lyocell entraîne une amélioration des interactions fibre/matrice. De plus, A l'échelle de la fibre, le traitement a entraîné une légère augmentation du module de Young. De son côté, Ariawan et al. [94] ont

constaté qu'un traitement thermique des fibres de Kénaf à 140°C pendant 10h a permis d'améliorer la résistance à la traction des fibres et des composites Kénaf/ polyester insaturé.

Par ailleurs, les traitements physiques se montrent respectueux de l'environnement mais très coûteux par-rapport aux traitements chimiques qui affichent l'opposé. Liu et al. [96] ont évalué la possibilité d'industrialisation des différentes techniques de traitement des fibres végétales en se basant sur des facteurs environnementaux et économiques. Les résultats ont révélé que les traitements chimiques sont beaucoup mieux classés que les traitements physiques.

I.4. Comportement hygrothermique des fibres végétales

Cette section a pour but de décrire le comportement des fibres végétales en présence des molécules d'eau en état liquides ou gazeux, ainsi que les différents phénomènes et mécanismes qui s'impliquent. On pourrait également parler d'un vieillissement physique court et réversible. En premier temps, nous allons aborder d'une façon générale le problème physique de sorption dans les polymères, puis, on se focalisera sur le cas des fibres végétales.

I.4.1. Généralité

Avant d'entreprendre cette partie, il convient de définir quelques notions générales pour la compréhension des phénomènes physiques qui seront présentés.

Relation entre l'humidité relative et l'activité d'eau

Dans des conditions isothermiques, l'activité de l'eau (a_w) dans un matériau est définie par le rapport entre la pression de vapeur d'eau à sa surface (p_{vs}) et la pression de vapeur d'eau pure (p_{ve}). Lorsque ce matériau est en équilibre avec son environnement ou il n'y a pas de transfert ni de masse ni de chaleur, p_{vs} égale la pression de vapeur d'eau de l'air (p_{va}). Par conséquent, l'activité d'eau d'un matériau en équilibre avec son environnement est égale à l'humidité relative de l'air (HR_a).

$$a_w = HR_a = \frac{p_{vs}}{p_{ve}(T)} = \frac{p_{va}}{p_{ve}(T)} \quad \text{Eq. A.I. 2}$$

Adsorption et Absorption

L'absorption est un phénomène de remplissage des pores d'un solide par l'eau liquide ; elle se produit par condensation capillaire. Tandis que l'adsorption est un processus de fixation des molécules d'eau, vapeur d'eau, sur la surface des matériaux par des forces intermoléculaires. Ces forces impliquées sont de même nature que celles responsables de

l'imperfection des gaz réels et de la condensation des vapeurs [97]. On parle donc d'absorption de l'eau liquide et d'adsorption de vapeur d'eau.

Condensation capillaire

C'est le phénomène par lequel la vapeur d'eau se condense en une phase liquide dans un pore à une a_w inférieure à 1, où $a_w = 1$ représente le cas de l'eau pure.

Taille des pores

Selon la classification des pores de l'IUPAC [97], les macropores, les mésopores et les micropores sont, respectivement, les pores dont la largeur dépasse 50 nm, entre 2 et 50 nm et ne dépasse pas 2 nm.

l.4.1.1. Sorption et diffusion des molécules d'eau

Généralement, les polymères sont pénétrables par les molécules d'eau. Ces dernières se propagent de manière progressive à travers le réseau macromoléculaire du polymère lorsqu'il est en contact direct avec l'eau (gazeuse ou liquide) [98]. Avec le temps, cela se traduit par une prise de poids qui se poursuit jusqu'à ce que le matériau atteigne un plateau de saturation [99]. Cette quantité adsorbée est associée à la quantité totale des sites hydrophiles (zones en polymère sensibles pour accueillir les molécules d'eau) disponibles dans les chaînes polymères [100]. Cela signifie également une égalité des potentiels chimiques de l'eau dans le polymère et dans le milieu environnant [101]. La cinétique de la sorption de l'eau dépend de la nature du polymère, des caractéristiques de l'eau (pH, eau désionisée ou salée) et d'autres paramètres thermodynamiques [99]. La quantité d'eau adsorbée, quant à elle, dépend de la nature du polymère, de la température et des conditions environnantes.

La méthode la plus courante pour évaluer les processus de sorption de l'eau dans les polymères est l'enregistrement des données de gain de masse en fonction du temps (courbe LF dans la Figure A.I. 9). Ce phénomène englobe un ensemble important d'informations : la partie linéaire de cette courbe informe sur la vitesse de pénétration de l'eau (la diffusion), quant au palier de saturation, il présente la masse absorbée à l'infini [101].

Le comportement de diffusion des polymères est souvent basé sur le modèle de Fick. Néanmoins, quelques matériaux pourraient présenter un comportement non-fickien lors de la présence des anomalies (courbes A B, C et D dans la Figure A.I. 9).

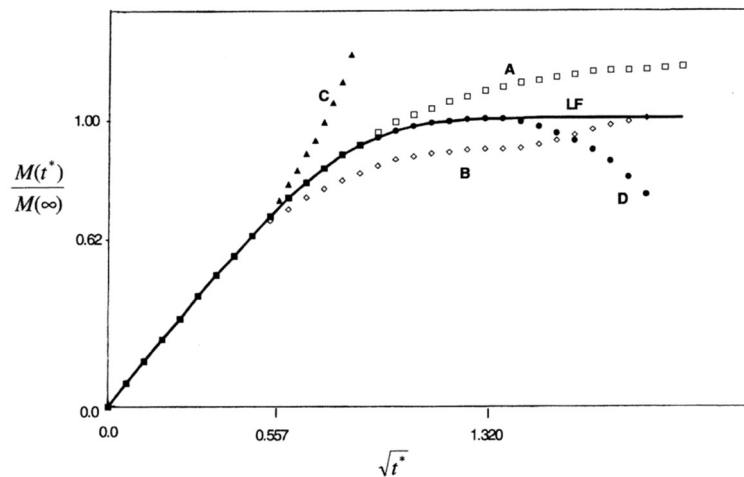


Figure A.I. 9 : Courbes gravimétriques typiques d'absorption d'un fluide : (LF) comportement de Fick, (A) comportement de pseudo-Fick, (B) diffusion en 2 étapes, (C) diffusion avec endommagement mécanique, (D) diffusion avec endommagement chimique [102].

1.4.1.2. Mécanisme de Fick

Nous présentons dans cette section le modèle relatif à la diffusion régi par la deuxième loi de Fick. Nous proposons également des solutions analytiques approximatives du problème de diffusion dans un cas de géométrie cylindrique. Cette dernière est souvent représentative de la section des fibres végétales.

Les lois de Fick ont été établies par analogie entre les phénomènes de transfert de chaleur par conduction et transfert de masse [103]. Dans un cas isotrope, la deuxième loi de Fick est donnée par l'équation ci-dessous

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right) \quad \text{Eq. A.I. 3}$$

- D est le coefficient de diffusivité mm²/s, c'est un scalaire qui définit la cinétique de diffusion.
- C est la concentration en eau à l'équilibre.

L'équation précédente pourrait également s'écrire dans un cas de diffusion radiale (cas unidimensionnel) dans un cylindre plein de rayon r de la façon suivante :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \left(\frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial r} + \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} \right) \quad \text{Eq. A.I. 4}$$

Dans le cas où une concentration uniforme est imposée sur les bords, la solution simplifiée pour les courts temps ($0 < M_s/M_{eq} < 0.5$) et les longs temps ($0.5 < M_s/M_{eq} < 1$) de la relation ci-dessus devient, respectivement, comme suit [104] :

$$\frac{M_t}{M_{eq}} = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \tau^{1/2} \left[1 - \frac{\sqrt{\pi}}{4} \tau^{\frac{1}{2}} - \frac{\tau}{12} \dots \right] \quad \text{Eq. A.I. 5}$$

$$\frac{M_t}{M_{eq}} = 1 - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{\alpha_n^2} \exp(-\alpha_n^2 \tau) \quad \text{Eq. A.I. 6}$$

- Avec $\tau = Dt/r^2$
- α_n les solutions de l'équation de Bessel d'ordre n.
- M_t et M_{eq} sont, respectivement, les masses absorbées à l'instant t et à l'équilibre

Les équations Eq. A.I. 5 et Eq. A.I. 6 peuvent être décomposées encore plus précisément suivant les intervalles de M_t/M_{eq} de la manière suivante [105]:

- $0 < M_t/M_{eq} < 0.2$:

$$\frac{M_t}{M_{eq}} = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \tau^{1/2} \quad \text{Eq. A.I. 7}$$

- $0.2 < M_t/M_{eq} < 0.5$:

$$\frac{M_t}{M_{eq}} = \frac{4}{\sqrt{\pi}} \tau^{1/2} \left[1 - \frac{\sqrt{\pi}}{4} \tau^{\frac{1}{2}} - \frac{\tau}{12} \dots \right] \quad \text{Eq. A.I. 8}$$

- $0.5 < M_t/M_{eq} < 0.7$:

$$\frac{M_t}{M_{eq}} = 1 - 4 \left(\frac{\exp(-\alpha_1^2 \tau)}{\alpha_1^2} + \frac{\exp(-\alpha_2^2 \tau)}{\alpha_2^2} \right) \quad \text{Eq. A.I. 9}$$

- $0.7 < M_t/M_{eq} < 1$:

$$\frac{M_t}{M_{eq}} = 1 - 4 \left(\frac{\exp(-\alpha_1^2 \tau)}{\alpha_1^2} \right) \quad \text{Eq. A.I. 10}$$

Avec $\alpha_1 = 2.40483$ et $\alpha_n = 5.52008$.

l.4.1.3. Isotherme de sorption

Dans des conditions isothermiques, la courbe qui représente la teneur en humidité d'équilibre, en anglais *equilibrium moisture content* (EMC), d'un matériau en fonction de a_w

est appelée isotherme de sorption si elle était déterminée à partir de l'état sec du matériau, et isotherme de désorption si le matériau était saturé à l'état initial [106].

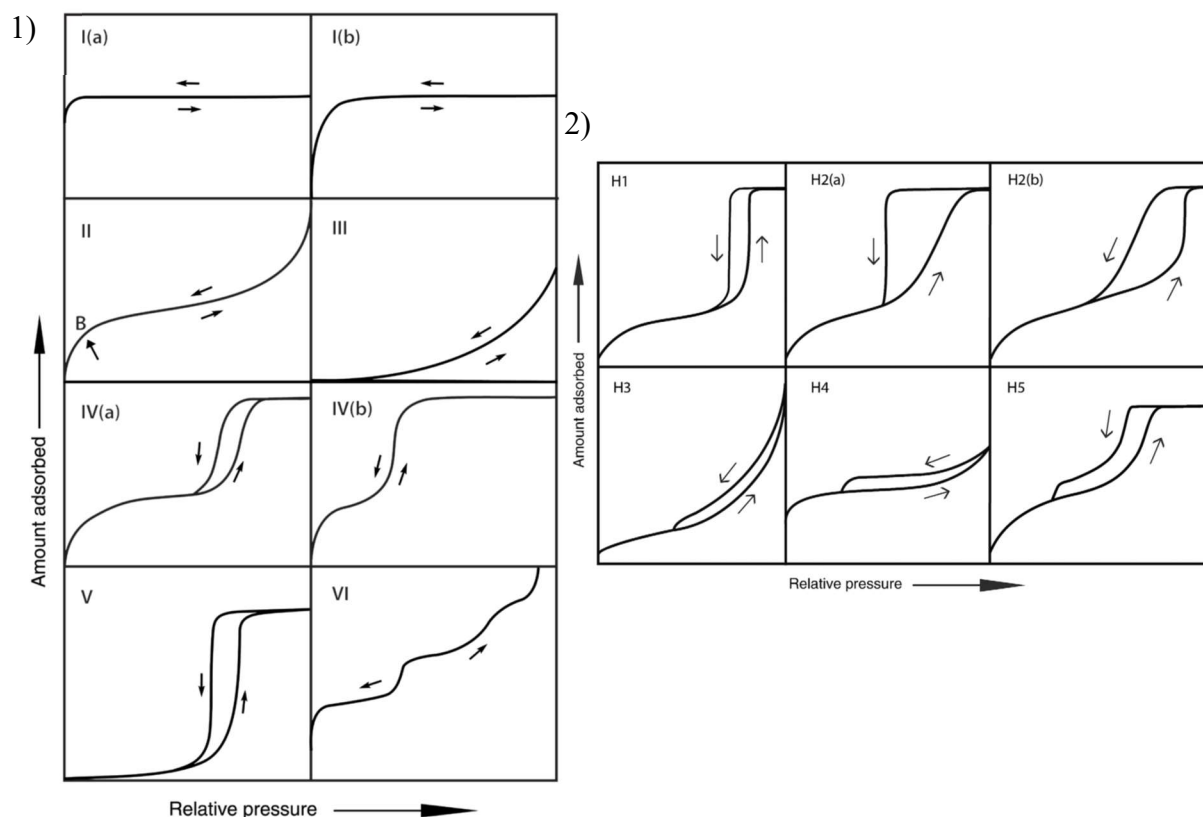


Figure A.I. 10 : Classification de l'IUPAC : des isothermes de physisorption (1) et des boucle d'hystérésis (2) [97].

Les isothermes sont classées selon la nouvelle classification de « *International Union of Pure and Applied Chemistry* » (IUPAC) [97] en six types (Figure A.I. 10). La forme de l'isotherme fournit des informations relatives à la taille des pores (macropores, mésopores ou micropores) et les types d'adsorption (monocouche ou multicouche). Lorsque le processus de désorption est différent de celui de la sorption, une boucle d'hystérésis est observée. Ces boucles sont également classifiées par l'IUPAC [97] en cinq catégories (Figure A.I. 10.2).

1.4.2. Vieillissement hydrique des fibres naturelles

Les fibres naturelles d'origine végétale ont montré une forte sensibilité aux molécules d'eau ; ce qui impacte la fonctionnalité des bio-composites [107]. Ce phénomène est souvent lié à la morphologie de ces fibres, leurs cavités (lumen), et aux groupes hydroxyles libres présents sur leurs surfaces [107]–[110]. Les principaux composants de la fibre végétale responsables de son caractère hydrophile sont principalement l'hémicellulose et la pectine [101], bien que la lignine et la cellulose amorphe soient aussi hydrophiles : la lignine contient moins de groupes -OH que les polysaccharides [111], tandis que la cellulose est moins

accessible. Par conséquent, un taux d'humidité élevé dans les fibres naturelles affecte leur degré de cristallinité, leur rigidité, leur stabilité dimensionnelle (gonflement) et leur résistance à la traction [107], [111]. Hill et al. [112] ont observé un comportement de sorption de vapeur d'eau différent pour l'ensemble des fibres naturelles étudiées pendant leurs travaux. Ces résultats ont été liés à la composition chimique dissemblable de ces fibres, notamment leur teneur en lignine. En outre, il s'avère que le caractère hydrophile des fibres naturelles pourrait être réduit en appliquant des traitements notamment thermiques, au silane et à l'acide acétique [31], [113]–[116].

1.4.2.1. Isotherme de sorption des fibres végétales

L'isotherme des fibres cellulosiques présente généralement une forme sigmoïdale avec une hystérésis entre les boucles de sorption et de désorption [56], [110], [111], [113], [114], [117]–[119][118], conformément à l'isotherme type II d'après la classification de l'IUPAC [97].

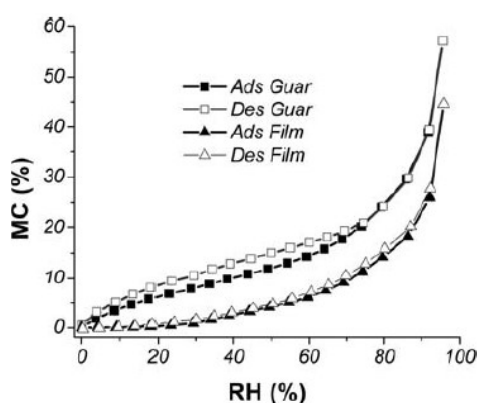


Figure A.I. 11 : Changement de la teneur en humidité d'un film nanocomposite et un film de guar en fonction l'HR, montrant une hystérésis [120].

L'origine de ce phénomène d'hystérésis n'est pas encore totalement comprise, il est toujours un sujet de débat dans la littérature. En considérant que les parois cellulaires des fibres comme des matériaux micro-mésoporeux, certains auteurs ont lié cela à la condensation capillaire, survenant à HR élevée, et qui pourrait également y être dans des faibles HR dans les micropores [118]. Cependant, il a été prouvé qu'une condensation capillaire ne pourrait se produire pour un tel matériau qu'à des HR très élevées [121]. D'autres ont suggéré que cela pourrait être lié au changement d'état des composants amorphes, notamment l'hémicellulose et la lignine [117], [120], [119]. Il a été avéré que lorsque l'adsorption de se produit est au-dessus de la température de transition vitreuse de ces polymères, est également appelée : le point de ramollissement, l'hystérésis devrait s'absenter ou se minimiser [119], [117]. En effet, à température ambiante,

les composants amorphes des parois cellulaires des fibres cellulodiques comme le bois pourraient se ramollir autour de 65 à 75 % de HR [117]. Keating et al. [120] ont signalé une disparition de l'hystérésis de sorption dans les films d'hémicellulose artificielle (galactomannane) lorsque le HR est au-dessus de 75% à 25 ° C (Figure A.I. 11). De plus, Salmén et Larsson [117] ont constaté que l'augmentation de la température ainsi que la diminution de l'indice de cristallinité des fibres, impactent la présence de la boucle d'hystérésis (Figure A.I. 12). Ils ont également remarqué, que l'effet de gonflement pourrait être mis en cause quand HR est située en dessous de la température de ramollissement. A priori, lorsque les molécules d'eau pénètrent dans la matrice, des nanopores pourraient être créés dans la structure pour accueillir ces molécules et dans des conditions de désorption, ces nanopores pourraient s'effondrer [120]. En outre, Hill et al. [112] ont mis en question la teneur en lignine dont l'ampleur de l'hystérésis de sorption était plus grande quand le taux de ce composant est élevé.

Tableau A.I. 2 : Description mathématique des modèles GAB, GDW, HH.

Modèles	Equation	Paramètres
GAB	$EMC_{GAB}(a_w) = \frac{km_0ca_w}{(1 - ka_w)(1 - ka_w + kca_w)}$	m_0 la capacité d'adsorption dans la première couche en contact avec le solide, c et k sont des paramètres liés à l'enthalpie de sorption.
GDW	$EMC_{GDW}(a_w) = \frac{km_0a_w}{1 + ka_w} \frac{1 - k(1 - \omega)a_w}{1 - ka_w}$	ω représente le taux de molécules adsorbées sur les sites primaires qui se transforment en sites secondaires d'adsorption.
H-H	$EMC_{H-H}(a_w) = \frac{18}{W} \left(\frac{K_1K_2a_w}{1 + K_1K_2a_w} \right) + \frac{18}{W} \left(\frac{K_2a_w}{1 + K_2a_w} \right)$	W est le poids moléculaire de la fibre sèche par mole de sites de sorption, K_1 et K_2 sont des constantes.

Par ailleurs, il existe dans la littérature plusieurs modèles mathématiques pour décrire l'isotherme de ce type de matériau. On y trouve des modèles théoriques, semi-théoriques ou encore empiriques [122]. Les modèles Guggenheim, Anderson et de Boer (GAB), Hailwood Horrobin (H-H), et Generalised D'Arcy and Watt (GDW) sont les plus utilisés dans la littérature pour les fibres végétales [113], [112], [114], [123]–[128] (Tableau A.I. 2). Ces modèles ont aussi un sens physique lors de la fixation des molécules d'eau à l'échelle porale et s'expliquent par une extension de la théorie de Langmuir pour une adsorption multicouche. En effet, chaque site d'adsorption ne peut adsorber qu'une molécule d'eau [122]. Ces molécules adsorbées pourraient être par la suite des sites d'adsorptions secondaires des molécules suivantes [128]. Le modèle GDW suppose qu'une partie de ces sites ont des possibilités de devenir des sites d'adsorptions secondaires. Le modèle H-H, quant à lui, considère que l'eau adsorbée par la paroi cellulaire peut exister sous deux formes : eau multicouche (M_d) et eau

monocouche (M_h) [127]. Cependant, bien que la monocouche dans le modèle GAB et DGW soit invariante, celle décrite dans le modèle H-H peut changer sur toute la plage de HR [112].

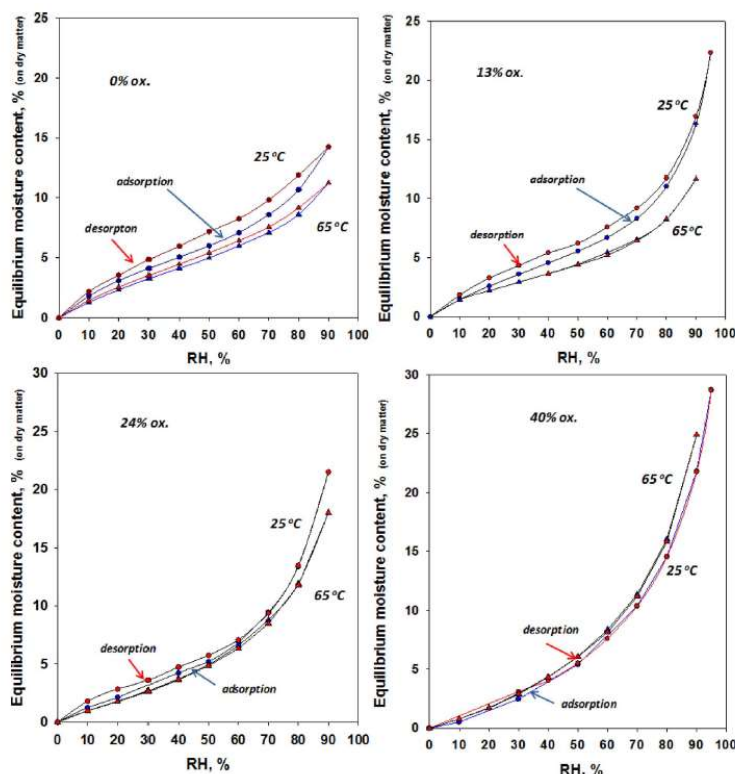


Figure A.I. 12 : Courbes d'adsorption et de désorption d'humidité en fonction de l'HR pour des échantillons de cellulose de différents degrés de modification. Mesures effectuées à 25 °C et 65 °C. plus le degré d'oxydation (ox) est important moins la cristallinité l'est [117].

I.4.2.2. Cinétique d'adsorption des fibres végétales

Le comportement diffusif des fibres végétales est souvent basé sur le modèle de Fick [93], [103], [105], [114], [123], [129]–[131]. Toutefois, il est parfois décrit par des modèles de diffusion non-Fickienne. Célineo et al. [129] ont employé différents modèles de diffusion classiques afin de prédire ce phénomène à l'intérieur des fibres végétales : le modèle de Fick, le modèle de Fick à deux étapes développé par Loh et al. [132] et le modèle de Langmuir développé par Kibler et al. [133]. Ils ont conclu que le modèle de Fick représente mieux la cinétique d'adsorption de la vapeur d'eau dans les fibres étudiées. Cependant la théorie de Langmuir semble décrire plus la diffusion à l'intérieur de ces fibres dans le cas d'absorption de l'eau liquide lors du processus d'immersion (Figure A.I. 13.1). En outre, Saikia [131] a observé pendant ses travaux sur les fibres de chanvre, de gombo et de noix de bétel des comportements d'absorption en deux étapes. La première étape a eu lieu très rapidement et obéit à la loi de diffusion de Fick. La deuxième étape d'absorption représente une diffusion non fickienne, (Figure A.I. 13.2).

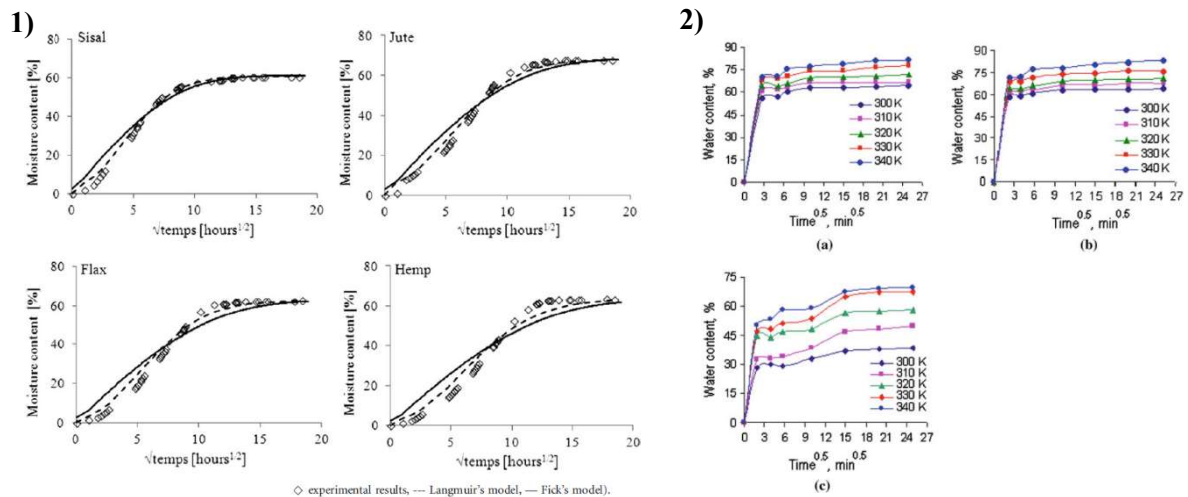


Figure A.I. 13 : 1) Absorption en immersion des différentes fibres végétales [129]. 2) Teneur en eau absorbée par (a) le chanvre, (b) le gombo et (c) les fibres de noix de bétel en fonction de la racine carrée du temps à différentes températures [131].

D'autre part, la solution analytique de la loi de Fick est approximative, la sorption est généralement subdivisée en deux, voire même en quatre zones, chacune de ces zones est définie par sa propre loi, (section I.4.1.2). Par conséquent, certains auteurs proposent un seul coefficient de diffusion afin de décrire le comportement diffusif au sein des fibres végétales [93], [130], mais d'autres suggèrent deux coefficients de diffusion différents [105], [114], [123] : D_1 pour la première demi-sorption et D_2 pour la seconde demi-sorption. Gouanvé et al.[105] ont constaté pendant leurs travaux que les valeurs de D_1 et D_2 des fibres de Lin sont similaires dans toute la gamme de a_w étudiée. Cependant, Alix et al. [114] ont aussi observé un comportement distinct sur le même type de fibre, la valeur de D_2 s'avère nettement plus grande que D_1 sur toute la gamme de HR étudiée. Selon les auteurs, cette dissemblance est causée par l'hétérogénéité des fibres dont la valeur D_2 devrait être plus représentative de la diffusion de l'eau dans le cœur de la fibre tandis que D_1 caractérise la diffusion à travers la surface. Les mêmes constats ont été soulevés par Bessadok et al. [123] sur les fibres d'Agave.

Par ailleurs, il a été constaté dans la littérature une multitude de résultats relatifs aux coefficients de diffusion des fibres végétales ainsi que leur taux d'adsorption d'eau (Tableau A.I. 3). Céline et al. [129] ont étudié le mécanisme de sorption des différentes fibres végétales (Lin, Chanvre, Sisal, Jute) sous différentes conditions : une immersion dans l'eau et un conditionnement à 80% de HR. Les résultats ont montré, pour chaque type de fibres, un écart important de l'ordre de 10^{-2} entre les coefficients de diffusion de chaque cas étudié. A titre d'exemple, les fibres de lin ont présenté un coefficient de diffusion dans le cas d'immersion dans l'eau de $5,9 \cdot 10^{-06} \text{ mm}^2/\text{s}$ et $2,00 \cdot 10^{-04} \text{ mm}^2/\text{s}$ sous HR de 80%. Dans le cas d'un

conditionnement sous humidité relative, des résultats similaires ont été également obtenu par Roudier [103] sur les fibres de Lin. Quoique, Gouavné et al. [105] ont noté une différence de plus de 3 décades sous le même conditionnement. En outre, dans le cas d'immersion dans l'eau, Stamboulis et al.[93] ont noté une valeur de D du même ordre de grandeur que celles trouvées par Céline et al. [129] et Roudier [103] sous humidité relative pour les fibres de Lin.

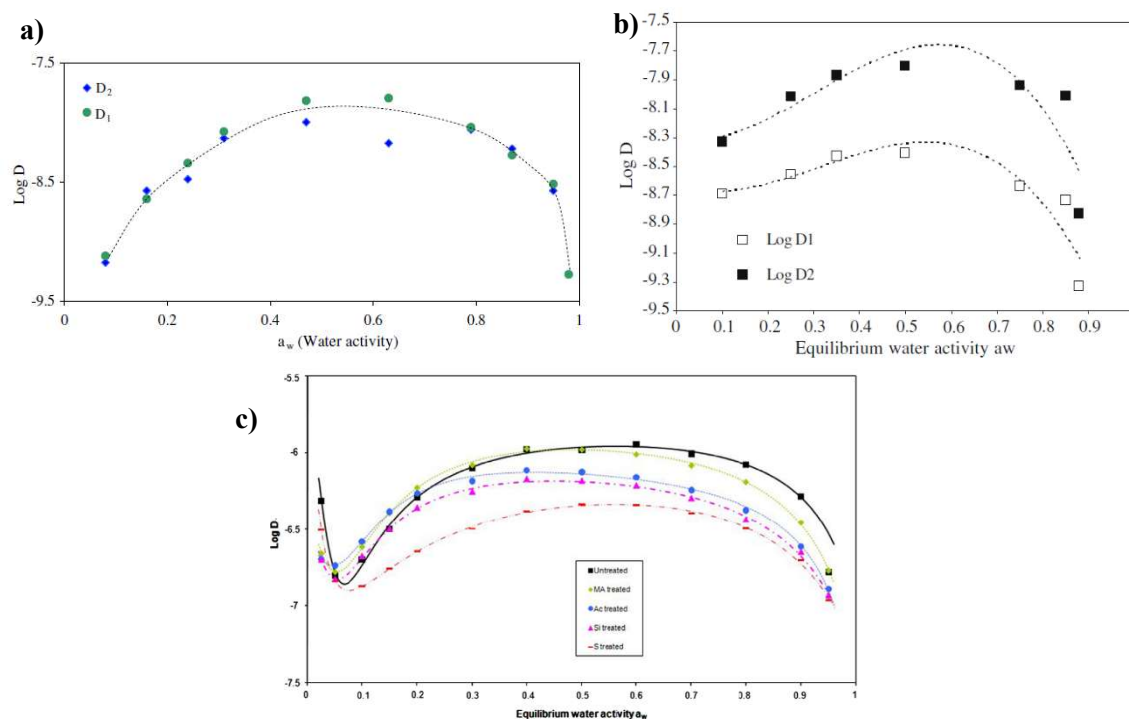


Figure A.I. 14 : a) Evolution des coefficients de diffusion de l'eau D_1 et D_2 en fonction a_w pour la sorption de vapeur d'eau à 25 ° C de fibre de lin [105]. b) Sorption de vapeur d'eau dans des fibres d'agave non traitées à 25 ° C : évolution des coefficients de diffusion D_1 et D_2 en fonction de l'activité de l'eau à l'équilibre [123]. c) Evolution de D_1 en fonction de l'activité de l'eau des fibres de lin. [114] .

D'autre part, Gouavné et al.[105] ont constaté une augmentation des D_1 et D_2 des fibres de lin lorsque a_w est inférieure à 0,50 ; au-delà de cette valeur une diminution a été observée pour ces coefficients (Figure A.I. 14.a). Ces constats ont été expliqués, selon les auteurs, par le double mode de sorption, Langmuir et Henry, dans la première partie de l'isotherme ainsi que l'effet freinant du gonflement à des a_w élevées. Les mêmes constats ont été soulevés par Bessadok et al. [123] (Figure A.I. 14.b). D'après eux, ceci indique un mécanisme de sorption de l'eau conforme au modèle de Park : une partie de l'eau est adsorbée sur des sites spécifiques (faible mobilité des molécules d'eau fixes) et le reste dissous selon le processus d'Henry (mobilité plus élevée des molécules dissoutes) puis formation ultérieure d'agrégats à des a_w élevées (faible mobilité des agrégats). De leur côté, Alix et al. [114] ont observé un comportement un peu similaire pour les fibres de Lin avec une diminution des coefficients de diffusion lorsque a_w est

inférieur à 0,1. Au-delà de cette valeur, les D_1 , D_2 suivent le comportement observé par Gouanvé et al.[105] (Figure A.I. 14.c). Cette diminution précoce a été expliquée par le fait que les molécules d'eau interagissent avec des groupes de fibres polaires conduisant à des liaisons hydrogènes qui augmentent la cohésion entre les chaînes cellulosiques, réduisant ainsi la mobilité de l'eau. Cependant, Roudier [103] a constaté que plus l'humidité relative augmente, plus le coefficient de diffusion de l'eau dans la fibre de lin est important. Cette relation est décrite selon lui par une loi linéaire (Figure A.I. 15). Il est à noter que les fibres étudiées ont été séchées avant chaque conditionnement.

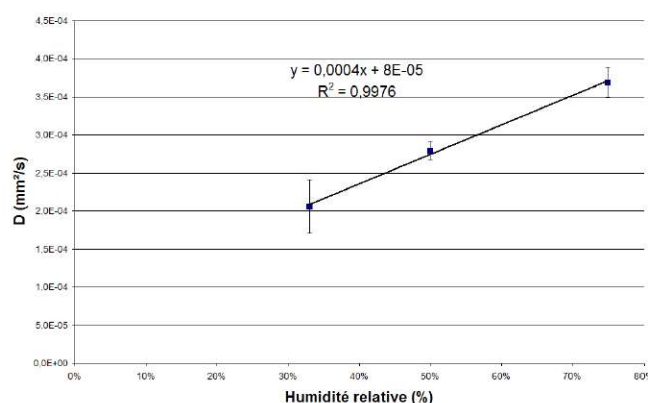


Figure A.I. 15 : Evolution linéaire du coefficient de diffusion de l'eau au sein des fibres de Lin en fonction de l'humidité relative [103]

Par ailleurs, les traitements ont également un impact important sur les propriétés hygrothermiques des fibres végétales. Stamboulis et al. [93] ont étudié l'effet du traitement thermique, Durbalin, sur les propriétés hygrothermique des fibres de lin non rouies. Il s'est avéré que le taux d'adsorption des fibres de lin brutes est nettement important par-rapport aux fibres traitées. Ces dernières contiennent 30% et 50% moins d'humidité par-rapport aux fibres brutes lorsqu'elles sont conditionnées, respectivement, à 66% et 100% de HR. En outre, les fibres brutes ont présenté toujours un coefficient de diffusion plus important que celui des fibres traitées, quel que soit la HR étudiée.

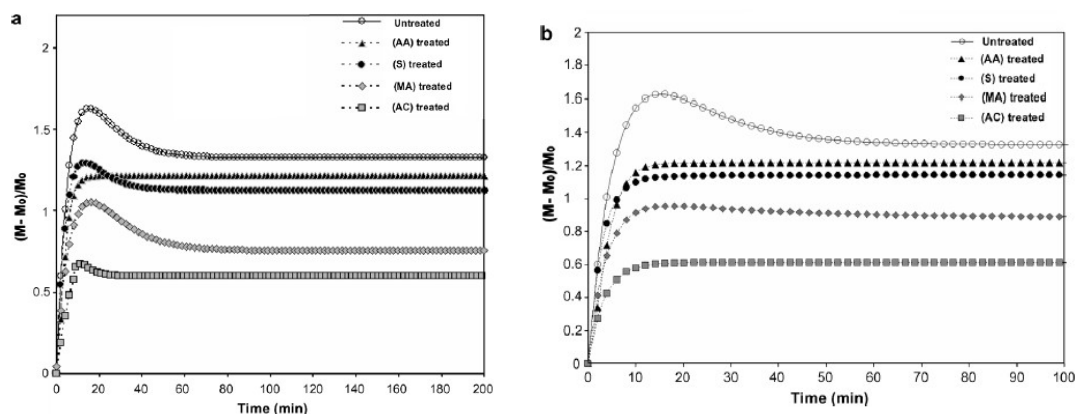


Figure A.I. 16 : Courbes de sorption de l'eau liquide pour les fibres d'Agave non traitées et traitées à 25 °C: (a) première mesure; (b) deuxième mesure (test de reproductibilité) [113].

Bessadok et al. [113], quant à eux, ont observé un pic avant l'équilibre sur les courbes de sorption d'eau des fibres d'Agave traitées et non traitées (Figure A.I. 16). Selon eux, ce pic est dû à la libération des substances de faible masse moléculaire. Néanmoins, contrairement aux fibres non traitées le phénomène observé n'était pas reproductible sur les fibres traitées. D'autre part, les traitements chimiques ont conduit à une diminution de la sorption d'eau des fibres. En ordre d'efficacité sur les fibres d'Agave les traitements sont classés comme suit : acide acrylique < styrène < anhydride maléique < acétylation. Sur d'autres travaux, les même auteurs ont [67] également observé un effet différent de ces traitements sur les fibres d'Alfa. Le traitement styrène semble le plus efficace suivi par l'anhydride maléique, l'acide acrylique et l'acétylation. Quant à la diffusivité de l'eau, une diminution a été avérée après ces traitements [123] sur les fibres d'Agave. Sur la même lignée, Mannan et al. [130] ont noté après différents traitements sur les fibres de Jute que les coefficients de diffusion diminuent lors de la délignification, du blanchiment et du lavage au savon, suggérant que l'humidité est absorbée dans la région amorphe des fibres.

Chapitre A.I : Etat de l'art sur les propriétés des fibres naturelles

Tableau A.I. 3 : Paramètres de diffusion des fibres végétales sous différentes conditions de vieillissement.

Fibres	Conditionnement	EMC	Modèle de diffusion	D (mm ² /s)	Références
Jute	51%	-	Fick	3,38 e-07	Mannan et Talukder, 1997 [130]
Lin non rouie	Immersion dans l'eau	42,58	Fick	1,93 e-04	Stamboulis et al., 2001 [93]
Lin	Sous une large gamme humidité	-	Fick	6,50 e-07	Gouavné et al., 2007[105]
Alfa	Immersion dans l'eau	140,60	-	-	Bessodok et al., 2007 [67]
Agave	Immersion dans l'eau	138	-	-	Bessodok et al., 2008 [113]
Agave	57%	-	Fick	D ₁ = 7,27 e-03 D ₂ =3,29 e-02	Bessadok et al., 2009 [123]
	75%	-	Fick	D ₁ = 4,55 e-03 D ₂ = 2,24 e-03	
	87%	-	Fick	D ₁ = 7,64 e-03 D ₂ = 2,51 e-03	
Chanvre	Immersion dans l'eau 300K	62	Fick	5,20e-04	Saikia, 2010 [131]
Lin	33%	-	Fick	2,06e-04	Roudier, 2012 [103]
	50%	-	Fick	2,79e-04	
	75%	-	Fick	3,69e-04	
Chanvre	Immersion dans l'eau	63	Langmuir	5,6-06	Célino et al., 2013 [129]
Jute		67,8	Langmuir	5,9e-06	
Lin		62,5	Langmuir	6,8e-06	
Sisal		60,6	Langmuir	9,1e-06	
Chanvre	80%	-	Fick	2,27e-04	
Jute		-	Fick	4,02 e-04	
Lin		-	Fick	2,00 e-04	
Sisal		-	Fick	1,17 e-04	

I.5. Plante de Diss



Figure A.I. 17 : Plante de Diss, l'entrée du Campus SophiaTech, Sophia Antipolis.

Le Diss, ou l'*Ampelodesmos mauritanicus*, est une espèce de plantes de la famille Poaceae [134]. Cette plante vivace herbacée peut atteindre 2 à 3 m de haut, densément fibreuse, très robuste, elle pousse sous forme de touffe dans les sols plus ou moins secs [134], [135] (Figure A.I. 17). Cette plante représente l'une des ressources végétales les plus abondantes sur le contour méditerranéen [8]. En France, on la trouve dans les départements des Alpes-Maritimes, du Var, de la Corse-du-Sud et de l'Hérault [7]. Elle était autrefois utilisée dans la réalisation des toits des maisons les plus anciennes (gourbis) en raison de ses qualités mécanique et hydrique [136]. Actuellement, l'utilisation de cette plante se limite aux applications artisanales, notamment dans la fabrication des parapluies exotiques.

Cette plante a commencé récemment à attirer l'attention des chercheurs, notamment pour leur exploitation comme un renfort aux composites cimentaires [7], [8] et polymère [9], [10], [11] ainsi que pour le traitement des sols expansifs [12]. Cependant, comparativement aux autres fibres naturelles, ces fibres ne sont pas suffisamment étudiées, d'où leur absence dans le secteur industriel.

Etant donné le peu d'information sur ses propriétés, les chapitres suivants proposent une méthode d'extraction dédiée à ce type de plantes ainsi que des protocoles de caractérisations chimiques, hydriques, thermiques et mécanique.

Chapitre II : Matériels et méthodes de caractérisations.

Ce chapitre a pour but de décrire les matériels et les protocoles expérimentaux utilisés dans cette étude. Statistiquement parlant, nous avons eu recours à l'incertitude-type élargie, avec un facteur d'élargissement de 2, pour les essais avec plusieurs répétitions de mesures. Les méthodes de caractérisations conventionnelles sont décrites dans l'annexe A : microscopie électronique à balayage, spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier, analyse thermogravimétrique.

II.1. Méthodes de mesures physiques ...

II.1.1. ... pour la masse volumique

La masse volumique des fibres de Diss brute a été mesurée par la méthode du pycnomètre (Figure A.II.1).

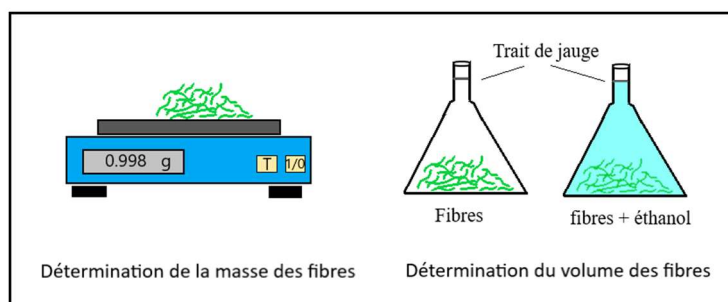


Figure A.II.1: Principe de la méthode du pycnomètre pour la mesure de la masse volumique des fibres de Diss.

Trois mesures ont été réalisées à l'aide d'une fiole jaugée de 100 cm^3 . Les fibres ont été découpées en petite longueur puis séchées pendant 48 heures dans un dessiccateur contenant de la silice préalablement régénérée. Pour chaque mesure, 1g (gramme) de fibres a été introduit dans la fiole puis submergé par l'huile de canola jusqu'au trait de jauge. Les pesées ont été réalisées après 24h afin de laisser le temps aux microbulles entre les fibres de s'évacuer grâce à une balance Sartorius (1/1000). La masse volumique a été déterminée par l'équation ci-dessous :

$$\rho_f = \frac{m_f}{100 - \left(\frac{m_h}{\rho_h}\right)} \quad \text{Eq. A.II. 1}$$

Où ρ_f représente la masse volumique des fibres (g/cm^3), m_f la masse des fibres (g), m_h la masse d'huile de canola (g) et ρ_h la masse volumique d'huile de canola (0.914 g/cm^3), préalablement mesurée avec la même méthode.

II.1.2. ... pour la Sorption Dynamique de Vapeur D'eau (DVS)

II.1.2.1. Principe

La Sorption Dynamique de Vapeur d'eau, ou *Dynamic Vapour Sorption* (DVS) en anglais, est une technique gravimétrique qui consiste à suivre l'évolution massique d'un matériau solide placé dans des conditions ambiantes imposées (température et pression) jusqu'à l'équilibre. En maintenant la température, l'évolution de pression relative permet de tracer des isothermes de sorption/désorption.

II.1.2.2. Protocole et Appareillage

L'équipement SPS de ProUmid a été employé afin de réaliser les analyses DVS sur les fibres de Diss (Figure A.II.2). C'est un instrument à analyse gravimétrique entièrement automatisé. Les courbes isothermes et la cinétique d'adsorption/désorption peuvent être déterminées sur une large plage de température et d'humidité relative. Son porte échantillon a une capacité allant jusqu'à 23 échantillons en une seule mesure. Un échantillonneur automatique place les échantillons l'un après l'autre sur une balance pour la pesée. Cette dernière est une microbalance dotée d'une technologie de chargement par le haut, sans avoir besoin de pince pour le suspendre au crochet, avec une résolution gravimétrique de $0,1 \mu\text{g}$. Une référence interne compense toute dérive de la microbalance et offre ainsi une excellente stabilité de balance même pour des mesures à long terme ($>> 24 \text{ h}$). La large plage de charge dynamique des microbalances permet d'obtenir des résultats de pesage précis et reproductibles à pleine échelle, de 3 mg à 220 g. Plusieurs échantillons peuvent être mesurés sans que leur masse ne doivent nécessairement correspondre. La large plage de température du SPS permet de réaliser une analyse d'adsorption et de désorption de vapeur d'eau dans des conditions extrêmes, de 5°C à 60°C . L'humidité relative peut être réglée avec précision sur une plage allant d'un état complètement sec à 0% à un état proche de la condensation à 98%. L'ambiance en humidité est accomplie à l'aide des solutions salines saturées.



Figure A.II.2: Equipement SPS de ProUmid de mesures des courbes d'isothermes de Sorption de vapeur d'eau.

Les échantillons de fibres de Diss traitées (200 – 300 mg) ont été placés dans des porte-échantillons, puis posés dans l'appareil à la température souhaitée (23°C) et séchés à 0% de HR. Tous les échantillons sont pesés en continu en tournant et en abaissant le carrousel, un plat après l'autre est placé sur le plateau de pesage. Par la suite, les échantillons ont été exposés à différentes HR, respectivement, 10%, 19%, 39%, 49%, 59%, 69%, 79%, 88% et 97%, le passage d'une HR à une autre se produit lorsque l'échantillon atteint l'équilibre. Les pesées ont été programmées pour être relevées toutes les 10 min et les conditions d'équilibre sont atteintes lorsque la masse de l'échantillon devient constante ou la variation du flux massique entre deux mesures successives (dm/dt) est inférieure au seuil fixé à 0,025%.

La relation entre a_w et la teneur en eau massique à l'équilibre de l'échantillon (EMC) à température constante est décrite par une isotherme de sorption. EMC est définie par la relation entre la masse humide (m_w) et la masse sèche à l'équilibre (m_d) de l'échantillon par l'expression suivante :

$$EMC(a_w) = \frac{m_w(a_w) - m_d}{m_d} \quad \text{Eq. A.II. 2}$$

II.1.3. ... pour l'absorption d'eau par immersion

La sensibilité à l'eau des fibres de Diss a été également abordée. Cet essai consiste à sécher un matériau, puis suivre l'évaluation de sa teneur en eau à différents temps d'immersion jusqu'à la saturation par une méthode gravimétrique.

Toutes les pesées ont été réalisées en utilisant une balance de précision Sartorius de 10^{-5} g de résolution. L'essai a été répété trois fois pour chaque type de fibres.

Un protocole inspiré des recommandations de la RILEM [137] pour les essais de caractérisation de chènevotte (bois de chanvre) a été adopté :

- L'essai a été réalisé sur, environ, 1g de fibres ;
- L'échantillon a été séché dans une étuve ventilée à 60°C jusqu'à l'équilibre ;
- L'échantillon a été ensuite mis à refroidir dans un dessiccateur contenant de la silice préalablement régénérée jusqu'à ce qu'il soit en équilibre avec la température ambiante (m_{f0}) ;
- Un filtre en plastique en forme de sac, à faible absorption d'eau, a été également séché puis pesé (m_{s0}) ;
- Le sac contenant les fibres, préalablement pesé (m_{fs0}), a été plongé, par la suite, dans l'eau pendant une durée de 15 min, puis pesé (m_{fs15}) après avoir été placé dans l'essoreuse actionnée 100 fois avec une vitesse d'environ 2 tr/s afin d'éliminer les gouttelettes d'eau piégées entre les fibres ;
- Cette opération a été répétée avec différents temps d'immersion : 30, 60, 120, et 300 min.

La capacité d'adsorption des sacs (W_s) en plastique en fonction du temps a été également déterminée en utilisant le même protocole. L'équilibre est supposé être atteint lorsque la variation de masse de l'échantillon pour une période de 24h est inférieure à 0,1%, pendant trois jours consécutifs [137]. Le taux d'absorption des fibres (W_f) en fonction de la durée d'immersion (t) a été calculé comme suit :

$$w_f(t) = \left[\frac{(m_{fs}(t) - m_{fs0}) - (m_{s0} \times w_s(t))}{m_{f0}} \right] \times 100 \quad \text{Eq. A.II. 3}$$

II.2. Méthodes d'analyses par microscopie

La microscopie a été utilisée afin d'observer la microstructure des matériaux étudiés. Deux techniques d'observation ont été employées : la microscopie optique et la microscopie électronique à balayage (MEB).

II.2.1. Microscope optique

Deux microscopes optiques ont été employés dans cette partie, un métallographique (*infinity 2 - Olympus BH2*) et un confocal (microscope Raman *SENTERRA II*), (Figure A.II.3).

Ce dernier est muni d'un mécanisme de balayage en plan qui permet d'observer une large surface.

Avant d'être examinés, les échantillons ont été préparés par enrobage. La surface concernée a été positionnée parallèlement au plan d'observation, puis enrobée dans une résine d'enrobage à froid (versocit-2). Une fois démoulés, la surface d'observation a été polie grâce à une machine de polissage (Jean Wirtz FT 250). Une série de disques abrasifs en carbure de silicium (de 600 grains jusqu'à 4000 grains) a été utilisée, du plus au moins rugueux.

Le microscope optique infinity 2 - Olympus BH2, doté d'une caméra, a été employé dans le but de réaliser des observations sur les sections transversales des fibres de Diss. L'aire de celles-ci a été mesurée à l'aide du logiciel de contrôle du microscope (Infinity 2-3) en traçant leur contour. La section transversale des fibres a été supposée circulaire et leur diamètre moyen a été déterminé en mesurant au moins 25 faisceaux de fibres pour chaque traitement.



Figure A.II.3 : Microscope optique infinity 2 - Olympus BH2.

Une coloration histologique a été également effectuée sur la feuille de Diss afin d'identifier ses différentes cellules. Tout d'abord, les feuilles ont été incluses dans une résine LR-White (sans fixation et sans déshydratation), puis coupées en tranches de 1 μm à l'aide d'un microtome équipé d'un couteau diamant. Ensuite, les coupes ont été traitées pendant 10 min par une solution qui contient 0.02% de l'acridine orange dilué dans un tampon de phosphate de sodium 0.1 M à pH = 7.20. Enfin, les échantillons ont été rincés plusieurs fois dans l'eau désionisée et observés en fluorescence.

D'autre part, les observations menées sur l'intégralité de la feuille enrobée ont été réalisées grâce au microscope confocal Raman SENTERRA II.

II.2.2. Microscope électronique à balayage

Les fibres et feuilles de Diss ont été observées à l'aide du microscope électronique à balayage, JEOL 6060 LA (Figure A.II.4), fonctionnant dans une gamme de tension de 0.3 à 30 kV. Cet appareil est capable de garantir une résolution jusqu'à 3 nm par les électrons secondaires et 4 nm par les électrons rétrodiffusés ; cela avec une gamme de grandissement variant de $\times 8$ à $\times 300\,000$ et une imagerie numérique qui peut atteindre $1280 \times 960 \times 8$ bits. Avant chaque observation les échantillons ont été métallisés.



Figure A.II.4 : Microscope électronique à balayage, JEOL 6060 LA.

II.3. Méthodes d'analyses chimiques

II.3.1. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR)

La spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier, en anglais *Fourier Transform InfraRed spectroscopy* (FTIR), a été employée à l'aide du spectromètre *Perkin Elmer* (Figure A.II.5). Les spectres ont été enregistrés dans une gamme de nombre d'onde entre 4000 cm^{-1} et 450 cm^{-1} .

Deux techniques de FTIR ont été utilisées : par réflectance totale atténuée (en anglais *Attenuated Total Reflectance* (ATR)) et par transmission. La première méthode est basée sur le principe optique de la réflectance : le rapport entre le flux lumineux réfléchi et le flux lumineux incident ; tandis que la deuxième technique raisonne par-rapport aux flux lumineux qui transperce la matière.



Figure A.II.5 : Spectromètre Perkin Elmer.

La FTIR par transmittance a été adoptée afin d'examiner tous les changements qui sont apparus sur la structure chimique des fibres de Diss après leurs traitements. Cela pour mettre l'accent sur les pics les plus petits [109] qui devraient être influencés par les différents traitements. Les échantillons ont été broyés en petites particules, puis mélangés et comprimés avec du bromure de potassium (KBr) en des pastilles minces. FTIR par ATR, quant à elle, a été adoptée afin d'étudier l'influence du changement de taux d'absorption de vapeur d'eau sur les groupes fonctionnels des fibres. Cette technique ne nécessite aucune préparation de l'échantillon.

II.3.2. Composition chimique des fibres

À fin de révéler la composition chimique des feuilles/fibres de Diss, ces dernières ont été broyées séparément dans un broyeur centrifuge (Retsh ZM100) équipé d'un tamis de 0,5 mm sous la présence d'azote liquide. Par la suite, les carbohydrates et la lignine, exprimés en pourcentage par-rapport à la masse de la matière sèche, ont été identifiés et quantifiés, respectivement, suivant la méthode chromatographique et la méthode Bromure d'Acétyle décrite par Hatfield et Fukushima [37].

En ce qui concerne la méthode chromatographique, 3g d'échantillons broyés ont été soumis à une hydrolyse dans 12M H_2SO_4 pendant 2h à 25°C, suivie d'une hydrolyse supplémentaire de 2h à 100°C avec 1,5M H_2SO_4 en présence d'inositol comme étalon interne. L'acide galacturonique (GalA) a été déterminé par une méthode automatisée de m-hydroxybiphényle [138] tandis que les sucres neutres individuels (arabinose, glucose, xylose et galactose) ont été analysés comme leurs dérivés d'acétate d'alditol [139] par chromatographie gaz-liquide (Perkin Elmer, Clarus 580, Shelton, CT, USA) équipée d'une colonne capillaire DB 225 (J&W Scientific, Folsom, CA, USA) à 205°C, avec H_2 comme gaz vecteur. Les produits chimiques utilisés dans cette partie sont fournis par Sigma Aldrich.

La quantité de cendres a été, également, déterminée après une calcination des feuilles et des fibres de Diss dans un four à 900°C pendant 10h. Toutes les analyses ont été effectuées pour trois essais indépendants.

II.4. Analyse thermogravimétrique (ATG)



Figure A.II.6 : Analyseur thermique simultané NETZSCH STA 449 F3 Jupiter.

L'ATG des fibres de Diss traitées et non-traitées a été réalisée à l'aide d'un analyseur thermique simultané *NETZSCH STA 449 F3 Jupiter* (Figure A.II.6). Toutes les mesures ont été prises dans une gamme de température variant de 25 à 500°C ; cela en maintenant une vitesse de chauffage constante de 10°C/min dans un milieu inerte, sous azote. Avant le lancement des essais, les échantillons ont été placés dans des creusets en céramique ouverte, dont leurs poids était d'environ 40mg.

II.5. Protocole des essais de traction

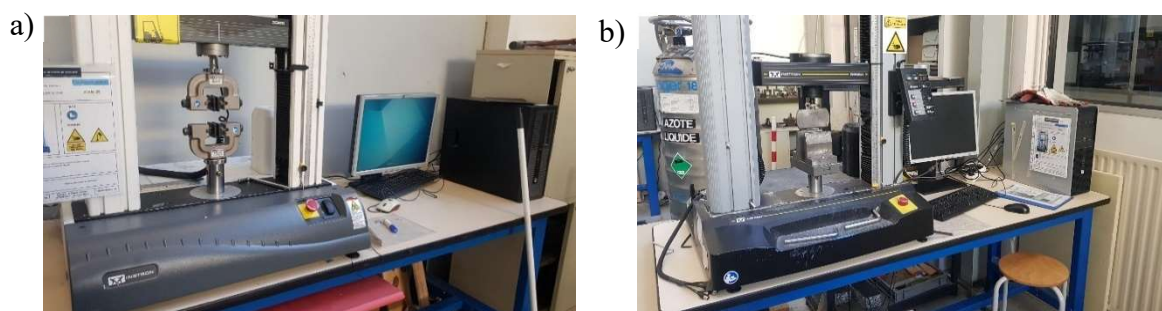


Figure A.II.7 : Machines universelle Instron : a) modèle 3366, b) modèle 5566.

Les essais de traction sur les feuilles et les fibres de Diss ont été réalisés grâce à la gamme des machines Universelle Instron (les modèles 3366 et 5566), (Figure A.II.7). Tous les

essais ont été effectués sous conditions ambiantes du laboratoire : température d'environ 23°C et humidité relative entre 55 et 65%.

Les propriétés de traction (module de Young E , résistance à la traction R_m et l'allongement à la rupture ε_r) des fibres ont été obtenues à l'aide du modèle 3366 équipé d'une cellule de charge de 500 N. La fibre a été maintenue tendue sur un support en papier avec une fenêtre au milieu, puis collée par une goutte de colle sur chaque côté comme le montre la Figure A.II.8.a. Une fois fixée sur les mors, les bords du papier au niveau de la fenêtre sont coupés afin de ne solliciter que la fibre (Figure A.II.8.b). Une longueur de jauge de 10 mm ainsi qu'une vitesse de la traverse mobile de 1 mm/min ont été choisies conformément à la norme NF T25-501-3 [114].

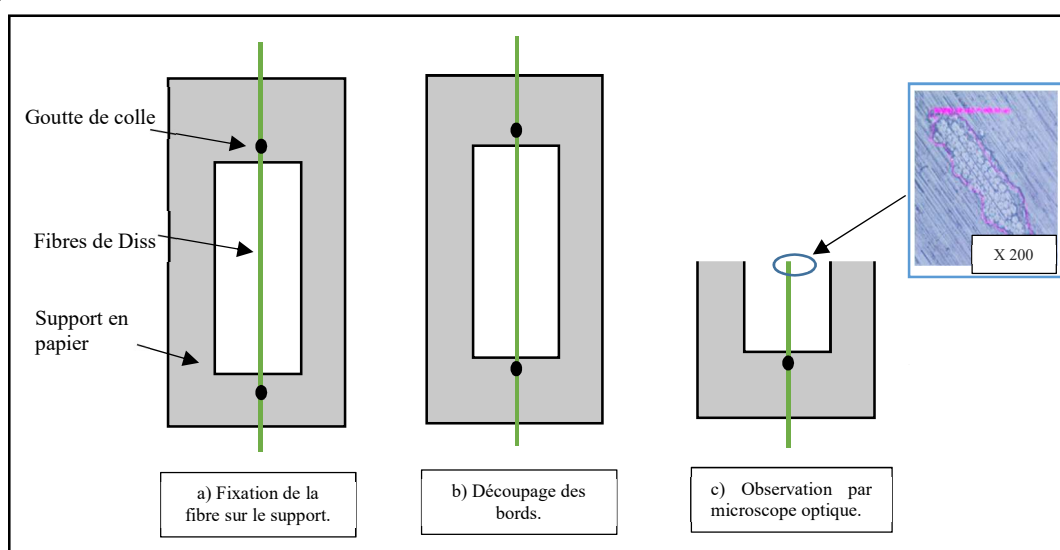


Figure A.II.8 : Méthode utilisée pour l'essai de traction des fibres de Diss.

Comme la déformation de la fibre ne peut pas être obtenue par un extensomètre, le déplacement de la traverse mobile a été utilisé pour estimer la déformation longitudinale moyenne de la fibre pendant l'essai. La contrainte de traction a été calculée via le rapport force/surface de la section transversale, suivant la méthode de Hu et al [141]: la force étant donnée par la cellule de charge et la surface de la section transversale a été déterminée par microscope optique après la rupture, par la méthode décrite dans la section II.2.1 (Figure A.II.8.c). Dix échantillons ont été testés pour chaque type de fibres et les résultats ont été évalués en utilisant le test de Dixon de la valeur aberrante [142].

La même méthode a été appliquée pour la caractérisation des feuilles, quoi que, en raison de leur section plus importante comparée à celle des fibres, quelques adaptations ont été effectuées :

- Les feuilles ont été fixées directement sur les mors ;

- Une longueur de jauge et une vitesse de la traverse mobile, respectivement de 30 mm et 3 mm/min ont été choisies conformément à la norme NF T25-501-3 [127] ;
- Pour ces essais la machine de traction Instron 5566 a été employée avec une cellule de charge de 1 kN ;
- La surface de la section transversale a été déterminée par le microscope optique à partir d'une partie prélevée sur la même feuille et proche de la zone testée, supposant qu'il n'y a pas de différence significative entre la section de la zone de rupture et la section observée.

Chapitre III : Extraction, traitements et Caractérisations de la fibre de Diss.

Le but de cette partie est de définir d'une façon générale la plante de Diss ainsi que ses fibres en étudiant leurs propriétés physicochimiques, thermiques et mécaniques. Nous proposons, également, dans le cadre de combler une lacune dans la littérature relative à l'extraction de ces fibres une méthode adaptée à la nature de cette plante. Par ailleurs, leurs traitements par des méthodes chimiques ainsi que thermique sont étudiées afin de favoriser leur utilisation comme renfort pour les composites polymères.

III.1. Plante de Diss

III.1.1. Morphologie de la feuille de Diss

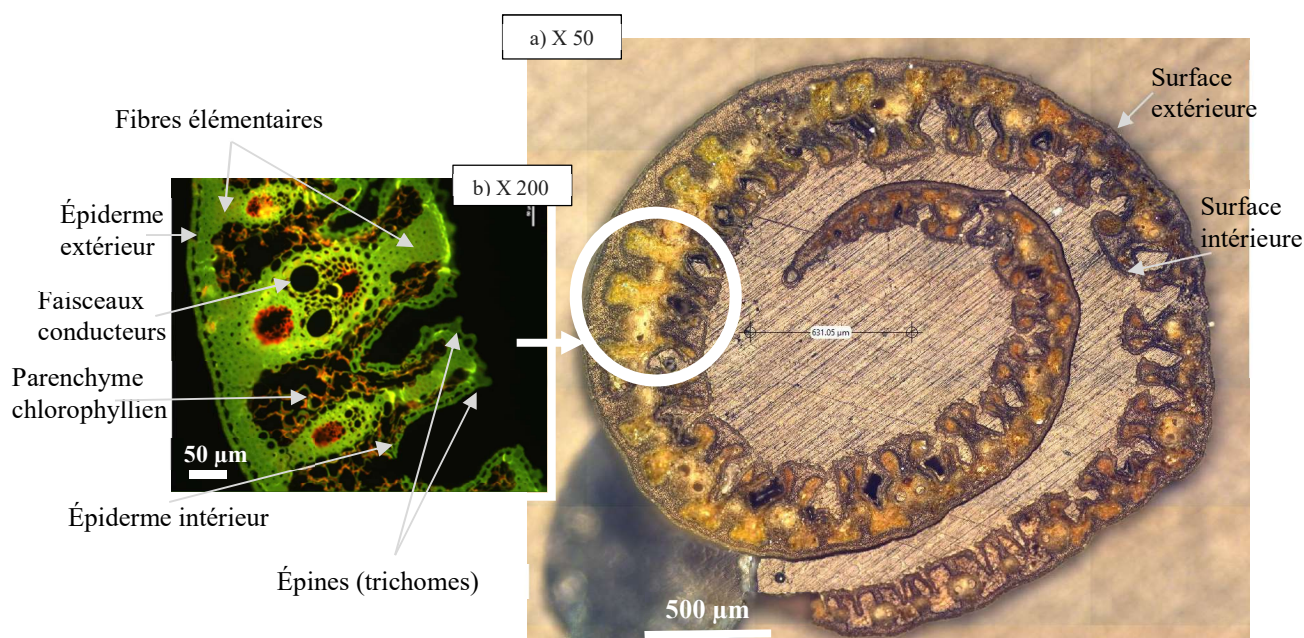


Figure A.III. 1: Vues microscopiques de la section transversale d'une feuille de Diss : (a) X50, (b) X200 traitée avec Acridine orange.

La partie arienne de la plante de Diss est constituée de feuilles longues acuminées qui s'enroulent après leur récolte. La Figure A.III. 1 met en lumière la section transversale des

feuilles de Diss. Chacune de ces feuilles a une épaisseur de quelques centaines de micromètre. Elles se caractérisent par une surface extérieure lisse et une surface intérieure épineuse fortement ondulée (Figure A.III. 1.a). La feuille de Diss est constituée de l'extérieur vers l'intérieur, comme l'illustre la Figure A.III. 1.b, par une couche épaisse de l'épiderme extérieur, des faisceaux conducteurs (vasculaires) au milieu de la feuille entourés par des cellules de parenchyme chlorophyllien et une couche d'épiderme intérieur moins épaisse qui contient des épines (trichomes). L'aire intérieure de cette feuille est remplie par des cellules de sclérenchyme : connues communément par les fibres élémentaires. Ces dernières sont caractérisées par une paroi épaisse et un petit lumen.

Contenant de ces informations, une méthode d'extraction dédiée à ce type de plantes est proposée (voir plus loin). Les feuilles de la plante de Diss utilisées ont été récoltées à la main à la fin de leur maturité dans le nord de l'Algérie.

III.1.2. Extraction des fibres de Diss

III.1.2.1. Principe

Dans le Diss, de même que le sisal et le bambou, les fibres sont réparties un peu partout au sein de la feuille, (voir § A. I. 1.3). De plus, la partie aérienne de cette plante ne contient que des feuilles longues, minces et acuminées, qui s'enroulent après leur récolte. Ce qui rend le processus d'extraction de ses fibres délicates. De nos jours, il n'existe pas une méthode d'extraction dédiée à ce type de plante qui devrait tenir compte de sa forme particulière. Il a été constaté dans la littérature, (la section I. 2.2), que l'extraction des fibres de cette plante ne se produit qu'à l'échelle de laboratoire : par broyage direct des feuilles, teillage, décortication ou par un rouissage chimique et enzymatique. Il a été soulevé, également, de ces travaux que les propriétés mécaniques des fibres résultantes dépendent fortement de ce process, (voir plus loin § A. III. 5).

Contenu de la morphologie de la plante de Diss et l'étude bibliographique menée dans la section I.2.2, nous proposons ici une méthode d'extraction qui pourrait mettre plus en valeur les fibres issues de cette plante : commençant par étudier l'effet du rouissage / humidification sur la plante, puis en proposant une méthode mécanique de séparation des fibres.

III.1.2.2. Optimisation du processus d'extraction des Fibres de Diss

Le rouissage à l'eau (RE) a été choisi afin de dégrader le ciment naturel autour des fibres en raison de son efficacité. Différentes durées d'immersion dans l'eau du robinet (à 24

°C en moyenne) ont été étudiées : 3, 6, 9 et 24 jours dénotées respectivement par RE3, RE6, RE9 et RE24, tout en respectant les différentes durées de rouissage proposées dans la littérature, (voir § A.I.2.1). Dans l'optique d'évaluer l'efficacité de ce rouissage sur les feuilles de Diss non rouies (FNR), un rouissage chimique à la soude (RS) a été également étudié. Le RS a été effectué avec une solution contenant 1,2% de NaOH pendant 90 min à une température de 80°C afin d'accélérer la dégradation en suivant un procédé interne d'extraction chimique des fibres de chanvre. Les feuilles rouies et non rouies ont été observées par le MEB afin d'évaluer le rouissage. Avant d'y procéder, une partie de chaque feuille a été enrobée dans une matrice pour la maintenir en position verticale par-rapport au plan d'observation, puis la feuille a été cassée au niveau de ce dernier par un mouvement de flexion. L'idée est d'estimer l'efficacité de RE en comparant l'état de cohésion des fibres au sein des feuilles rouies à l'eau (FRE) à celle des FNR et des feuilles rouies par la soude (FRS). Nous supposons que ces deux dernières représentent respectivement les cas des interfaces intacte et significativement dégradée.

La Figure A.III. 2 regroupe les clichés MEB des feuilles rouies et non rouies. Comme il a été attendu, les FNR ont présenté des fibres bien liées entre elles et avec les cellules voisines. Cependant, les FRE ne semblent montrer aucune séparation de fibres quel que soit la durée de rouissage, quoiqu'une désassociation de quelques parties de l'épiderme extérieur du reste de la feuille a été notée pour le RE9 et semble plus importante pour le RE24 (Figure A.III. 2.5.2 et 6.2). Cependant, ces résultats restent non comparables à ceux obtenus par RS où les fibres sont nettement séparées.

Néanmoins, l'immersion des feuilles dans l'eau semble avoir un autre effet sur ces dernières. En effet, il a été avéré que contrairement aux feuilles sèches, les feuilles humidifiées possèdent une certaine plasticité, voir souplesse, fournie par l'interaction des molécules d'eau avec leurs différents constituants, notamment l'épiderme extérieur. Il a été avéré que ce dernier est le responsable du changement de forme de la feuille de Diss après la récolte : il se relaxe quand il est assez humide et il se rétracte dans le cas contraire. Ce constat a été soulevé après avoir séparé cet épiderme du reste de la feuille. Par conséquent, il semble judicieux d'humidifier les feuilles de Diss pour une manipulation plus facile.

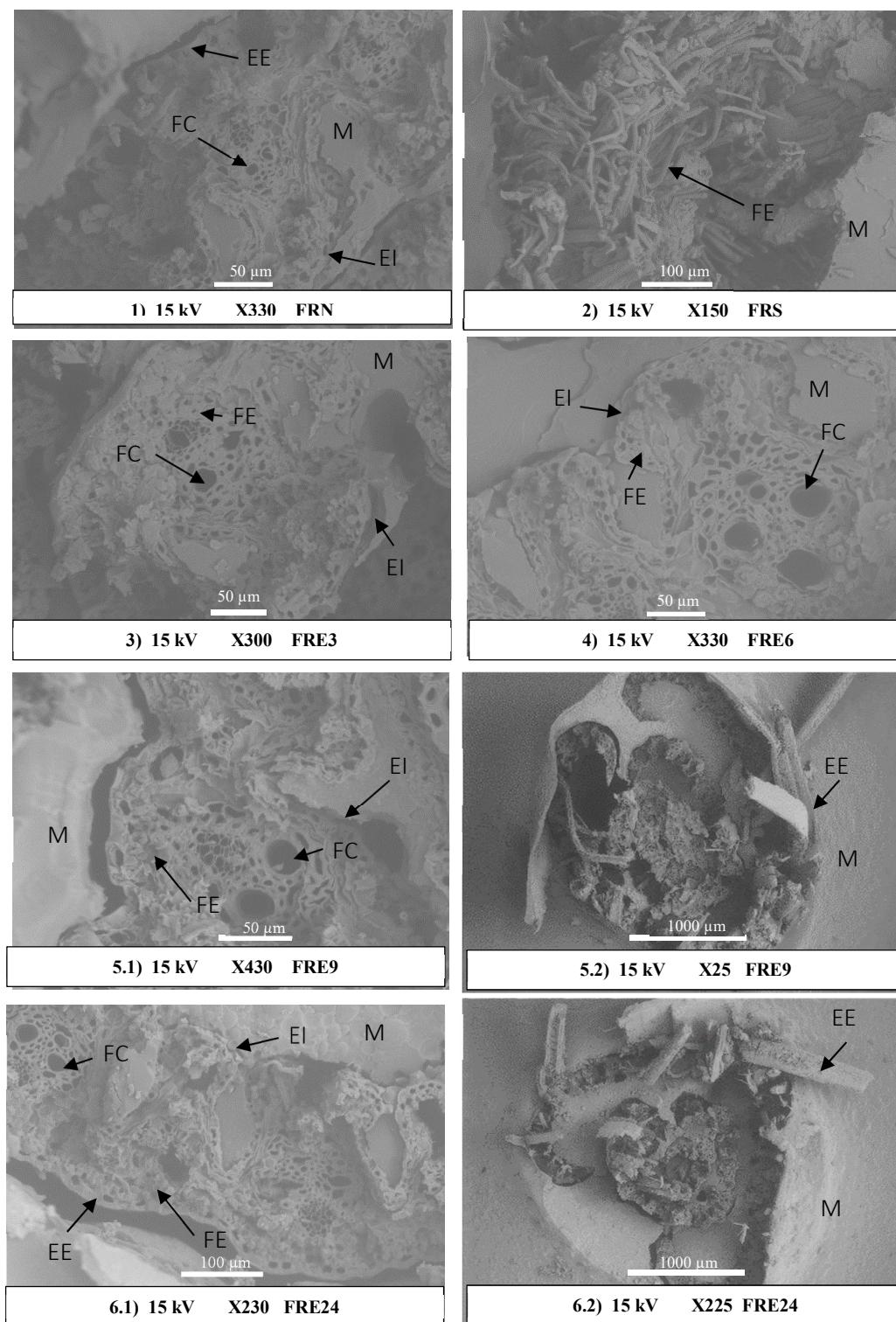


Figure A.III. 2: Clichés MEB de différentes feuilles de Diss rouies et non rouies : FNR : non roui. FRE3, FRE6, FRE9 et FRE24 : feuilles de Diss rouies à l'eau respectivement, pendant 3, 6, 9 et 24 jours. RS : feuilles de Diss rouies par NaOH. M : matrice d'enrobage, FE : fibre élémentaire, EE : épiderme extérieur, EI : épiderme intérieur, FC : faisceaux conducteurs.

À la suite des constatations précédentes, ainsi que des travaux de la littérature portés sur cet axe, une méthode d'extraction mécanique manuelle a été mise en place comme suit (Figure A.III. 3):

- Une humidification des feuilles à l'eau pendant quelques jours, afin d'assouplir l'épiderme extérieur de la feuille de Diss ;
- Un grattage des feuilles par un outil tranchant en les fixant sur une plaque rigide ; cette étape permet d'éliminer l'épiderme extérieur et produire des rubans de fibres ;
- Un peignage des rubans de fibres par deux peignes afin de produire des fibres techniques de Diss, appelées aussi faisceaux de fibres, en anglais *technical fibers of Diss* (TFD) ;
- Enfin, les TFD ont été étalées et séchées à l'air libre.



Figure A.III. 3: Méthode d'extraction manuelle des fibres de Diss.

III.1.3. Traitements des fibres de Diss

Les traitements des fibres naturelles renforcent souvent la durabilité ainsi que les propriétés mécaniques et hydrothermiques des composites ; cela grâce à une amélioration de l'interface entre les fibres et la matrice. Bien qu'il existe de nombreuses méthodes de traitements, nous nous sommes limités à quatre types de traitements ; trois traitements chimiques (traitement au silane, traitement alcalin et traitement à l'acide acétique) et un traitement thermique qui est censé être le plus écologique.

Le traitement thermique des TFD a été effectué dans une étuve ventilée à une température de 140°C pendant une durée de 14h. Ensuite, les fibres ont été refroidies à l'air jusqu'à température ambiante. Ce traitement a été proposé dans les travaux de Ariawan et al. [94] sur les fibres de Kénaf.

Pour le traitement alcalin, les TFD ont été submergées dans une solution aqueuse contenant 5% de NaOH, fourni par PanReac AppliChem, pendant 5h. Ensuite, elles ont été nettoyées en les immergeant d'abord dans de l'eau distillée pendant 24 h, puis dans une solution d'eau distillée contenant 2% d'acide acétique afin de réguler le pH à 7. Ce dernier est mesuré par un papier pH. Enfin, les fibres traitées ont été lavées plusieurs fois avec de l'eau distillée et séchées dans l'étuve à 60°C pendant 24h. Ce protocole est inspiré des travaux de Dhanalakshmi et al. [143].

En ce qui concerne l'acétylation, les TFD ont été immergées dans une solution d'acide acétique glacial pure, fourni par PanReac AppliChem, à température ambiante pendant 90 min. Ensuite, les fibres ont été traitées par une solution d'acétate d'éthyle contenant deux gouttes d'acide sulfurique afin d'enlever l'acide acétique qui n'a pas réagi. Enfin, les fibres ont été nettoyées par de l'eau distillée et séchées dans l'étuve à 60°C pendant 24h. Ce protocole est inspiré par les travaux de Haque et al. [116].

Quant au traitement au silane, 2% en masse de (3-Aminopropyl)triethoxysilane ($\geq 98\%$), fourni par SIGMA-ALDRICH, ont été dissous dans un mélange d'eau distillée/éthanol avec un rapport volumique de (0,40/0,60). Cette solution a été ajustée à l'aide de l'acide acétique jusqu'à l'obtention d'une valeur de pH égale à 4, puis mise sous l'agitation pendant 2h. Ensuite, les TFD ont été submergées dans la solution précédente pendant 2h à température ambiante. Enfin, elles ont été nettoyées avec de l'eau distillée et séchées dans l'étuve à 60°C pendant 24h. Ce protocole est inspiré des travaux de thèse de Do [144].

La concentration ou le temps des traitements utilisés pendant ces traitements ont été optimisés par des essais préliminaires. Les traitements chimiques ont été réalisés sous température ambiante.

III.2. Morphologie des Fibres de Diss

Après leur extraction, la morphologie des fibres de Diss a été analysée par le microscope optique. La Figure A.III. 4 illustre des clichés microscopiques menés sur la section transversale des TFD et de la feuille. La forme de ces faisceaux de fibres semble en dépendance avec leur

position au sein de la feuille. Nous pouvons distinguer trois types de fibres selon leur forme et leur contenance :

- Type 1 : Des faisceaux en forme de ruban plus au moins épais ; ces fibres sont les plus fréquentes ; elles sont liées à une partie de l'épiderme intérieur épineux et qui prennent la forme de ce dernier (Figure A.III. 4.b, c et d). Par conséquent, elles sont prélevées de la partie intérieure de la feuille.
- Type 2 : Des faisceaux qui contiennent, plus que des fibres unitaires, des cellules avec une paroi mince (faisceaux vasculaires et/ou parenchyme chlorophyllien). Elles sont moins fréquentes en raison de la faible résistance de ces cellules aux actions mécaniques de la phase d'extraction (Figure A.III. 4.e). Ces TFD sont extraites du cœur de la feuille.
- Type 3 : Des faisceaux qui ne possèdent que des fibres unitaires, qui sont également moins fréquentes. Ces fibres sont le fruit d'une parfaite extraction ; elles sont issues de la partie située entre les fibres de types 1 et 2 (Figure A.III. 4.f).

La variation de forme des fibres issues de feuilles a été soulevée par Newman et al. [145] dans le cas des fibres de feuille de Phormium. Cette variation est liée à la répartition aléatoire des fibres au sein de la feuille et leurs interactions avec les différentes cellules du voisinage.

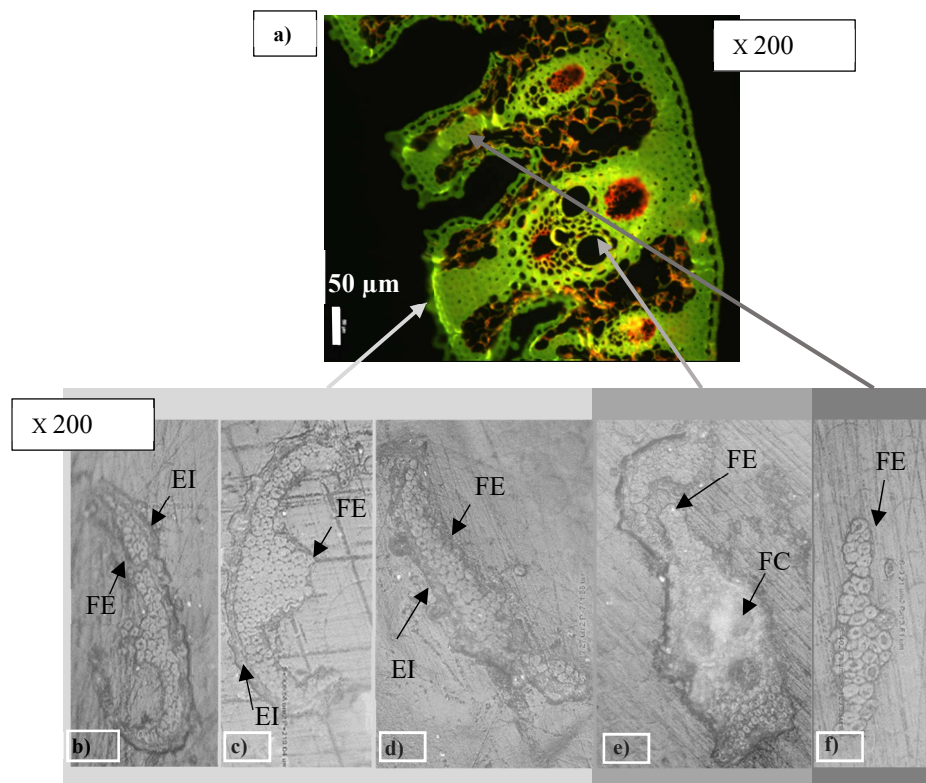


Figure A.III. 4: Observations par microscope optique de la section transversale des faisceaux des fibres de Diss. FE : fibre élémentaire. EI : épiderme intérieur. FC : faisceaux conducteurs.

La Figure A.III. 5 regroupe des clichés MEB des surfaces des TFD avant et après les différents traitements. Les observations menées sur les TFD brutes, (en Anglais untreated technical fibers of Diss (UTFD)), ont confirmé la présence des épines sur l'épiderme extérieur (Figure A.III. 5.1.a). En revanche, les surfaces qui ne sont pas couvertes par cet épiderme contiennent des impuretés : des fragments de cellules ou des résidus de ciment naturel (lamelle mitoyenne), (Figure A.III. 5.1.b et c). Ces composants non-cellulosiques, notamment le ciment naturel, sont constitués principalement de cire, de graisse, de lignine, de pectine et d'hémicellulose [94].

Les TFD traitées thermiquement à 140°C (TTFD) semblent avoir une surface plus propre avec la présence de quelques impuretés (Figure A.III. 5.2.a, b, et c). Ces changements de l'état de l'interface pourraient être dus à l'élimination partielle de quelques impuretés, telles que la cire et les extractifs [94].

Les TFD traitées au NaOH (NTFD) ont montré une meilleure surface, propre sans impuretés (Figure A.III. 5.3, a, b, et c). En outre, des fibres élémentaires (FE) détachées des faisceaux de fibres pourraient être observées. De plus, les épines (E) semblent avoir subi quelques dégradations et par conséquent deviennent plus aiguës. En outre, quelques résidus sont apparus sur la surface des fibres qui pourraient être dus aux produits chimiques utilisés pendant ce traitement. Sur la même ligne, plusieurs chercheurs ont également noté des constats similaires sur différentes fibres naturelles traitées au NaOH [73], [74], [146]–[149]. En effet, ce traitement est connu par sa capacité à dégrader certains composants non-cellulosiques tels que la lignine, l'hémicellulose et les substances cireuses qui couvrent l'interface de la fibre [70].

Les TFD traitées au silane (STFD) ont présenté également une surface plus propre que celle des UTFD (Figure A.III. 5.4.a, b, et c). Cela pourrait être attribué à la dégradation de certains composants du ciment naturel tels que l'hémicellulose et la cire [147]. De plus, il est clairement visible que la présence de certains résidus sur la surface des fibres est due au traitement appliqué. Le changement de l'état de la surface pourrait aussi être alloué au fait qu'elle était recouverte par une couche de silane [146]. Néanmoins, il est difficile de conclure sur cette hypothèse.

La surface des TFD acétylées (ATFD) a également subi des changements physiques clairement observables (Figure A.III. 5.5.a, b, et c). Elle est devenue plus lisse et plus propre que celle des UTFD. Le retrait de certains composants du ciment naturel de la surface des FDT ainsi que le remplacement des groupes hydroxyles libres sur la surface par des groupes acétyle pourraient expliquer ce lissage [84], [149], [150], [151].

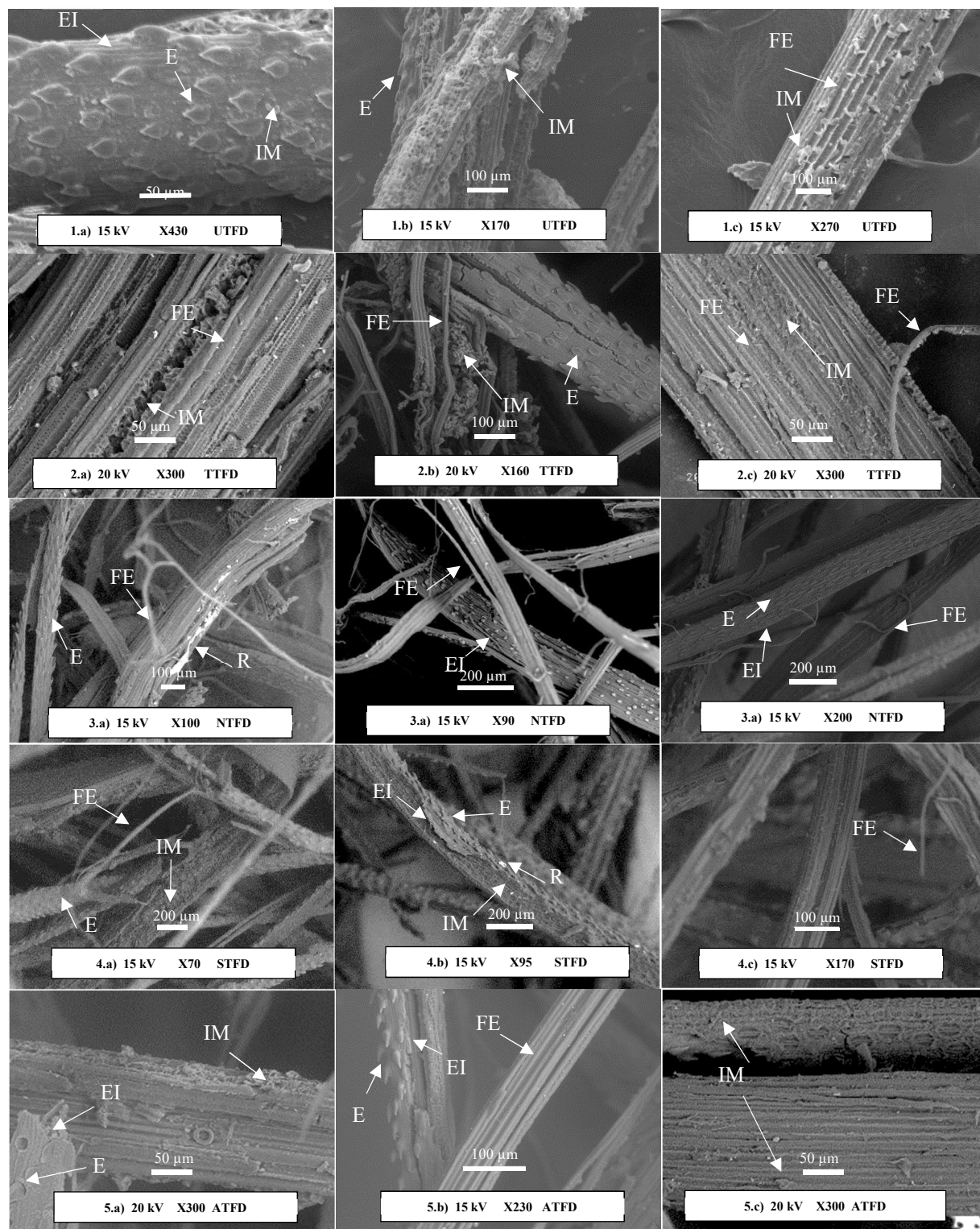


Figure A.III. 5: Observations par MEB sur la surface des TFD : 1) non traitées ((a), (b) et (c)). 2) traitées thermiquement à 140°C ((a), (b) et (c)). 3) traitées avec NaOH ((a), (b) et (c)). 4) traitées au silane ((a), (b) et (c)). 5) traitées à l'acide acétique ((a), (b) et (c)). EI : épiderme intérieur. E : épine. IM : impureté. FE : fibre élémentaire. R : résidu. [152].

La Figure A.III. 6 illustre les diamètres moyens des TFD traitées et non traitées, mesurés par le microscope optique en suivant la méthode décrite dans § II. 2.1. Les UTFD ont présenté un diamètre moyen de $89 \pm 10 \mu\text{m}$. Cette valeur est nettement inférieure à celles trouvées par

Touati et al. [11] sur des fibres de Diss extraites par broyage et celles obtenues par Sarasini et al. [153] sur les mêmes fibres extraites par un rouissage chimique et enzymatique, respectivement, 570 μm et $279,28 \pm 108,80 \mu\text{m}$.

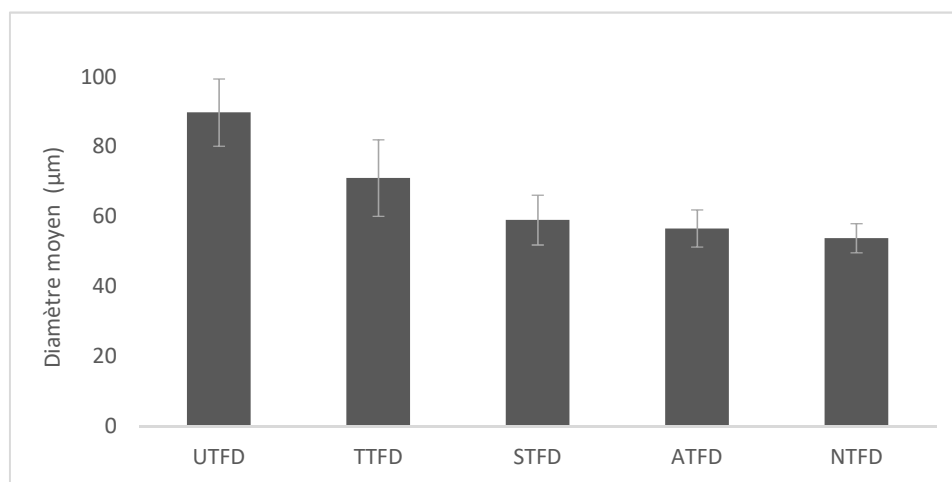


Figure A.III. 6 : Variation des diamètres des fibres traitées et non traitées [152].

Après les différents traitements, une diminution des diamètres moyens des fibres traitées a été observée. En tenant compte des domaines d'incertitude, cette diminution semble être significative que pour les trois traitements chimiques. Par conséquent, une réduction des diamètres moyens des TFD traitées chimiquement pourrait atteindre 40%, 36% et 34%, respectivement, après un traitement à NaOH, à l'acétylation et au silane. Comme il a été souligné auparavant, dans les observations au MEB, les traitements chimiques ont causé des changements significatifs à la surface des TFD comparés aux UTFD. Le traitement NaOH a causé la réduction la plus importante du diamètre comparé aux autres traitements chimiques. Cela est dû à leur efficacité vis-à-vis de la dégradation des composants non-cellulosiques des TFD [70], [74]. Ces résultats sont en accord avec ceux de Ruhi et al. [116] menés sur les fibres de Sisal dont les fibres traitées à NaOH 5% à l'acide acétique et au silane testées en traction ont montré une réduction de diamètre, respectivement, de 37%, 25% et 17% par-rapport aux fibres non traitées.

III.3. Composition chimique de Diss

Cette section vise à caractériser la composition chimique des fibres de Diss et leurs feuilles, ainsi que les changements chimiques incidents sur ces fibres après leurs traitements.

III.3.1. Composition chimique des fibres de Diss brutes

Les proportions en masse des principaux composants des fibres brutes et des feuilles de Diss (lignine, carbohydrates et cendre) ont été identifiées et quantifiées par chromatographie et la méthode Bromure d'Acétyle. Les résultats sont rapportés dans le Tableau A.III. 1 et la Figure A.III. 7.

Les carbohydrates, ou les monosaccharides, sont les principaux composants des feuilles et des fibres de Diss, respectivement à $61,60\% \pm 3,66\%$ et $64,16 \pm 0,79\%$ de leur masse sèche. La quantité de lignine est également importante, environs 20% pour chacune, quant à la quantité de cendre, elle représente $4,41 \pm 0,14\%$ pour les feuilles et $4,66 \pm 0,12\%$ pour les fibres. Ces résultats montrent que la composition des fibres après extraction semble rester similaire à celle des feuilles malgré l'élimination de l'épiderme extérieur. Ceci car les FTD contiennent souvent des cellules autre que les fibres élémentaires, notamment l'épiderme intérieur et les faisceaux conducteurs.

Tableau A.III. 1 : Composition chimique des feuilles et fibres de Diss exprimées en matière sèche [152].

	Carbohydrates	Lignine	Cendre	Total
Feuilles de Diss (%)	$61,60 \pm 3,66$	$20,30 \pm 0,30$	$4,41 \pm 0,14$	86,2
UTFD (%)	$64,16 \pm 0,79$	$20,66 \pm 0,13$	$4,67 \pm 0,12$	89,7

Le glucose et le xylane représentent les principaux composants des carbohydrates présents dans les feuilles et fibres de Diss avec, respectivement, 31,4% et 23,8% pour les feuilles et 32,6%, 24,9% pour les fibres, (Figure A.III. 7). En conséquence, les TFD peuvent être considérées riches en xylane (*xylan-rich*) à cause de leur teneur importante de cet élément. Cette classe des fibres est connue par une paroi secondaire des fibres élémentaires caractérisée par une orientation hélicoïdale de ses microfibrilles de cellulose, avec une prédominance de xylane dans la matrice non-cellulosique et un degré élevé de lignification [154].

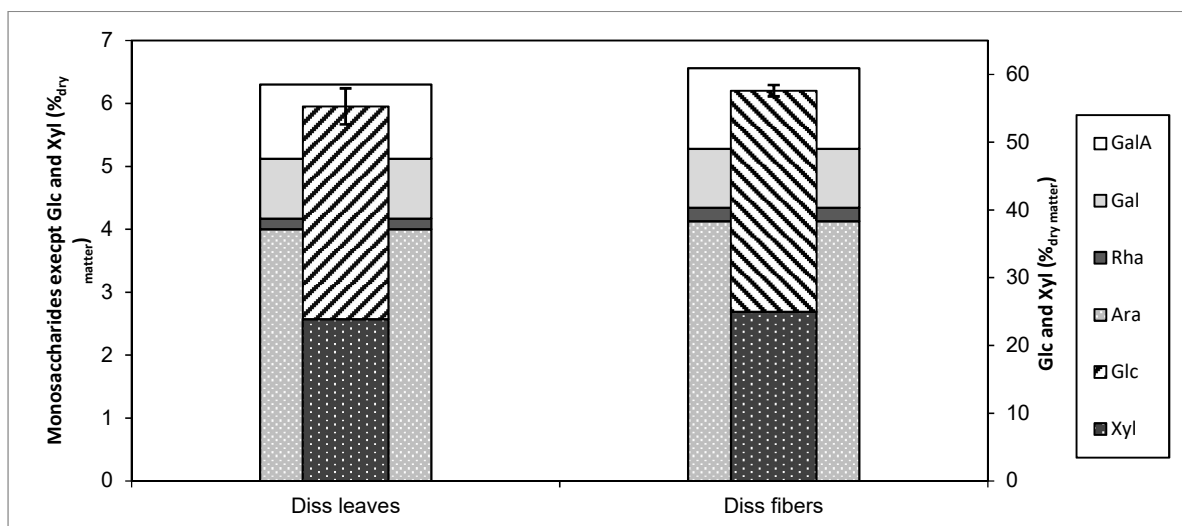


Figure A.III. 7 : Teneur relative des carbohydrates dans les feuilles et les fibres de Diss. Glc : Glucose, GalA : Acide galacturonique, Xyl : xylose, Gal : Galactose, Rha : Rhamnose, Ara : Arabinose [152].

Il a été tiré de la littérature [29][35][36][41][43] que le xylose et l'arabinose sont présents dans la composition d'hémicellulose; le galactose est un composant de la pectine; le glucose est le composant principal de cellulose, non moins qu'il rentre également dans la composition d'hémicellulose; l'acide uronique et le rhamnose sont présents dans la composition de pectine et d'hémicellulose. Dans le même ordre d'apparition de ces carbohydrates, cela représente 29,0%, 0,9%, 32,6% et 1,5% par-rapport à la masse sèche des fibres de Diss. Par conséquent, ces fibres sont composées principalement de cellulose, hémicellulose et lignine avec des proportions rapprochées (entre 20% et 35% en masse sèche). Cependant, la proportion de pectine ne devrait pas dépasser les 2,5%. Ces proportions sont proches de celles des fibres de kapok, d'alfa et de bois [154]. Ces valeurs sont comparables avec celles notées par Bourahali [9] en utilisant une méthode d'extraction chimique des macromolécules. Les résultats ont révélé un taux de cellulose et d'hémicellulose et de lignine, respectivement, de 44%, 27% et 17% par-rapport à la matière sèche ; quoique l'écart type de ces valeurs varie entre 3% et 8%.

III.3.2. Effet des traitements sur la composition chimique des fibres de Diss

Le FTIR est une méthode non destructive souvent utilisée pour étudier les propriétés physico-chimiques des fibres cellulosiques [155]. Cette méthode a été employée dans le présent travail afin d'examiner tout changement apparu sur la structure chimique des fibres de Diss après leurs traitements. Les principaux groupes fonctionnels des composants des fibres végétales et leur bandes IR sont représentés dans le Tableau A.III. 2 [73], [74], [149] [150], [155] [156].

Le changement de la composition chimique des UTFD après leur traitement engendre une variation de l'intensité et l'apparition/l'absence de certains pics. La Figure A.III. 8 rassemble les différents spectres IR des fibres non traitées et traitées dans une gamme de nombre d'onde entre 450 cm^{-1} et 4000 cm^{-1} en transmittance, cette dernière a été utilisée pour mettre l'accent sur les pics les plus petits [109] qui devraient être impactés par les différents traitements.

Tableau A.III. 2 : Principales bandes d'absorption présentent dans le spectre IR des fibres végétales [73], [74], [149] [150], [155] [156].

Nombres d'ondes (cm^{-1})	Groupes fonctionnels	Désignation
3600-3000	-OH vibration d'élongation	Cellulose, hémicellulose and lignine [74]
2860-2970	C-H vibration d'élongation	Attribuée à l'élongation CH des groupes méthylène (CH_2) de la lignine, de l'hémicellulose et de la cellulose [74]
1735	C=O vibration d'élongation	Groupes esters de lignine, hémicellulose et pectine [156] [155] [150]
1540, 1510, 1460	C=C vibration d'élongation	Cycles aromatiques de la lignine [155]
1452	Vibrations aromatiques	Vibration aromatique des structures d'hémicellulose [73]
1238	C-O et C=O vibration d'élongation	Unités condensées de gâïacyle de lignin. [155]
895	Liaison β -glycosidique	Liaison β -glycosidique de cellulose [149]

Le spectre IR de NTFD a présenté quelques changements comparés à celui des UTFD. Il a été constaté que les pics 2851 cm^{-1} , 1740 cm^{-1} et 1462 cm^{-1} ont disparus, en outre et les pics 3391 cm^{-1} , 2920 cm^{-1} , 1513 cm^{-1} , 1238 cm^{-1} et 897 cm^{-1} ont subi des modifications par-rapport à leur intensité. En fait, les pics 2851 cm^{-1} et 1740 cm^{-1} correspondent, respectivement, à la vibration d'étirement des liaisons C-H des groupes méthylène (CH_2) et à la vibration d'étirement des liaisons C=O des groupes ester de lignine, hémicellulose et pectine [74], [155], [157]. Le pic 1462 cm^{-1} pourrait être attribué à la vibration des liaisons aromatiques de la structure d'hémicellulose ou lignine [73], [155]. D'autre part, une diminution, pouvant être qualifiée comme significative, a été remarquée sur les pics 1513 cm^{-1} et 1238 cm^{-1} qui sont liés à la vibration d'étirement, respectivement, des liaisons C=C et C-O des cycles aromatiques et des liaisons C=O des unités condensées de gâïacyle de lignine [155]. Cela pourrait indiquer une élimination partielle de la pectine et l'hémicellulose ainsi qu'une dégradation de la lignine présente sur la surface des fibres traitées au NaOH. Ces résultats sont similaires à ceux soulevés dans la littérature. Krishnaiah et al. [74] ont attesté qu'un traitement alcalin des fibres de Sisal peut éliminer l'hémicellulose, la pectine et la lignine de leur surface. Dans la même lignée, Asim et al. [147] ont constaté une élimination qualifiée d'efficace de l'hémicellulose,

la lignine et la cire de la surface des fibres de Kénaf et de feuilles d'ananas après un traitement alcalin. Sgriccia et al. [157], quant à eux, ont observé une élimination partielle de la lignine et totale de l'hémicellulose de la surface des fibres de Kénaf et de Chanvre après ce traitement.

Cependant, la bande $3600\text{-}3000\text{ cm}^{-1}$ est devenue plus large et plus intense après ce traitement. La même remarque peut être tirée pour le pic 897 cm^{-1} vis-à-vis de son intensité : la première bande est attribuée à la vibration d'étirement des liaisons O-H [158] ; elle représente également à la fois les interactions macromoléculaires de la cellulose et de l'hémicellulose, ainsi que la présence de différents types d'eau plus au moins liées au réseau macromoléculaire des fibres [109]. Le deuxième pic correspond à la liaison β -glucosidique de cellulose. En outre, en plus de l'élimination des composants non-cellulosiques, ce traitement pourrait augmenter la quantité de cellulose amorphe au détriment de la cellulose cristalline et éliminer les liaisons hydrogène dans la structure du réseau [149], [159] ; ce qui affecte le degré de polymérisation en réduisant la longueur des chaînes cristallines [74]. En conséquence, une augmentation de la quantité de cellulose et des groupes -OH , plus au moins libres, exposés sur la surface. Ce qui pourrait être la raison pour laquelle l'intensité de ces pics a été augmentée. D'autres explications relatives à la présence d'autres sites d'interaction seront discutées dans le chapitre suivant. Néanmoins, il a été trouvé dans certains travaux que le pic de la bande d'absorption $3600\text{-}3000\text{ cm}^{-1}$ a tendance à diminuer grâce à la réaction entre les groupes -OH et molécules NaOH [149], [157]. En ce qui concerne le pic 897 cm^{-1} , cette augmentation pourrait être liée à un accroissement du taux de cellulose présent dans la fibre après le traitement.

Concernant les fibres traitées au silane, à l'acide acétique et thermiquement leurs spectres ont présenté une diminution de l'intensité des pics 2920 cm^{-1} 2856 cm^{-1} et 1740 cm^{-1} . Ces pics pourraient être alloués à la présence de lignine, pectine, et hémicellulose [74], [150], [155], [156].

Pour les fibres traitées au silane, cela pourrait être dû principalement à la solution éthanol / eau dans laquelle le silane a été mélangé pendant le traitement. Il a été rapporté que l'hémicellulose et la pectine pourraient être partiellement éliminés dans une telle solution [24], [146]. Cependant, les spectres n'ont présenté aucune présence de silane, des pics devraient être apparus aux nombres d'onde 766 cm^{-1} et 847 cm^{-1} [147]. Il est possible que la quantité de silane sur la surface soit tellement minime qu'elle n'a pas été détectée par FTIR, ce constat a été soulevé par Sgriccia et al. [157] lors d'un traitement au silane des fibres de Kénaf et de Chanvre.

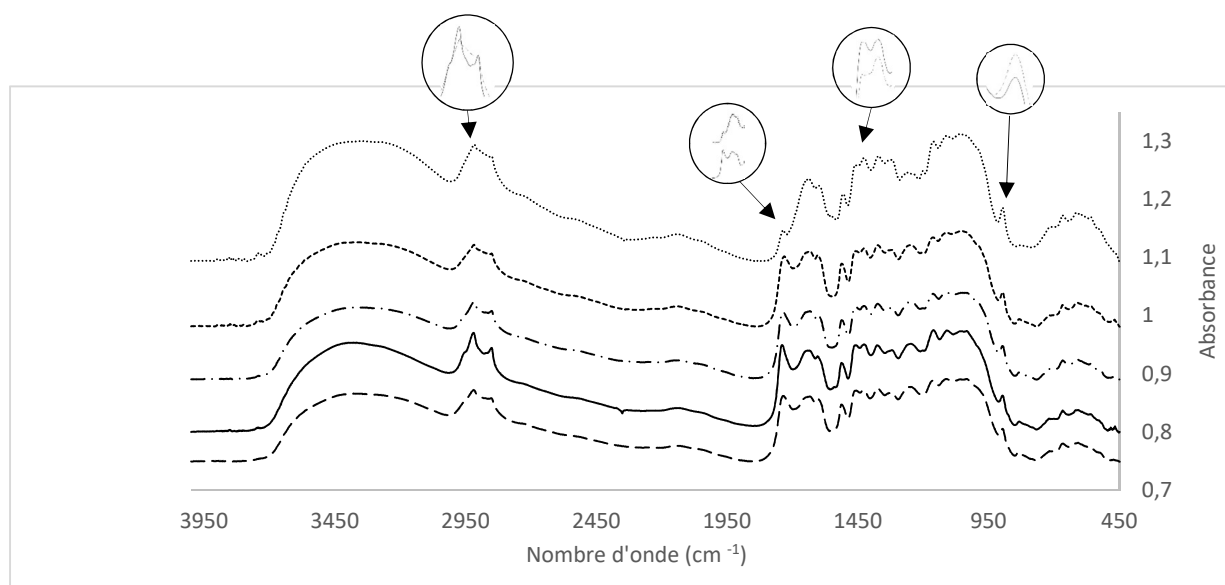


Figure A.III. 8 : Spectres infrarouges des TFD traitées et non traitées [152].

Dans le cas des fibres acétylées, ces pics pourraient être attribués à la présence des substances cireuses [158], ce qui pourrait indiquer une dégradation de ces composants. D'autre part, la bande d'absorption 3600-3000 est devenue moins intense, cela pourrait être expliqué par l'interaction entre les molécules $\text{CH}_3\text{-CO-OH}$ et les groupes -OH causant une diminution de la quantité de ces groupes libres. Ces constatations ont été également observées par Chung et al. [151] pendant leurs travaux sur les fibres de Kénaf. Cependant, plusieurs travaux dans la littérature ont rapporté que les spectres IR des fibres végétales acétylées devraient présenter des nouveaux pics à 1740 cm^{-1} , 1369 cm^{-1} , 1222 cm^{-1} [149]–[151] : le pic de 1740 cm^{-1} est lié à la vibration d'étirement des liaisons (C=O) des groupes ester tandis que les pics 1222 cm^{-1} et 1369 cm^{-1} sont attribués aux vibrations d'étirement, respectivement, des liaisons C-CH_3 et C-O des groupes acétyle. Pour le présent travail, ces pics étaient déjà présents pour les UTFD et après ce traitement aucun changement significatif n'a pu être soulevé sur ces pics. Cela pourrait être expliqué par le fait que les molécules de $\text{CH}_3\text{-CO-OH}$ n'étaient pas assez présentes sur la surface des fibres pour être détectées ou bien que la présence préalable de ces pics dans le spectre des UTFD a influé la détection des changements.

Dans le cadre des fibres traitées thermiquement, ces changements pourraient être dus à des changements physiques ou des dégradations partielles de certains composants non-cellulosiques instables sur ce domaine de température tels que la lignine [95]. Cette dernière se dégrade lentement sur une vaste gamme de température allant de $150 - 900^\circ\text{C}$ [156]. De plus, une diminution de l'intensité de la bande $3600\text{-}3000\text{ cm}^{-1}$ a été observée après ce traitement. Cela pourrait être amputé à l'élimination de quelques impuretés hydrophiles après ce traitement [161], ou le ramollissement de quelques composants non cellulosique tels que l'hémicellulose,

la lignine, et peut-être aussi les parties les moins ordonnées de la cellulose [117] conduisant à un réarrangement de la structure cellulosique avec moins d'accessibilité aux groupes -OH. Ces changements devraient être traduits par une amélioration de la rigidité et une diminution du caractère hydrophile de ces fibres.

Ces constats relatifs aux effets des traitements sur les fibres de Diss vont être accomplis dans les sections suivantes avec d'autres analyses.

III.4. Stabilité thermique des fibres de Diss

Les TFD sont composées principalement de cellulose, hémicellulose, lignine, comme il a été discuté antérieurement. Chacune de ces composants à une structure chimique plus ou moins complexe [162], produisant un comportement différent lors de leur pyrolyse.

De nombreuses études sur la pyrolyse des fibres végétales ont été réalisées dans la littérature [146], [156], [160], [162]. Il a été observé que la décomposition des fibres végétales se produit en quatre étapes : l'évaporation de l'humidité entre 50-150°C, la décomposition d'hémicellulose et pectine qui survient principalement, respectivement, entre 220-315°C et 200-280°C, la pyrolyse de cellulose apparue dans des températures plus élevées entre 315-400°C et la décomposition de la lignine dans la gamme de température entre 150- 900°C.

La pyrolyse des fibres de Diss traitées et non traitées a été étudiée par l'analyse thermogravimétrique (ATG). La Figure A.III. 9 représente la courbe thermogravimétrique (TG) des UTFD et sa dérivée primaire (DTG). Le Tableau A.III. 3 regroupe les différents pics et les ratios de perte de masse liés à chaque étape de la pyrolyse pour les fibres non traitées et traitées.

En accord avec la littérature, les courbes de DTG des fibres de Diss non traitées et traitées ont présenté trois pics. Les UTFD ont exhibé un pic à 110°C avec une perte de masse d'environ 9%, qui peut être attribué à l'évaporation de l'humidité contenue dans les fibres [160]. Un autre pic plus intense a été observé à 294°C et qui pourrait correspondre à la pyrolyse d'hémicellulose et de pectine [146]. La perte de masse due à cette dégradation est dans les alentours de 27%. Un dernier pic est apparu à 353°C avec une perte de masse de 32%, probablement correspondant à la dégradation de la cellulose [156]. Cependant, la pyrolyse de lignine pourrait être produite dans une plage de température de 150 à 900°C [156], dans laquelle une dégradation plus intense pourrait être attendue vers 850°C [162]. En effet, la quantité restante est d'environ 32%, soit 29% sans tenir compte du premier pic (par-rapport à la masse sèche). Cette quantité est, plus ou moins, égale au taux de la lignine et de la cendre

contenues dans les fibres de Diss. Par conséquent, une importante dégradation de lignine pourrait avoir lieu selon les résultats obtenus à des températures supérieures à 500°C.

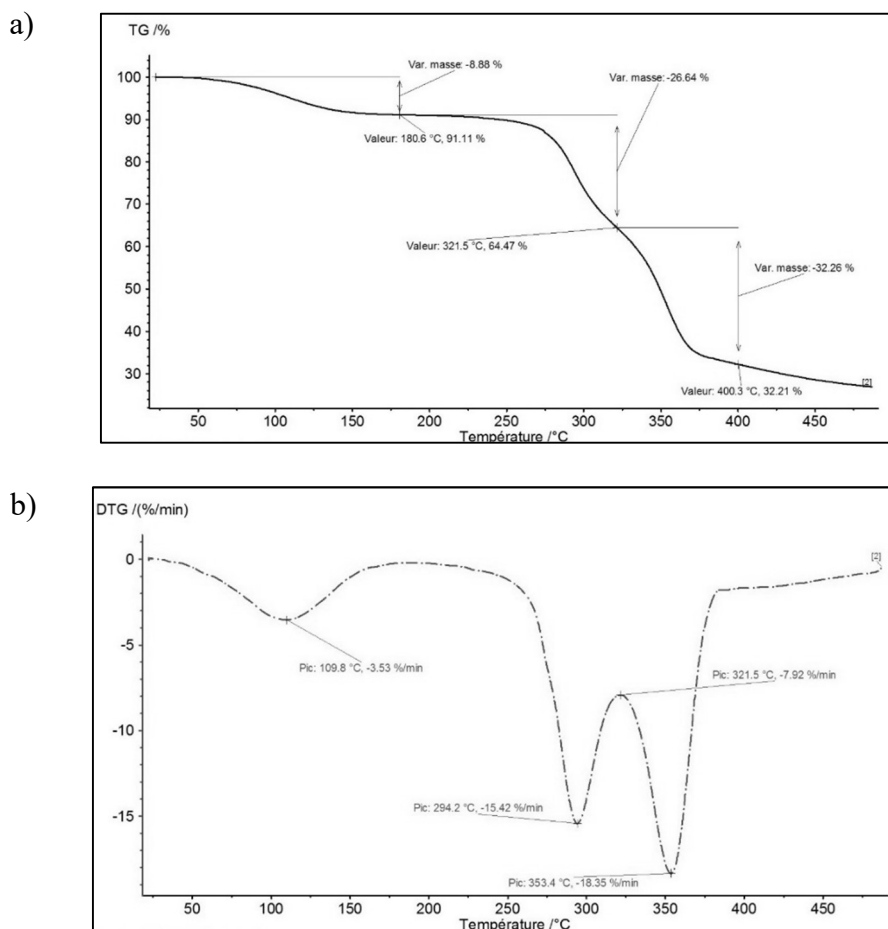


Figure A.III. 9: Courbes TG (a) et DTG (b) pour les fibres de Diss non traitées.

Pour les NTFD, le deuxième pic sur la courbe DTG s'est décalé vers une température plus élevée (318°C) avec une faible intensité comparée aux UTFD. Cela se traduit par une baisse du taux de la perte de masse d'environ 27% par-rapport à celui des UTFD. Ceci est en accord avec la dégradation partielle de l'hémicellulose et de la pectine mentionnée dans la section précédente. L'intensité du troisième pic, qui correspond à la dégradation de cellulose, a été amplifiée, tandis que sa température n'a pas changée après ce traitement. Par conséquent, le taux de la perte de masse a nettement augmenté, d'environ 44% par-rapport à celui des UTFD. Cela pourrait être attribué à une augmentation du taux de cellulose après ce traitement : la dégradation d'hémicellulose et la pectine a rendu le taux de cellulose plus important dans la fibre.

Tableau A.III. 3 : Récapitulatif des résultats de la pyrolyse des TFD traitées et non traitées [152].

	Pic (°C)	mass var (%)	Pic (°C)	mass var (%)	Pic (°C)	mass var (%)	rest
UTFD	109	8.8	294	26.6	353	32.2	32.4
TTFD	108	4.3	294	27.5	354	32.7	35.5
ATFD	123	7.5	326	21.9	372	34.3	36.3
STFD	124	8.4	319	25.0	373	35.5	31.1
NTFD	96	6.3	318	19.3	354	46.5	27.9

En ce qui concerne les STFD, les trois pics qui apparaissent dans la courbe de DTG ont été décalés vers des températures plus élevées. Généralement, la décomposition thermique du silane greffé est observée dans la plage de température de 300–600°C [160] ; c’est pourquoi le silane greffé sur la surface pourrait jouer le rôle d’une couche de protection expliquant l’amélioration de la stabilité thermique des STFD. D’autre part, le ratio de perte de masse a connu une légère diminution pour le deuxième pic et une légère augmentation pour le troisième pic. Cela pourrait être alloué à une dégradation moins intense de l’hémicellulose et la pectine, comme il a été déduit dans la section précédente.

Concernant les ATFD, Les pics de la seconde et la dernière étapes de la pyrolyse ont été décalés vers des températures plus importantes. Les mêmes constats ont été soulevés par Chung et al. [151] sur les fibres de kénaf. Cette amélioration de la stabilité thermique pourrait être octroyée aux groupes $\text{CH}_3\text{-CO-OH}$ greffés sur la surface des fibres.

Pour les TTFD, une diminution a été observée vis-à-vis de l’intensité du premier pic, sachant que les fibres ont été conservées dans les mêmes conditions. Cet accroissement de l’hydrophobicité des TTFD pourrait être dû à la dégradation de certains composants hydrophile des TFD tels que les substances cireuses après ce traitement ou bien, comme il a déjà été expliqué auparavant, au réarrangement des chaînes de cellulose. Cependant, aucun changement significatif n’a pu être observé sur les autres pics par-rapport aux TFD, car ce type de traitement ne change pas significativement la composition chimique des fibres végétales comparé aux traitements chimiques.

III.5. Propriétés mécaniques des fibres de Diss

La Figure A.III. 10 présente les contraintes de traction et les modules de Young des TFD non traitées et traitées ainsi que des feuilles de Diss. Les UTFD présentent une résistance à la traction, un module de Young et une déformation à la rupture, respectivement, de 273 ± 36 MPa, $11,46 \pm 2,25$ GPa et $2,67\% \pm 0,60\%$. La résistance est du même ordre de grandeur que

celles rapportées sur les fibres de Kénaf [94], [147], [159], des palmiers à huile [149], de sisal [148], d'Areca [163], des feuilles d'ananas [147] et quelques variétés de chanvre [56]. D'autre part, Les UTFD ont présenté une faible densité de $0,93 \pm 0,01 \text{ g/cm}^3$, comparée à celle du lin ($1,5 \text{ g/cm}^3$) [164], du chanvre ($1,47 \text{ g/cm}^3$) [87], du sisal ($1,29 \text{ g/cm}^3$) [95], de coir ($1,2 \text{ g/cm}^3$) [165] et des feuilles de palmier d' arec $1,09 \text{ g/cm}^3$ [163], soit respectivement 60%, 58%, 38%, 29% et 17% de moins. Cette faible densité procure à ces fibres des propriétés mécaniques spécifiques intéressantes.

Entre autre, d'autres travaux portés sur le même type de plante [69], [10], [166] ont rapporté des propriétés mécaniques moins importantes. En effet, Bourahli et Osmani [166] ont trouvé un module de Young et une résistance à la traction moyens pour des fibres de Diss, respectivement, de 8.7 GPa et $149 \pm 81.9 \text{ MPa}$; mais leur méthode d'extraction employée n'a pas été spécifiée. Ces résultats sont proches de ceux trouvés par l'un de ces auteurs, Bourahli [69], sur les fibres extraites par décortication, dont leur contrainte de traction et leur module de Young moyens sont, respectivement, de 110 MPa et 7.6 GPa. Récemment, Sarasini et al. [10] ont déterminé les propriétés mécaniques des fibres de Diss extraites par une méthode combinée, chimique et enzymatique. Ces fibres ont présenté une résistance à la traction, un module de Young et un allongement à la rupture, respectivement, de $19,11 \pm 9,01 \text{ MPa}$, $3,05 \pm 0,41 \text{ GPa}$ et $1,95\% \pm 0,36\%$.

D'autre part, Les feuilles de Diss testées en traction dans cette étude ont montré une résistance à la traction et un module de Young de $101 \pm 21 \text{ MPa}$ et $6.20 \pm 1.15 \text{ GPa}$. Ces résultats sont proches de ceux trouvés par Bourahli et Osmani [166] et Bourahli [69] sur les fibres de Diss et importants par-rapport à ceux rapportés par Sarasini et al [10]. Cela pourrait signifier qu'il existe une dépendance entre les propriétés mécaniques des fibres et la méthode d'extraction employée.

En ce qui concerne les fibres traitées, aucun changement significatif n'a été relevé vis-à-vis de la contrainte de traction en tenant compte du domaine d'incertitude. Quant au module de Young moyen, une nette amélioration a été soulevée après les différents traitements : une augmentation de 26%, 34%, 55% et 60%, respectivement, pour les traitements thermiques, par acide acétique, alcalin et au silane.

La meilleure rigidité a été obtenue pour les fibres traitées au silane. Cela pourrait être alloué à la dégradation de certaines quantités des composants non-cellulosiques, comme il a été indiqué précédemment, qui favorise le réarrangement des microfibrilles au sens de la traction. De plus,

les groupes silanols peuvent se condenser pour former des liaisons siloxanes. Les silanols réagissent par la suite avec les groupes -OH présents sur les parois cellulaires des fibres naturelles formant des liaisons covalentes stables [167]. Cela pourrait procurer un renforcement des liaisons des chaînes celluliques en les rendant plus rigides et résistantes. Asim et al. [147] ont observé des constats similaires dont la meilleure amélioration du module de Young des fibres de Kénaf et de feuilles d'ananas a été rapportée par un traitement au silane à 2%, respectivement, de 175% et de 105% par-rapport aux fibres non traitées devant les fibres traitées à NaOH et à NaOH + silane.

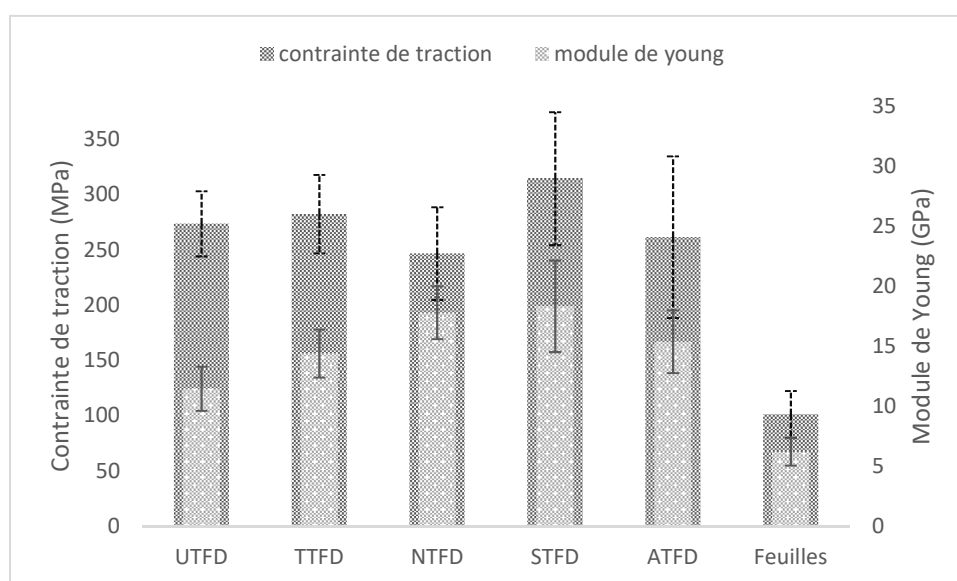


Figure A.III. 10 : Contraintes de traction et module d'Young des TFD non traités et traités, incertitude type élargie ($k = 2$) [152].

Le traitement alcalin, quant à lui, dégrade les composants non-cellulosiques (voir ci-avant) favorisant d'une part la division des faisceaux de fibres et d'autre part facilite le réarrangement des microfibrilles au sens de la traction. Par conséquent, une augmentation de la rigidité des fibres pourrait se produire. Ces constants ont été également soulevés dans les travaux de Fernandes et al. [148] sur les fibres de sisal. Entre autres, un tel traitement pourrait ainsi améliorer la résistance à la traction des fibres végétales. Cela a été remarqué sur les fibres d'Areca [163], les fibres de kénaf [159] et les fibres des feuilles d'ananas [147].

Contrairement à ce qui était attendu, l'amélioration de la rigidité et la résistance des TTFD n'a pas été significative par-rapport aux UTFD. En effet, les composants du ciment naturel, notamment l'hémicellulose et la lignine, possèdent une basse température de transition vitreuse (autour de 90°C) ; ce qui diminue la rigidité de l'espace inter-fibrillaire et favorise le bon arrangement des chaînes celluliques et la réorientation des microfibrilles au sens de la

traction [94][159][168]. Cela pourrait conduire à une amélioration de la rigidité des fibres. Dody Ariawan et al [94] ont rapporté une amélioration progressive de la résistance à la traction et le module des fibres de Kénaf avec l'augmentation du temps de traitement thermique à 140°C, dont 10h a été souligné comme le temps optimal pour ce traitement. Cao et al [159], quant à eux, ont constaté une augmentation de l'indice de cristallinité des fibres de Kénaf avec l'augmentation de température de traitement. Ils ont déduit que ce paramètre devenait maximal à une température de traitement de 140°C.

En ce qui concerne le traitement à l'acide acétyle, le module a été significativement amélioré par-rapport à celui des UTFD. Quoique la résistance à la traction a présenté des résultats similaires aux UTFD. Dans la littérature nous constatons des résultats différenciés pour ce type de traitement. Haque et al. [116] ont noté une amélioration de la résistance à la traction et le module des fibres de Sisal brutes après un traitement d'acétylation, respectivement, d'environ 29% et 52%. Cependant, M. S. Sreekala et al. [149] ont souligné le contraire pour les fibres de palmier à huile non-traitées, d'où leurs propriétés mécaniques en traction ont été réduites après un tel traitement.

III.6. Bilan :

En se reposant sur la morphologie des feuilles de Diss, la méthode d'extraction de ses fibres, proposée dans cette étude, a permis d'obtenir des fibres avec une faible densité de $0,93 \text{ g/cm}^3$ et une composition chimique constituée principalement de cellulose hémicellulose et lignine. Ces fibres sont fréquemment liées avec une partie de l'épiderme intérieur épineux qui pourrait, par la suite, contribuer à l'adhérence entre la matrice et la fibre. D'autre part, les UTFD ont révélé des propriétés mécaniques intéressantes, nettement supérieures à celles tirées de la littérature : une résistance à la traction, un module de Young et une déformation à la rupture, respectivement, de $273 \pm 36 \text{ MPa}$, $11,46 \pm 2,25 \text{ GPa}$ et $2,67\% \pm 0,60$.

Les traitements adoptés ont montré des améliorations sur certaines propriétés des UTFD. Les traitements chimiques ont considérablement réduit le diamètre des fibres avec une meilleure finesse pour les NTFD. Ces dernières ont révélé une meilleure surface, propre et rugueuse, avec une dégradation significative d'hémicellulose et pectine et une quantité de cellulose importante. Le traitement au silane a présenté la meilleure rigidité avec les NTFD. De plus, il a amélioré la stabilité thermique de ces fibres. Le traitement thermique a présenté des améliorations par-rapport à la rigidité des fibres. Le traitement à l'acide acétique, quant à lui, n'a présenté aucun changement vis-à-vis du comportement mécanique mais l'interface des fibres est devenue plus propre.

Chapitre IV : Comportement hygrothermique des fibres de Diss

Le comportement hygrothermique des fibres de Diss, n'est pas abordé dans la littérature. Il s'agit ici de le caractériser ainsi que d'évaluer l'effet des traitements effectués sur leurs caractères hydrophiles. En premier lieu, les sites d'adsorption ont été identifiés par FTIR. En deuxième lieu, leurs comportements hydro/hygrothermiques ont été évalué sous différentes conditions : en immersion dans l'eau et sous une large gamme d'humidité relative. La cinétique de sorption de ces fibres a été également étudiée grâce à une solution analytique et numérique de la loi de Fick. Les données collectées doivent permettre par la suite d'alimenter un modèle numérique pour la prédiction du comportement des composites.

IV.1. Identification des sites d'adsorption par FTIR

La Figure A.IV. 1 présente les différents spectres infrarouges des UTFD conditionnées sous des humidités relatives (HR) différentes. Ces spectres contiennent des informations importantes relatives au processus d'absorption d'humidité des fibres de Diss, permettant d'identifier les sites d'adsorption avec lesquels les molécules d'eau ont la capacité de créer des liaisons hydrogène [109]. Les régions du spectre les plus impactées par l'évolution de HR sont la bande entre $3600 - 3100 \text{ cm}^{-1}$, ainsi que les pics à 2917 cm^{-1} , 2850 cm^{-1} , 1632 cm^{-1} et 895 cm^{-1} .

La bande $3600 - 3100 \text{ cm}^{-1}$ représente les liaisons hydrogènes du réseau inter et intramoléculaire de la cellulose, ainsi que les groupements hydroxyles libres de l'hémicellulose [109]. Avec l'augmentation de HR, l'intensité de cette bande accroît, signifiant par-conséquent l'interaction des molécules d'eau avec les groupes -OH. Cette bande représente donc à la fois les interactions macromoléculaires de la cellulose et de l'hémicellulose, ainsi que la présence d'eau dans les fibres [109]. Le même constat a été relevé pour le pic à 1635 cm^{-1} qui est dû à la vibration en flexion de la molécule d'eau, témoignant la présence de l'eau libre [108]. De plus, les pics 2917 cm^{-1} et 2850 cm^{-1} semblent également touchés. Ils correspondent, respectivement, aux vibrations d'étirement des liaisons -CH et des liaisons -CH₂ des chaînes de la cellulose et hémicellulose [74]. Néanmoins, il est peu plausible que ces groupes présentent

des zones d'affinité avec les molécules d'eau en raison de leur état apolaire [109]. Il est à noter que l'intensité du pic à 895 cm^{-1} , caractéristique des liaisons β de la cellulose, a diminuée avec l'augmentation d'humidité. Cette liaison assure l'accordement du composant principal de la cellulose, la glucose [29]. Une telle diminution pourrait être due à une plastification de la macromolécule de la cellulose. Contrairement aux résultats issus des travaux de Céline et al. [109], les pics à 1735 cm^{-1} et 1425 cm^{-1} ne semblent pas être impactés avec la variation de HR. Elles sont caractéristiques des fonctions carboxyles des pectines, qui devraient être également impactés par l'absorption d'eau. Cela peut être dû au faible contenu de pectine dans ce type de fibres, (voir § A.III. 3.1). Les mêmes constats ont été rap portés pour le pic à 1030 cm^{-1} qui est caractéristique de la nature polysaccharidique de la fibre [109].

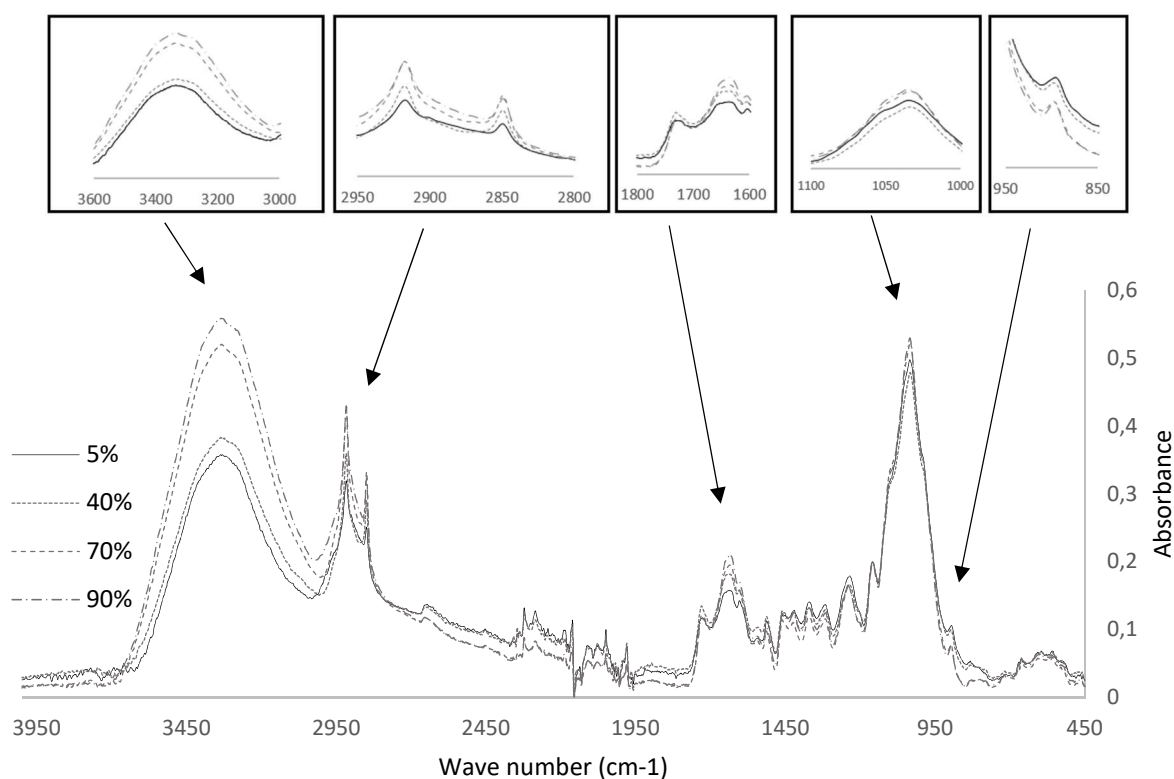


Figure A.IV. 1: Spectres de FTIR des UTFD conditionnées dans des environnements à humidité relative différente.

Compte tenu de ces résultats, les groupes -OH pourraient être considérés comme les principaux responsables de l'adsorption des molécules d'eau par les fibres de Diss. Ce constat a été également révélé dans plusieurs travaux sur les matériaux cellulosiques [108]–[110]. Ces spectres montrent que l'hémicellulose et la cellulose sont probablement les responsables de ce caractère hydrophile des fibres de Diss.

IV.2. Absorption par immersion d'eau

La Figure A.IV. 2 présente l'évolution du taux d'absorption d'eau (W_t) des fibres de Diss traitées et non traitées en fonction de la racine carrée du temps. A l'équilibre, les UTFD et les NFTD ont présenté un taux d'absorption similaire d'environ 40% de la masse sèche. Une diminution significative de ce taux d'absorption a été rapportée par les TTFD, STFD et ATFD, respectivement, de 35%, 28% et 25%. Selon Hil et al. [112], la capacité de sorption augmente avec l'accessibilité aux groupes -OH et la teneur en Lignine des fibres, justifiant cela à l'aptitude du réseau de lignine à se déformer pour accueillir l'eau à l'intérieur de la paroi cellulaire. Dans le cas des NTFD, il a été conclu dans notre précédente investigation sur les fibres de Diss, (voir § A. III. 3.2 et § A. III. 4), qu'un tel traitement dégrade significativement la pectine et l'hémicellulose et d'une façon moins efficace la lignine. Par conséquent, cela pourrait augmenter la quantité de cellulose exposée, conduisant à une augmentation des liaisons -OH sur la surface des NTFD ; ce qui a été également observé par FTIR. Cependant, Placet et al. [56] ont parlé d'un effet de compensation lors de leurs travaux sur les fibres de chanvre rouies et non rouies. Bien que l'élimination de certains composants non-cellulosiques hydrophiles lors du rouissage, la capacité d'absorption de ces deux types de fibres reste similaire. Autrement dit, les sites d'absorption éliminés ont été remplacés par d'autres sites d'absorption démasqués. Ce qui pourrait être le cas pour les UTFD et NFTD. D'autres hypothèses sont discutées, un peu plus loin, à la suite des résultats des essais de sorption de vapeur d'eau.

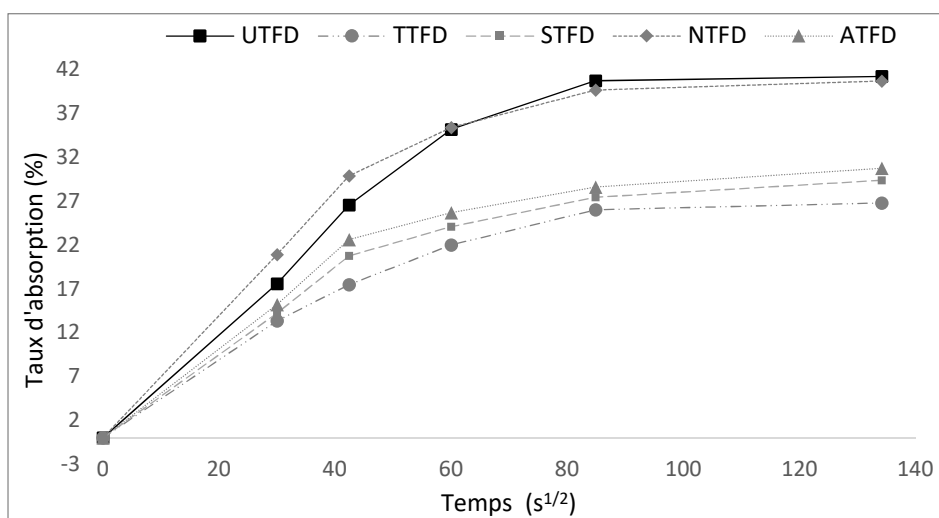


Figure A.IV. 2: Courbes d'absorption d'eau des fibres de Diss traitées et non traitée, avec un coefficient de variance <10%.

D'autre part, lors d'un traitement par acide acétique ou silane, les groupes -OH présents sur la surface des fibres réagissent, respectivement, avec les groupes acétyles ou les groupes alcoxyles, modifiant les propriétés de ces polymères afin qu'ils deviennent plus hydrophobes

[31], [115]. Il a été avéré que ces traitements diminuent l'énergie de surface des fibres végétales et par conséquent leur taux d'adsorption [67], [113], [114]. Haque et al. [116] ont observé une réduction de l'absorption d'humidité des fibres de sisal traitées au silane. Par ailleurs, une diminution du taux d'absorption d'eau, plus au moins similaire des fibres de palmier à l'huile traitées au silane et à l'acide acétique, a été rapportée par Sreekala et Thomas [169]. Le traitement thermique, quant à lui, consiste à réduire le nombre des groupes d'hydroxyle exposés sur la surface des fibres en dégradant certains composants non-cellulosiques [94]. De plus, ce traitement augmente l'indice de cristallinité de cellulose [95], conduisant à une diminution des groupes hydroxyles accessibles de cellulose. En effet, à des températures élevées, quelques composants des fibres végétales se ramollissent, notamment l'hémicellulose, la lignine [117]. Par conséquent, les liaisons intermoléculaires entre les groupes hydroxyles au sein de la structure cellulosique pourraient se réarranger en produisant une structure plus stable avec des groupes -OH moins accessibles.

IV.3. Isotherme de sorption

La Figure A.IV. 3 présente les isothermes de sorption-désorption des fibres de Diss traitées. Ces fibres présentent une isotherme de sorption type II avec une hystérésis de type H3, selon la classification de l'IUPAC [97]. Cette hystérésis est présente sur toute la gamme de a_w étudiée pour les différents isothermes. Les mêmes constats ont été rapportés dans plusieurs travaux sur les matériaux biosourcés [56], [111], [113], [114], [170]. L'origine de ce phénomène n'est pas entièrement comprise en ce qui concerne les fibres végétales et reste un sujet de débat dans la littérature. La condensation capillaire, le gonflement, la transition vitreuse de la matrice, les effets de la forme des pores et la présence de certains composants amorphes comme la lignine sont les principales suggestions à la présence de cette boucle [112], [117]–[120], [171], [172].

A des valeurs de a_w inférieure à 0,75, un comportement similaire a été noté sur l'ensemble des isothermes d'adsorption. Au-delà de cette valeur, la capacité d'adsorption des NTFD devient de plus en plus supérieure à celle des autres fibres de Diss traitées. A a_w de 0,97 les NTFD contiennent la teneur en eau la plus élevée (34%), suivi par les autres traitements qui présentent, plus au moins, la même capacité d'adsorption (environ 27%). Ces résultats sont similaires à ceux observés sur l'essai d'absorption d'eau de ces fibres par-rapport à l'efficacité des traitements.

La différence entre l'isotherme d'adsorption des NTFD et ceux des autres traitements pourrait

être attribuée, comme il a été cité précédemment, à la présence de sites d'adsorption supplémentaires à la surface des NFTD. Cependant, ces sites d'adsorption ne semblent pas participer au processus d'adsorption à HR inférieure à 75%, mais ils sont progressivement activés au-dessus de cette limite. Des constats similaires ont été avancés par Kachrimanis et al. [171] sur la cellulose microcristalline non traitée et silicifiée (traitée avec des particules colloïdales de SiO_2) dont ils ont constaté un changement dans leurs isothermes de sorption lorsque a_w est supérieur à 0,5. Cela a été expliqué, selon les auteurs, par le fait que la molécule d'eau nécessite plus d'énergie pour qu'elle puisse diffuser dans les nouveaux sites (la silice amorphe). Le mécanisme d'adsorption dans cette gamme de a_w sera discuté dans la section suivante.

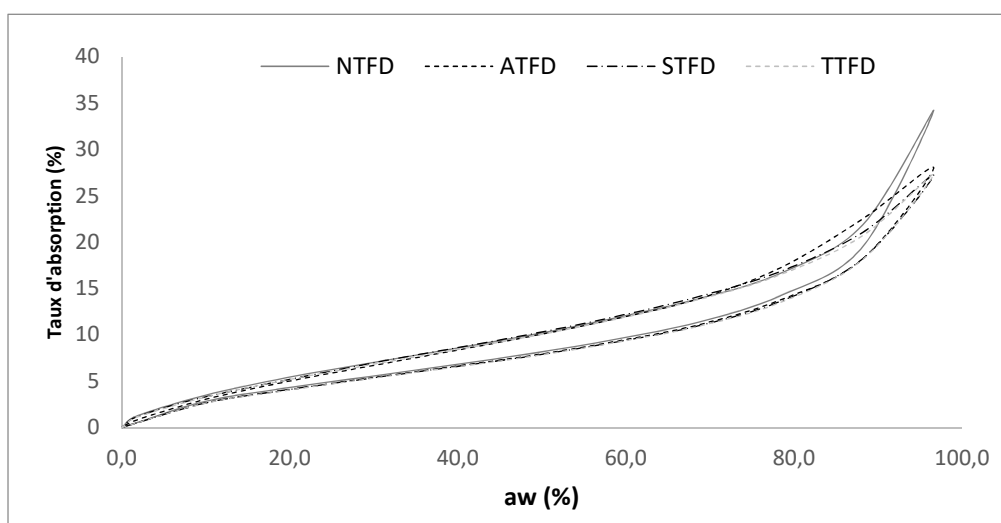


Figure A.IV. 3. Isotherme d'adsorption-désorption des fibres de Diss traitées.

En outre, la forme de l'isotherme fournit des informations sur la microstructure de l'adsorbant (les fibres), le processus d'adsorption et le mode de fixation des molécules d'eau à l'échelle porale. Ce type d'isotherme est présent dans le cas des matériaux non-poreux ou macroporeux qui sont caractérisés par une adsorption monocouche-multicouche sans restriction [97]. A faible a_w l'adsorption de la vapeur d'eau se fait progressivement jusqu'à la constitution de la première couche (monocouche) qui recouvre la surface des fibres (adsorption Type de Langmuir). Cette étape est représentée par un point d'inflexion sur la courbe d'isotherme. Au-delà de cette valeur, l'absorption multicouche commence (adsorption Type d'Henry). Cette phase est représentée par la zone linéaire sur l'isotherme. À a_w élevée, la courbe est proche d'une asymptote verticale due à la condensation capillaire dans les pores des fibres ; l'épaisseur des multicouches est suffisamment importante pour déclencher une liquéfaction de la vapeur d'eau [56], [172]. Ces constats ont été également confirmés par Guo et al [108], [110] par

micro-FTIR pendant leurs travaux sur les films de nanofibre de cellulose. Selon les auteurs, la large bande dans la région spectrale 3600 cm^{-1} - 3100 cm^{-1} contient trois pics à 3293 cm^{-1} , 3397 cm^{-1} et 3543 cm^{-1} qui sont attribués, respectivement, à l'eau fortement, modérément et faiblement liée à l'hydrogène. L'observation de l'évolution de ces pics avec le changement de HR a révélé trois étapes d'adsorption : lorsque HR est inférieure à 35%, l'eau fortement liée à l'hydrogène est dominante, donc l'eau absorbée doit être liée directement aux sites d'adsorption chimiques des fibres, qui sont les groupes hydroxyles. Lorsque HR varie entre 35% et 55%, l'eau faiblement liée est adsorbée et cela signifie que les molécules absorbées ont directement interagies avec l'eau déjà adsorbée par les fibres. Enfin, à des HR supérieure, à 55%, l'adsorption des molécules d'eau fortement liée à l'hydrogène est privilégiée. Dans cette étape l'eau absorbée par les fibres aurait une structure tétraédrique à cinq molécules connues pour être une forte liaison hydrogène.

IV.4. Modèles mathématiques

IV.4.1. Calcul des isothermes d'adsorption

Afin de mieux interpréter les isothermes d'adsorption obtenues et comprendre mieux l'effet des différents traitements sur le comportement hygrothermique des fibres de Diss, trois modèles mathématiques ont été déployés pour décrire ces isothermes : GAB, GDW et H-H (Tableau A.I. 2). La qualité de l'ajustement a été évaluée sur la base de deux critères de performance (PC) : le coefficient de corrélation (R^2) et le *Model Selection Criterion* (MSC). Le premier traduit la variance expliquée par le modèle, tandis que le deuxième prend en compte le nombre de paramètres d'entrée du modèle et le nombres d'essais réalisés ; plus ce critère est élevé, plus le modèle est performant. Le premier critère est calculé comme suit [122]:

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_i (EMC_i - \widehat{EMC}_i)^2}{\sum_i (EMC_i - \overline{EMC})^2} \quad \text{Eq. A.IV. 1}$$

Où EMC_i représente la teneur en eau à l'équilibre de la i^{eme} mesure expérimentale, $\widehat{EMC}_i$ la teneur en eau théorique et $\overline{EMC}$ la moyenne des teneurs en eau observées.

Le second critère est calculé comme suit [122] :

$$MSC = \ln\left(\frac{1}{(1 - R^2)}\right) - \frac{2\lambda}{d} \quad \text{Eq. A.IV. 2}$$

Où R^2 représente le coefficient de corrélation, λ le nombre de paramètres du modèle et d le

nombre de données expérimentales.

Le Tableau A.IV. 1 présente les valeurs de MSC ainsi que les paramètres des différents modèles. Le coefficient R^2 de chaque modèle est très proche de 1 ; cela signifie une excellente corrélation de ces modèles avec les résultats expérimentaux, (Figure A.IV. 4). D'autre part, le modèle GDW a présenté la valeur de MSC la plus élevée suivi par celui du modèle H-H puis GAB ; cela est valable pour les quatre isothermes. Ce qui signifie que le modèle de GDW est le plus proche des résultats expérimentaux.

Tableau A.IV. 1 : Valeurs des critères de performance et les paramètres des différents modèles.

	H-H					GAB				GDW				
	MSC	K_1	K_2	W	M_h max	MSC	M_0 (g/g)	C_{BET}	k	MSC	M_0 (g/g)	K	k	ω
TTFD	5,77	13,37	0,86	387,74	0,043	5,77	0,046	14,37	0,86	8,51	0,093	3,4	0,91	0,41
STFD	5,89	13,23	0,857	382,91	0,043	5,89	0,047	14,23	0,86	8,69	0,091	3,61	0,9	0,43
ATFD	6,1	13,92	0,863	387,17	0,043	5,84	0,046	14,92	0,86	8,12	0,109	2,73	0,92	0,33
NTFD	4,87	24,95	0,905	422,01	0,041	4,52	0,047	13,63	0,89	7,83	0,108	3	0,95	0,29

Les trois modèles fournissent des informations sur la capacité d'adsorption de la monocouche : M_0 pour les modèles GAB et GDW, et M_d pour le modèle H-H (Tableau A.IV. 1). Le M_d varie en fonction de a_w et atteint sa valeur maximale à $a_w=1$. Cette valeur est, plus ou moins, similaire à M_{0GAB} . Cependant, le M_{0GDW} est deux fois plus grande. Néanmoins, qu'une seule partie de ces sites, entre 40% et 30% selon le paramètre ω_{GDW} de l'isotherme, sont capables de devenir des sites d'adsorption secondaires. Ces constats sont valables pour les quatre isothermes.

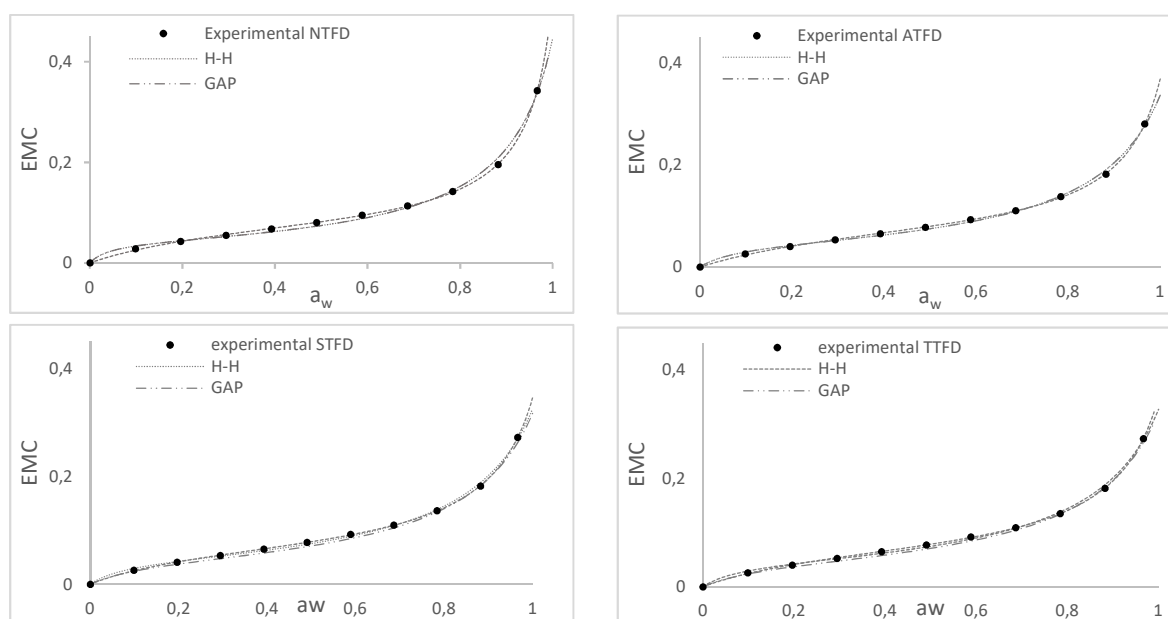


Figure A.IV. 4: Isothermes de sorption des fibres de Diss traitées issues des différents modèles mathématiques

La Figure A.IV. 5 présente l'évolution des deux types d'adsorption du modèle H-H en fonction de a_w : l'adsorption multicouche (M_d) et l'adsorption monocouche (M_h). Les courbes des M_d des différentes fibres ont présenté un comportement plus ou moins similaire sur toute la gamme de a_w étudiée. Les M_h , quant à eux, ont montré également une évolution similaire lorsque a_w est inférieure à 0,7. Au-delà de cette valeur, le M_h des NFTD est significativement augmenté par-rapport à ceux des autres fibres. Dans cette zone de a_w , l'adsorption par condensation capillaire est favorisée. Après un tel traitement, la présence des micropores sur les parois cellulaire des NFTD est fort probable [118]. Par conséquent, cela conduit à une adsorption par condensation capillaire plus élevée. Ce qui explique la forte absorption d'eau des NFTD à des a_w élevées et lors de leurs immersions dans l'eau.

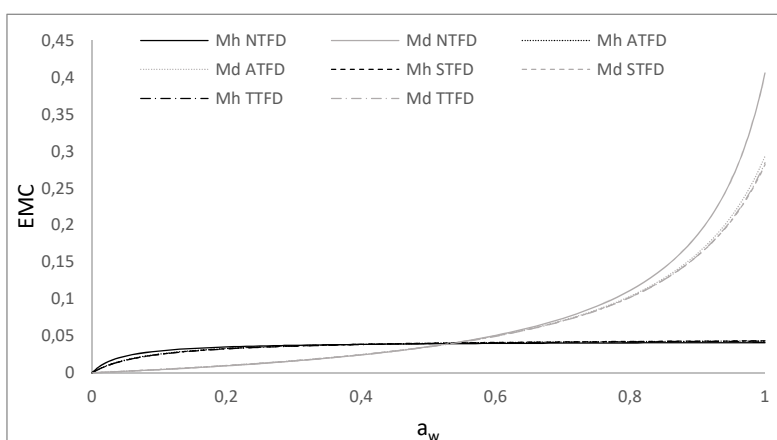


Figure A.IV. 5 : Évolution des paramètres M_d et M_h du modèle numériques H-H des différentes fibres traitées.

La fibre atteint sa saturation maximale, le point de saturation (en anglais, *fiber saturation point* (FSP)), lorsque $a_w=1$; ceci est l'équivalent d'une immersion dans l'eau. Le Tableau A.IV. 2 présente les FSP des différentes fibres traitées déterminés expérimentalement par les résultats d'immersion dans l'eau et analytiquement par les modèles étudiés à $a_w=1$. Les modèles H-H et GAB présentent des résultats comparables à ceux déterminés par l'essai d'immersion avec des différences que ne dépassent pas 10% pour les STFD, ATFD et NFTD. Le modèle DGW, quant à lui, donne des valeurs surestimées, avec des écarts entre 15% et 30% par-rapport aux résultats expérimentaux. Ces résultats montrent une bonne concordance entre les valeurs l'analytiques et l'expérimentaux malgré que les mesures soient basées sur deux méthodes différentes (immersion dans l'eau et DVS). Cela met en valeur la fiabilité du protocole expérimental adopté dans ce travail pour les essais d'absorption d'eau des fibres de Diss.

Tableau A.IV. 2 : Point de saturation (FSP) des différentes fibres de Diss traitées.

	TTFD	STFD	ATFD	NTFD
Expérimental	26,8	29,4	30,80	40,7
Modèle GDW	35,0	34,5	36,8	52,7
Modèle H-H	32,7	32,5	33,6	44,7
Modèle GAB	32,1	31,7	33,6	44,7

IV.4.2. Calcul des cinétiques de sorption

La cinétique de sorption d'eau dans un matériau est définie par son coefficient de diffusion, (voir § I.4.2.2). Afin de déterminer ce coefficient, nous proposons deux méthodes différentes : analytique et numérique. La première méthode s'articule sur une solution analytique du problème de diffusion tout en donnant des résultats approximatifs. Elle est souvent utilisée dans la littérature et facile d'application ; cependant elle permet un choix de géométrie limité : section circulaire ou plane. La deuxième méthode, quant à elle, est basée sur la solution numérique du problème de diffusion par éléments finis. Elle permet d'avoir des résultats plus précis avec une liberté de choix de géométrie.

IV.4.2.1. Méthode analytique

Afin de déterminer la cinétiques de sorption des fibres de Diss, le recours à la deuxième loi de Fick (voir § A.I. 4.1.2) a été nécessaire selon la solution analytique décrite par Gouanvé et al.[105]. La section des fibres a été considérée comme cylindrique pleine et homogène et elle est décrite par le diamètre moyen des fibres, déterminé dans § A. III. 2, dont la diffusion est supposée être produite à travers la section transversale ($r \ll \text{longueur}$).

Le coefficient de diffusion pourrait être déterminé sur deux parties du processus de diffusion, l'une au début et l'autre à la fin de la sorption :

- A court terme, lorsque $M_t / M_{eq} < 0,2$ (M_t est la masse adsorbée au temps t , M_{eq} est la masse adsorbée à l'équilibre à une a_w donnée), la pente k_1 de la $(M_t / M_{eq})^2 = f(t)$ est liée au coefficient de diffusion de l'eau D_1 par la relation suivante :

$$D_1 = \frac{k_1 \pi r^2}{16} \quad \text{Eq. A.IV. 3}$$

- Lorsque $0,7 < M_t / M_{eq} < 0,95$, le coefficient de diffusion de l'eau D_2 peut être déterminé à partir de la pente k_2 de la courbe $\ln \left(1 - \frac{M_t}{M_{eq}} \right) = f(t)$ par l'équation suivante :

$$D_2 = -\frac{k_2 r^2}{\alpha_1^2} \quad \text{Eq. A.IV. 4}$$

Avec α_1 la racine de la première espèce de la fonction de Bessel ($\alpha_1=2,40483$), et r le rayon des fibres.

Dans le cas des analyses DVS, le passage de a_{wi} à $a_{w(i+1)}$ n'est pas instantané. Le temps nécessaire pour que a_w atteigne l'équilibre est appelé t_d . Il est de l'ordre de quelques centaines de secondes. Pendant cette période, les conditions aux limites ne sont pas bien définies ; ce qui affecte les résultats obtenus. Pour résoudre ce problème une régression linéaire a été effectuée sur la courbe $(M_t / M_{eq})^2 = f(t)$ selon la méthode utilisée par Gouanvé et al.[105] (Figure A.IV. 6). Par la suite, la valeur de t_d sera déduite du temps d'adsorption et la courbe sera définie par $(M_t / M_{eq})^2 = f(t-t_d)$.

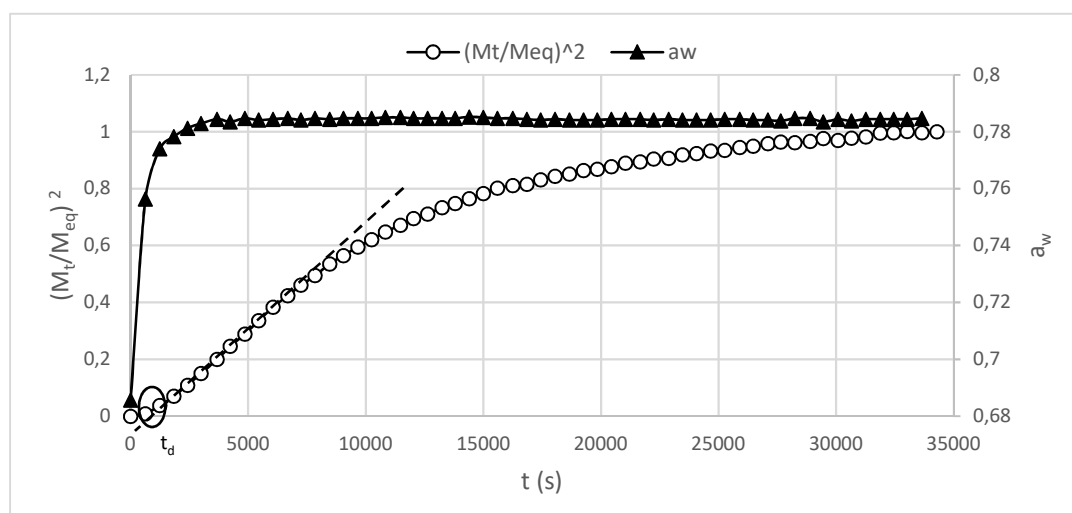


Figure A.IV. 6 : Données cinétiques enregistrées dans le cas des NTFD pour une augmentation de a_w de 0.68 à 0.78.

La Figure A.IV. 7 présente les variations de D_1 et D_2 en fonction de a_w dans une échelle semi-logarithmique $\log(D) = f(a_w)$. Une réduction de D (D_1 , D_2) a été observée lorsque a_w augmente. Ce comportement semble différent de ceux qui ont été observés par Gouanvé et al.[105] et Alix et al.[114] sur différentes fibres végétales. Gouanvé et al.[105] ont constaté une augmentation des D_1 et D_2 des fibres de lin lorsque a_w est inférieur à 0,5. Au-delà de cette valeur, une diminution de ces coefficients a été observée. Cette diminution a été expliquée, selon les auteurs, par l'effet du gonflement qui retarde la diffusion. De leur côté, Alix et al. [114] ont observé un comportement un peu similaire avec une diminution des D lorsque a_w est inférieur 0,1. Au-delà de cette valeur, le D (D_1 , D_2) suit le comportement observé par Gouanvé et al. [105]. Cette diminution a été expliquée par le fait que les molécules d'eau interagissent avec des groupes de fibres polaires conduisant à des liaisons hydrogène. Cela augmente la cohésion

entre les chaînes cellulosiques, réduisant ainsi la mobilité de l'eau. Cependant, la connaissance exacte de ce phénomène de diffusion reste compliquée. Les résultats observés pendant la présente étude pourraient être expliqués par le taux des sites d'adsorption libres et leur accessibilité. En effet, à a_w faible ce taux est maximal et l'adsorption se produira par les sites qui sont faciles d'accès. Lorsque a_w augmente, ce taux diminue et les sites d'accès faciles seront occupés ; ce qui pourrait contrarier la mobilité des molécules d'eau, par conséquent une diminution de D .

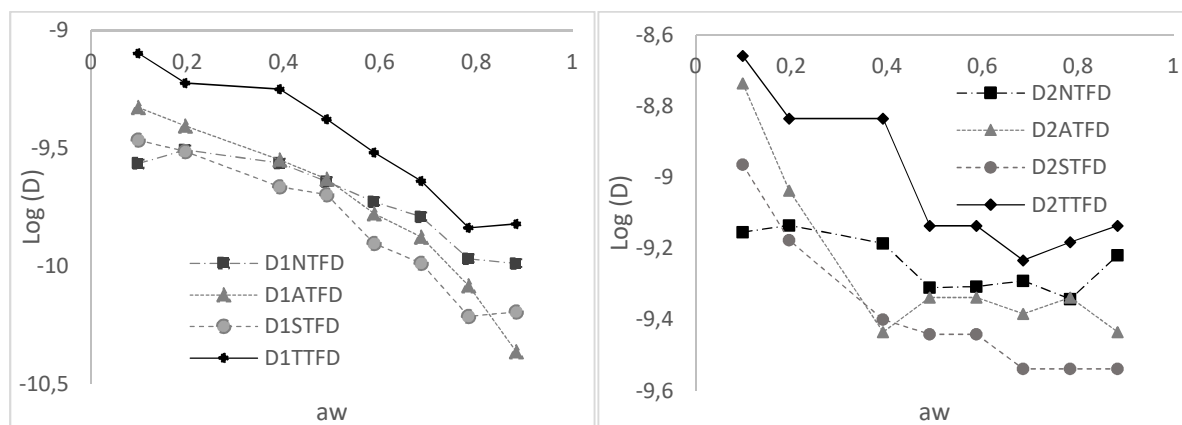


Figure A.IV. 7 : Variations de D_1 et D_2 en fonction de a_w dans un échelle semi-logarithmique.

Par ailleurs, la différence entre les deux coefficients (D_1 et D_2) est importante. La valeur de D_2 s'est avérée nettement supérieure à D_1 . Le même constat a été rapporté par Alix et al.[114] sur les différentes fibres végétales qu'ils ont étudiées. Cela s'explique, selon eux, par une hétérogénéité des fibres où la surface présente un effet barrière par-rapport à la diffusion d'eau. Par conséquent, selon les mêmes auteurs, la valeur D_2 (seconde demi-sorption) devrait être plus représentative de la diffusion de l'eau dans le cœur de la fibre, tandis que D_1 (première demi-sorption) devrait être plus caractéristique de la diffusion à travers la surface. Des interrogations sur la méthode utilisée pourraient également être posées. Les résultats obtenus dans cette partie seront comparés avec ceux obtenus par la solution numérique.

Tableau A.IV. 3 : Coefficient de diffusion des différentes fibres de Diss lors de l'adsorption d'eau.

	UTFD	TTFD	STFD	ATFD	NTFD
D_1 ($\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$). 10^{-8}	7,90	6,80	4,50	4,20	4,30
D_2 ($\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$). 10^{-8}	56,50	26,80	10,10	13,70	8,00

D'autre part, les coefficients D (D_1 , D_2) des TTFD sont nettement supérieurs, sur toute la gamme de a_w étudiée, comparés à ceux des autres traitements. Cela pourrait être dû à un effet barrière supplémentaire après les traitements chimiques dus à l'amorçage des groupes

chimiques fournis par les réactifs [114].

Les mêmes constats ont été relevés sur les résultats d'adsorption d'eau de ces fibres (Tableau A.IV. 3), dont les valeurs de D (D_1 , D_2) trouvées sont dans le même ordre de grandeur que celles trouvées par DVS. Néanmoins, il a été constaté dans la littérature une multitude de résultats relatifs aux coefficients de diffusion des fibres végétales (Tableau A.I. 3) avec des valeurs qui sont de l'ordre de 10^{-2} à 10^{-7} dans le cas de conditionnement sous HR [103], [105], [123], [129], [130], et de 10^{-4} à 10^{-6} mm²/s pour l'immersion dans l'eau [93], [129], [131].

IV.4.2.2. Méthode numérique

Dans le but de prédire correctement le comportement diffusif des fibres de Diss, une étude numérique par éléments finis a été réalisée. Ce modèle tient compte de la géométrie réelle des fibres en se reposant sur des clichés microscopiques. Cette partie se limite aux essais d'adsorption d'eau des différentes fibres étudiées précédemment.

Dans un premier temps, des géométries similaires à celles utilisées par la méthode analytique ont été utilisées afin de comparer les résultats des deux méthodes en utilisant une approche inverse. Dans un deuxième temps, les géométries déduites par les clichés microscopiques ont été considérées pour déduire l'effet de la forme de la géométrie sur les résultats.

I. Hypothèse de diffusion sur une géométrie 2D

L'hypothèse d'une diffusion d'eau par l'épaisseur a été maintenue dans cette partie, en supposant que la fibre de Diss est définie comme étant un matériau homogène plein défini par son coefficient de diffusion et son taux d'adsorption. En premier lieu, la section des fibres a été supposée circulaire, suivant la démarche employée dans la partie analytique. En second lieu, la section transversale des fibres de Diss a été simulée par une section ellipsoïdale, qui décrit mieux la forme réelle de ces fibres.

II. Analyse morphologique des fibres de Diss : section ellipsoïdale

Des clichés microscopiques des sections transversales des fibres de Diss ont été exploités afin de définir leur géométrie. Cette dernière a été simulée par une forme ellipsoïdale et définie par trois paramètres : deux mesurés (L et D) et un calculé (L/D) (Figure A.IV. 8). Le logiciel imageJ® a été utilisé dans l'optique de traiter ces clichés dont plus de 25 faisceaux de fibres ont été analysées pour chaque traitement. Ces fibres sont les mêmes observées dans § II. 2.1 pour mesurer le diamètre moyen des UTFD et les fibres traitées.

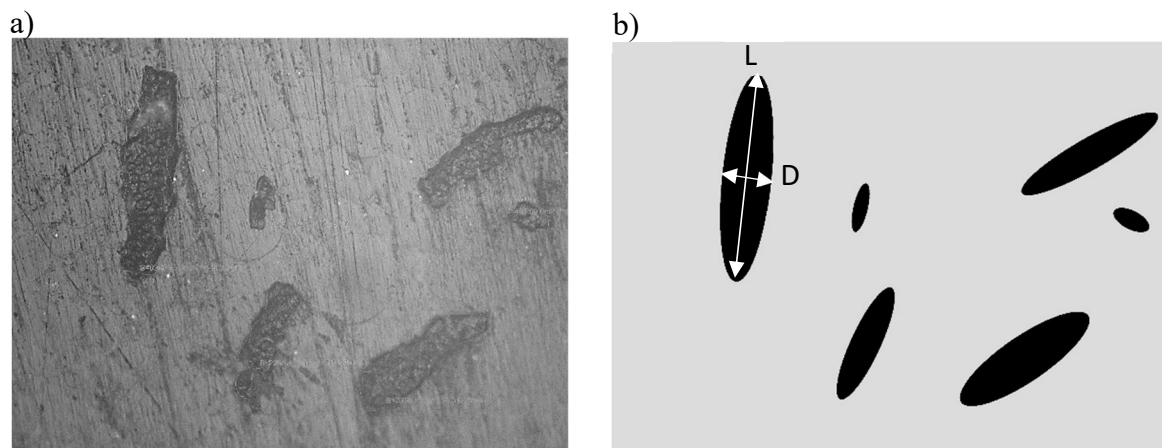


Figure A.IV. 8 : Méthodologie utilisée pour déterminer le grand et le petit diamètres (L et D) des fibres de Diss : a) cliché obtenu par microscope optique, b) image traitée par ImageJ.

Le rapport d'aspect moyen ($\frac{L}{D}_{\text{moyen}}$) a été déterminé pour chaque type de fibres, puis les paramètres géométriques D_{moyen} et L_{moyen} ont été calculés à partir de la surface moyenne des fibres. Ces données nous permettent de définir la géométrie moyenne pour la modélisation. Le Tableau A.IV. 4 rassemble les paramètres géométriques relatifs à chaque type de fibres.

Tableau A.IV. 4 : Paramètres géométriques des fibres de Diss : forme circulaire et ellipsoïdale.

Type de section	Paramètres	UTFD	NTFD	TTFD	STFD	ATFD
Circulaire	D_{moyen} (mm)	0,090	0,054	0,071	0,590	0,059
Ellipsoïdale	L_{moyen} (mm)	0,166	0,093	0,147	0,110	0,099
	D_{moyen} (mm)	0,049	0,031	0,034	0,032	0,035
	L/D_{moyen}	3,4	3	4,3	3,5	2,8

III. Méthodologie d'implémentation sous *Abaqus CAE*

Le logiciel de calcul aux éléments finis Abaqus CAE a été utilisé afin de modéliser le processus d'adsorption d'eau des fibres de Diss. Le module physique « mass diffusion » gouverné par la loi de Fick a été employé en transition. Les conditions aux limites ont été appliquées sur tout le périmètre de la fibre et une concentration d'eau constante, qui vaut le taux d'adsorption de la fibre, a été imposée. Des éléments linéaires quadrilatères à 4 nœuds « DC2D4 » ont été utilisés dans la modélisation pour discrétiser la géométrie, avec une taille globale approximative de 0,001 mm (Figure A.IV. 9). Cette valeur a été déterminée après avoir effectué une étude sur la convergence du maillage. Le taux d'adsorption de chaque fibre modélisée a été calculé par la moyenne arithmétique de l'ensemble de concentrations d'eau élémentaires.

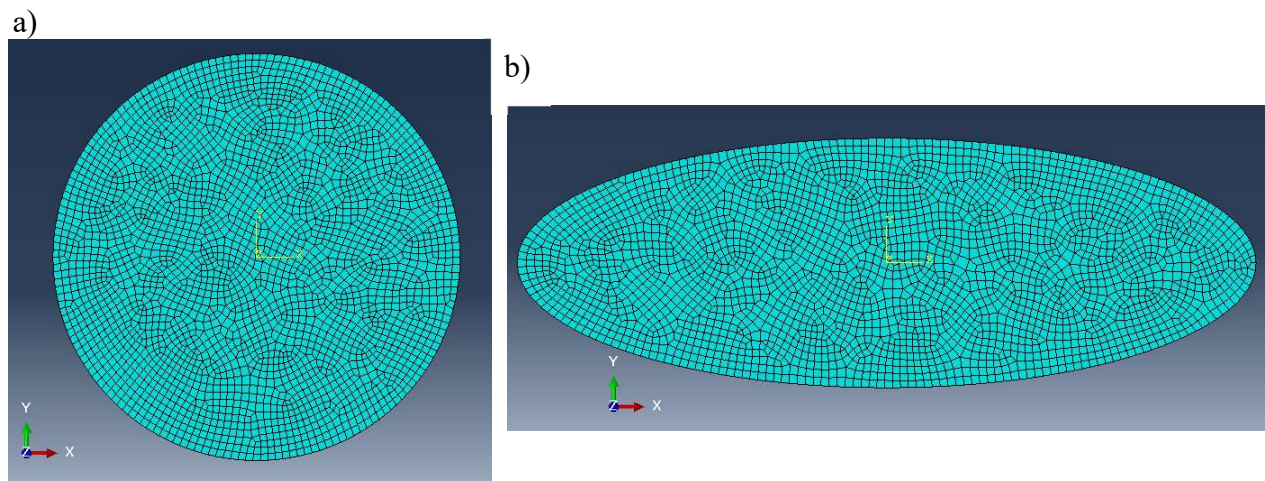


Figure A.IV. 9 : Géométries discrétisées des fibres de Diss modélisées sur Abaqus : a) circulaire, b) Ellipsoïdale.

IV. Identification des coefficients de diffusion des fibres de Diss

Dans un premier temps, une comparaison a été faite entre les résultats des solutions analytiques (D_1 et D_2) et la solution numérique ($D_{\text{num.circul}}$) en supposant que la section est circulaire. Les valeurs de D_1 et D_2 ont été enregistrées dans le modèle numérique séparément afin de tracer la courbe de l'évolution du taux d'adsorption relative à chaque coefficient en fonction du temps. Dans un deuxième temps, le coefficient de diffusion numérique des sections ellipsoïdales ($D_{\text{num.ellips}}$) pour chaque fibre a été déterminé et comparé avec $D_{\text{num.circul}}$.

Les données expérimentales, analytiques (D_1 et D_2) et numériques ($D_{\text{num.circul}}$) de diffusion des différentes fibres sont affichées dans la Figure A.IV.10. Les résultats ont montré que les valeurs expérimentales se trouvent entre les courbes relatives à D_1 et D_2 : la courbe D_1 comme une borne inférieure et la courbe D_2 comme une borne supérieure. Cela est valable pour toutes les courbes des fibres étudiées.

Tableau A.IV. 5 : Coefficients de diffusion numériques pour les différentes géométries et les fibres étudiées.

	UTFD	NTFD	TTFD	STFD	ATFD
$D_1 (mm^2, s^{-1}), 10^{-8}$	7,90	4,30	6,80	4,50	4,20
$D_2 (mm^2, s^{-1}), 10^{-8}$	56,50	8,00	26,80	10,10	13,70
$D_{\text{circulaire}} (mm^2, s^{-1}), 10^{-8}$	14	6,5	9,5	7	7
R^2	0,987	0,995	0,998	0,985	0,977
$D_{\text{ellipse}} (mm^2, s^{-1}), 10^{-8}$	9	3,5	4	3,5	4,5
R^2	0,993	0,993	0,996	0,978	0,967

Le $D_{\text{num.circul}}$, a été déterminé par la méthode inverse en se basant sur les résultats analytiques. Les résultats montrent une bonne concordance avec le comportement diffusif des fibres de Diss

sur toutes les zones de diffusion (à court et à long terme) avec des valeurs de R^2 supérieures à 0,977 pour toute la gamme des fibres étudiées.

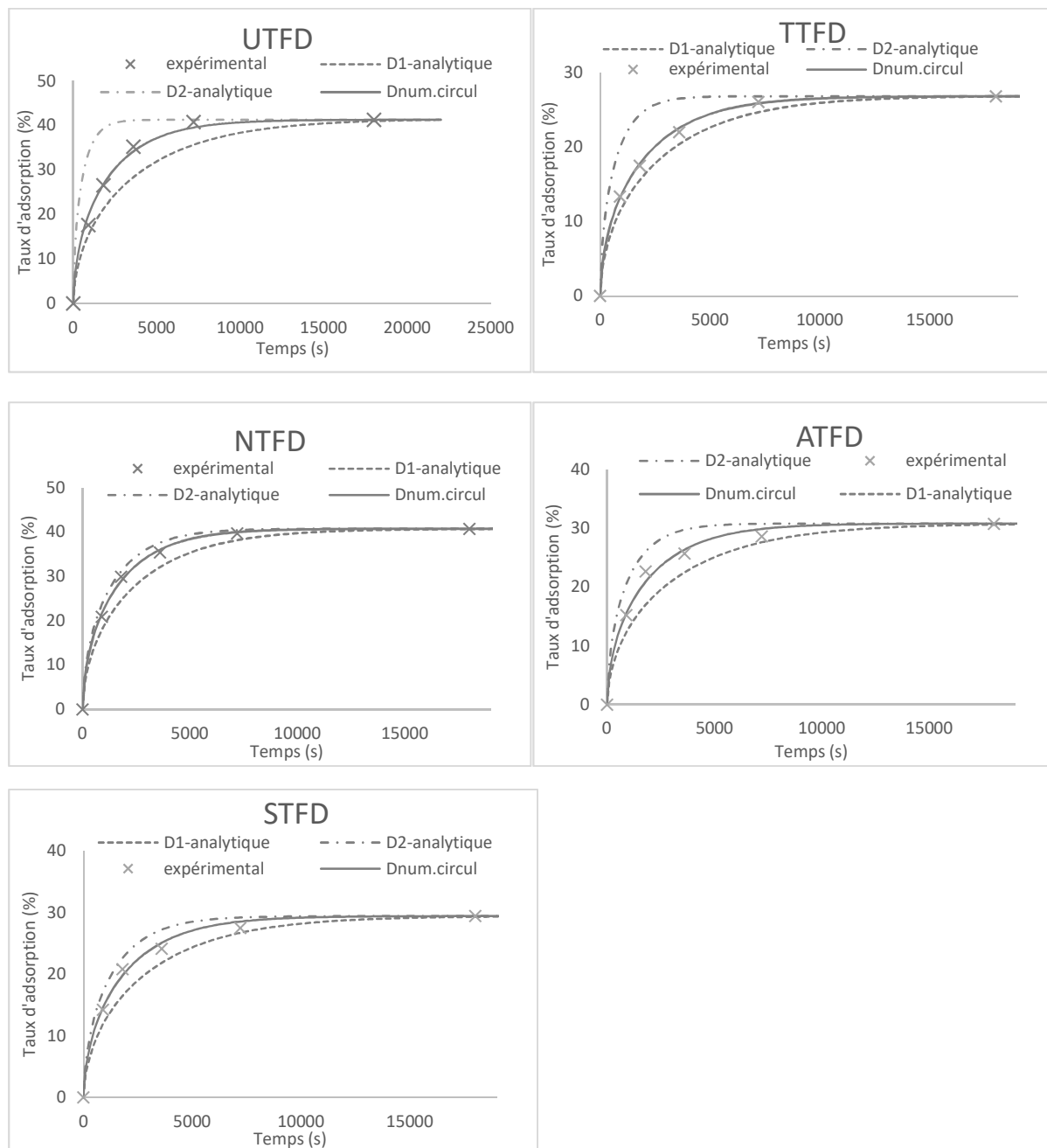


Figure A.IV.10 : Courbes d'adsorption d'eau par immersion des différentes fibres étudiées décrites par $D_{num.circul}$ et leurs données expérimentales.

Le Tableau A.IV. 5 récapitule les valeurs des coefficients de diffusion numériques ($D_{num.circul}$ et $D_{num.ellips}$) et analytiques des différentes fibres étudiées. La valeur de $D_{num.circul}$ est comprise entre D1 et D2 dont le rapport entre $D_{num.circul}/D1$ varie entre 1.40 et 1.80 pour l'ensemble des fibres étudiées. Cette différence entre les deux méthodes est significative et peut influencer l'interprétation des résultats même si la section des fibres est circulaire.

La Figure A.IV.11 regroupe les courbes d'adsorption numériques décrites par $D_{\text{num.ellips}}$ et les données expérimentales d'absorption d'eau par immersion des fibres de Diss traitées et non traitées. Les résultats montrent une excellente correspondance avec R^2 supérieur à 0,967 pour l'ensemble des fibres étudiées.

Il est visible que les valeurs de $D_{\text{num.ellips}}$ sont nettement inférieures à celles des $D_{\text{num.circul}}$, entre 1.50 à 2.40 fois moins sur tous les types de fibres étudiées. En effet, le processus de diffusion dépend du périmètre de la section des fibres. Autrement dit, pour le même type de matériau la diffusion est plus rapide lorsque la zone de contact entre l'eau et le matériaux (le périmètre) est importante. Cela est le cas lorsque l'on considère la section des fibres ellipsoïdale. Par conséquent, ces résultats montrent l'effet significatif de la géométrie sur le comportement diffusif des fibres et qui peut causer des fausses interprétations. À titre d'exemple les STFD et TTFD ont des $D_{\text{num.circul}}$ égaux, alors $D_{\text{num.circul}}$ des ATFD est 1.3 fois plus grand que celui de TTFD.

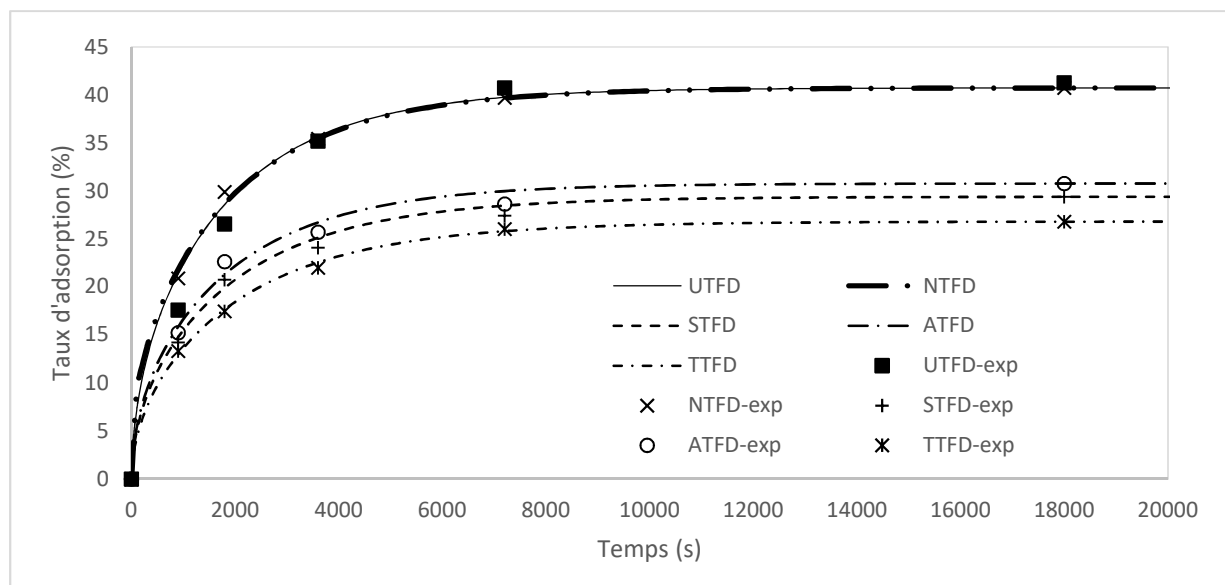


Figure A.IV.11 : Courbes d'adsorption d'eau par immersion des différentes fibres étudiées décrites par $D_{\text{num.ellips}}$ et leurs données expérimentales.

IV.5. Bilan

Ce travail a mis en évidence le comportement hygrothermique des fibres de Diss et l'effet de différents traitements sur ce dernier.

Les résultats obtenus ont montré que les groupes -OH, contenus probablement dans l'hémicellulose et la cellulose des fibres de Diss, pourraient être considérés comme les principaux responsables de l'adsorption d'eau par ces fibres.

Les fibres de Diss ont présenté une isotherme de sorption de type II avec une hystérésis de type H3 présente sur toute la gamme de a_w étudiée. Les modèles mathématiques de GAB, H-H, GDW semblent décrire mieux les isothermes des fibres de Diss traitées et non traitées dont le modèle de GDW est le plus en accord avec les résultats expérimentaux.

Les traitements thermique, au silane et à l'acide acétique ont nettement diminué le caractère hydrophile des fibres de Diss, respectivement, de 35%, 28% et 25% pour l'absorption d'eau. Cependant, les NFTD ont présenté un comportement similaire à celui des UTFD ; cela a été expliqué, en se reposant sur les résultats du modèle mathématique de H-H, par une augmentation des micropores sur la surface des NFTD après ce traitement. Ce qui favorise plus l'adsorption par condensation capillaire à a_w élevé.

Il a été avéré que la solution analytique du problème de diffusion donne des résultats approximatifs, et que la méthode numérique par approche inverse représente mieux les données expérimentales. D'autre part, il a été soulevé que l'influence de la géométrie des fibres sur le comportement diffusif est significative. La section ellipsoïdale semble décrire mieux la géométrie des fibres de Diss. En outre, une réduction des coefficients de diffusion a été nettement observée après les différents traitements, surtout après les traitements chimiques.

Partie B :

Composites à base des Fibres de Diss :
caractérisation et évaluation
environnementale.

Sommaire

Chapitre B-I: Etat de l'art sur les biocomposites	85
Chapitre B-II: Méthodes de Caractérisations et mise en œuvre des biocomposites	110
Chapitre B-III: Caractérisation mécanique des composites à base des fibres de Diss	122
Chapitre B-IV: Vieillissement hydrothermique des composites à base des fibres de Diss	152
Chapitre B-V: Analyse de cycle de vie comparative des panneaux de bardage biosourcés	183

Chapitre I : Etat de l'art sur les biocomposites

Ce chapitre propose une revue non exhaustive sur les biocomposites nécessaire à la compréhension des travaux menés sur les biocomposites à base de fibres de Diss. Après une introduction sur les biocomposites, une attention particulière est portée sur leur comportements mécaniques et hydro/hygrothermiques. L'aspect écologique de l'utilisation de ces matériaux est également traité après une présentation d'un outil normalisé pour l'évaluation environnementale.

I.1 Généralités sur les biocomposites

Les biocomposites sont de plus en plus adoptés dans l'industrie dans l'optique de remplacer les composites conventionnels. Par les biocomposites nous faisons référence aux composites polymères d'une matrice biosourcée ou pétrosourcée renforcée par des fibres végétales. Les avantages d'utiliser un tel matériau sont : **écologiques**, par la substitution des fibres synthétiques produites par des processus énergivores et des ressources non renouvelables par des fibres renouvelables, dégradables et moins énergivores ; **économiques**, dont le coût de la production des fibres végétales est beaucoup moins important que leurs homologues synthétiques ; **structurelles**, surtout pour les applications qui nécessitent l'utilisation d'un matériau à faible masse volumique, notamment dans le secteur de l'automobile, de l'aéronautique et du bâtiment.

Les biocomposites sont constitués, généralement, par deux phases : une matrice et un renfort. Le rôle de la matrice est d'assurer la forme du composite, l'aspect de la surface, la transmission des charges entre les fibres et la durabilité du composite. Tandis que, le renfort supporte la plupart des charges structurelles et fournit la rigidité et la résistance au composite.

Il existe deux principaux types de matrices utilisées pour les composites polymères : thermoplastiques et thermodurcissables. Ces deux types de matrices ont des structures chimiques différentes et subissent des réactivités différentes avec les molécules de surface des

fibres dans les composites. Leurs avantages et leurs inconvénients sont récapitulés dans le Tableau B.I.1.

Tableau B.I.1: Avantages et inconvénients des matrices thermodurcissable et thermoplastique [31].

	Matrice thermodurcissable	Matrice thermoplastique
Les avantages	- Faible viscosité de la résine ; - Bon mouillage des fibres ; - Excellente stabilité thermique une fois polymérisée ; - Chimiquement résistant.	- Recyclable ; - Facile à réparer par soudure et collage par solvant ; - Post-formable ; - Dure.
Les inconvénients	- Fragile ; - Non-recyclable ; - Non post-formable.	- Mauvais écoulement de la masse fondue ; - Besoin d'être chauffée au-dessus du point de fusion.

Concernant les composites polymères renforcés par les fibres naturelles, les matrices thermodurcissables et thermoplastiques les plus utilisées dans l'industrie sont les polyesters insaturés, les résines époxy, les résines phénol-formaldéhyde et les résines vinylester, ainsi que les polypropylènes (PP) et les polyéthylènes (PE) [173]. Grâce à leur recyclabilité, les matrices thermoplastiques présentent un meilleur choix pour un matériau écologique. Cependant, il est possible que la dégradation des fibres se produise si la température de la fusion de ces matrices est plus importante que celle de la dégradation des fibres végétales (200°C) [173]. Cela limite la gamme de ces matrices utilisées. Le choix de la matrice se fait en tenant compte de l'application du composite.

Toutefois, l'épuisement des ressources fossiles et la pollution de l'environnement incitent les chercheurs à trouver des alternatives aux matrices à base d'hydrocarbures. Les biopolymères ont connu une renaissance ces dernières années [174]. De nombreux polymères sont développés à partir de ressources renouvelables et ont fait l'objet de plusieurs études dans la littérature, telles que l'amidon [175]–[177], l'acide poly lactique (PLA) [91], [151], [178]–[180], polyamide-11 [181]–[184] polyhydroxyalcanoate (PHA) [185], [186] et d'autres. Cependant, la source de la matrice n'est pas un indicateur de leurs performances environnementales. Il faut tenir compte, également, de la phase de synthétisation qui s'avère parfois plus polluante notamment lorsque le process n'est pas complètement maîtrisé. Tabone et al. [187] ont attesté, après avoir effectué une étude d'analyse de cycle de vie (ACV) sur 12 polymères (sept pétrosourcés, quatre biosourcés et un dérivé des deux), que les matrices biopolymères, malgré leur conception écologique, sont parfois moins classées par-rapport à des matrices pétrosourcées notamment le PP qui s'avérerait moins impactant sur l'environnement.

Revenant à ce thermoplastique, le PP est l'une des matrices thermoplastiques les plus utilisées dans l'industrie [188], notamment pour une application avec des fibres végétales. Le polypropylène (PP), comme son nom l'indique, c'est un homopolymère de propylène (C_3H_6). Ce polymère semi-cristallin a un taux de cristallinité variant de 50 à 70 % selon les conditions de transformation et son taux d'isotacticité [188]. Cette matrice recyclable est connue pour sa faible conductivité thermique (environ 0,17 W/m.K) ainsi que son faible impact environnemental [187],[189]. De plus, elle présente une résistance intéressante au choc (2,5 à 6 kJ/m²) et une faible température de fusion, entre 160°C et 170 °C [188]. Ceci permet l'incorporation des fibres végétales sans dégradation. S'ajoutant à sa faible densité, ce matériau hydrophobe est connu pour sa faible perméabilité, son excellente résistance chimique, sa résistance à la rayure et à l'abrasion, et le fait qu'il soit un très bon isolant électrique [188]. Cependant, sans traitement, le PP est très sensible à l'oxydation et à la radiation ultraviolet ; de plus, il est considéré comme un matériau combustible qui génère des gouttes enflammées en brûlant [188].

Le choix de la matrice devrait être effectuée en fonction du type d'application des composites. Quant à une application dans le bâtiment comme un parement de bardage, structure non porteuse, les critères de sélection peuvent être les suivants : faible conductivité thermique, recyclabilité, meilleure résistance au choc, durabilité et faible impact sur l'environnement. Le PP semble répondre à toutes ces exigences. Pour cette raison, dans la mesure du possible, les composites de fibres végétales / PP ont retenu l'attention.

I.1. Propriétés mécaniques des biocomposites

Les propriétés des biocomposites dépendent principalement du type de fibres utilisées, de leurs morphologies (rapport d'aspect), de leurs fractions volumiques et leurs orientations (unidirectionnelle, bidirectionnelle, aléatoire) dans le composite. Il s'ajoute à cela, la qualité de l'interface fibres/matrice et le type de matrices sélectionnées.

I.1.1. Paramètres qui influencent les propriétés mécaniques des biocomposites

I.1.1.1. Effets de la dispersion et de l'orientation des fibres

L'orientation des fibres par-rapport au chargement mécanique appliqué influe significativement sur les propriétés mécaniques des biocomposites :

- Les biocomposites de fibres longues alignées longitudinalement à la direction du chargement ont généralement une résistance plus élevée à la traction.
- Les composites de fibres longues dirigées transversalement à la direction du chargement supportent une très faible résistance à la traction, qui est inférieure à la résistance de la matrice.
- Enfin, en raison de la complexité de la répartition des fibres au sein de composites, les propriétés mécaniques des composites chargés avec des fibres courtes orientées aléatoirement sont inférieures à celles des composites avec des fibres alignées mais supérieures aux propriétés mécaniques de la matrice.

Islam et al. [190] ont constaté que les composites de fibres de chanvre alignées/époxy fournissent une résistance à la traction et un module de traction plus importants, respectivement, de 14 et 21% par-rapport à leurs homologues chargés par des fibres aléatoirement orientées.

I.1.1.2. Effets de la morphologie des fibres

Dans le cas des composites renforcés par des fibres courtes, et lorsqu'une charge est appliquée à la matrice, le transfert de charge se produit par cisaillement le long de l'interface matrice/fibres [31]. L'augmentation du rapport d'aspect (longueur/diamètre) accroît cette interface et produit une meilleure adhérence entre les deux phases ; ce qui améliore les propriétés mécaniques du composite.

Beg et Pickering [191] ont observé au cours de leur étude sur les composites Kraft/PP que lorsque la longueur moyenne des fibres diminue, la contrainte, le module et la résistance à l'impact baissent. A l'opposé de ces constatations, Chen et al. [192] ont souligné lors d'une étude sur les Bambou/PP une diminution du module et de la résistance à la traction des composites à mesure que la taille des fibres augmente. Cela a été expliqué par le fait que les fibres plus petites possèdent une surface relativement plus grande que celle des fibres longues. D'autre part, Pérez-Fonseca et al. [193], ont noté qu'une combinaison entre les fibres longues (300–425 mm) et courtes (150–212), est optimale pour des meilleurs module de Young et résistance à l'impact pour les composites fibres d'Agave/PP et les composites fibres de Pin /PP.

I.1.1.3. Effet du taux de chargement

En général, l'augmentation de la teneur en fibres améliore les performances mécaniques des composites. En revanche, lorsque ce chargement devient plus important, le contact fibre-fibre augmente tandis que celui entre les fibres et la matrice diminue. Ce qui affecte l'adhérence entre ces dernières et conduit à une diminution des propriétés mécaniques. M. Asim et al. [83] ont remarqué une chute des performances mécaniques de composites à fibres de feuille d'ananas/ formaldéhyde phénolique après un taux de chargement de 60%, tandis qu'un chargement de 50% a donné de bonnes performances mécaniques. S. Dhanalakshmi et al. [78], quant à eux, ont révélé une chute des résistances à la traction et à la flexion à 70% du taux de chargement en fibres pour les composites fibres d'Areca (traitées et non traitées) / PP, voir la Figure B.I. 1. Pérez-Fonseca et al. [193] ont aussi observé une amélioration de module avec l'augmentation de chargement pour les composites fibres d'Agave/PP et les composites fibres de Pin /PP.

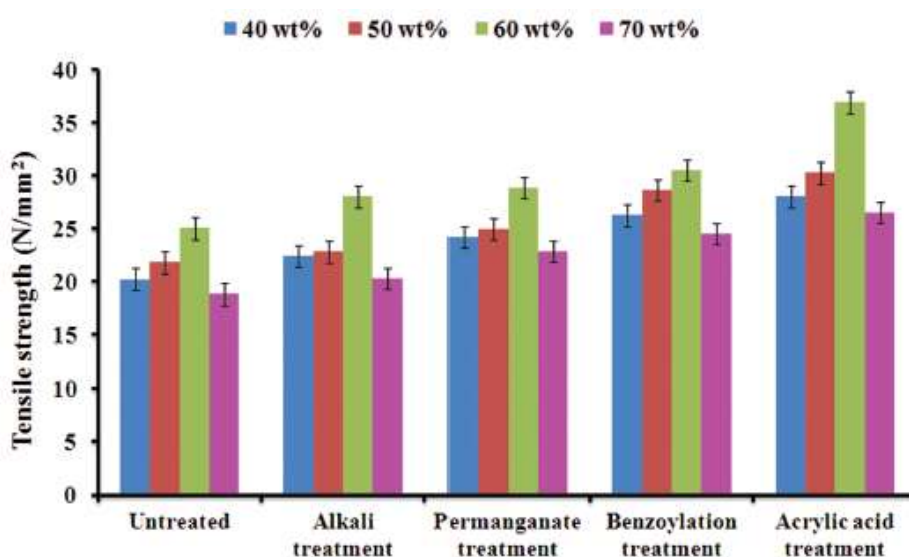


Figure B.I. 1 : Résistance à la traction des composites Areca/PP en fonction du taux de chargement des fibres traitée et non traitées [78].

I.1.1.4. Effet de l'interface

A cause de leurs caractères hydrophiles, le problème de l'interface fibre /matrice est souvent rencontré pour les biocomposites en particulier lors de l'utilisation des matrices non polaires comme le PP. En effet, pour ce type de matrice les interactions chimiques fibres/matrice ne peuvent pas être rétablies sans l'intervention d'un agent de couplage. Cela signifie une adhérence modérée et, par conséquent, de faibles propriétés mécaniques.

Nous pouvons constater dans la littérature une utilisation de deux catégories d'agent de couplage afin d'améliorer cette interface : l'un adapté aux fibres comme le silane, (voir § A.I), et l'autre adapté à la matrice. Cette dernière est la catégorie la plus utilisée dans la littérature pour la matrice PP en graffant, généralement, l'anhydride maléique (MA-g-PP) [192], [194]–[198].

Stark [199] a par-ailleurs montré que les propriétés mécaniques en traction et en flexion des fibres de bois/PP ont été significativement améliorées après l'ajout du MA-g-PP. Il a été observé un changement de mécanisme de rupture, c'est-à-dire une rupture cohésive au lieu à adhésive. De leur part, Chen et al. [192] ont constaté que l'ajout du MA-g-PP a permis au module de traction de composite Bamboo/PP d'évoluer linéairement avec le taux de fibres jusqu'à 65% en masse, ceci n'a pas été observé pour les composites sans agent de couplage. D'autre part, Beg et Pickering [191] ont rapporté que l'ajout de 4% du MA-g-PP est optimale pour avoir des meilleures performances mécaniques des composites Kraft/PP et une meilleure liaison interfaciale comme le montre la Figure B.I. 2.

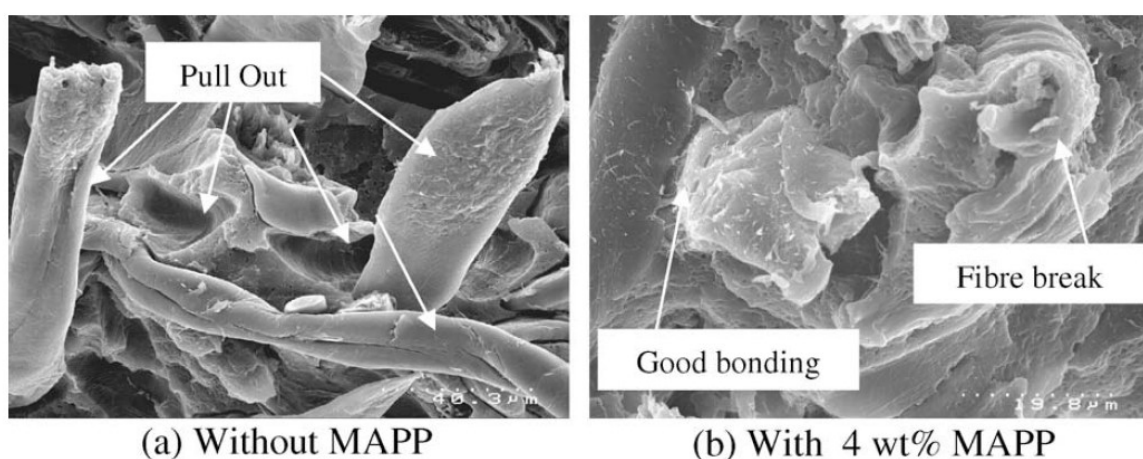


Figure B.I. 2 : Clichés MEB des faciès de rupture de composite Kraft/PP (40% en poids de fibres) avec et sans MA-g-PP [191].

l.1.2. Approches d'estimation des propriétés mécaniques effectives des biocomposites à fibres orientées aléatoirement

Nous avons ainsi constaté que les propriétés mécaniques des biocomposites renforcés par des fibres orientées aléatoirement dépendent de plusieurs paramètres, notamment l'orientation des fibres, leurs morphologies (rapport d'aspect), le taux de chargement et l'état de l'interface fibres/matrice. Par conséquent, la prédiction des propriétés mécaniques de ces composites nécessite la compréhension de ces paramètres de la microstructure.

Nous pouvons distinguer dans la littérature deux catégories d'approches pour prédire les propriétés macroscopiques des biocomposites, notamment leurs modules de Young, à partir des informations sur leur structure microscopique : des approches analytiques et des approches numériques. La première catégorie ne nécessite pas une connaissance complète de la microstructure, elle est facile à être utilisée et rapide. On peut citer à titre d'exemple le modèle de Mori-Tanaka [200] et le modèle de double inclusion [201] qui sont basés sur le problème de l'inclusion d'Eschelby [202]. La deuxième catégorie, quant à elle, nécessite une définition globale des phases : leurs propriétés physiques, la géométrie des fibres et leur répartition. Elle est basée sur la méthode des éléments finis avec la mise en œuvre du concept de volume élémentaire représentatif (VER). Ce dernier représente la taille de l'échelle microscopique du composite étudié à partir duquel on peut le considérer comme un matériau homogène (Figure B.I. 3). L'application des conditions de chargement macroscopiques sur le VER se fait par le recours aux conditions aux limites. Nous pouvons distinguer trois types de conditions aux limites classiques : Dirichlet, Neumann, et les conditions aux limites périodiques [203]. De nombreux auteurs préconisent l'utilisation des conditions aux limites périodiques même sur des matériaux non périodiques [204]–[208].

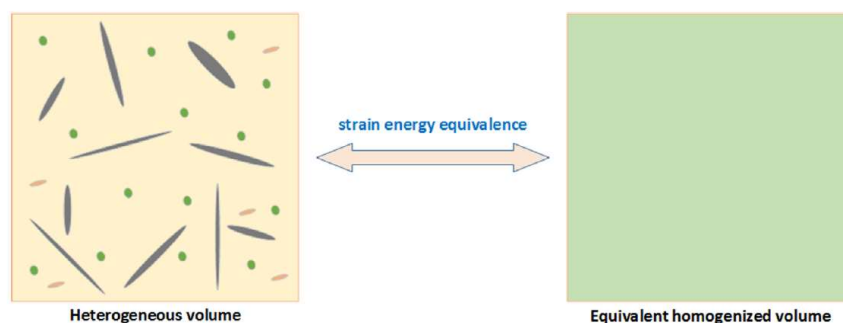


Figure B.I. 3 : Illustration de l'équivalence de l'énergie de déformation entre les volumes hétérogènes et homogénéisés [203].

L'approche numérique a fait l'objet de plusieurs travaux dans la littérature afin de prédire le comportement mécanique des biocomposites, notamment la prédiction du module effectif [203], [208], l'influence de l'interphase/interface sur la transmission des charge entre fibres et matrice [209]–[212] et la propagation des fissures au sein des biocomposites [213].

I.2. Vieillessement hydro/hygrothermique des biocomposites

Comme il a été déjà évoqué dans § A. I. 4.2, les fibres végétales sont très sensibles aux molécules d'eau à cause de leurs morphologies et leurs compositions chimique. Par ailleurs, cette sensibilité n'est pas autant marquante sur la plupart des matrices polymères, notamment

les matrices pétrosourcées. Dans cette section nous soulevons le voile sur l'effet de l'incorporation des fibres végétales dans les matrices pétrosourcées, notamment le PP.

1.2.1. Comportement diffusif des biocomposites

Nous pouvons constater dans la littérature que la plupart des biocomposites fibres végétales / PP présentent une diffusion fickienne : poudre de bois/polypropylène [214], fibres de jute/PP [215] [216], fibres de palmier dattier/PP [217], fibres de Chanvre PP, fibres de Bagasse/PP [218], Fibres de Kénaf/PP [219].

Pour le cas d'une plaque plane d'épaisseur h avec une concentration initiale uniforme sur ses deux surfaces, la solution analytique approximative de la lois de Fick (voir Eq.A.I.2) pour une diffusion unidirectionnelle suivant l'épaisseur s'exprime comme suit [105]:

Pour la première demi-absorption ($M_t/M_{eq} < 0,5$)

$$\frac{M_t}{M_{eq}} = \frac{4}{h} \sqrt{\frac{Dt}{\pi}} \quad \text{Eq. B.I. 1}$$

Pour la seconde demi-absorption ($M_t/M_{eq} \geq 0,5$)

$$\ln \left(1 - \frac{M_t}{M_{eq}} \right) = \ln \frac{8}{\pi^2} - \frac{\pi^2 Dt}{h^2} \quad \text{Eq. B.I. 2}$$

Où M_t et M_{eq} représentent les quantités d'eau absorbées, respectivement, au temps t et à l'état d'équilibre, et D le coefficient de diffusion ($\text{mm}^2.\text{s}^{-1}$) qui peut être déduit de l'équation Eq. B.I. 1.

Lorsque les dimensions de la plaque sont finies, la direction de diffusion peut être perturbée par ce que l'on appelle les effets de bords. Chilali [101] a étudié l'influence du rapport largeur (w)/épaisseur (h) sur le coefficient de diffusion d'eau des composites Lin/époxyde et Lin/Elium. Les résultats ont montré que lorsque ce rapport est égal à 60 ($180 \times 180 \times 3 \text{ mm}^3$) l'effet de bord n'est plus observable et la diffusion se produit suivant l'épaisseur pareillement comme le cas des échantillons ($20 \times 20 \times 3 \text{ mm}^3$) colmatés. Cependant, en cas d'absence de revêtement, la diffusion par les bords doit être prise en compte. Shen et Springer [220] ont proposé une correction au coefficient de diffusion (D_c) dans le cas des dimensions finies de l'échantillon pour un matériau homogène :

$$D_c = \frac{D}{\left[1 + \frac{h}{l} + \frac{h}{w}\right]^2} \quad \text{Eq. B.I. 3}$$

Cette correction est souvent appliquée dans la littérature sur les biocomposites pour s'affranchir de l'effet de bords [215] [221] [222] [223].

1.2.2. Facteurs influençant le comportement diffusif des biocomposites

Le processus de diffusion d'eau des biocomposites est influencé, principalement, par deux types de facteurs, à savoir les facteurs internes (en relation avec la structure de biocomposite et la nature de ses phases) et les facteurs externes (humidité relative et température).

Mishra et Verma [198] ont constaté, lors de leur étude sur les composites de farine de bois/PP, que l'augmentation du taux de chargement en farine engendre une augmentation du taux d'adsorption des composites. Les auteurs ont argumenté cela par l'augmentation des groupes OH libres avec l'augmentation de la farine de bois ; ce qui rend le biocomposite plus hydrophile. Cependant, le coefficient de diffusion ne semble pas être impacté par l'augmentation du taux de chargement et les biocomposites affichent un coefficient de diffusion plus faible que celui du PP (un effet de farine de bois ralentissant). A l'opposé, les résultats obtenus par Law et Ishak [33] montrent que le coefficient de diffusion des composites fibres des Kénaf/PP augmente avec l'augmentation du taux de chargement (un effet de fibres de Kénaf accélérant). Les auteurs ont expliqué cela par la capacité de la matrice à entourer la plupart des fibres à faible taux de chargement en agissant comme une barrière pour la diffusion de l'eau. Cet effet barrière de la matrice diminue avec l'augmentation du taux de chargement, conduisant à une accélération de la diffusivité. Des résultats similaires ont été rapportés par Joseph et al. [224] sur les composites fibres de Sisal/PP.

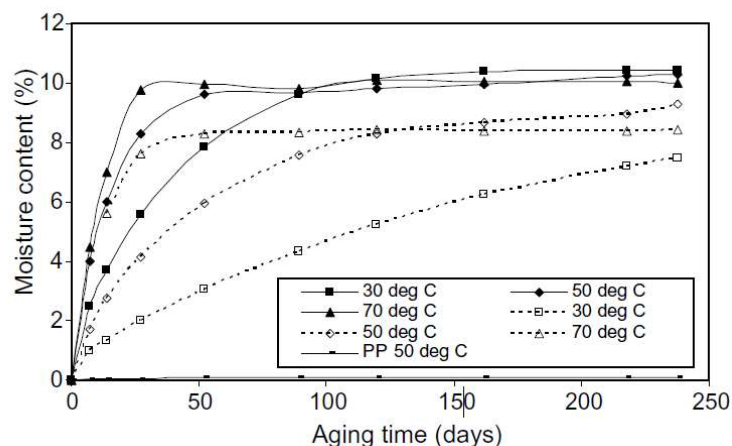


Figure B.I. 4 : Evolution de la teneur en humidité des composites (fibres de Kraft/PP) en fonction de la durée d'immersion dans l'eau lors d'un vieillissement hygrothermique à des températures de 30, 50 et 70 °C (Ligne pointillée : avec 4% en poids de MAPP. Ligne continue : sans MAPP) [191].

D'autre part, une meilleure adhérence fibres/matrice peut amener à une réduction du nombre de sites hydrophiles dans le biocomposite et par-conséquent influencer son comportement diffusif. Beg et Pickering [191] ont constaté une diminution du coefficient de diffusion des composites polypropylène renforcés par les fibres Kraft à 40% après l'ajout de 4% en poids du MA-g-PP. Cette diminution a été également observée par de nombreux chercheurs [196] [219]. Cependant, les travaux de Mishra et Verma [198] ont montré le contraire.

Par ailleurs, Pérez-Fonseca et al. [193] ont remarqué que la taille des fibres (courtes : 150–212 mm et longues : 300–425 mm) n'a pas un effet significatif sur la cinétique d'absorption d'eau des composites fibres d'Agave/ PP et de sciure de Pin/ PP. Néanmoins, les composites chargés avec les fibres d'Agave ont une absorption d'environ 3 fois supérieure à celle des composites chargés avec les sciures de pin avec le même taux de chargement et la diffusivité était environ 2 fois plus importante (Tableau B.I. 2).

Le Tableau B.I. 2 récapitule les valeurs de coefficient de diffusion de PP et différents biocomposites rapportées dans la littérature.

En outre, lorsque la température environnante augmente, l'activité des molécules de polymère augmente, ce qui accélère la diffusion des molécules d'eau au sein des biocomposites. Dans la même lignée, Beg et Pickering [191] ont observé que l'augmentation de la température augmente la cinétique d'absorption d'eau des biocomposites (Figure B.I. 4).

D'autre part, l'interprétation du processus de diffusion des composites par des approches analytiques ne dévoile pas souvent tous les secrets de ce phénomène, surtout lorsqu'un matériau si complexe est étudié. Pour une meilleure compréhension, le recours à des approches

numériques en utilisant la méthode des éléments finis est souvent rapporté dans la littérature. Nous pouvons distinguer deux types de modélisation du comportement diffusif des composites conventionnels dans la littérature : ceux qui considèrent le composite comme un matériau homogène défini par ses propriétés effectives [227]–[229], d'autres qui le représentent de façon plus réaliste par la prise en compte des fibres [230]–[234]. Ces modélisations peuvent être faite en 3D ou en 2D. En outre, le recours à la loi de Fick est souvent observé [227]–[233], quoique nous pouvons parfois apercevoir l'utilisation des lois non-fickienne comme celle de Langmuir [230], [234], [235]. Cependant, les travaux qui s'intéressent aux biocomposites sont peu présents. Chilali [101] a modélisé le comportement diffusif des composites bidirectionnels fibres de Lin/époxyde et fibres de Lin/Elium par un modèle biphasique 2D en utilisant le modèle 2D de Fick. Berges [236], quant à lui, a reproduit la même méthodologie pour des composites unidirectionnels de fibres de Lin/époxy. De leur côté, Jiang et al. [231] ont modélisé en 3D le comportement diffusif des composites de fibres de Jute courtes/PLA en se basant sur une identification de la microstructure par la tomographie rayon X.

Tableau B.I. 2 : Coefficient de diffusion de PP et des composites fibres végétale/PP rapporté dans la littérature.

Composites	Conditionnement	Coefficient de diffusion (mm^2/s)
Kraft (40%)/PP [191]	Dans l'eau à 30°C	$2,90.10^{-7}$
Kraft (40%)/PP [191]	Dans l'eau à 50°C	$5,70.10^{-7}$
Kraft (40%)/PP + 4% MAPP [191][195]	Dans l'eau à 30°C	$2,50.10^{-7}$
Fibre d'Agave (30%)/PP [193]	Dans l'eau	$7,10.10^{-7}$
Sciure de Pin (30%)/PP [193]	Dans l'eau	$4,10.10^{-7}$
Polypropylène [198]	Dans l'eau à 27°C	$1,50.10^{-3}$
Farine de Bois (30%)/ PP [198]	Dans l'eau à 27°C	$5,70.10^{-4}$
Polypropylène [225]	Dans l'eau	$2,10.10^{-5}$
Polypropylène [196][219]	Dans l'eau	$1,00.10^{-7}$
Fibres de Kénaf (30%)/PP [196] [219]	Dans l'eau	$1,30.10^{-6}$
Fibres de Kénaf (30%)/PP + 5% MAPP [196] [219]	Dans l'eau	$8,70.10^{-7}$
Polypropylène [226]	Dans l'eau	$1,40.10^{-8}$
Fibres de Kénaf (25%)/PP + 1% MAPP [226]	Dans l'eau	$9,40.10^{-6}$
Fibres de Kénaf (50%)/PP + 2% MAPP [226]	Dans l'eau	$1,30.10^{-4}$
Farine de Bois (25%)/ PP + 1% MAPP [226]	Dans l'eau	$1,60.10^{-5}$
Farine de Bois (50%)/ PP + 2% MAPP [226]	Dans l'eau	$1,30.10^{-5}$
Fibres de Sisal (30%)/PP [224]	Dans l'eau	$3,62.10^{-8}$

1.2.3. Vieillissements Hydro/hygrothermique

Le vieillissement est défini selon Berges [236] comme une évolution d'une ou plusieurs propriétés du matériau à travers une modification de la structure, de la composition ou de la morphologie des constituants. Ces modifications peuvent être temporaires et dépendantes de la présence de la source de vieillissement, (vieillissement réversible), ou bien, permanente, (vieillissement irréversible) [99]. En outre, la capacité d'un matériau à résister à un vieillissement irréversible est définie par sa durabilité.

On peut distinguer trois mécanismes de vieillissement des composites : physique, chimique et mécanique [237]. Une combinaison entre ces trois est également possible, c'est ce que l'on appelle un vieillissement couplé. Ces vieillissements peuvent s'opérer sur chaque phase individuellement ou en combinaison, mais peuvent également agir sur l'interface fibres/matrice notamment lorsqu'on parle d'un vieillissement hydro/hygrothermique des biocomposites.

Un vieillissement hydro/hygrothermique peut être qualifié comme une dégradation physico-chimique. En effet, à court terme le composite subit une plastification à cause de l'infiltration des molécules d'eau entre les chaînes de polymère. Ce type de vieillissement est en grande partie réversible lorsque le matériau retrouve à peu près son état initial. En outre, les fibres végétales sont connues pour leurs affinités avec l'eau, à l'inverse de la plupart des matrices. Cela provoque un gonflement différentiel qui peut également engendrer des microfissures au niveau de l'interphase fibre/matrice. Ces fissures peuvent se propager davantage par une succession de cycles adsorption/désorption (Figure B.I. 5). Ces dommages sont irréversibles et affectent les performances des biocomposites. Il peut s'ajouter à cela une dégradation chimique de la matrice et même des fibres ; c'est ce que l'on appelle l'hydrolyse. La présence de la température peut aggraver ces phénomènes [237].

Law et Ishak [196] ont constaté un effet de plastification sur les composites fibres de Kénaf/PP après leurs saturations dont une diminution entre 14% et 35% a été observée sur l'ensemble des propriétés mécaniques en traction et en flexion pour les composites à 40% de chargement. Après re-séchage des échantillons, une récupération d'une partie de leurs propriétés mécaniques initiales (en flexion et en traction) a été notée.

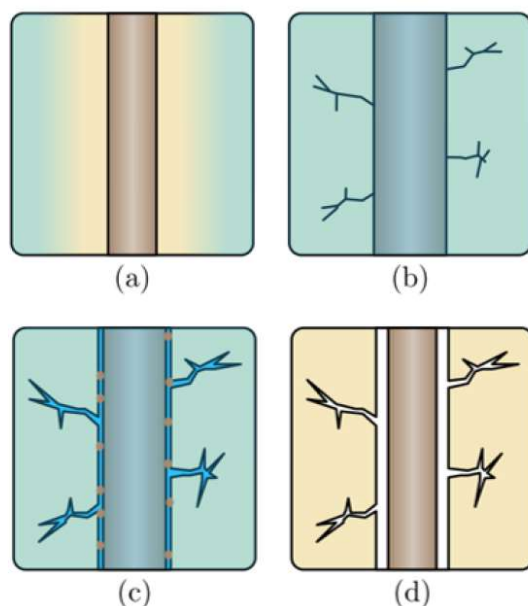
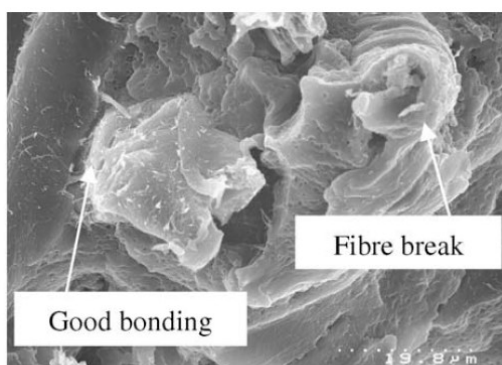
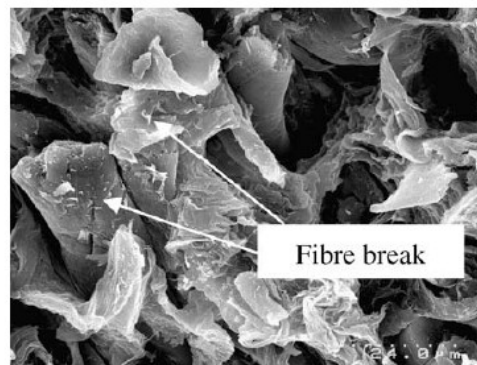


Figure B.I. 5 : Mécanisme de dégradation lors d'un vieillissement hygrothermique [236].

Beg et Pickering [191] ont observé une dégradation des propriétés mécaniques en traction des composites fibres de Kraft (40%)/PP, avec et sans 4% de MAPP, vieilli pendant 238 jours à différentes températures 30, 50 et 70°C. La capacité de rétention des propriétés était plus faible avec l'augmentation de la température. Les auteurs associent ces résultats à une dégradation des fibres et/ou de l'interface fibres/matrice (Figure B.I. 6).



(b) With 4 wt% MAPP



(a) Composites 4 wt% MAPP
(238 days ageing)

Figure B.I. 6: Evaluation de l'effets du vieillissement hygrothermique sur les clichés MEB des faciès de rupture des biocomposites Kraft (40%)/PP (40% en poids de fibres) : (a) des composites non-vieilli avec 4% en poids de MAPP et (b) des composites vieillis à 70 C avec 4% en poids de MAPP [191].

Freund [238] a réalisé pendant sa thèse une étude du vieillissement hygrothermique cyclique à 80°C sur les composites Lin/Elium. Chaque cycle contient deux phases : une phase de saturation à une humidité relative à 80% ; une autre phase de séchage à une humidité relative à 10%. Il a été avéré qu'après chaque cycle les composites perdent de la masse et une baisse

des propriétés mécaniques avec une diminution de la rigidité d'environ 50% après 5 cycles et une contrainte de traction baissée de 110MPa à 30MPa (Figure B.I. 7). Ces dégradations avaient également un effet sur la cinétique d'absorption : plus le matériau subit des cycles de vieillissement, plus l'adsorption devient rapide avec une augmentation du coefficient de diffusion.

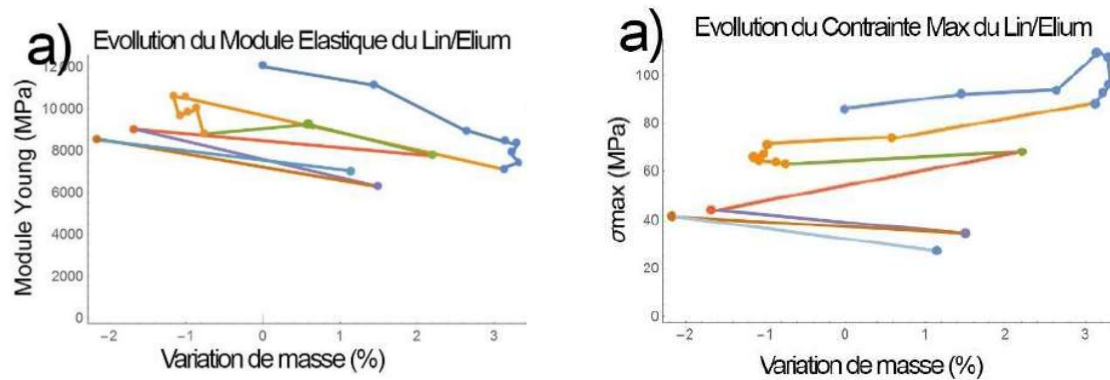


Figure B.I. 7 : Evolution des propriétés mécaniques de traction des composites Lin/ Elium en fonction de l'humidité [238].

L'auteur a résumé ce changement de comportement en deux raisons : le gonflement du composite, notamment les fibres, et la dégradation des fibres. Ces constats ont été justifiés par un changement de mécanisme de rupture du composite à cause d'une dégradation de l'interface fibres/matrice (Figure B.I. 8), et une potentielle dégradation des fibres de Lin justifiée par une chute de leurs indices de cristallinité de 77.2% à 38.4%.

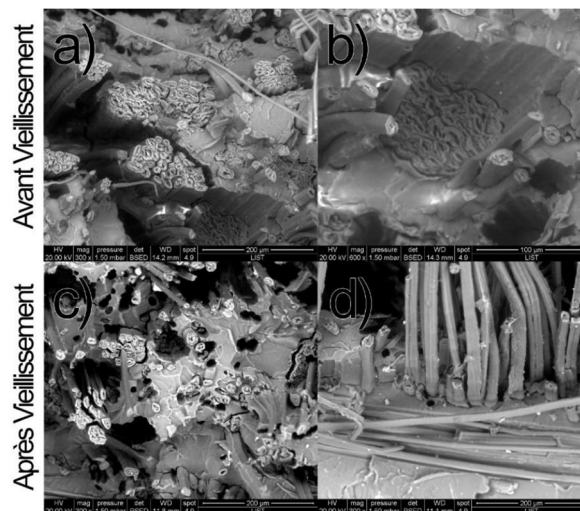


Figure B.I. 8 ; Facies de rupture du composite Lin/Elium avant et après vieillissement [238].

D'autre part, Berges [236] a étudié le vieillissement cyclique des composites à 70°C avec deux conditions d'hygrométries 90% HR et 15% HR, respectivement, pour l'adsorption et le désorption. Pour chaque cycle une durée totale de 4 jours a été choisie, soit 2 jours pour chaque

demi-cycle. Les essais de traction réalisés après 4 et 9 cycles ont révélé un comportement reproductible pour le module de traction avec une diminution de l'allongement à rupture et de la contrainte à rupture avec le nombre de cycles subis. Cette réduction a été liée à la décohésion fibre/matrice et les endommagements de la résine.

Wang et Petru [239] ont comparé les résultats des propriétés mécaniques des composites fibres de Lin unidirectionnelles (30% en volume)/époxy subissant un vieillissement naturel à l'extérieur et un autre artificiel par immersion dans l'eau à 60 °C. Il a été conclu que des durées de 60 jours, 120 jours, et 180 de vieillissement naturel correspondent, respectivement, à 1,1h, 37,2h, et 167,9h, de vieillissement artificiel. Les comparaisons ont été faites par-rapport à la résistance à la flexion et le module de flexion.

I.3. Analyse de cycle de Vie

Précédemment, nous avons abordé les propriétés techniques suite à l'incorporation des fibres végétales dans les matrices organiques, notamment les thermoplastiques. Néanmoins, leurs pouvoirs ne se résume pas qu'à cela, mais également, à leurs intérêts écologiques qui demeure la raison principale à leurs adoptions.

Dans le cadre du développement durable, les industriels s'intéressent davantage aux performances écologiques de leurs produits et à leurs cycles de vie en adoptant l'approche de l'éco-conception. Cette approche considère l'interaction du produit avec l'environnement durant son cycle de vie (les matières premières, sa production, son usage et sa fin de vie) permettant d'analyser les différents processus et leurs impacts environnementaux afin de les optimiser. Il existe de nombreux outils, plus ou moins robustes, qui permettent d'identifier ces interactions et quantifier les effets. On peut citer la méthode d'analyse de cycle de vie (ACV) qui permet d'identifier et quantifier ces impacts durant le cycle de vie d'un produit en donnant aux différents acteurs de l'industrie un moyen robuste d'aide à la décision.

Cette partie a pour objectif de présenter le cadre méthodologique de l'ACV ainsi que les différentes études menées sur les biocomposites. Cette revue met en avant les avantages de l'utilisation de l'ACV mais permet aussi d'identifier ses limites.

I.3.1. Introduction

Avant d'entamer cette revue, il convient de préciser quelques notions générales nécessaires pour la compréhension de cette partie.

Cycle de vie : Selon la norme ISO 14040 [240]: « phases consécutives et liées d'un système de produits, de l'acquisition des matières premières ou de la génération des ressources naturelles à l'élimination finale. »

Flux élémentaire : Selon la norme ISO 14040 [240]: « matière ou énergie entrant dans le système étudié, qui a été puisée dans l'environnement sans transformation humaine préalable, ou matière ou énergie sortant du système étudié, qui est rejetée dans l'environnement sans transformation humaine ultérieure »

Flux intermédiaire : Selon la norme ISO 14040 [240]: « flux de produit, de matière ou d'énergie intervenant entre des processus élémentaires du système de produits étudiés ».

Intrant : Selon la norme ISO 14040 [240]: « flux de produit, de matière ou d'énergie entrant dans un processus élémentaire ».

Extrant : Selon la norme ISO 14040 [240]: « flux de produit, de matière ou d'énergie sortant d'un processus élémentaire ».

Processus : Selon la norme ISO 14040 [240]: « ensemble d'activités corrélées ou interactives qui transforment des intrants en extrants ».

Déchets : Selon la norme ISO 14040 [240]: « substances ou objets que le détenteur a l'intention d'éliminer ou qu'il est tenu d'éliminer ».

Catégorie d'impact : Selon la norme ISO 14040 [240] « classe représentant les points environnementaux étudiés à laquelle les résultats de l'inventaire du cycle de vie peuvent être affectés ».

Indicateur de catégorie d'impact : Selon la norme ISO 14040 [240] « indicateur de catégorie d'impact représentation quantifiable d'une catégorie d'impact ».

Unité fonctionnelle : Selon l' NF EN 14040 [240], l'unité fonctionnelle définit la quantification des fonctions identifiées (caractéristiques de performance) du produit.

Flux de référence : Selon la norme ISO 14040 [240]: « mesure des extrants des processus, dans un système de produits donné, nécessaire pour remplir la fonction telle qu'elle est exprimée par l'unité fonctionnelle ».

Produit : Selon la norme ISO 14044 [241]: « Tout bien ou service ». Le produit peut être un service, un logiciel, un produit matériel ou une matière issue de processus.

Système : Selon la norme ISO 14044 [241]: « ensemble de processus élémentaires comportant des flux de produits et des flux élémentaires, remplissant une ou plusieurs fonctions définies, qui sert de modèle au cycle de vie d'un produit ».

1.3.2. Définition de l'approche ACV

L'analyse de cycle de vie est l'outil le plus abouti en matière d'évaluation globale et multicritère des impacts environnementaux selon l'Agence de l'Environnement et de la Maitrise de l'Energie (ADEME) [242].

C'est une approche qui se repose sur la quantification des flux, intrants et extrants, des différentes phases de vie d'un produit, y compris sa production (extraction, fabrication), son utilisation et sa fin de vie, permettant une évaluation environnementale complète de son cycle de vie (Figure B.I. 9). Elle peut prendre en compte l'intégralité du cycle de vie du produit, comme elle peut s'intéresser qu'à une partie selon l'objectif de l'étude. Cependant, une étude ACV peut contenir un niveau d'incertitudes et de variabilités élevées dont les résultats dépendent des objectifs de l'étude « *goal dependent* » car le choix des données à l'étape d'inventaire et les méthodes d'identification des impacts en dépendent [243].

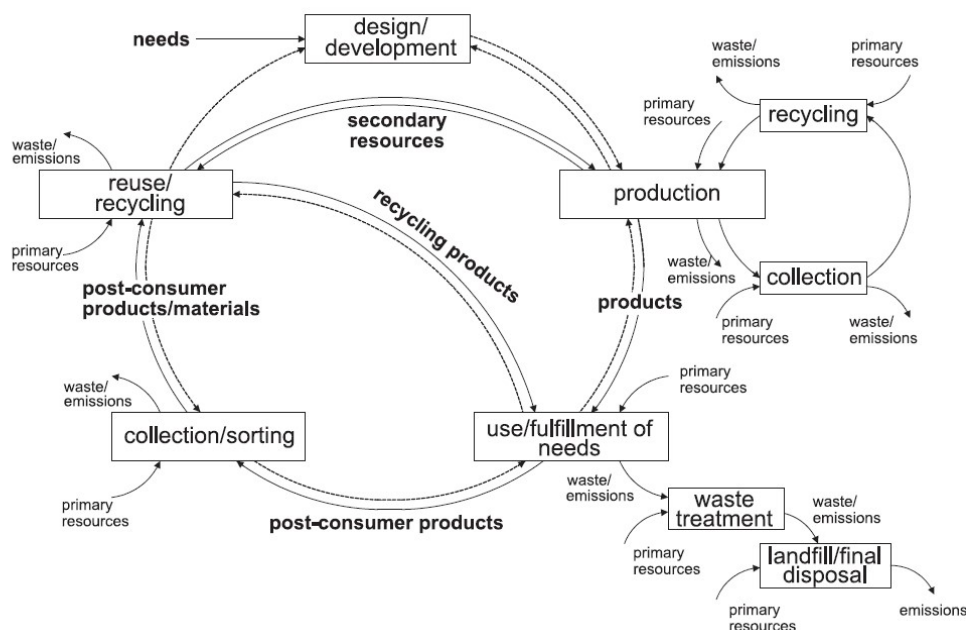


Figure B.I. 9 : Représentation schématique d'un cycle de vie générique d'un produit (les flèches pleines représentent les flux de matières et d'énergie, tandis que les flèches en pointillés représentent les flux d'information) [244]

I.3.3. Méthodologie de l'ACV

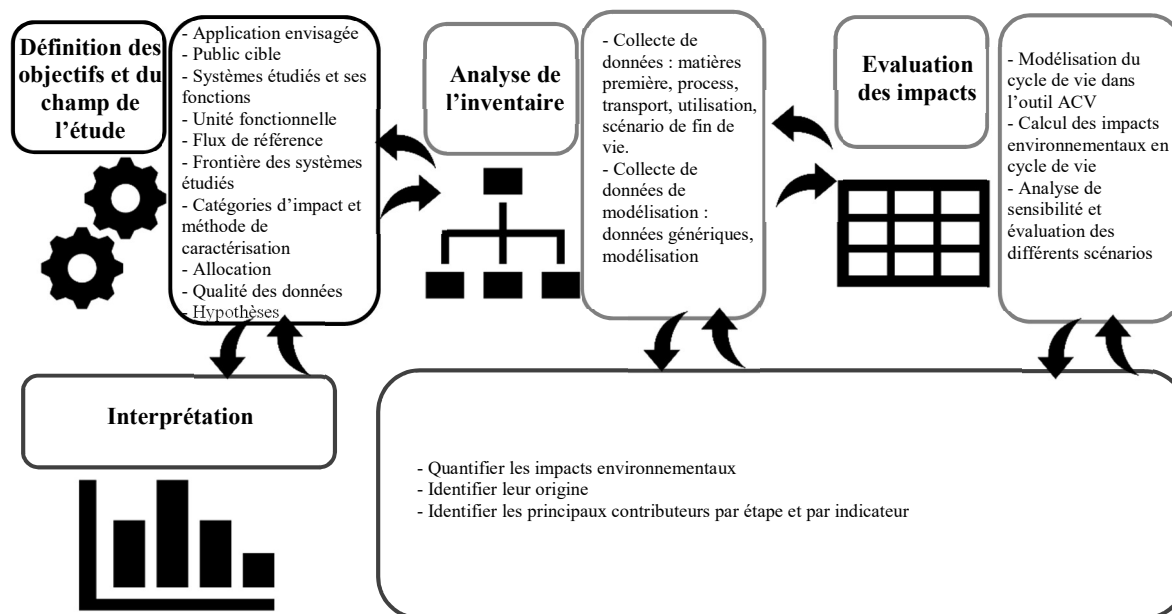


Figure B.I. 10 : Synthèse des étapes de cycle de vie conformément aux normes NF EN ISO 14040 [240] et NF EN ISO 14044 [241].

De manière générale, la méthodologie de l'ACV est régie par une série de normes, principalement les normes NF EN ISO 14040 [240] et NF EN ISO 14044 [241], qui formulent les exigences et les lignes directrices de cette étude en respectant quatre phases essentielles : la définition des objectifs et du champ de l'étude, l'inventaire, l'évaluation de l'impact et l'interprétation des résultats. Il s'ajoute à cela dans le secteur de la construction (bâtiment et ouvrage), la norme européenne NF EN 15804+A1 [52] qui définit les règles de l'étude ACV relative aux produits et services de ce secteur. La Figure B.I. 10 liste les étapes essentielles nécessaires pour la réalisation d'une ACV.

I.3.3.1. La définition des objectifs et du champ d'étude

Les objectifs et le champ d'étude d'une ACV doivent être bien définis afin de lever toute ambiguïté. Commenant par la quantification et l'identification du produit par la définition de son unité fonctionnelle (UF) et son flux de référence. L'UF permet de comparer, par la suite, des systèmes qui assurent la même fonctionnalité.

Les frontières du système doivent être explicitement définies car le degré de confiance d'une ACV en dépendra. En effet, un système est défini par une multitude de processus élémentaires. Afin de réaliser une ACV, il convient de définir les processus qui doivent être inclus dans chacune des étapes du cycle de vie. Le choix de ces processus et les étapes du cycle de vie inclus dans l'étude doivent être clairement mentionnés et justifiés tout en respectant les

objectifs de l'étude. Les intrants et les extrants peuvent être sélectionnés en se basant sur des critères de coupure [241]. La norme NF EN 15804+A1 [54] définit les critères de coupure relatives aux produits de construction.

I.3.3.2. Inventaire de cycle de vie

C'est une phase de recueil des données relatives aux différents processus de cycle de vie du produit, dont les intrants et extrants sont identifiés et quantifiés. La récolte des données respecte les objectifs et les champs d'études antérieurement définis. Dans le cas où ces conditions ne sont pas respectées en raison d'un manque de données une modification y sera apportée.

Les données peuvent être soit propres au produit, soit issues de bases de données génériques. La base de données ecoinvent[®] est l'une des plus grandes bases de données d'inventaires de cycle de vie actuel qui couvre divers secteurs [243].

Les méthodes de calcul des données des inventaires doivent être documentées de façon explicite avec l'indication et l'explication des hypothèses adoptées. Les flux de tous les processus élémentaires du système doivent être rapportés au flux de référence.

Lorsqu'un système ou un processus apporte plusieurs produits, processus multifonctionnel, une allocation des impacts ou des inventaires doit être appliquée [243]. Plusieurs solutions sont possibles [246]:

- Une subdivision du processus multifonctionnel en processus monofonctionnels.
- Une substitution par extension de la frontière du système pour enlever les impacts des coproduits non-étudiés.
- Une affectation physique (masse, énergie, etc.).
- Une affectation économique.

I.3.3.3. Evaluation des impacts

Tout échange entre la technosphère et l'écosphère, listé par les inventaires (intrant ou extrant), est traduit en impacts environnementaux. Ces flux élémentaires sont convertis à des indicateurs des catégories d'impacts grâce à des facteurs de caractérisation (voir Eq. B.I. 4). A titre d'exemple, les gaz à effet de serre (CO₂, méthane, propène ...) sont rapportés à une émission équivalente de CO₂. Un flux élémentaire (intrant ou extrant) peut contribuer dans une ou plusieurs catégories d'impacts. Ces dernières, appelées également catégorie d'impact

midpoint, peuvent être aussi amenées à des catégories de dommages, appelés *endpoint* (Santé humaine, Qualité de l'écosystème, Ressources), (Tableau B.I. 3).

$$I^j = \sum_i C_i^j \cdot m_i \quad \text{Eq. B.I. 4}$$

I^j : Indicateur de flux i pour la catégorie d'impact j ;

C_i^j : Contribution du flux i à la catégorie d'impact j , coefficient de caractérisation ;

m_i : Masse du flux i .

Tableau B.I. 3 : Catégories d'impact les plus utilisées dans l'étude ACV [247].

Catégorie de dommage	Catégorie d'impact
Santé humaine	Cancérogènes
	Organiques respiratoires
	Inorganiques respiratoires
	Changement climatique
	Radiation
Qualité de l'écosystème	Couche d'ozone
	Écotoxicité
	Acidification / eutrophisation
	Occupation des terres
Ressources	Minéraux
	Combustibles fossiles

Il existe une multitude de méthodes de caractérisation des catégories d'impacts, multicritère ou monocritère, dont le nombre d'indicateurs peut varier, selon la méthode employée, de 1 jusqu'à 50 [243]. La sélection de la méthode de caractérisation dépend des catégories d'impacts visées et cela en respectant les objectifs de l'étude.

Une étape optionnelle de l'évaluation de l'impact pourrait s'ajouter à cela : la normalisation. Selon la norme ISO 14044 (ISO 2006), la normalisation permet d'exprimer les résultats après l'étape de caractérisation en utilisant un impact de référence survenant dans une région de référence pour une certaine catégorie d'impact (par exemple, changement climatique, eutrophisation, etc.) au cours d'une année de référence. A titre d'exemple, la méthode EU25+3, 2000 qui représente l'impact en 2000 des 25 pays de l'union européenne de 2006 + l'Islande, la Norvège et la Suisse [248]. Donc, la normalisation s'effectue en divisant les résultats caractérisés par une estimation des émissions totales ou équivalentes par habitant dans cette catégorie d'impact associée à une région géographique entière [249]. Par exemple, le *midpoint* H de ReCiPe a une référence de normalisation européenne et mondiale, qui comparera les résultats en fonction des estimations des émissions annuelles par habitant en Europe ou dans le monde [249] :

$$NI_{a,i} = \frac{C_{a,i}}{NR_i} \quad \text{Eq. B.I. 5}$$

où $NI_{a,i}$ représente l'impact normalisé par année de la solution a dans la catégorie d'impact i, $C_{a,i}$ l'impact caractérisé de la solution a dans la catégorie d'impact i, NR_i : est la référence de normalisation représentant une région géographique spécifique pour la catégorie d'impact i dans les unités physiques (par an) correspondant à l'impact caractérisé $C_{a,i}$.

1.3.3.4. Interprétation des résultats

Les résultats fournis par l'ACV doivent être expliqués en identifiant les processus qui ont un impact potentiellement significatif sur l'environnement. Ces résultats ne représentent pas des données exactes et précises mais elles sont affectées par plusieurs sources d'incertitude [250]. Il est possible de varier certains paramètres sensibles de scénario de référence afin d'évaluer leurs impacts en faisant appel à une analyse de sensibilité.

1.3.4. Biocomposites et leur cycle de vie

Les études d'ACV issues de la littérature peuvent être classées en deux catégories (Tableau B.I. 4): des études appelées du berceau à la tombe à (*cradle to grave*) qui prennent en compte tout le cycle de vie d'un produit ; des études dites du berceau à la porte (*cradle to gate*) qui ne s'intéressent qu'à une partie du cycle de vie du produit, notamment sa production. Malgré leur ressource renouvelable, la phase agricole reste une étape polluante lors la production des fibres végétales. Selon Boutin et al. [251], la fertilisation azotée est la plus polluante lors de la culture du chanvre, notamment pour les catégories d'impacts relatives à l'émission de gaz à effet de serre (l'émission de protoxyde d'azote), à la consommation de ressources énergétiques non renouvelables et à la pollution de l'eau par l'émission de nitrates. Même constat a été soulevé par Kiessé et al. [252]. En revanche, la prise en compte de carbone stocké dans les fibres par la photosynthèse peut atténuer les impacts relatifs au changement climatique. Boutin [251] a constaté un effet favorable pour les fibres de chanvre vis-à-vis de l'effet de serre.

Les biocomposites sont des matériaux partiellement biosourcés (une des deux phases : fibres ou bien matrices) ou bien entièrement biosourcés (les deux phases). Un matériau biosourcé ne veut pas dire qu'il est moins impactant qu'un matériau pétrosourcé. Tabone et al. [187] ont affirmé, après avoir effectué une étude d'ACV sur 12 polymères (sept pétrosourcés, quatre biosourcés et un dérivé des deux), que les biopolymères sont très bien classés en termes de conception écologique, quoiqu'ils présentent des impacts environnementaux relativement

importants dus à leur production. Un classement a été effectué pour ces polymères. Une matrice de décision a montré une dispersion entre les biopolymères et les polymères pétroliers, dont le polymère le mieux classé est un pétrosourcé, le PP. Dans la même lignée Gourier [181] a conclu, lors d'une étude ACV comparative entre des composites biosourcés (fibres de Lin / Polyamide 11 (PA11)) et un composite conventionnel (fibres de verre/PP, fibres de verre/époxy, fibres de verre/polyester), que les étapes de production pourraient être pénalisantes pour un matériau biosourcé. Malgré son caractère renouvelable, le procédé de fabrication du PA11 a une importante contribution dans la consommation d'énergie et l'émission des gaz à effet de serre. Presque deux fois supérieur à ceux de PP.

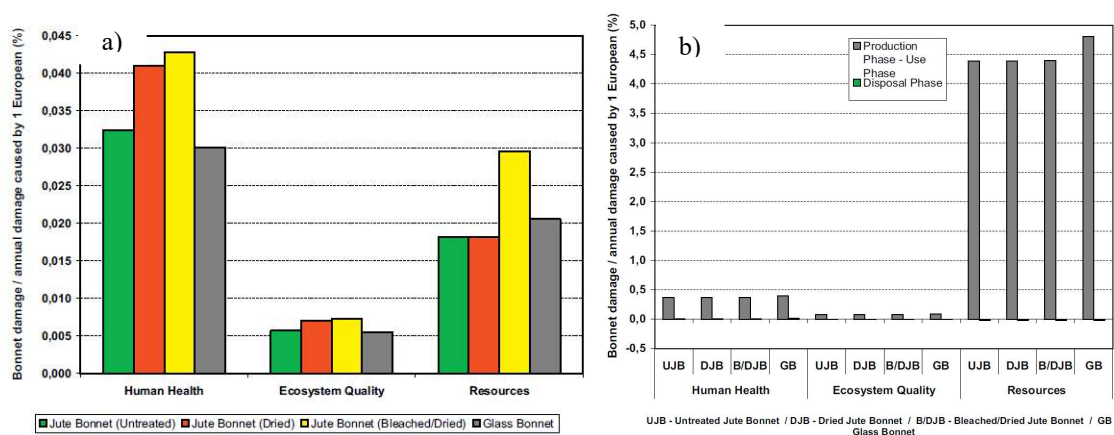


Figure B.I. 11 : Catégories de dommages de capot frontal d'une véhicule type buggy lors: a) la phase de production, b) le cycle de vie complet [247].

D'autre part, le bénéfice environnemental de l'utilisation des matériaux biosourcés n'est parfois pas remarquable à court terme. Alves et coll. [247] assigne que la phase de production des composites fibres de jute/polyester (pour une utilisation comme un capot d'un véhicule type buggy) a causé des dommages sur l'environnement plus qu'un composite conventionnel (fibres de verre/polyester). Cependant, lors de la phase d'utilisation, qui est considérée comme la plus polluante, la consommation de carburant de ces biocomposites est moindre grâce à leur faible masse conduisant à un effet bénéfique sur l'environnement en tenant compte de l'ensemble du cycle de vie (Figure B.I. 11).

L'effet néfaste de la phase de production peut être remédié en faisant recours à l'éco-conception. Ardente et al. [250] ont montré, par une étude de sensibilité pour l'optimisation du processus de fabrication, qu'on peut rendre un matériau biosourcé beaucoup moins impactant, (Figure B.I. 12).

Tableau B.I. 4 : Récapitulatif de quelques études d'ACV sur les matériaux biosourcés remportées de la littérature.

	Produit	Etape de cycle de vie	Unité fonctionnel	Allocation	Séquestration de carbon	Méthode
Gourier [181]	Composite (fibres de Lin / PA11)	Berceau à la porte	« Une plaque en composite de 25 cm de largeur et de 25 cm de longueur (soit 625 cm ²), avec des performances en traction identiques au matériau de référence et permettant de satisfaire un cahier des charge équivalent »	- Massique	Oui	- ReCiPe 2008 - Cumulative Energy Demand (CED)
Boutin et al. [251]	Composite (fibres de Chanvre/PP)	Berceau à la porte	« Kilogramme de compound thermoplastique chargé fibres de chanvre (70% PP et 30% fibre de chanvre) »	- Massique - Economique	Oui	- CML - méthode des volumes critiques
Adrianandraina et al. [253]	Paille de chanvre	Berceau à la porte	« <i>The production and harvesting of one kilogram of hemp straw</i> »	- Massique - Economique	-	- CML 2001 - CED
Kiessé et al. [252]	Composite (fibres de Chanvre /polyester)	Berceau à la porte	« <i>To supply three square meters (m²) of insulation board with a thermal resistance of 2.44 K.m²w⁻¹ and to supply one square meter (m²) of wall with a thermal resistance of 2.36 K.m²w</i> »	- Massique - Economique	-	- CML 2001 - CED
Alves et al. [247]	Composite (fibres de Jute / polyester)	Berceau à la tombe	« <i>The engine cover of 0.35 m² which achieves the required mechanical and structural performance</i> »	-	-	- Eco-Indicator 99
Ardente et al. [250]	Composite (fibres de Kenaf /polyester)	Berceau à la tombe	« La masse (kg) du panneau isolant qui implique une résistance thermique R de 1 (K.m ² / W) »	- Massique	-	
Schmehl et al. [254]	Composite (fibre de Chanvre / PTP)	Berceau à la tombe	« <i>A body component casing the middle section between the headlights above the fender of a MAN-passenger-bus of the series A10/A11 with the MAN-reference number 81.79.201-6017</i> »	- Extension du système - Massique	-	- Eco-indicator 99 - CED
ADEME [246]	Composite (fibres Lin / Chanvre / PP)	Berceau à la tombe	« Satisfaire le cahier des charges du constructeur automobile pour l'utilisation d'un panneau de porte avant dans un véhicule essence de type « Routière » (segment H1), pour une distance totale de 150 000 km parcourus pendant 10 ans »	- Massique - Economique	-	- ILCD - LCI results - CED - impact 2002+
Beigbeder et al. [179]	Composites : - Farine de bois / PP - fibres de Lin / PLA	Berceau à la porte	« <i>To manage 1 ton of biocomposite wastes</i> »	- Extension du système	-	ReCiPe hybride

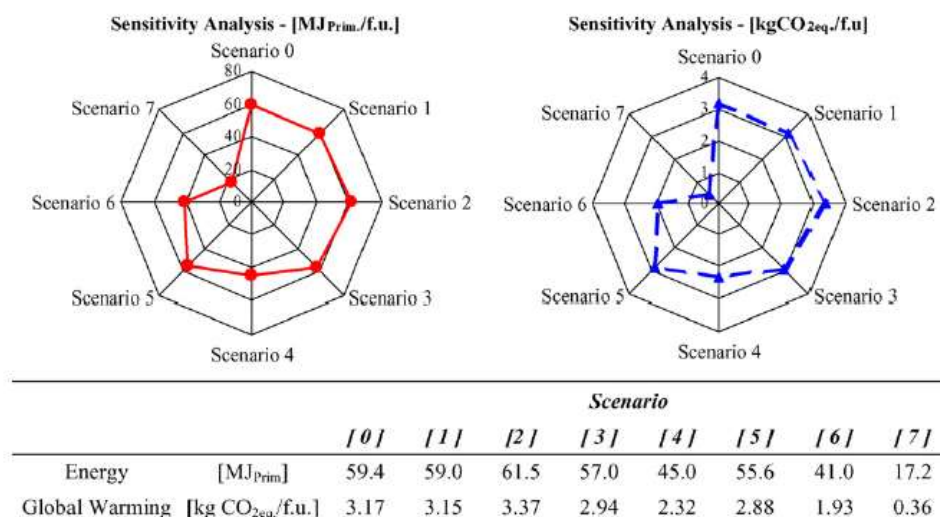


Figure B.I. 12 : Etude de sensibilité de cycle de vie d'un matériau biosourcé à base des fibres de Kenaf [250].

D'autre part, lorsque le cycle vie de d'un biocomposite est bien maîtrisé, l'impact environnemental est significativement réduit. Lors une étude d'ACV réalisée par ADEME [246], il a été avéré que l'usage des panneaux de porte à base des fibres de lin, chanvre dans une matrice PP est nettement bénéfique à l'environnement comparé à des panneaux conventionnels en ABS. Sur l'ensemble du cycle de vie ces panneaux biosourcés ont présenté des avantages environnementaux significatifs sur les indicateurs du changement climatique, de la formation d'ozone photochimique, de l'énergie totale et de l'énergie non-renouvelable. Entre autres, Schmehl et al. [254] ont analysé les impacts environnementaux causés par le composant de la carrosserie d'un bus à base de matières premières renouvelables (chanvre/PTP) par-rapport au système de produits conventionnel (fibres de verre/polyester). Le système de produits à base de matières premières renouvelables avait des impacts environnementaux inférieurs environ de 50% par-rapport au composant de référence. Une optimisation du processus de ce biocomposite a permis de réduire davantage les impacts environnementaux.

Plusieurs scénarii de fin de vie sont envisageables pour les biocomposites : mise en décharge, incinération avec récupération d'énergie, recyclage mécanique et compostage industriel, digestion anaérobie. Cependant, à cause de sa récente utilisation et sa faible part dans le marché, les tonnages de déchets de biocomposites est encore faible et des secteurs spécifiques de gestion des déchets ne sont toujours pas organisés. Beigbeder et al.[179], ont comparé plusieurs scénarii de fin de vie pour les biocomposites farine de bois/PP et fibres de Lin / PLA. Il a été avéré que le scénario de fin de vie du recyclage présente les impacts environnementaux les plus faibles, suivi du compostage industriel pour les composites fibres de Lin/PLA et de

l'incinération pour les fibres de bois/ PP. La valorisation énergétique et la mise en décharge sont les scénarii de fin de vie les moins intéressants compte tenu de leurs impacts environnementaux.

Le choix des inventaires et leurs affectations pourraient affecter les résultats de l'étude ACV. Andrianandraina [243] a proposé, pendant sa thèse, une approche pour mener une ACV en la combinant à une analyse de sensibilité (AS). La méthode proposée a été appliquée au stade agricole de la production de chanvre [253]. Il s'est avéré qu'en utilisant un scénario technologique favorable, les impacts environnementaux de la culture peuvent être réduits de -11% à -89% selon la catégorie d'impact considérée. A titre d'exemple, le mode de la culture, battue (culture avec production de graines) ou non battue (culture sans production de graines), pourrait influencer de 48% l'occupation du sol, 25% sur le changement climatique et la demande d'énergie et de 10% sur l'eutrophisation. Boutin et al. [251] ont attesté que l'allocation économique pénalise la fibre par-rapport à la chènevotte pour l'ensemble des impacts à l'exception de l'effet de serre. Alors que Kiessé et al. [252] ont détecté une influence bénéfique de l'allocation économique pour les fibres de Chanvre pour les catégories d'impacts tels que le changement climatique, l'acidification, l'eutrophisation et l'occupation du sol. D'autre part, Andrianandraina [253] a constaté que la méthode d'allocation par partition économique semble plus bénéfique pour la paille que les grains en raison de la valeur économique de ces derniers.

Chapitre II : Méthodes de caractérisations et mise en œuvre des biocomposites.

Ce chapitre présente les méthodes et protocoles retenus pour la mise en œuvre des composites à base de fibres de Diss, ainsi que les techniques employées pour les caractériser. Statistiquement parlant, pour les essais avec plusieurs répétitions des mesures, l'incertitude-type élargie avec un facteur d'élargissement de 2 a été utilisée.

II.1. Mesures physiques

II.1.1. Masse volumique

La densité des biocomposites a été déterminée par la méthode de la pesée hydrostatique. Cette méthode consiste à peser l'échantillon à deux reprises, une dans l'air (A) et une autre dans un liquide (B) dont sa masse volumique est préalablement connue (ρ_l). La différence entre ces deux pesées représente le poids du liquide déplacé par l'échantillon. Par conséquent, le volume de ce dernier a été déduit.

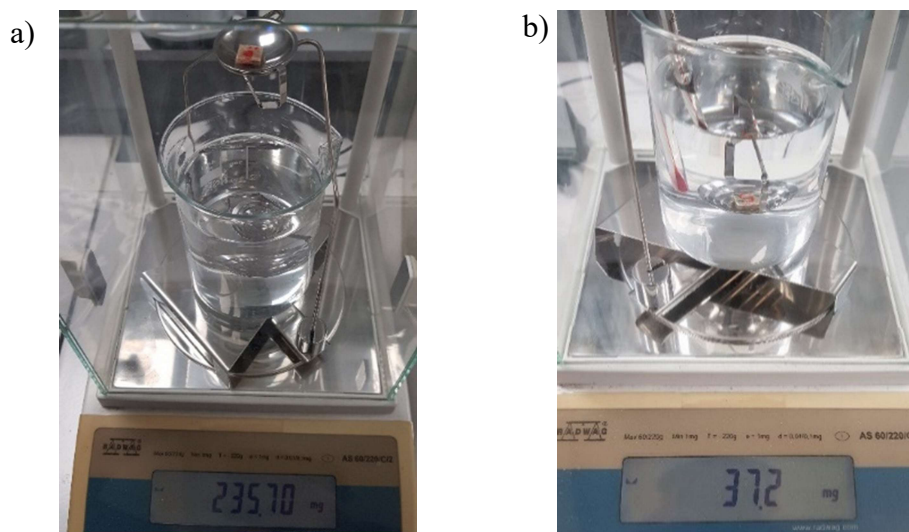


Figure B.II. 1 : Balance Sartorius dotée d'un dispositif de mesure en suspension : a) pesée dans l'air, b) pesée dans l'éthanol.

Pour chaque biocomposite, trois échantillons d'une dimension de $10 \times 10 \text{ mm}^2$ ont été prélevés sur des endroits différents de la plaque puis séchés pendant 48h dans une étuve à 60°C . L'éthanol a été choisi comme liquide grâce à sa faible masse volumique comparée à celle des biocomposites. Une balance Sartorius (1/1000) dotée d'un dispositif de mesure en suspension a été utilisée pour réaliser les pesées (Figure B.II. 1). La masse volumique d'éthanol était donnée par le fournisseur, et celle des biocomposites a été calculée par l'équation suivante :

$$\rho_c = \frac{A}{A - B} \times \rho_l \quad \text{Eq. B.II. 1}$$

Où ρ_c représente la masse volumique de composite en g/cm^3 , A le poids de biocomposite dans l'air en g, B le poids de biocomposite dans l'éthanol en g et ρ_l la masse volumique de l'éthanol en g/cm^3 .

II.2. Absorption d'eau par immersion

Pour chaque composite, trois échantillons de dimension de $20 \times 20 \text{ mm}^2$ ont été prélevés de chaque plaque, puis colmatés sur les côtés grâce à une résine acrylique transparente fournie par Electrolube (Figure B.II.2). Ceci dans le but de s'affranchir de l'effet d'échelle et contrôler la direction de diffusion d'eau suivant l'épaisseur. Quant à la matrice PP, trois échantillons de feuilles de dimension $70 \times 90 \times 1$ ont été préparés.

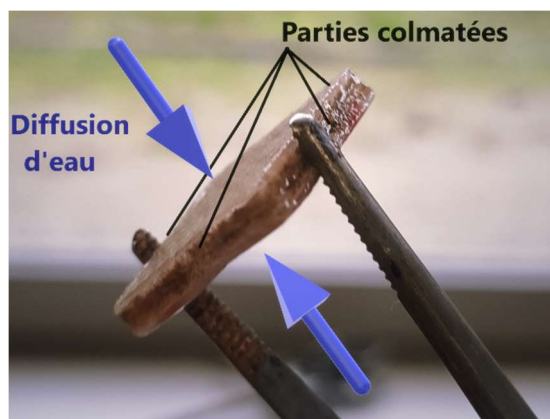


Figure B.II.2 : Échantillon utilisé pour l'essai d'absorption d'eau des biocomposites.

Ces échantillons ont été séchés jusqu'à une variation de masse constante (m_0), (voir § A.II.1.3), puis refroidis et plongés dans l'eau à température ambiante. Les pesées ont été effectuées continuellement (m_i) pendant environ 4 mois ; ensuite, l'absorption a été accélérée en appliquant une température de 60°C jusqu'à la saturation. Avant chaque relevé de masse, les échantillons sont essuyés à l'aide d'un papier absorbant afin d'éliminer les gouttes d'eau présentes sur la surface. Le taux d'absorption d'eau (W) a été calculé selon l'équation suivante :

$$W (\%) = \frac{(m_i - m_0)}{m_0} \times 100 \quad \text{Eq. B.II. 2}$$

II.3. Microscopie

En complément des techniques décrites dans la partie A, un vidéo-microscope 3D (HIROX RH-2000) a été utilisé (Figure B.II.3). Ce microscope est doté d'un mécanisme de balayage en plan et en hauteur qui permet d'observer une large surface avec une grande profondeur de champ.



Figure B.II.3: Vidéo-microscope 3D, HIROX RH-2000.

Les échantillons ont été préparés par enrobage en suivant la méthode décrite dans la partie A pour les fibres, puis analysés afin d'observer leur microstructure. La microstructure a été observée par vidéo-microscope 3D ainsi que par MEB.

II.4. Analyses thermiques

Le DSC à flux de chaleur de Perkin Elmer 4000 (Figure B.II.4) a été utilisé pour caractériser la matrice afin d'optimiser le protocole de mise en œuvre des biocomposites. Cet appareil, doté d'un groupe de froid, permet de faire des mesures de flux de chaleur sur une gamme de température de -90 jusqu'à 450°C, ceci avec une vitesse de chauffe qui varie de 0,1 à 50°C/min sous une atmosphère contrôlée par l'azote. Ce DSC est piloté par le logiciel Pyris dont le programme de température des tests est introduit préalablement.

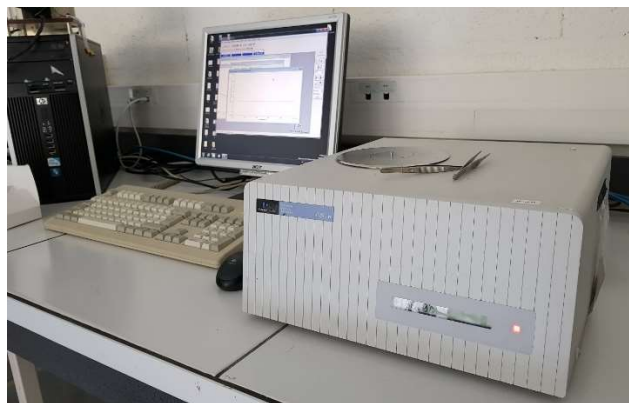


Figure B.II.4 : DSC Perkin Elmer 4000.

Un cycle de chauffage/refroidissement de température ambiante jusqu'à 200°C a été utilisé avec une vitesse de chauffe fixée à 10 °C/min. Les échantillons ont été placés dans des capsules en aluminium et leurs masses varient entre 5 à 30 mg. Chaque échantillon a subi deux cycles, le premier a pour but d'enlever les impuretés et le deuxième pour la caractérisation.

II.5. Essais mécaniques

II.5.1. Essais de traction

Les tests de traction sur les biocomposites ont été assurés par des machines Instron 3356 et 5566 (présentées dans la partie A) équipées chacune d'une cellule d'effort, respectivement, de 500 kN et 1kN. Tous les essais ont été réalisés sous les conditions ambiantes du laboratoire, avec une température d'environ 23°C et une humidité relative entre 55 et 65 %. Cinq éprouvettes de type 1B ont été prélevées de chaque plaque par un emporte-pièce conformément à la norme ISO 527-4 [73] (Figure B.II.5.a).

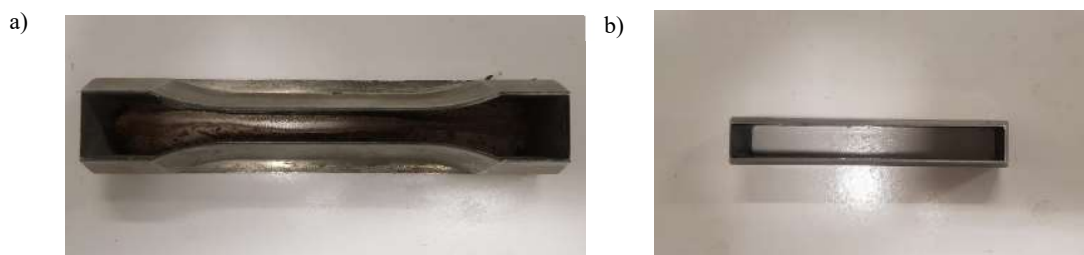


Figure B.II.5 : Eprouvettes des essais mécaniques : a) Emporte-pièce pour les éprouvettes Type 1B, b) Emporte-pièce pour les éprouvettes de flexion.

Dans un premier temps, et afin de déterminer le module de Young, la cellule d'effort de 500N a été utilisée et les éprouvettes ont été sollicitées à des petites déformations, moins de 0.4%. Afin d'éviter un éventuel glissement entre les mors et les éprouvettes, un extensomètre INSTRON d'une longueur de jauge de 50 mm a été employé. Pour cette étape, la vitesse de déformation a été fixée à 0.5 mm/min selon les recommandations de la norme ISO 527-4 [73].

Dans un deuxième temps, les mêmes éprouvettes ont été sollicitées jusqu'à la rupture en utilisant une cellule d'effort de 1 KN avec une vitesse de chargement de 5 mm/min, puis les courbes contraintes/déformations résultantes ont été ajustées afin d'avoir un module similaire à celui déterminé précédemment.

II.5.2. Essais de flexion

Afin de déterminer les propriétés en flexion des biocomposites et la matrice, des essais de flexion de trois points ont été élaborés. La machine INSTRON modèle 3366 muni d'une cellule de charge de 500N a été utilisée. Les essais ont été réalisés sous les conditions ambiantes du laboratoire avec une vitesse de chargement de 2 mm/min et une portée de 64 mm conformément à la norme ISO 14125 [256]. Pour chaque matériau, cinq éprouvettes (80×10 mm²) prélevées par un emporte-pièce (Figure B.II.5.b) ont été testées.

La contrainte en flexion et le module d'élasticité ont été déterminés, respectivement, par les équations suivantes :

$$\sigma_f = \frac{3FL}{2bh^2} \quad \text{Eq. B.II. 3}$$

$$E_f = \frac{L^3}{4bh^3} \left(\frac{\Delta F}{\Delta s} \right) \quad \text{Eq. B.II. 4}$$

Où σ_f représente la contrainte en flexion (MPa), E_f le module de flexion (MPa), F la force (N), L la porte (mm), h l'épaisseur (mm), b la largeur (mm), Δs la variation de flèche entre (s'') et (s') qui correspondent, respectivement, à des déformations en flexion de 0,0025 et 0,0005 et ΔF la variation de force entre F'' pour la flèche s'' et F' pour la flèche s' .

II.5.3. Essais de choc Charpy

Cet essai permet de mesurer la résilience des matériaux. Il consiste à casser une éprouvette, entaillée ou non, par le choc d'un pendule lâché d'une hauteur H_1 . Une fois l'éprouvette est rompue, le pendule remonte à une hauteur H qui varie selon l'énergie absorbé par l'éprouvette.

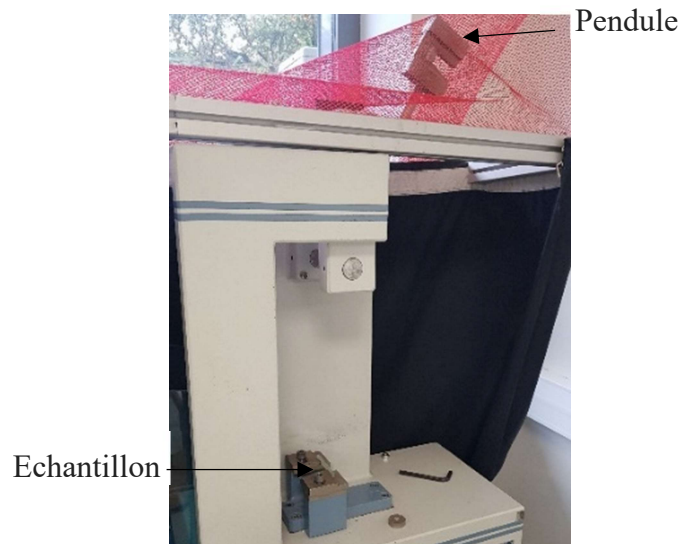


Figure B.II.6 : Appareil CEAST 6545 utilisé pour l'essai de choc Charpy.

L'appareil CEAST 6545 (Figure B.II.6) a été utilisé pour les essais de choc Charpy à plat sur les biocomposites. A ce titre, cinq éprouvettes, similaires à celles de la flexion, ont été utilisées en accord avec la norme NF 51-035-1[18]. La distance entre les points de contact de l'éprouvette avec les supports (L) a été choisie en fonction de l'épaisseur de l'éprouvette, conformément à la précédente norme. La résistance au choc Charpy, résilience (a_{cU}), est calculée par l'équation suivante :

$$a_{cU} = \frac{A}{hb} 10^3 \quad \text{Eq. B.II. 5}$$

Où A représente l'énergie de choc absorbée par l'éprouvette, donnée par la machine, en J.

II.6. Essais du vieillissement cyclique par immersion dans l'eau

Les biocomposites à base des fibres de Diss ont subi un vieillissement cyclique (saturation/séchage) par immersion dans l'eau du robinet.

A cet égard, des éprouvettes ($10 \times 80 \text{ mm}^2$), de chaque biocomposite et de PP, ont subi cinq cycles de saturation/séchage. Les échantillons ont été pesés à plusieurs reprises à la fin de chaque demi-cycle et le passage d'un demi-cycle à l'autre a été effectué lorsque la variation de masse se montre constante pendant trois mesures consécutives pendant trois jours.

En se référant à la littérature, il s'est avéré que lorsque la température de vieillissement est inférieure à 70°C les composites fibres végétales/PP ne subissent aucune perte de masse [191]. Cependant, cela n'a pas été le cas pour d'autres biocomposites à 80°C quand le taux d'humidité est élevé [238]. En se basant sur ces données, deux températures de vieillissement ont été

utilisées : 60°C afin d'accélérer le vieillissement et 90°C pour provoquer une hydrolyse représentant un vieillissement plus agressif.

Les tests mécaniques ont été réalisés sur trois éprouvettes pour chaque composite et matrice après le premier cycle, le troisième cycle et le cinquième cycle de vieillissement à 60°C. Quant au vieillissement à 90°C, les tests sont réalisés seulement après le cinquième cycle. Dans un premier temps, les éprouvettes ont été testées en traction à des faibles déformations afin de déterminer le module de Young suivi par un essai de flexion selon les méthodes décrites ci-avant. Les résultats de traction sur ce type d'éprouvette ont été validés par des tests préliminaires. Avant chaque test mécanique les échantillons ont été conditionnés pendant 48h à une température et une HR ambiantes (23°C, 65%).

II.7. Protocole de mise en forme des biocomposites

II.7.1. Choix de la matrice

Dans notre démarche basée sur le principe de l'éco-conception de notre matériau composite, la matrice choisie doit remplir quelques exigences relatives à l'environnement ainsi qu'à sa fonction dans la structure. Un bardage joue un rôle de protection des matériaux d'isolation et il pourrait, également, y contribuer. La matrice thermoplastique, Polypropylène, semble être le bon choix pour une telle application grâce aux avantages qu'elle représente, notamment ses faibles masse volumique, conductivité thermique, perméabilité et impact environnemental, ainsi que le fait qu'elle soit recyclable (voir § *B. I*).

Le polypropylène, type homopolymère, préformé en feuilles de 1 mm d'épaisseur a été fourni par DVPLAST.

II.7.2. Méthode de mise en forme des biocomposites

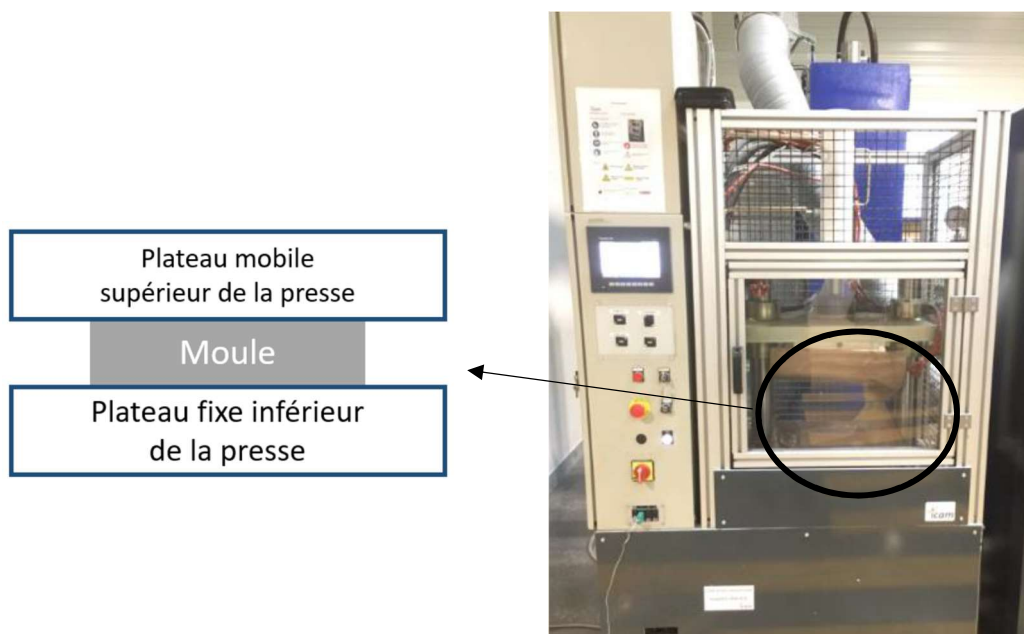


Figure B.II.7 : Presse hydraulique utilisée pour la mise en forme des biocomposites.

La méthode de moulage par thermocompression a été utilisée afin de confectionner des plaques de différents biocomposites fibres de Diss /PP. Pour cela, une presse hydraulique (Figure B.II.7) a été employée. Cette presse permet de chauffer et presser tout type de matériaux, tout en assurant un chauffage et refroidissement autonome. Le système de presse est composé d'un plateau inférieur fixe ($24 \times 24 \text{ cm}^2$) et d'un plateau supérieur mobile ($24 \times 24 \text{ cm}^2$) activé par un vérin hydraulique avec une pression maximale admissible dans le circuit de 215 bars. Les plateaux inférieur et supérieur sont dotés de cartouches chauffantes et de sondes thermiques. Le refroidissement est géré par des électrovannes permettant de faire circuler de l'air à des températures supérieures à 60°C , puis de l'eau à moins de 60°C , cela dans deux circuits séparés. La vitesse de chauffage maximale est de $5^\circ\text{C}/\text{min}$.



Figure B.II.8: Moule dédié à la confection des plaques (TFD/PP).

Répondant aux dimensions des plateaux de la presse, un moule avec son couvercle en acier ont été conçus d'une certaine façon pour qu'ils s'emboîtent d'une manière parfaite l'un dans l'autre (Figure B.II.8). Le fond du moule a été adapté aux dimensions des plateaux de la presse ($24 \times 24 \text{ cm}^2$) afin d'assurer une répartition uniforme de la température par conduction. Par conséquent, les plaques produites ont des dimensions similaires avec une épaisseur qui varie entre 2.5 et 4 mm selon la quantité de matière employée. Dans le but de faciliter le démoulage, deux feuilles de Téflon autocollantes ont été fixées dans le fond du moule et sur le couvercle (Figure B.II.9). Sous ces dernières, deux grillages en téflon, préalablement coupés ($24 \times 24 \text{ cm}^2$), ont été placés afin de chasser l'air piégé dans le moule lors de la mise en œuvre et assurer une bonne qualité des composites (Figure B.II.10).

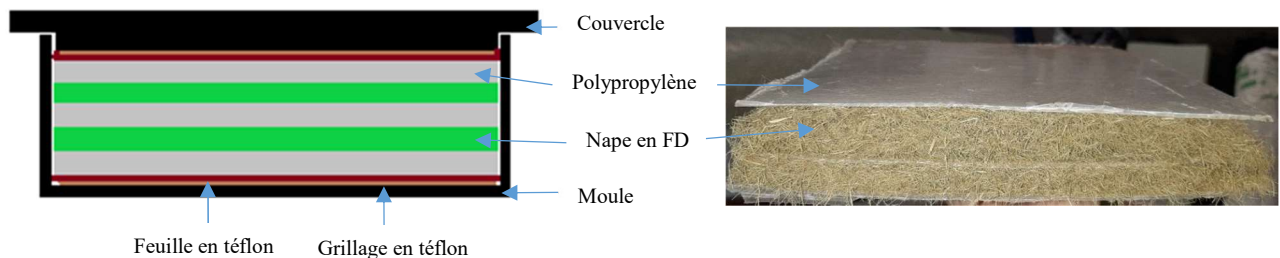


Figure B.II.9 : Multicouche PP/TFD avant le moulage par thermocompression.

Les composites ont été préparés suivant les étapes ultérieures : un multicouche composé de trois plaques en PP et de deux nappes en fibres de Diss (dispersées aléatoirement) alternées (Figure B.II.9) a été introduit dans le système moule/couvercle, puis l'ensemble a été placé entre les deux plateaux de la presse. Le moule et la presse ont été préchauffés à la température voulue. La température et la pression sont pilotées par l'utilisateur grâce à un panneau de commande digital. Les fibres utilisées ont été séchées par anticipation à $60 \text{ }^{\circ}\text{C}$ pendant 48 h.

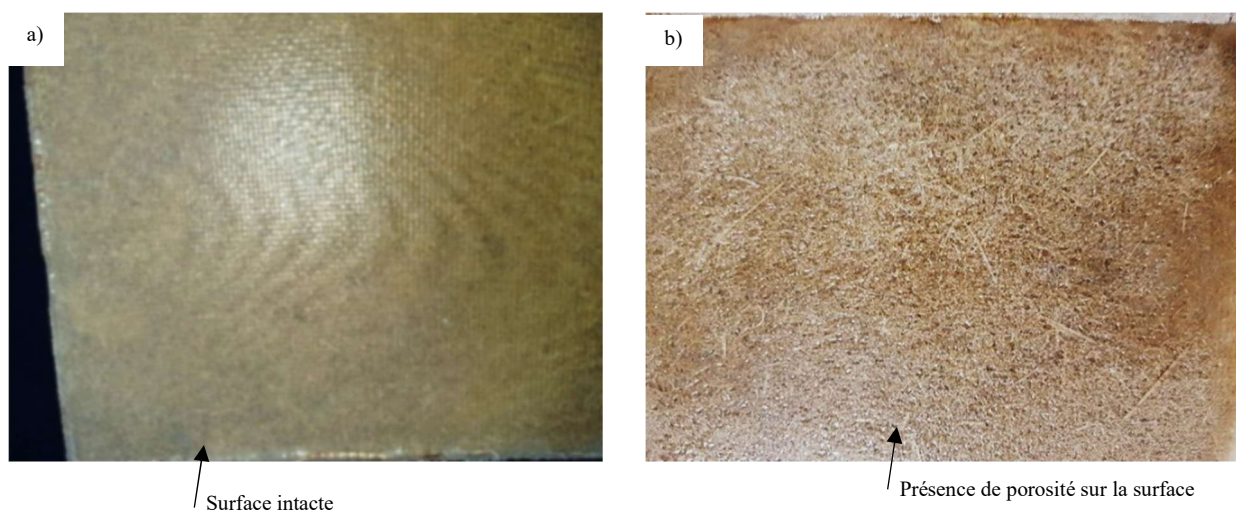


Figure B.II.10 : Composite fibres de Diss/PP produit en utilisant : a) un grillage de téflon, b) sans grillage de téflon.

La Figure B.II.11 représente le thermogramme de PP pendant un cycle de chauffage/refroidissement. Un pic endothermique et un autre exothermique sont apparus sur le thermogramme, respectivement, pendant les cycles de chauffage et de refroidissement. Ces pics correspondent à la température de fusion et de cristallisations de PP, respectivement, à 152°C et à 115°C. A la lumière de ces résultats et des essais préliminaires, la température de chauffe de la presse a été fixée à 180 °C ; cette valeur est idéale pour préserver les fibres qui se dégradent à partir de 200°C. La pression maximale, quant à elle, a été fixée à 80 bars ; cela permet de bien compacter le composite et faire chasser l'air.

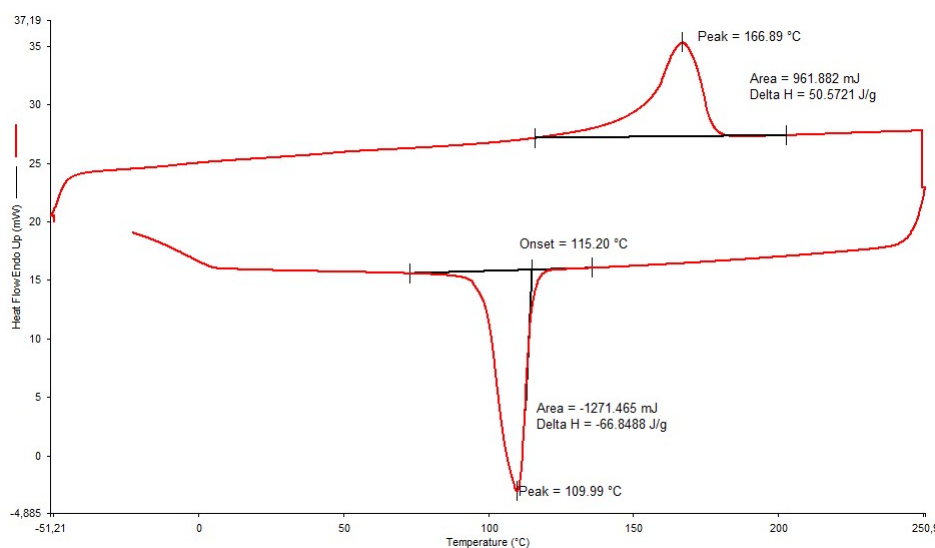


Figure B.II.11 : Thermogramme de PP pendant un cycle chauffage/refroidissement.

Pour conclure, le programme suivant a été adopté pour la fabrication des différentes plaques fibres de Diss/PP (Figure B.II.12) :

- 3 min sans pression à 180° ;
- 4 min à 20 bars à 180° avec une montée de 25 bars/min incluse ;
- 4 min à 40 bars à 180° avec une montée de 25 bars/min incluse ;
- 3 min à 60 bars à 180° avec une montée de 25 bars/min incluse ;
- 3 min à 80 bars à 180° avec une montée de 25 bars/min incluse ;
- Refroidissement du moule par trempage dans l'eau.

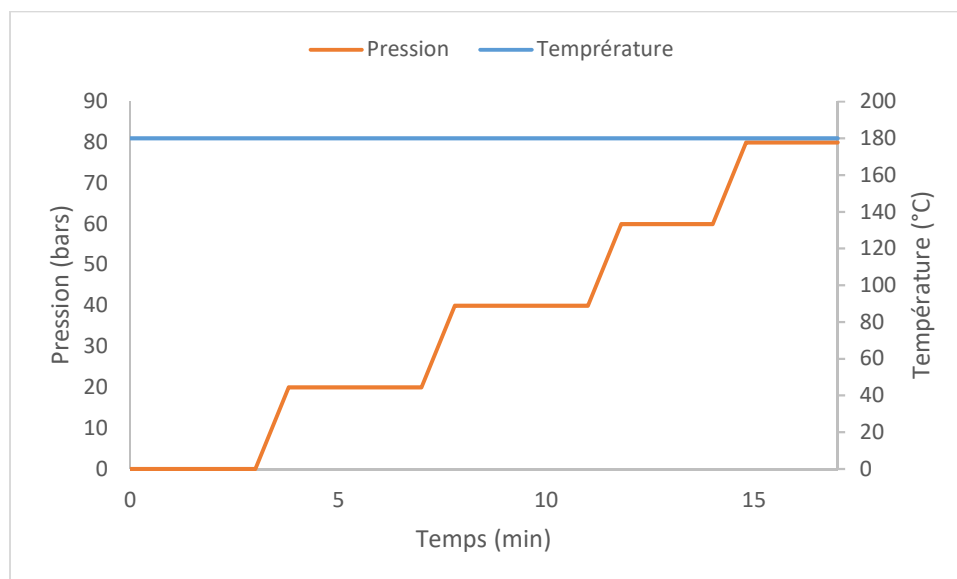


Figure B.II.12 : Programme pression/température adapté pour le processus de thermocompression.

Le Tableau B.II.1 regroupe les différentes plaques composites fabriquées et les méthodes de caractérisations associées. Les abréviations UPP-x%, NPP-x%, TPP-x%, APP-x% et SPP-x% signifient : les composites de polypropylène chargés respectivement par UTFD, NTFD, TTFD, ATFD et STFD à x% fraction massique des fibres. Les composites à base des fibres de Lin et de Chanvre ont été également étudiés à 30% de chargement et dénommés respectivement LPP-30% et CPP-30%. Le taux massique des fibres a été déterminé à partir des quantités de matières introduites, la masse des fibres et de PP.

Chapitre B.II : Méthodes de caractérisations et mise œuvre des biocomposites

Tableau B.II.1 : Récapitulatif des plaques composites étudiées et les méthodes de caractérisation appliquées.

	Taux (%)	Microstructure	Masse volumique	Essais de Traction	Essais de Flexion	Essais de Choc	Absorption	Vieillessement
PP	0		X	X	X	X	X	X
UPP-5%	4.90		X			X	X	
UPP-10%	9.10		X	X	X	X	X	
UPP-15%	13.70		X			X	X	
UPP-20%	19.10		X			X	X	
APP-10%	9.30	X	X	X	X	X	X	X
TPP-10%	9.20	X	X	X	X	X	X	X
SPP-10%	10.00	X	X	X	X	X	X	X
NPP-10%	10.30	X	X	X	X	X	X	X
NPP-20%	18.60	X	X	X	X			
NPP-30%	30.10	X	X	X	X			
NPP-40%	37.40	X	X	X	X			
LPP-30%	30.60		X	X	X			
CPP-30%	30.40		X	X	X			

Chapitre III: Caractérisation mécanique des composites à base des fibres de Diss

III.1. Evaluation de l'effet des traitements sur les propriétés des composites

III.1.1. Microstructure

Les Figure B.III.1 et Figure B.III. 2 regroupent les clichés MEB du composite APP-10%.

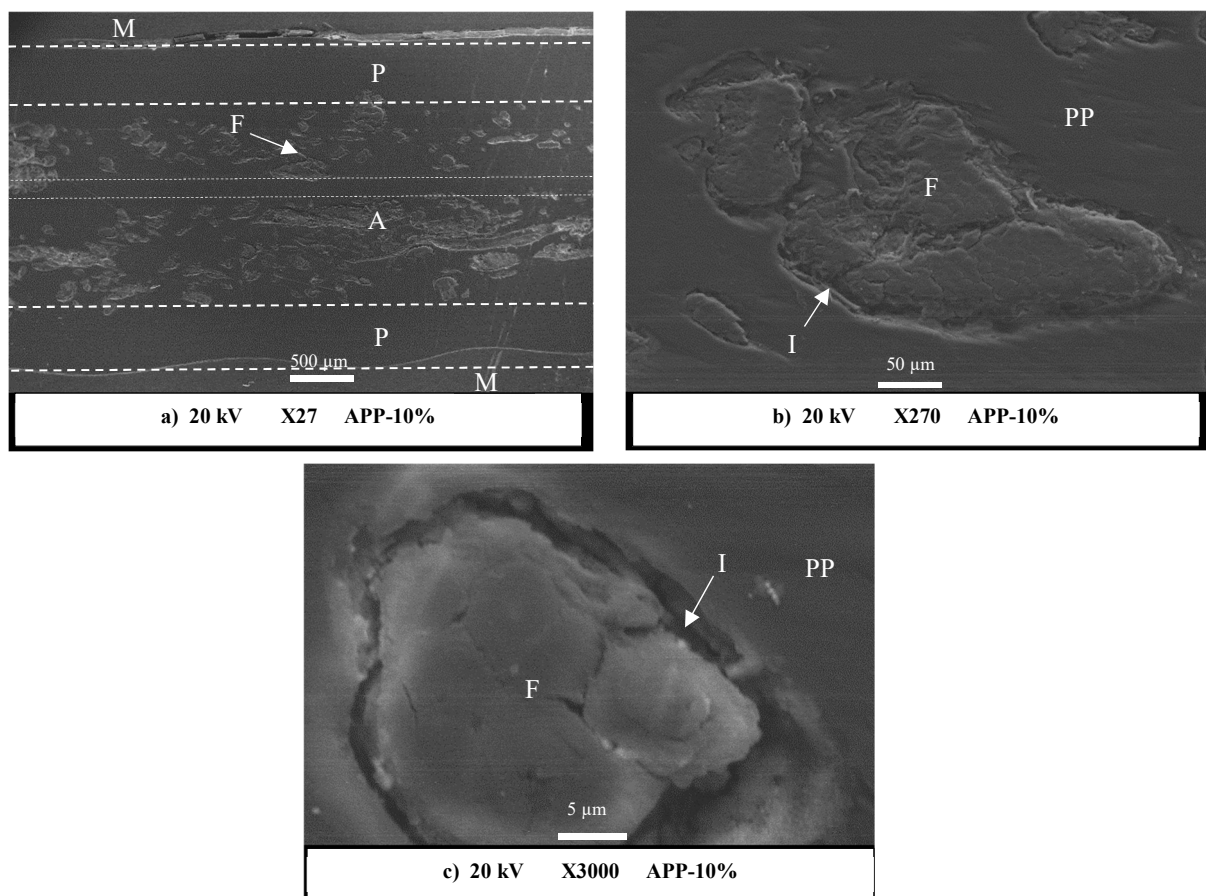


Figure B.III.1 : Observations MEB menées sur le plan transversal de APP-10%. A : couche active, P : peau, PP : polypropylène, F : fibres de Diss, M : matrice d'enrobage, I : Interface fibre matrice.

La Figure B.III.1 présente les observations menées sur le plan transversal de l'échantillon. Il a été observé (figure B.III.1 cliché (a)) que le composite présente une structure stratifiée en 3

couches : deux couches de peau, matrice seule, sur les parties extérieures et une couche au milieu, active, plus épaisse dont les ATFD sont réparties dans la matrice PP. Au sein de celle-ci, nous pouvons également distinguer 3 sous-couches, dont deux où la présence des fibres est importante, séparées par une fine sous-couche composée que de PP. Cette architecture multicouche du composite est la conséquence de la méthode de mise en œuvre employée, (voir § B. II. 7.2). À cet agrandissement, aucune présence de porosité n'a été observée et les fibres semblent bien entourées par la matrice. En agrandissant davantage, toujours sur le même plan (B.III.1 cliché (b) et (c)) une décohésion entre les fibres et la matrice est nettement observable, indiquant une mauvaise adhérence entre les fibres et la matrice. L'épaisseur de cette zone interfaciale semble relative à la taille des fibres. Ces constats sont souvent soulevés dans la littérature lors de l'utilisation d'une telle matrice avec les fibres végétales [192], [196], [258].

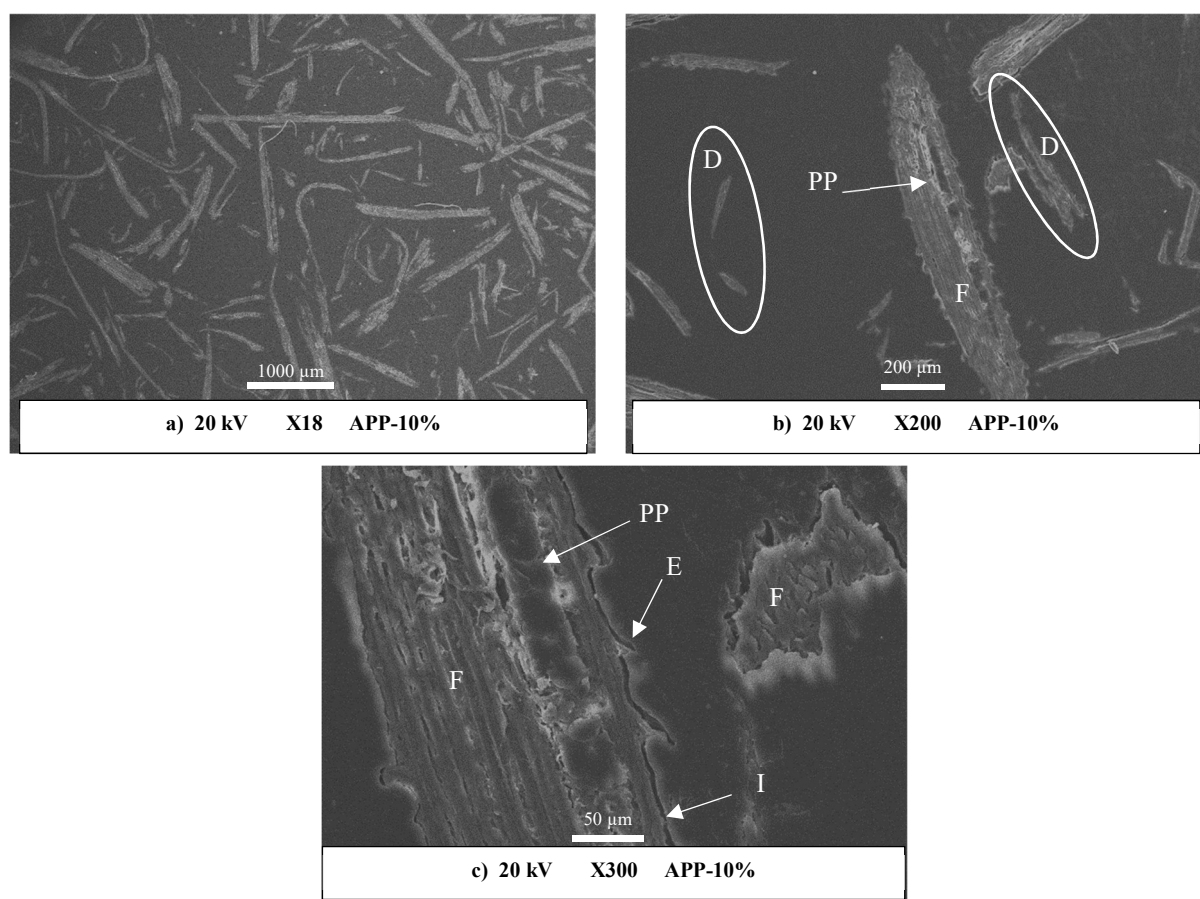


Figure B.III. 2 : PP : Observations MEB menées sur la couche active de ATFD-10%. PP : polypropylène, F : fibres de Diss, I : Interface fibre matrice, E : épine, D : discontinuité.

L'observation de la couche active en plan a été rapportée dans la Figure B.III. 2. Avec un agrandissement de $\times 17$ (Figure B.III. 2 cliché (a)) les fibres semblent être bien entourées par la matrice et dispersées d'une façon homogène et aléatoire sans présence ni de fissures, ni de porosité au sein de la matrice. Lorsque le grossissement est important, la décohésion est

nettement observable. Nous pouvons, aussi observer la présence des épines dans les fibres qui semblent fournir plus d'adhérence mécanique aux fibres avec la matrice (Figure B.III. 2 cliché (c)).

D'autre part, la géométrie des fibres observée ne représente pas la géométrie complète des fibres de Diss, cela pour deux raisons : (i) le plan d'observation n'est pas forcément le plan radial (longitudinal) des fibres ; cela veut dire que le diamètre observé n'est pas représentatif au diamètre réel de la fibre; (ii) les fibres végétales sont connues par leurs souplesses et la même fibre pourrait être présente sur différents plans d'observation, d'où la longueur totale des fibres ne pourrait pas être intégralement observée sur un seul plan. Le cliché (b) de la Figure B.III. 2 montre la discontinuité de certaines fibres dans ce plan d'observation et la présence de la matrice sur d'autres.

Les constatations soulevées dans cette section ont été également observées pour les autres composites à 10% de chargement (NPP-10%, SPP-10%, TPP10%).

III.1.2. Masse volumique et porosité

La Figure B.III. 3 illustre l'évolution de la masse volumique expérimentale et théorique des UPP en fonction de leur taux en fibres. La masse volumique théorique des composites (ρ_c) a été déterminée à partir de celles des fibres (ρ_{UTFD}) et de PP (ρ_{pp}) ainsi que leur taux massique (T_{UTFD} et T_{PP}) comme le décrit l'équation suivante :

$$\rho_c = \frac{T_{UTFD} + T_{PP}}{(\rho_{pp} \times T_{PP}) + (\rho_{UTFD} \times T_{UTFD})} \quad \text{Eq. B.III. 1}$$

En tenant compte de l'incertitude des résultants, une bonne concordance a été observée entre les résultats expérimentaux et la loi de mélange. Cela est dû à la faible présence de porosité dans les composites. En effet, les observations menées par MEB n'ont montré aucune présence de porosité dans la matrice, quoique les zones interfaciales ont présenté une décohésion entre les fibres et la matrice traduite par la présence de certain vide entre ces deux phases. D'après les mêmes observations, l'épaisseur de cette dernière semble relative à la taille des fibres.

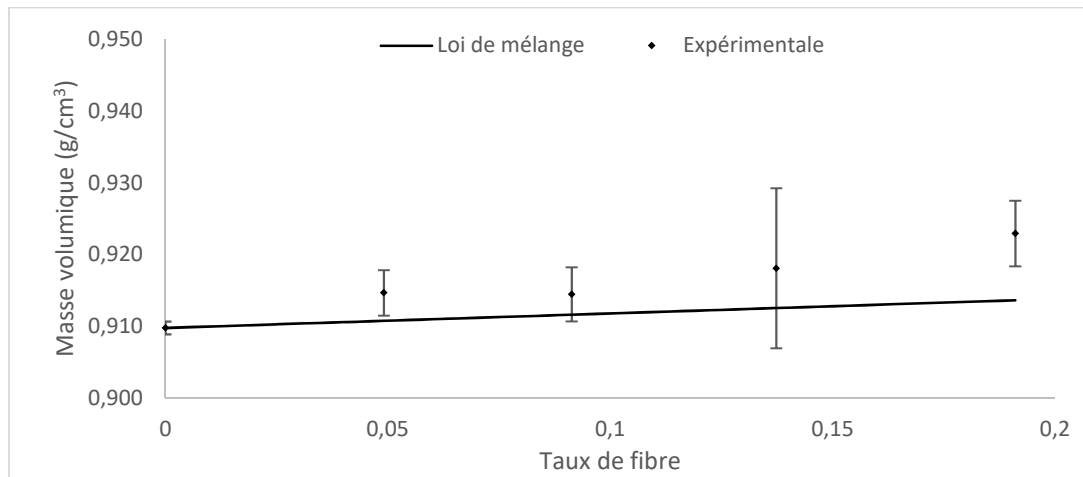


Figure B.III. 3 : Evolution expérimentale et théorique de la masse volumique des UPP.

La détermination du taux de cette zone interfaciale, qui représente le taux de porosité dans nos composites, nécessite une observation sur le plan transversal des fibres dans le composite avec des agrandissements importants. Par conséquent, un nombre considérable de clichés MEB doit être examiné jusqu'à avoir une convergence du taux de porosité. Une bonne qualité d'image est, par conséquent, essentielle pour établir une étude quantitative. Dans notre cas, les fibres sont orientées aléatoirement, contrairement aux fibres alignées, et leur plan transversal ne peut pas être déterminé et l'application de cette méthode ne sera pas possible par cette technique. Afin d'estimer le taux de porosité de nos biocomposites, une étude basée sur la densité des phases ainsi que leur quantité massique introduite lors de la fabrication des composites a été établie. L'incertitude des mesures a été également prise en compte (voir l'annexe B).

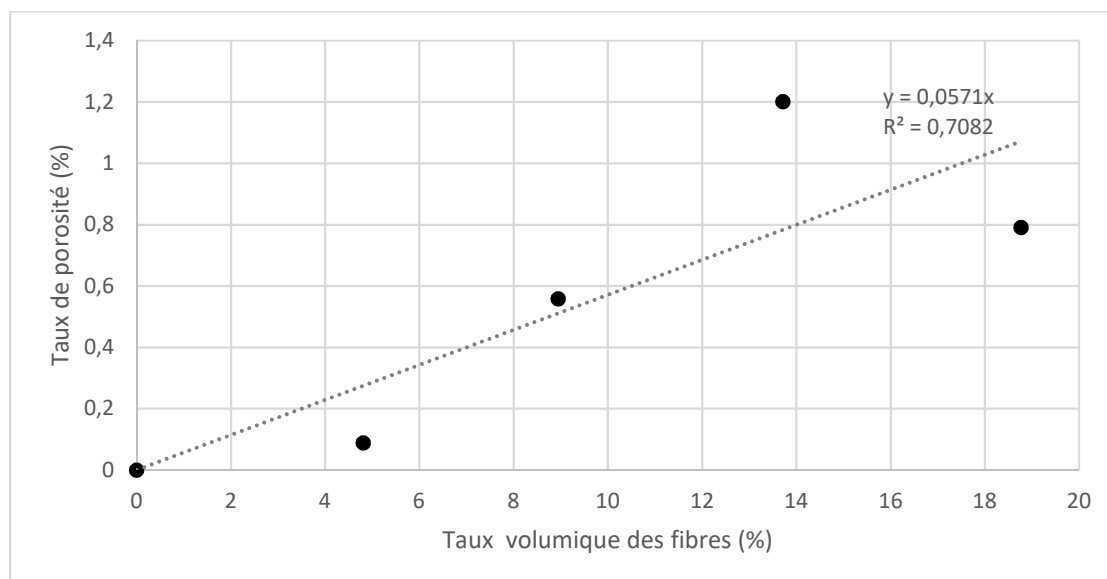


Figure B.III. 4 : Evolution du taux de porosité en fonction du taux de fibres.

La Figure B.III. 4 présente l'évolution du taux de porosité maximal en fonction du taux volumique des fibres. En accord avec les observations MEB, le taux de porosité semble accru avec l'augmentation du taux des fibres. Cette relation pourrait être représentée par une loi linéaire, dont le taux de porosité représente environ 5,57% du taux volumique des fibres.

La Figure B.III. 5 regroupe les résultats de la masse volumique des différents biocomposites étudiés. Les APP-10%, TPP-10%, SPP-10% et NPP-10% ont présenté, plus au moins, une valeur similaire plus importante que celle des UPP-10%. Il semble que l'élimination de certains composants non cellulosiques des fibres pendant leurs traitements a conduit à une augmentation de leur masse volumique.

La partie précédente conclue que le traitement avec NaOH dégrade de façon significative les composants non cellulosiques des fibres de Diss, suivi par les traitements au silane et à l'acide acétique. Le traitement thermique, quant à lui, ne change pas significativement la composition chimique. Ces dégradations devraient être accompagnées par une augmentation de la masse volumique de ces fibres de la façon suivante $NTFD > STFD \approx ATFD > TTFD > UTFD$. L'évolution de la masse volumique des différents biocomposites suit cette logique excepté les TPP-10%. Ces dernières ont montré une masse volumique équivalente à celle des NPP-10%. Deux hypothèses sont possibles pour interpréter ces résultats pour les TPP-10% : un prélèvement des échantillons testés sur des zones de concentration locale des fibres ou/et le réarrangement de la structure cristalline lors du traitement thermique des fibres a permis de réduire le volume des fibres pour la même masse de fibres.

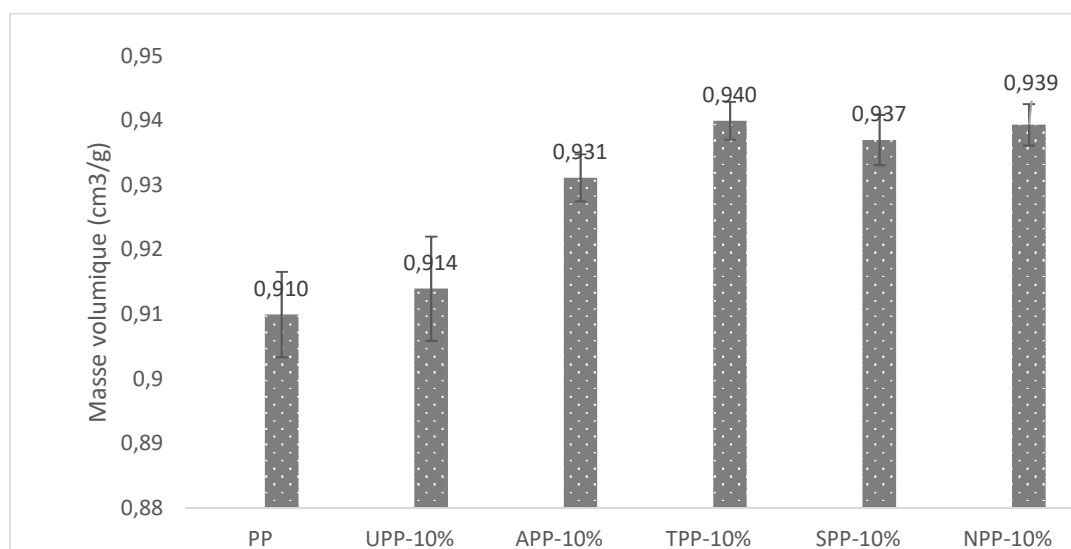


Figure B.III. 5 :Masse volumiques des composite à 10% de chargement en fibres.

III.1.3. Propriétés mécaniques des biocomposites

Dans le but d'évaluer l'effet des traitements sur le comportement mécanique des différents biocomposites étudiés, les résultats relatifs aux essais de traction, de flexion et de choc sont discutés dans cette section.

III.1.3.1. Propriétés en traction

La Figure B.III. 6 présente la courbe de traction (contrainte / déformation) de PP. Cette courbe a révélé un comportement ductile avec un seuil d'écoulement (viscoélastique avec seuil), caractérisé par trois zones distinctes :

- Zone I : une zone linéaire traduite par une déformation purement élastique du PP. Elle est marquée par sa pente, connue communément par le module de Young (E) et sa valeur maximale appelée : limite d'élasticité (R_e).
- Zone II : Elle représente une évolution non-linéaire de la contrainte en fonction de la déformation, une déformation plastique, illustrée par une diminution de pente jusqu'à l'apparition d'une asymptote horizontale. Cette dernière représente la contrainte maximale en traction appelée la résistance à la rupture (R_r). Ce point est également caractéristique de l'apparition d'une striction appelée également le seuil d'écoulement haut (S_h).
- Zone III : dans cette zone, la réduction de la section continue à se propager et la contrainte commence à diminuer avec l'augmentation de la déformation, jusqu'à atteindre une valeur de contrainte constante. Ce point est connu par le seuil d'écoulement bas (S_b). La zone de striction est caractérisée par une couleur blanche due à la plastification de PP. La déformation à la rupture (ϵ_r) des échantillons n'a pas été captée en raison de leur déformation importante. Ce comportement est souvent observé lorsque le refroidissement du PP est suffisamment énergétique [188].

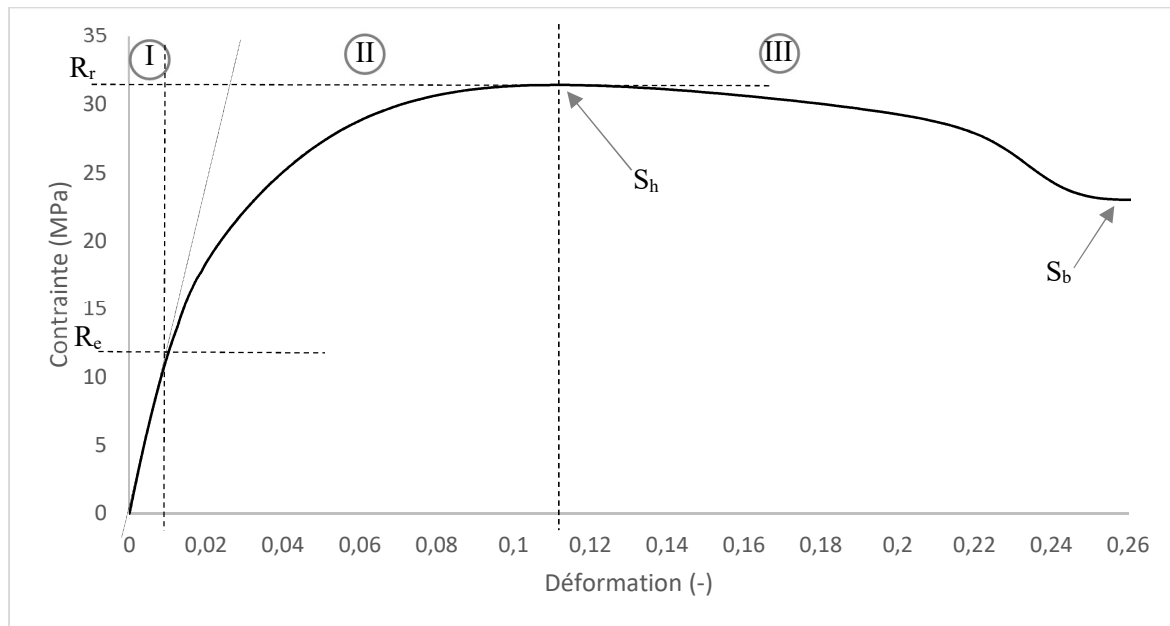


Figure B.III. 6 : Courbe de traction de PP.

La Figure B.III. 7 rassemble les courbes de traction des différents biocomposites chargés à 10% en masse. Chaque biocomposite est représenté par une courbe de traction ; cette courbe est caractéristique du comportement global de ce biocomposite.

Les biocomposites ont montré un comportement ductile sans seuil d'écoulement dont la rupture se produit dans la zone II. Lors de l'essai de traction, des lignes blanches commencent à apparaître lorsque la déformation plastique a lieu (zone II) indiquant la présence des microfissures. La concentration de ces fissures dans une zone quelconque conduit à la rupture de l'éprouvette. Selon leurs types de chargement, ces ruptures sont, plus ou moins, ductiles. Les NPP-10% et les STPP-10% ont présenté la déformation à la rupture (ϵ_r), respectivement, la plus faible et la plus importante. Quant aux restes des composites, ils ont montré des valeurs intermédiaires, plus ou moins similaire en tenant compte de l'incertitude (Tableau B.III. 1).

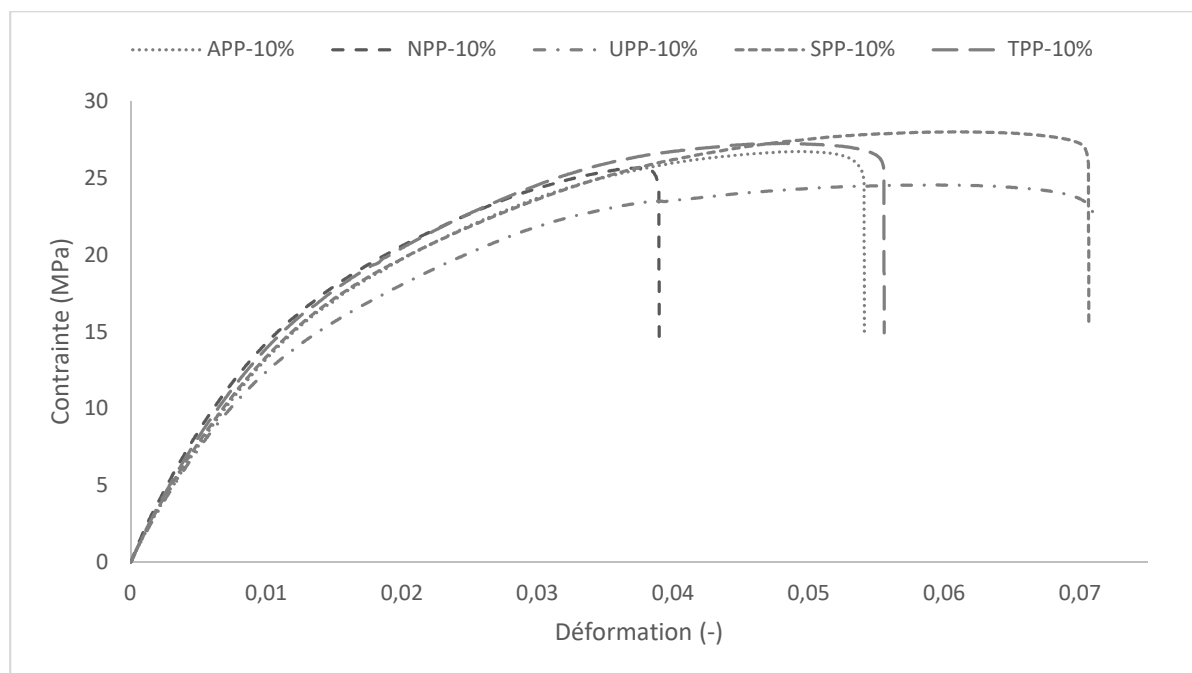


Figure B.III. 7 : Courbes de traction des composites chargés, à 10% en masse, par les fibres de Diss.

La Figure B.III. 8 et le Tableau B.III. 1 regroupent les propriétés en traction (R_t , E et ε_r) de PP et les différents biocomposites étudiés à 10% de chargement. Le PP a pour valeurs de R_t et E , respectivement, $31,01 \pm 0,37$ MPa et $1,39 \pm 0,08$ GPa. Ce dernier a significativement augmenté après 10% de chargement en UTFD. Cette amélioration devient plus marquante avec les fibres traitées. Les NPP-10% ont présenté le module le plus important, suivi par les TPP-10%, Les SPP-10%, les APP-10% et les UPP-10% ont, respectivement, une amélioration de 30%, 23%, 17%, 16% et 12,50%. Néanmoins, une diminution de R_t a été observée pour ces composites. Cette perte de résistance a été plus considérable pour les UPP-10% avec une réduction de 21% par-rapport au PP. les composites renforcés par les fibres traitées ont présenté une réduction, plus ou moins similaire, avec 16%, 16,40%, 12,70% et 10%, respectivement, pour les APP-10%, les NPP-10%, les TPP-10% et SPP-10%.

Malgré la décohésion observée au niveau de l'interface, les biocomposites semblent être influencés par les propriétés intrinsèques des fibres (voir § A.III.5). En effet, les NTFD et STFD ont affiché les meilleurs modules de traction pour les fibres de Diss étudiées suivies par ATFD et les TTFD, dont la différence n'est pas significative si on tient compte des incertitudes des résultats, puis les UTFD. Pour les biocomposites, on retrouve les NPP-10% et UPP-10%, respectivement, en première position et en dernière position comme il a été constaté pour les fibres.

Contrairement à ce qu'il était attendu, les STFD n'ont pas présenté la même efficacité souhaitée au sein du composite. Le choix de la molécule de silane (3-Aminopropyl triethoxysilane) a été fait grâce à la compatibilité de ses groupes fonctionnels aminos avec ceux de la matrice PP. Thi et Vi [259] a constaté pendant sa thèse qu'un tel agent de couplage a conduit au module de Young le plus élevé parmi les biocomposites de fibre de Bambou/PP étudiés, même face aux biocomposites avec MA-g-PP.

Tableau B.III. 1 : Propriétés en traction de PP et des composites renforcés par les différentes fibres de Diss.

	Résistance (MPa)	Module (GPa)	Déformation à la rupture (%)
PP	31,01 ± 0,37	1,39 ± 0,08	-
UPP-10%	24,37 ± 0,30	1,57 ± 0,02	6,31 ± 0,70
APP-10%	26,05 ± 0,57	1,62 ± 0,02	5,12 ± 0,58
SPP-10%	27,89 ± 0,12	1,63 ± 0,05	7,18 ± 0,08
TTP-10%	27,08 ± 0,22	1,72 ± 0,03	5,61 ± 0,08
NPP-10%	25,93 ± 0,73	1,82 ± 0,08	4,05 ± 0,65

Des résultats similaires sont souvent rapportés dans la littérature. Stark [199] a observé une diminution de la contrainte de traction de PP après un chargement de 20% en poids des fibres de bois dérivées de palettes, accompagnée d'une amélioration du module de traction. Des constats similaires ont été soulevés par Pérez-Fonseca et al. [193] sur les composites de fibres d'Agave/PP et fibres de Pin /PP dont le module augmente avec le taux de chargement, tandis que la contrainte baisse. Ce comportement est alloué à l'adhérence médiocre entre les fibres et la matrice (voir III.1. 1). En effet, la surface des fibres végétales est hydrophile et caractérisée par des groupes hydroxyles polaires, tandis que le PP est un polyoléfine hydrophobe [192]. Il a été constaté, également, que la résistance à la rupture semble la plus impactée par cette faible adhérence. Beg et Pickering [191] ont remarqué, lors de leurs travaux sur les composites de PP renforcés de fibre de Kraft, que l'ajout d'un agent de couplage comme l'anhydride maléique améliore la liaison interfaciale et amène à des résistances à la rupture considérablement élevées, alors que l'influence de cette amélioration de l'état d'interface était moins marquée sur le module de Young des composites.

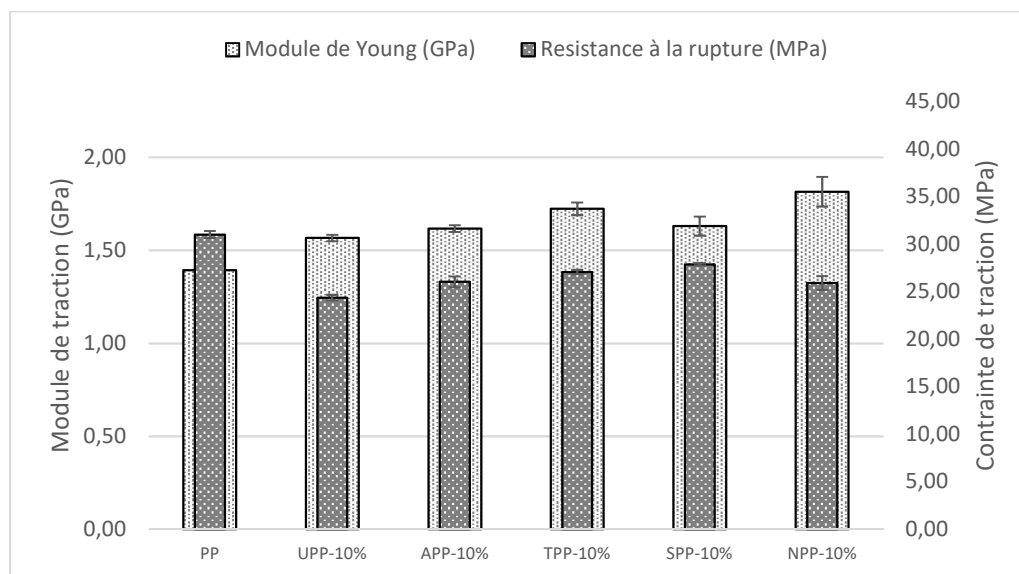


Figure B.III. 8 : Propriétés en traction (module et contrainte) de PP et des composites renforcés par les différentes fibres de Diss.

La Figure B.III. 9 regroupe les clichés MEB des faciès de rupture des différents biocomposites. Ces observations ont permis d'interpréter les résultats obtenus. Les constatations suivantes ont été soulevées quel que soit le type du composite : (i) une décohésion entre les fibres et la matrice avec une présence des empreintes des fibres lorsque celles-ci sont orientées perpendiculairement à la direction de chargement ; (ii) une rupture au niveau des fibres orientées parallèlement à la direction de chargement ; (iii) une déchirure de l'interface témoigne d'une rupture ductile de la matrice. D'autre part, aucune trace de PP n'a été observée sur les fibres arrachées, indiquant une autre fois la mauvaise adhérence chimique entre la fibre et la matrice. Des constats similaires ont été soulevés par Stark [199] lors de ses travaux sur les fibres de bois recyclées et Chen et al. [192] sur les composites Bambou/PP.

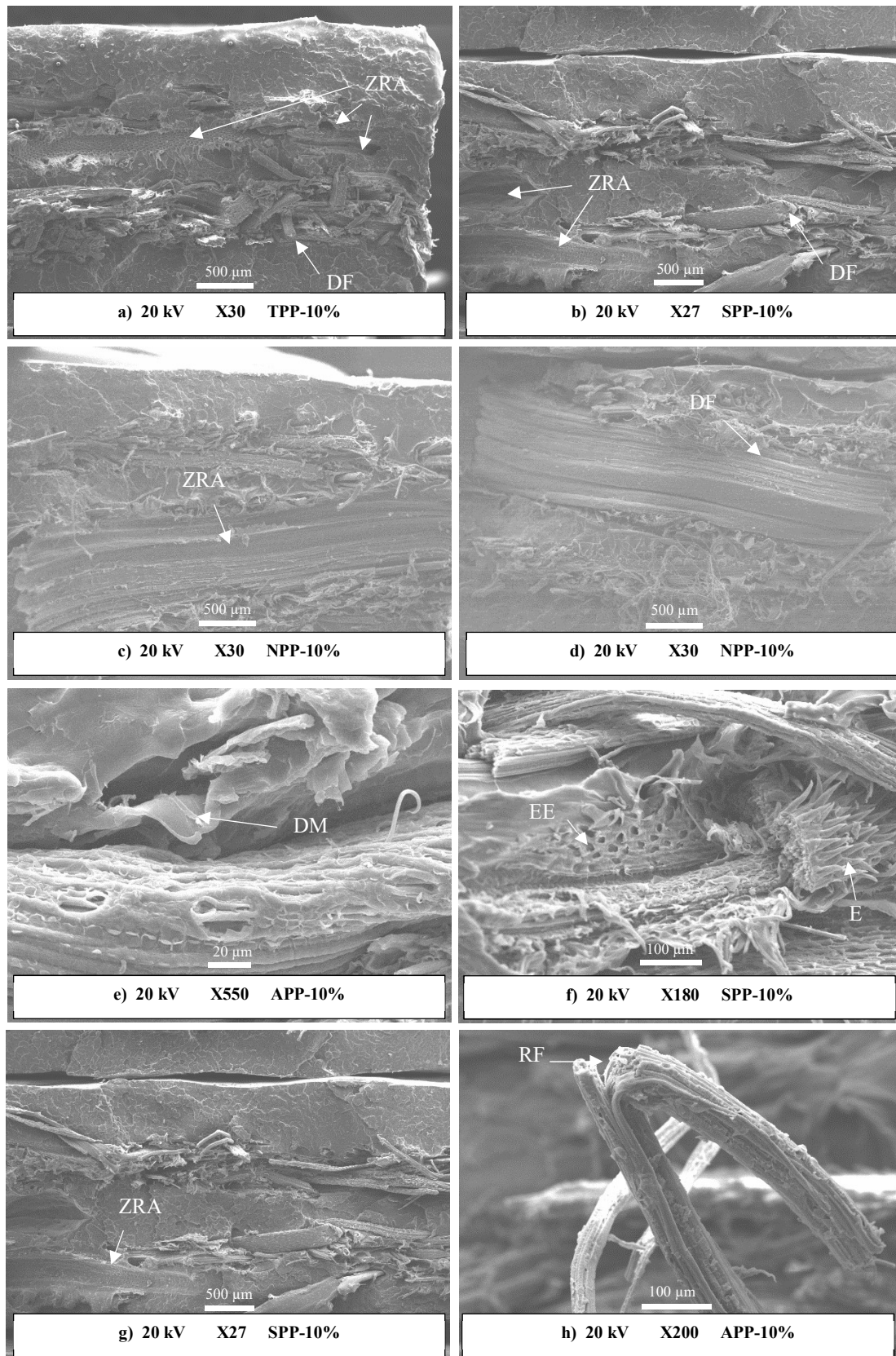


Figure B.III. 9 : Clichés MEB des faciès de rupture de différents composites. ZRA : zone de rupture adhésive, DF : Déchaussement des fibres. EE : empreintes des épines. E : épines. RF : rupture de fibre. DM : déchirure de la matrice.

En effet, lors de la sollicitation mécanique de l'éprouvette de traction, les zones qui contiennent plus de fibres orientées verticalement à la direction de chargement sont les plus vulnérables à la rupture. Les clichés (c) et (d) de la Figure B.III. 9 représentent deux faciès de rupture d'une éprouvette sollicitée en traction. Il a été observé sur une partie la présence d'une fibre et sur l'autre partie son empreinte. Des cas similaires sont également observés sur les clichés (a) et (b) de la Figure B.III. 9. Ces fibres vont créer des zones de concentration de contrainte laissant qu'une partie des fibres ainsi que la matrice prendre en charge la résistance du composite dans cette section. A des contraintes supérieures proches de la rupture de PP, la matrice dans cette section commence à se déformer d'une manière ductile jusqu'à ce qu'elle soit déchirée (voir les clichés (e) et (f) de la Figure B.III. 9) laissant le reste des fibres résister au chargement. Ces fibres, quant à elles, ne vont pas persister longtemps, et des ruptures adhésive (déchaussement des fibres) ou cohésive (rupture des fibres) vont apparaître selon leurs adhérences à la matrice (voir les clichés (g) et (h) sur la Figure B.III. 9). Cette adhérence, qui ne peut être que mécanique, est gouvernée principalement par la présence des épines. Le cliché (f) de la Figure B.III. 9 affiche une rupture cohésive de la fibre à cause d'une bonne adhérence mécanique entre les épines et la matrice. Nous pouvons constater également les empreintes des épines sur la matrice. Ces constatations pourraient expliquer la diminution de résistance à la rupture des composites qui est due à la présence des zones de concentration des contraintes, alors que la présence des épines assure le transfert des charges entre les fibres et la matrice et conduit à une amélioration du module de Young.

III.1.3.2. Propriétés en flexion

Dans la théorie des poutres, les fibres neutres, inférieure et supérieure, sont des lignes de déformation parallèles à la direction de la poutre situées, respectivement, dans l'axe, les limites inférieure et supérieure de sa section. Afin de ne pas confondre ces fibres avec les fibres de Diss utilisées pour renforcer les composites, le terme ligne va être employé pour la définir.

Les courbes de flexion, contrainte de flexion en fonction de la déformation de la ligne inférieure, de PP et des différents composites à 10% de chargement sont regroupées dans la Figure B.III. 10. La courbe de PP en flexion semble présenter un comportement similaire à celui en traction : une partie linéaire où l'évolution de la contrainte est proportionnelle à la déformation, suivi par une partie non linéaire, dite déformation plastique, jusqu'à atteindre une contrainte maximale. À partir de cette valeur, la contrainte diminue avec l'augmentation de la déformation et des lignes blanches apparaissent sur la partie inférieure sollicitée en traction,

indiquant la présence des microfissures. L'éprouvette n'atteint dans aucun cas la rupture. Un glissement a été observé quand la flèche devient importante ; un comportement similaire a été observé par Lahmar et al. [260] sur les composites de PP renforcés par 10% en masse de farine de bois. Le même comportement a été observé pour les différents composites, quoique, lors de leur sollicitation en traction, ces composites ont montré toujours une rupture avant d'atteindre la troisième zone de déformation. Ce changement de comportement est forcément dû à la structure stratifiée des composites, (voir § B.III.1.1). Lors de la traction la contrainte est répartie uniformément sur la section, alors qu'en flexion les lignes inférieure et supérieure sont les plus sollicitées, respectivement, en traction et en compression. La répartition des contraintes sur la section transversale est représentée sur la Figure B.III. 11. Contrairement à la partie centrale (couche active), les parties les plus sollicitées en traction et en compression sont situées vers l'extérieur (la peau), composées que de PP. Cela fait que la sollicitation des fibres est moins marquante par-rapport au cas de la traction pure ; le comportement des biocomposites en flexion est moins influencé par la présence des fibres qu'en traction, et suit celui de PP.

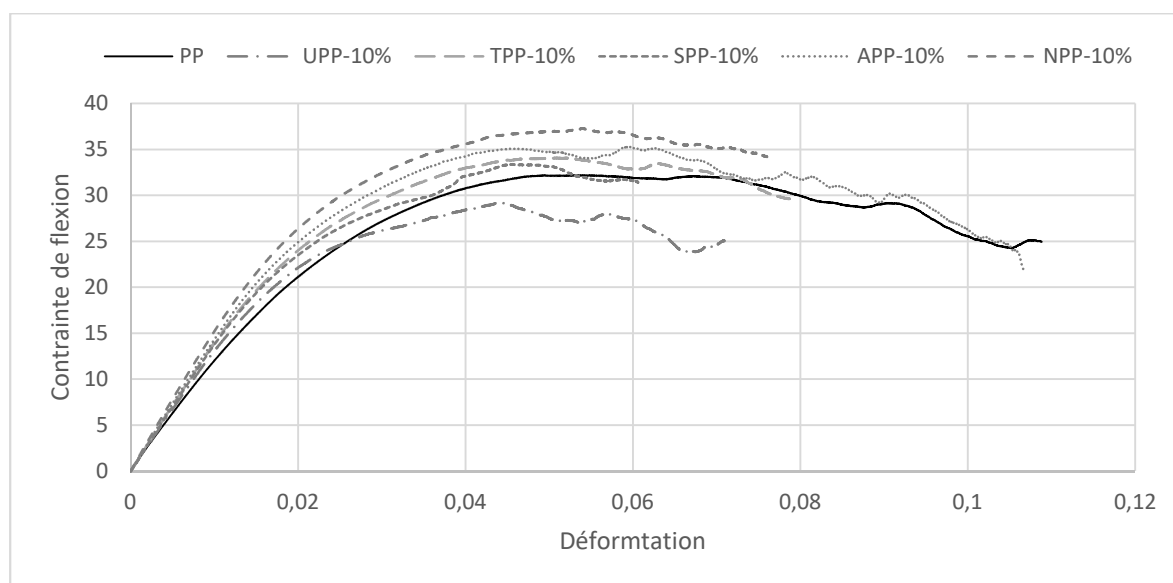


Figure B.III. 10 : Courbes de flexion contrainte/déformation de la ligne inférieure de PP et les composites chargés à 10% en fibres de Diss.

La Figure B.III. 12 affiche les propriétés en flexion de PP et des différents biocomposites. Le PP a présenté une résistance à la flexion et un module en flexion, respectivement, de $34,13 \pm 1,95$ MPa et $1,28 \pm 0,02$ GPa. Ces résultats sont du même ordre de grandeur que ceux obtenus par l'essai de traction. Cela en raison de la nature homogène de PP.

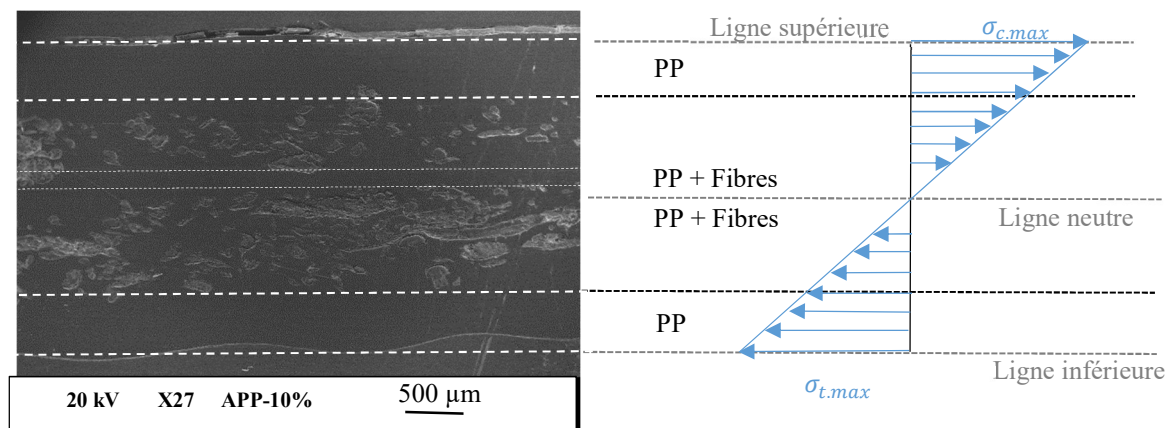


Figure B.III. 11 : Répartition des contraintes dans matériau supposé homogène en comparaisons avec la section transversale des composites à 10% de chargement en fibres de Diss.

Les propriétés de flexion présentées par les biocomposites sont complètement différentes de celles en traction. L'évolution du module n'était pas si importante comme en traction. Les APP-10%, les NPP-10% les TPP-10% les SPP-10% et les UPP-10% ont présenté une augmentation, respectivement, de 22%, 20%, 13.50%, 10.50% et 7%. La diminution de l'efficacité des fibres est due forcément, comme il a été expliqué plus haut, à la structure stratifiée des composites dont les fibres ne semblent être sollicitées que par une partie de la contrainte maximale appliquée. Plusieurs auteurs ont signalé un comportement similaire où le module en traction et en flexion sont différents [260].

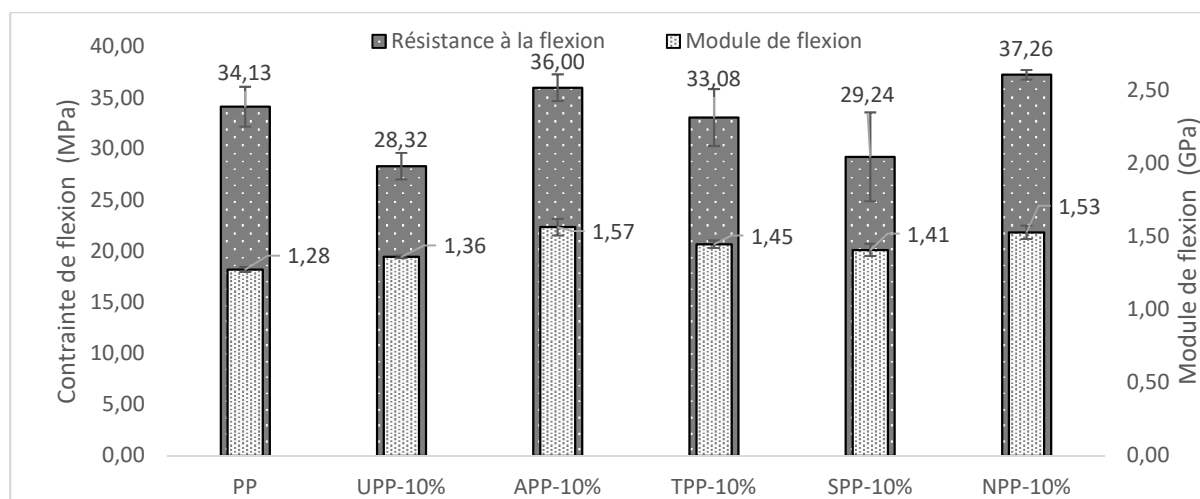


Figure B.III. 12 : Propriété en flexion de PP et les composites à 10% de chargement en fibres de Diss.

En ce qui concerne la résistance en flexion et en tenant compte des incertitudes de mesure, les NPP-10% ont montré une amélioration significative d'environ 9% par-rapport au PP, tandis que les UPP-10% ont indiqué une diminution de 17%. Quant aux autres composites, les résultats étaient plus moins similaires à ceux de PP. Ces résultats restent fortement plus élevés que ceux obtenus en traction.

III.1.3.3. Propriétés au choc

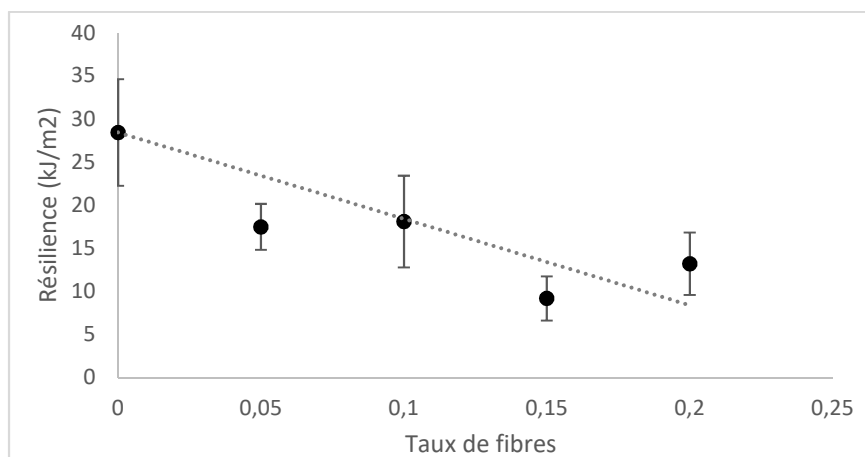


Figure B.III. 13 : Evolution de la résilience en fonction du taux de chargement en UTFD.

Le PP a présenté une résilience de 28.44 ± 6.19 kJ/m². Cette valeur baisse avec l'augmentation du taux de chargement en UTFD (Figure B.III. 13). En effet, l'incorporation des fibres rigides dans une matrice ductile comme le PP augmente la rigidité du composite et le rend plus fragile (voir III. 1.3.1) et avec l'augmentation de chargement les interactions fibre-fibre accroissent et les zones de concentration de contrainte augmentent ; ce qui fragilise davantage le composite. Des constatations similaires ont été soulevées par Lahmar [260] et Stark [199] sur les composites PP/fibres de bois comparés à la matrice PP.

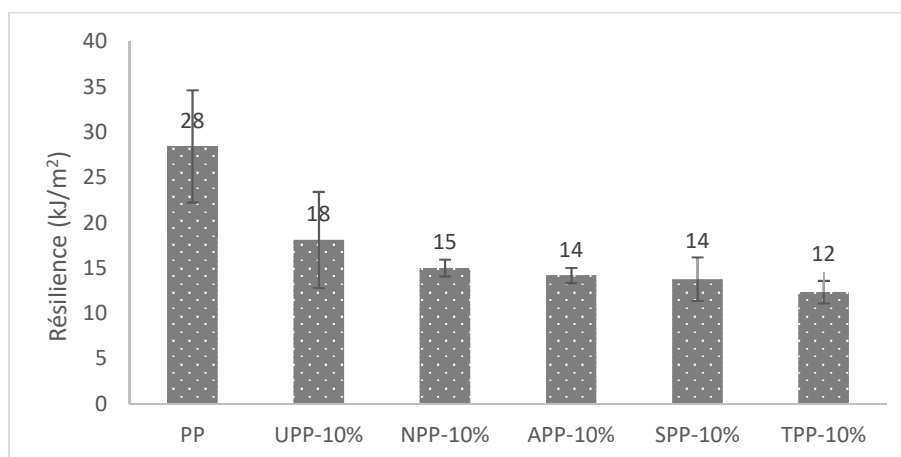


Figure B.III. 14 : Résiliences de PP et les composites à 10% de chargement en fibres de Diss.

La Figure B.III. 14 regroupe les valeurs de résilience des différents biocomposites étudiés. Comparativement aux UPP-10% et en tenant compte de l'incertitude des mesures, les composites renforcés par les fibres traitées semblent présenter des résultats du même ordre de grandeur, quoique, les valeurs moyennes montrent une baisse de résilience avec l'augmentation de la rigidité des fibres traitées.

III.2. Caractérisation mécanique des composites à base des NTFD

Par la suite, les composites NTFD ont été choisis, grâce à leurs propriétés mécaniques, afin d'étudier l'effet du taux de chargement en fibres sur les propriétés mécaniques des biocomposites. Les biocomposites PP renforcés par les fibres de lin et de chanvre ont été également étudiés afin de les comparer avec les NTFD.

III.2.1. Microstructure

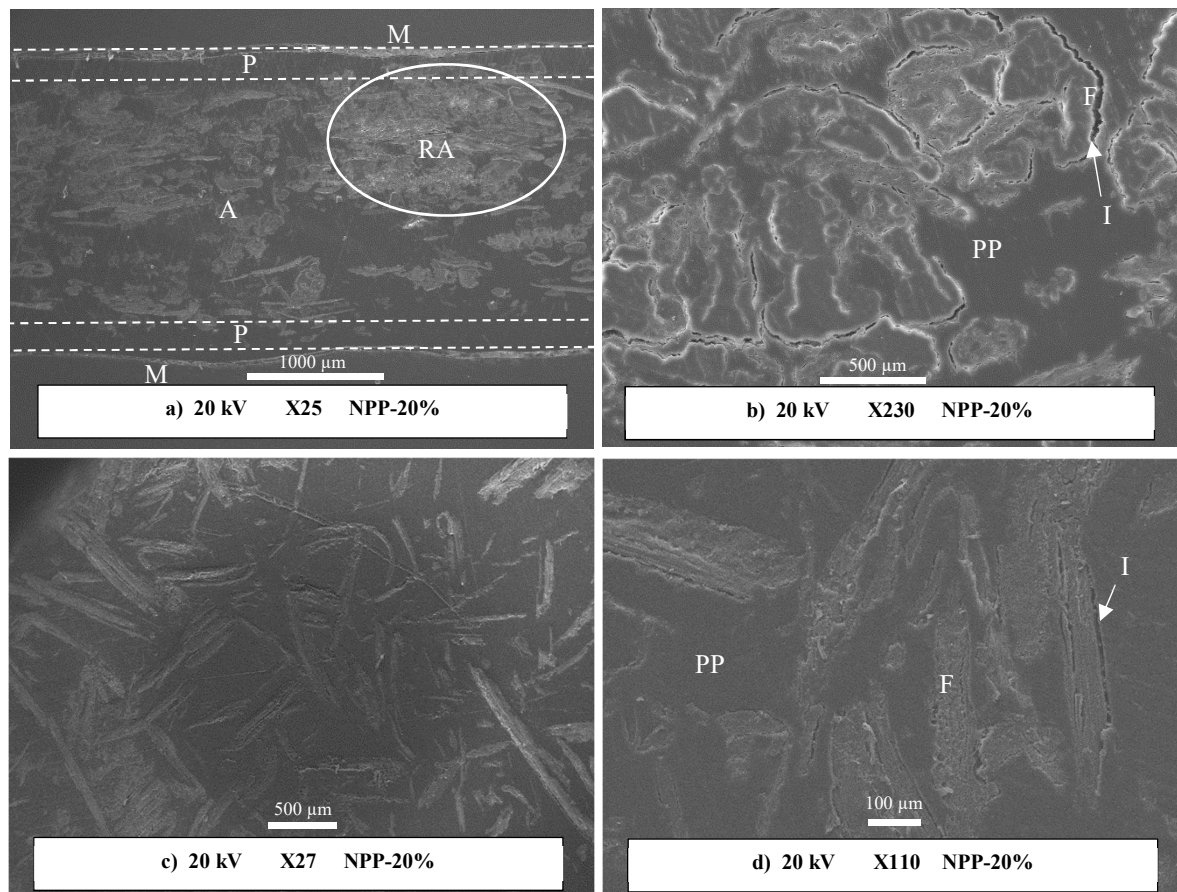


Figure B.III.15 : Clichés MEB des NPP-20%. ZA : région d'agglomération. A : couche active, P : peau, PP : polypropylène, F : fibres de Diss, M : matrice d'enrobage, I : Interface fibre matrice.

Les Figure B.III.15, Figure B.III.16 et Figure B.III.17 regroupent des clichés MEB, respectivement, des NPP-20%, des NPP-30% et des NPP-40%. Pour chaque figure, les clichés (a) et (b) sont observés sur le plan transversal du composite, tandis que les clichés (c) et (d) ont été examinés au niveau de la couche active.

Pour les NPP-20%, l'épaisseur de la couche active a significativement augmentée au détriment des couches de peau et l'espace inter-fibres semble nettement réduit par-rapport à celle des NPP-10%, (Figure B.III.15. (a) et (b)). Les fibres semblent aléatoirement réparties et bien entourées par la matrice. Des régions d'agglomérats de fibres sont parfois observables sur la

couche active. A ce stade, aucune présence de porosité n'a été détectée dans la matrice (Figure B.III.15.(a) et (c)). Pourtant, la décohésion entre les fibres et la matrice est toujours remarquée a des grands agrandissements, (Figure B.III.15.(b) et (d)).

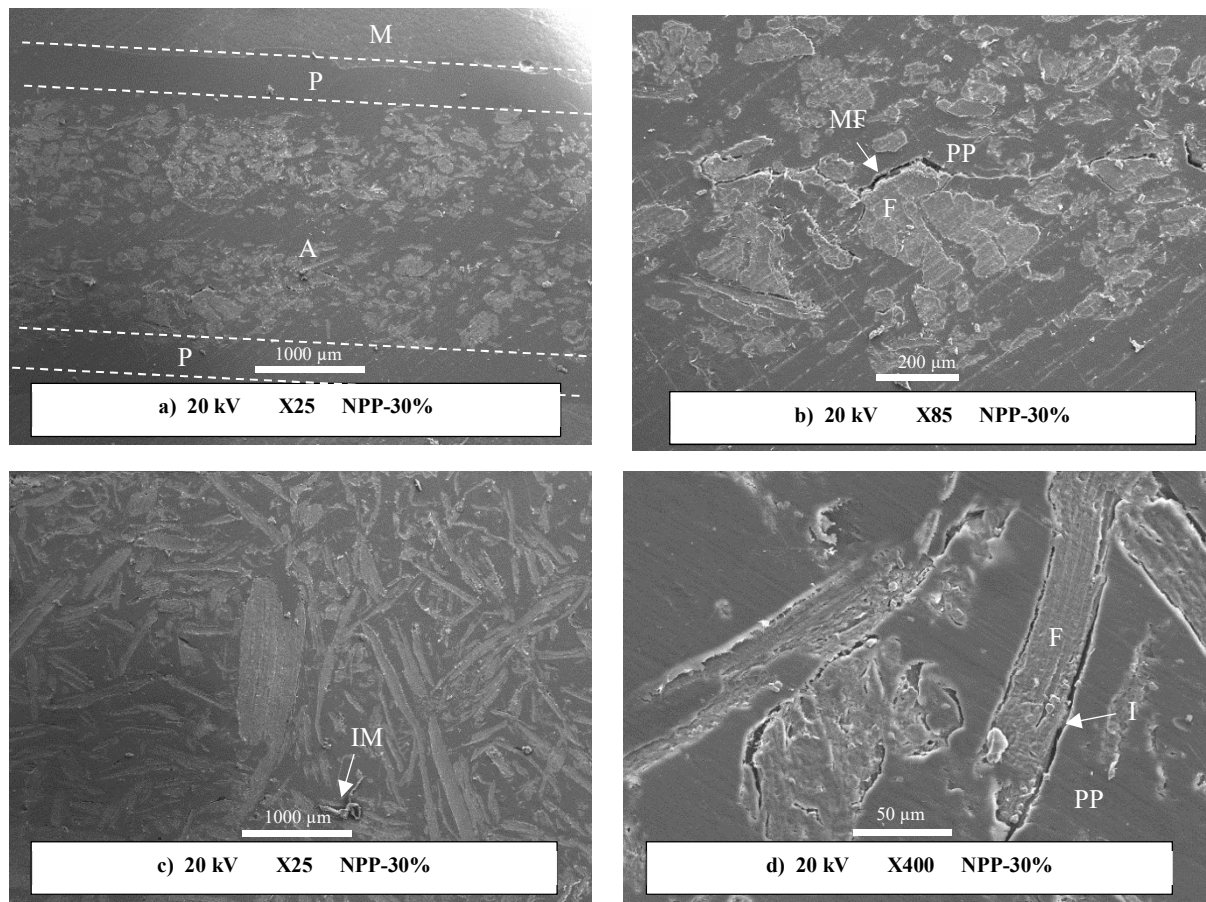


Figure B.III.16 : Clichés MEB des NPP-30%. A : couche active, P : peau, PP : polypropylène, F : fibres de Diss, M : matrice d'enrobage, I : Interface fibre matrice. MF : microfissure. IM : impureté.

En ce qui concerne les NPP-30%, l'épaisseur de la peau semble plus importante que celle des NPP-20% et en même temps l'espace entre les fibres semble être réduit davantage. On peut observer parfois la présence des microfissures à cause du contact fibres-fibres (Figure B.III.16.(b)).

Quant aux NPP-40%, une réduction significative de la peau par-rapport aux autres composites a été observée (Figure B.III.17.(a)). Le contact fibres-fibres semble devenir beaucoup plus important, ainsi que la présence des microfissures. Ces dernières semblent devenir plus larges que celles observées sur les NPP-30%. Elles sont même observables à faible agrandissement (Figure B.III.17.(a) et (b)). S'ajoutant à cela, une présence de porosité dans la matrice a été observée (Figure B.III.17.(c) et (d)).

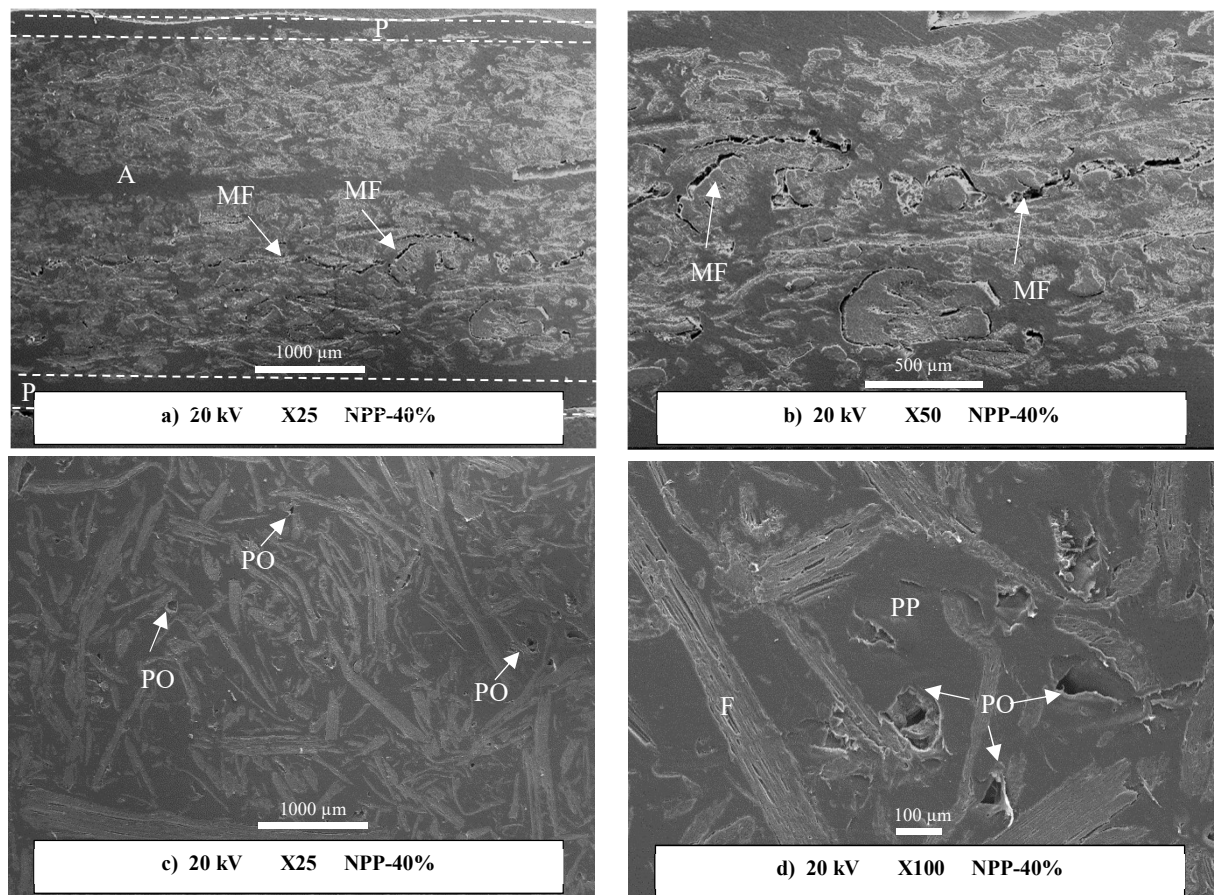


Figure B.III.17 : Clichés MEB des NPP-40%. A : couche active, P : peau, PP : polypropylène, F : fibres de Diss, MF : microfissure. PO : porosité.

III.2.2. Masse volumique et porosité

La Figure B.III. 18 présente l'évolution de la masse volumique des NPP en fonction de leurs taux de chargement en fibres.

Une augmentation de la masse volumique en fonction du taux de chargement a été observée lorsque ce dernier est inférieur à 30%. À 40%, la masse volumique a baissée, ce qui indique une présence de porosité importante. Cette porosité a été nettement observée sur les clichés MEB. Des zones de délaminage ont été également observées sur ce composite à l'œil nu. En effet, lorsque le taux de chargement est important les fibres ne sont pas suffisamment imprégnées par la matrice ce qui crée des zones de fragilités où le contact fibres/fibres est important, induisant la présence de vide et la délamination du biocomposite.

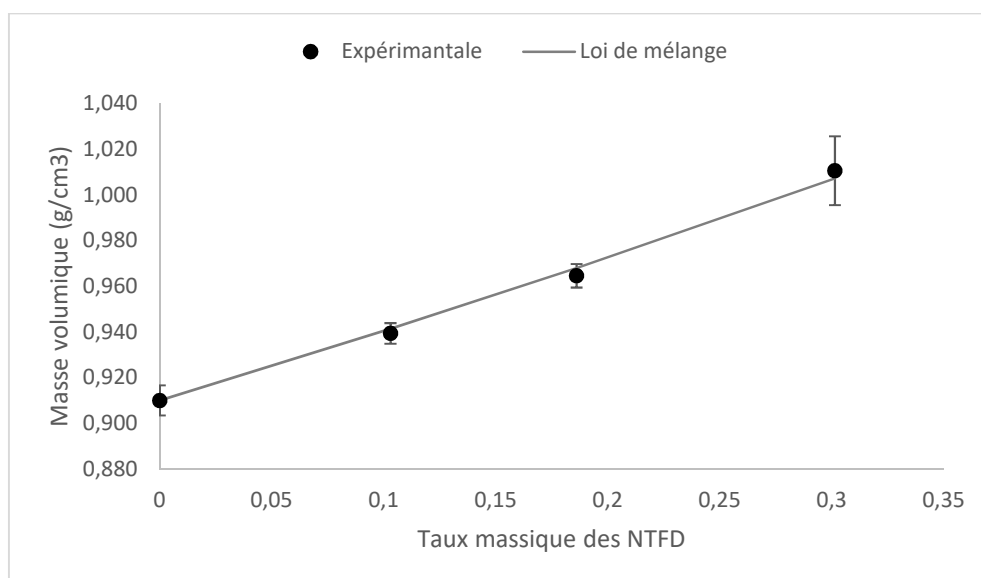


Figure B.III. 18 : Evolution de la masse volumique des NPP en fonction du taux de chargement.

L'évolution de la masse volumique des NPP en fonction du taux de chargement a suivi une loi linéaire (Figure B.III. 18). La densité des NTFD et le taux de porosité des composites ont été estimés en se basant sur la loi de la masse volumique théorique et les résultats de porosité des UPP. La méthode employée est détaillée dans l'annexe B. La masse volumique des NTFD a été estimée à 1.40 g/cm^3 et les taux de porosité des différents composites sont regroupés dans le Tableau B.III. 2. Nous observons une augmentation significative de la masse volumique des UTFD après leur traitement avec NaOH, d'environ 50%. Celle-là reste inférieure à celles des fibres d'Agave et de Pin qui présentent respectivement $1,588 \text{ g/cm}^3$ et $1,529 \text{ g/cm}^3$ [193].

Tableau B.III. 2 : Masse volumique et taux de porosité théorique des NPP.

	PP	NPP-10%	NPP-20%	NPP-30%	NPP-40%
Masse volumique	0.91	0.939 ± 0.003	0.965 ± 0.005	1.011 ± 0.030	0.977 ± 0.006
Taux de porosité (%)	0.00	0.41	0.76	1.27	6.98

D'autre part, les résultats ont montré que la masse volumique des NPP-30% est relativement supérieure à celle des LPP-30% et celle des CPP-30%, respectivement de 6% et 7%. Cela est probablement dû à une faible masse volumique des fibres de Lin et de Chanvres utilisées comparées au NTFD.

III.2.3. Propriété en traction

La Figure B.III. 19 présente les courbes de traction des NPP. Il a été observé que la rupture des composites devient de plus en plus rigide avec l'augmentation du taux de fibres. Ceci a été accompagné par une baisse marquante de la déformation à la rupture.

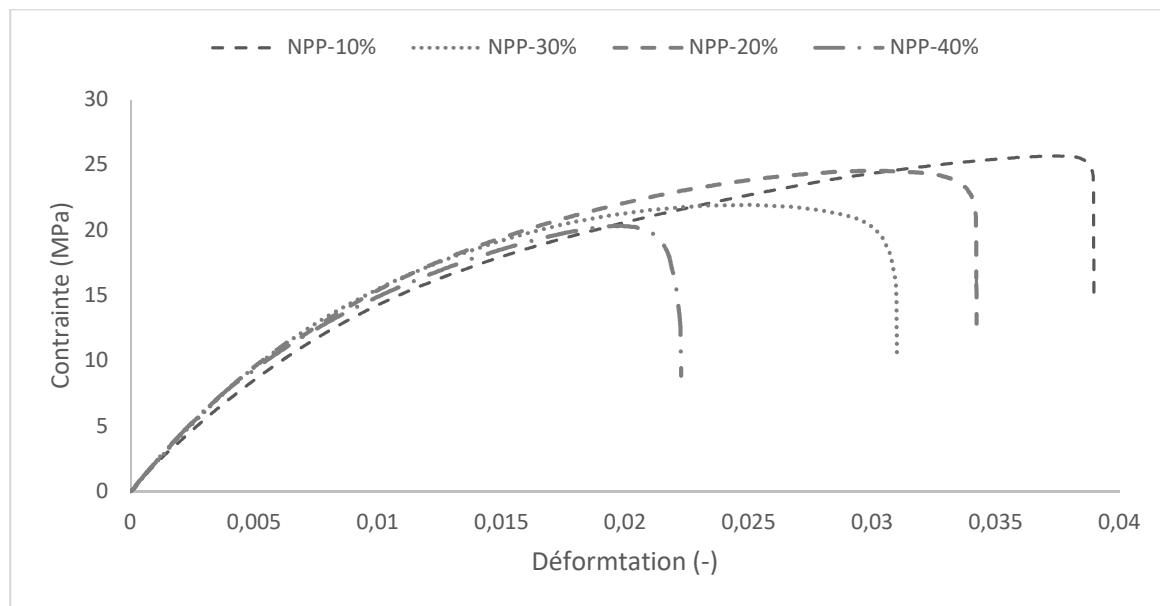


Figure B.III. 19 : Courbe de traction des NPP.

Le Tableau B.III. 3 récapitule les propriétés en traction des NPP. La résistance à la rupture baisse également avec l'augmentation de chargement de 6%, 18% et 28%, respectivement, pour les NPP-20% les NPP-30% et les NPP-40% par-rapport aux NPP-10%. Le module de Young, quant à lui, s'améliore avec l'augmentation du taux de chargement. Ceci lorsque ce dernier est inférieur à 20%, au-delà de cette valeur aucune amélioration significative n'a été observée. La diminution de la contrainte de la traction pourrait être expliquée, comme il a été observé dans § B.III. 1.3.1 par l'augmentation des zones de concentration de contrainte avec l'augmentation du taux de chargement. En ce qui concerne le module, nous constatons une amélioration lorsque les fibres sont bien imprégnées par la matrice à 10% et 20% de chargement. Lorsque le taux de fibres atteint 30% de chargement, une présence des microfissures locales est observée, (voir § B.III. 2.1). Ceci conduit à un transfert de charge localement médiocre entre les fibres et la matrice. En même temps, l'ajout des fibres est aussi localement bénéfique. Par conséquent, une compensation entre ces deux faits conduit à un module de Young, plus ou moins, stable.

Chen et al. [192] ont observé un comportement similaire pour le module de traction lorsque les composites Bambou/PP présentent un taux en fibre inférieur à 40%. Au-delà de cette valeur le module commence à se diminuer. Cependant, d'autres auteurs ont observé une évolution croissante du module même si le taux de chargement en fibres est supérieur à 30% [199] [78] [193].

Tableau B.III. 3 : Propriétés de traction des NPP.

	R_r (MPa)	E_T (GPa)	Déformation à la rupture (%)
NPP-10%	$25,90 \pm 0,70$	$1,82 \pm 0,08$	$4,05 \pm 0,65$
NPP-20%	$24,40 \pm 0,35$	$2,08 \pm 0,06$	$3,11 \pm 0,27$
NPP-30%	$21,15 \pm 0,65$	$2,07 \pm 0,02$	$3,48 \pm 0,31$
NPP-40%	$18,70 \pm 1,40$	$2,14 \pm 0,07$	$2,10 \pm 0,15$

Les Figure B.III. 20 et Figure B.III. 21 illustrent les courbes de traction et les propriétés en traction des CPP-30% et des LPP-30% avec celle des NPP-30%.

Nous pouvons constater qu'avant la rupture, les trois composites ont présenté le même comportement, une fois la contrainte maximale est atteinte, la rupture des CPP-30% et LPP-30% se produit en deux étapes, une chute brutale de la contrainte, puis la contrainte se maintient constante jusqu'à la rupture totale du composite. Ce comportement pourrait être expliqué par une rupture adhésive : lorsque la contrainte à la rupture est appliquée, une rupture de la matrice se produit, laissant les fibres supporter l'intégralité des charges, et en raison de la faible adhérence fibre/matrice un déchaussement de fibres se produit.

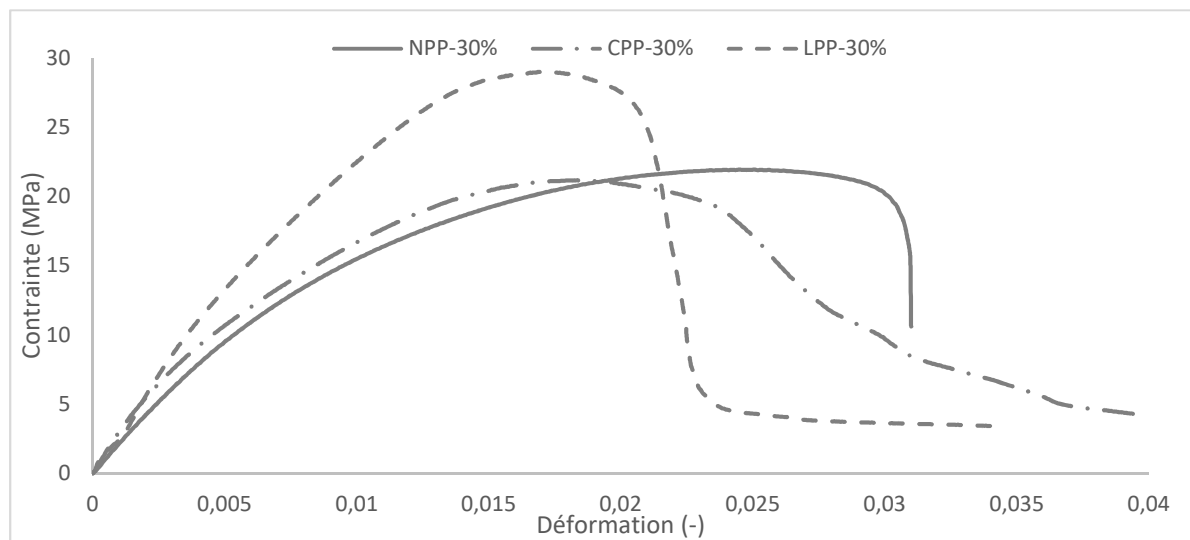


Figure B.III. 20 : Courbe de traction des NPP-30%, et LPP-30% et CPP-30%.

D'autre part, ce comportement n'a pas été observé sur les NPP-30% où la rupture était brutale. En effet, il existe une longueur des fibres à partir de laquelle la résistance au cisaillement de l'interface fibres/matrice est supérieure à celle des fibres ; au-delà de cette longueur une rupture des fibres se produit et dans le cas contraire les fibres s'arrachent de la matrice. Dans le cas des LPP-30% et NPP-30%, ce comportement pourrait être expliqué par deux hypothèses : soit les différents types de fibres employées (Diss, Lin et Chanvre) possèdent la même adhérence fibres/matrice et la résistance des fibres de Lin et de chanvre est beaucoup plus importante que

celle des fibres de Diss, ce qui conduit à une longueur des fibres plus importante pour qu'une rupture des fibres soit produite ou bien l'adhérence, entre ces fibres et la matrice PP, est beaucoup plus faible comparée à celle des NTFD/PP. Les fibres de lin et de chanvre sont connues pour leur forte résistance à la traction qui peut être 4 fois plus importante que celle des fibres de Diss. Elles peuvent atteindre les 1000 MPa [261], quoi que la présence des épines dans les NTFD semble améliorer leur adhérence mécanique. Une étude à double-échelle par une approche numérique a été menée plus loin afin de mieux comprendre l'efficacité de l'adhérence des NTFD/PP.

Les propriétés en traction sont affichées dans la Figure B.III. 21. Les CPP-30% et les NPP-30% semblent présenter les mêmes propriétés en traction si on tient compte de l'incertitude des mesures. D'autre part, les LPP-30% ont présenté de meilleurs résultats pour le module et la résistance à la rupture. Ceci est sans doute dû aux propriétés mécaniques intéressantes des fibres de Lin.

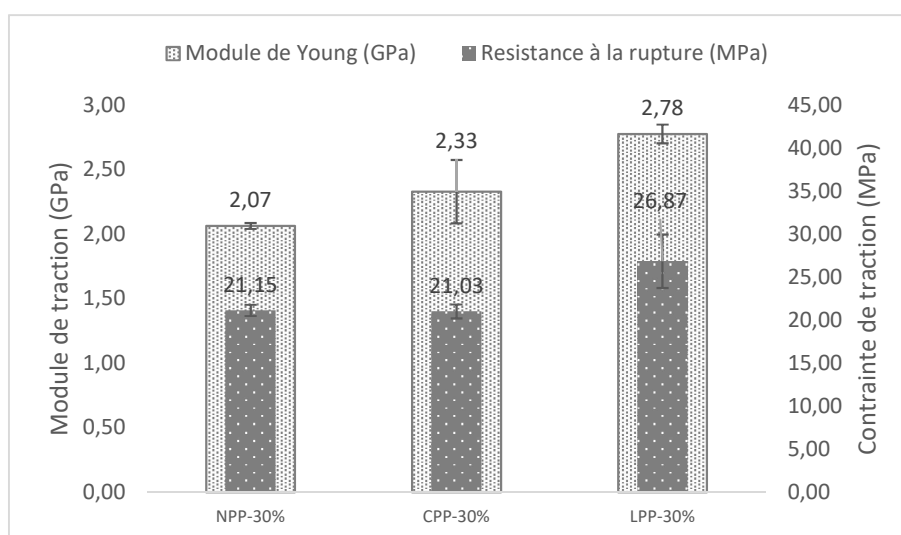


Figure B.III. 21 : Propriétés mécaniques en traction des NPP-30%, CPP-30% et LPP-30%.

III.2.4. Propriété en flexion

Le Figure B.III. 22 récapitule les propriétés en flexion des NPP. La contrainte maximale en flexion était plus élevée à 10% de taux de fibres. A des taux de fibres supérieures, la contrainte baisse et elle semble rester similaire pour tous les biocomposites restant, entre 26 MPa et 28 MPa. Ces valeurs sont inférieures à celles de PP. Le module de flexion ne semble pas significativement changer quel que soit le taux de fibres dans les biocomposites, néanmoins il reste toujours supérieur à celui de PP.

Dans la littérature, nous observons souvent une augmentation du module de flexion avec l'augmentation du taux de charge [260] [193]. Cependant, dans notre cas, la structure multicouche du composite, comme il a été expliqué dans § B.III.1.3.2, semble affecter l'évolution de cette propriété.

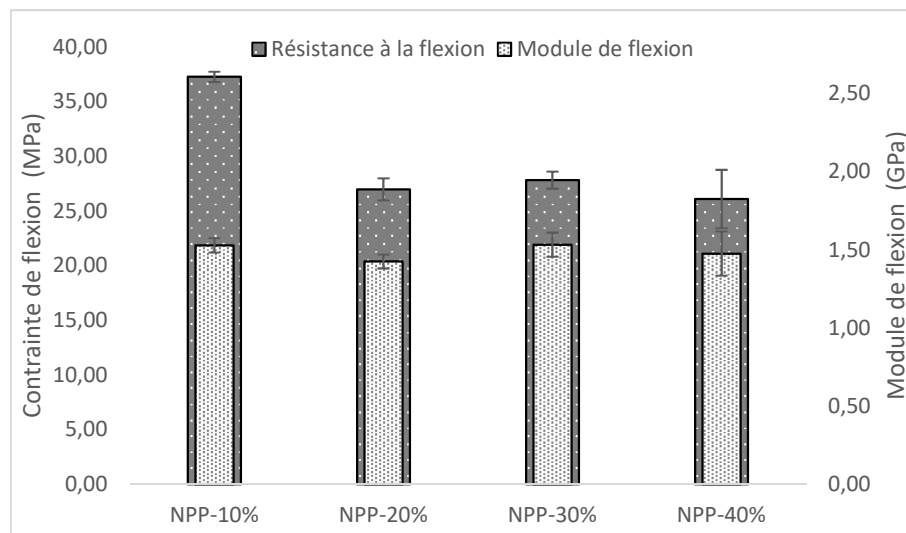


Figure B.III. 22 : Propriétés mécaniques en flexion des NPP.

Les propriétés en flexion des LPP-30 et CPP-30% avec des NPP-30% sont présentées dans la Figure B.III. 23. En tenant compte des incertitudes des résultats, la résistance à la flexion de LPP-30% a présenté une amélioration par-rapport aux autres composites.

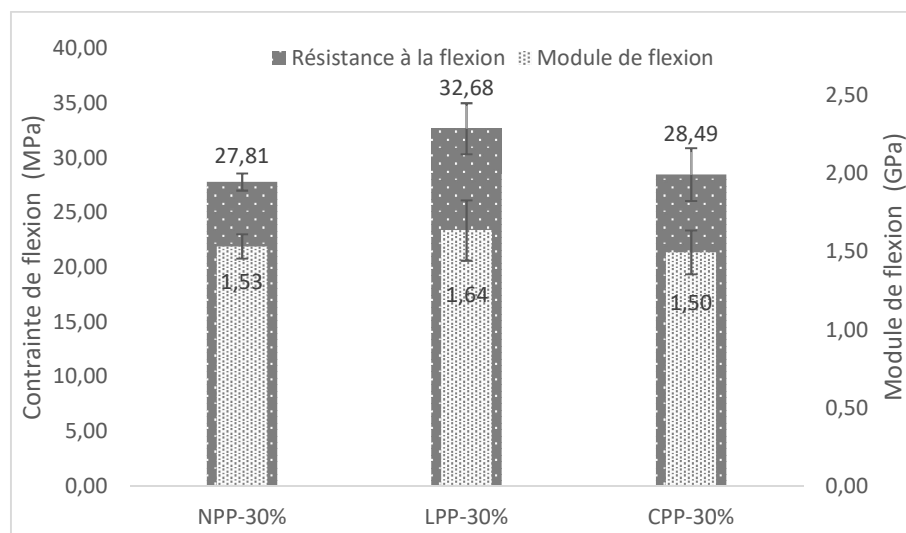


Figure B.III. 23 : Propriétés mécaniques en flexion des NPP-30%, LPP-30% et CPP-30%.

III.3. Approche numérique pour évaluer l'adhérence entre les fibres et la matrice

Le comportement mécanique des biocomposites est régi principalement par l'état d'interface fibres/matrice. Cette dernière permet à chaque phase, matrice et fibres, d'assurer leurs rôles. Une interface parfaite permet aux composites de présenter l'intégrale de leurs propriétés mécaniques.

Les observations menées sur la microstructure des composites fibres de Diss / PP ont révélé une absence d'adhérence chimique entre les deux phases, quoique, la présence des épines sur les fibres a montré une potentielle récompensations de l'adhérence chimique par l'enclenchement mécanique des fibres.

Dans cette section nous allons nous intéresser à l'évaluation de l'adhérence mécanique fibres/matrice grâce à un modèle en élément fini 2D. Ce dernier est basé sur le principe du volume élémentaire représentative (VER) de la microstructure des biocomposites sous réserve que l'adhésion renfort/matrice soit parfaite. L'idée est de prédire par ce modèle numérique les modules de Young effectifs des différents biocomposites dans les conditions parfaites de l'interface, et le comparer avec les résultats expérimentaux issus de § B. III. 2.3.

La microstructure des composites NPP a été analysée dans un premier temps par vidéo-microscope et les informations résultantes ont été utilisées afin de générer le modèle élément fini sur le logiciel *Digimat*®.

III.3.1. Paramètres géométriques



Figure B.III. 24 : Microstrucure des composites NPP-10% observée par vidéo-microscope 3D HIROX RH-2000.

La géométrie des NTFD a été observée sur le plan de la couche active au moyen du vidéo-microscope 3D HIROX RH-2000. La nature semi-transparente de PP et la grande profondeur de champs du microscope ont permis d'observer l'intégralité des fibres (Figure B.III. 24).

Les fibres ont été supposées comme des inclusions ellipsoïdales et leurs paramètres géométriques (le diamètre et la longueur) ont été déterminés à l'aide du logiciel ImageJ. Les observations ont été menées sur une surface de composite d'environ 10 cm² dont approximativement 300 fibres intégralement observables ont été considérées.

Ces fibres ont été classées selon leurs diamètres en cinq catégories : 50-100µm, 100-150 µm, 150-200 µm, 200-250 µm et plus de 250 µm (Figure B.III. 25). Chacune de ces catégories a été présentée en fonction de leur longueur moyenne et leur écart type ainsi que leur taux par rapport à la totalité des fibres analysées.

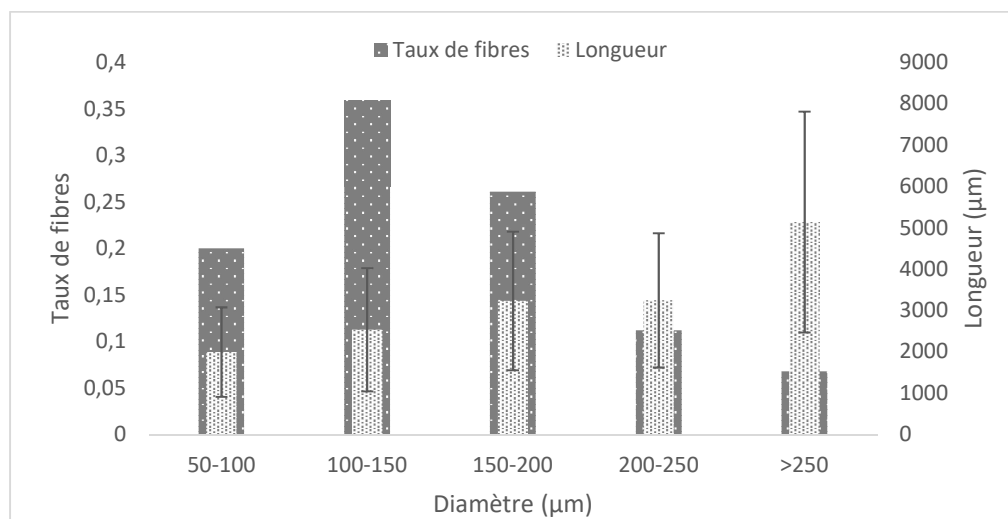


Figure B.III. 25 : Paramètres géométriques des NTFD considérés pour alimenter le modèle numérique.

III.3.2. Méthodologie d'implémentation sous Digimat-FE

La méthode basée sur un VER a été utilisée afin de prédire les modules effectifs des NPP. Le logiciel *Digimat*[®] possède un module d'homogénéisation par éléments finis (Digimat-FE) qui permet de générer un VER représentatif de la microstructure du composite. Il possède son propre générateur de maillage, un solveur FE et un post-processeur.

Tableau B.III. 4 : Propriétés mécaniques et physiques des phases.

	NTFD	PP
Masse volumique (g/cm³)	1,40	0,91
Module de Young (MPa)	17180	1390
Coefficient de Poisson	0,34*	0,38*

*Propriétés déterminées de la littérature : [262] pour PP ; [66] Pour les fibres de Diss en se référant aux fibre de Alfa.

Les deux phases ont été définies par leurs propriétés mécaniques et physique (Tableau B.III. 4). La taille de VER 2D (25.7×25.7 mm²), déterminée automatiquement par *Digimat*[®], a été retenue après avoir effectué une étude de sensibilité préliminaire. La génération des fibres au sein du VER a été réalisée grâce au générateur *Random fiber placement* sur la base des paramètres morphologiques des fibres. Des éléments linéaires quadrilatères et triangulaires, respectivement, à 4 et 3 nœuds ont été employés afin de discrétiser le VER avec une taille maximale des éléments de 0,06 mm, cela fait un total d'environ 200000 éléments pour chaque VER. Cette taille a été choisie après une étude préliminaire de convergence du maillage. La liaison entre les fibres et la matrice a été supposée parfaite et les conditions aux limites *Mixed* ont été appliquées au VER. Un chargement uni-axial a été appliqué afin de simuler le comportement à la traction du composite. Trois VER indépendants ont été retenue pour chaque taux de chargement (Figure B.III. 26).

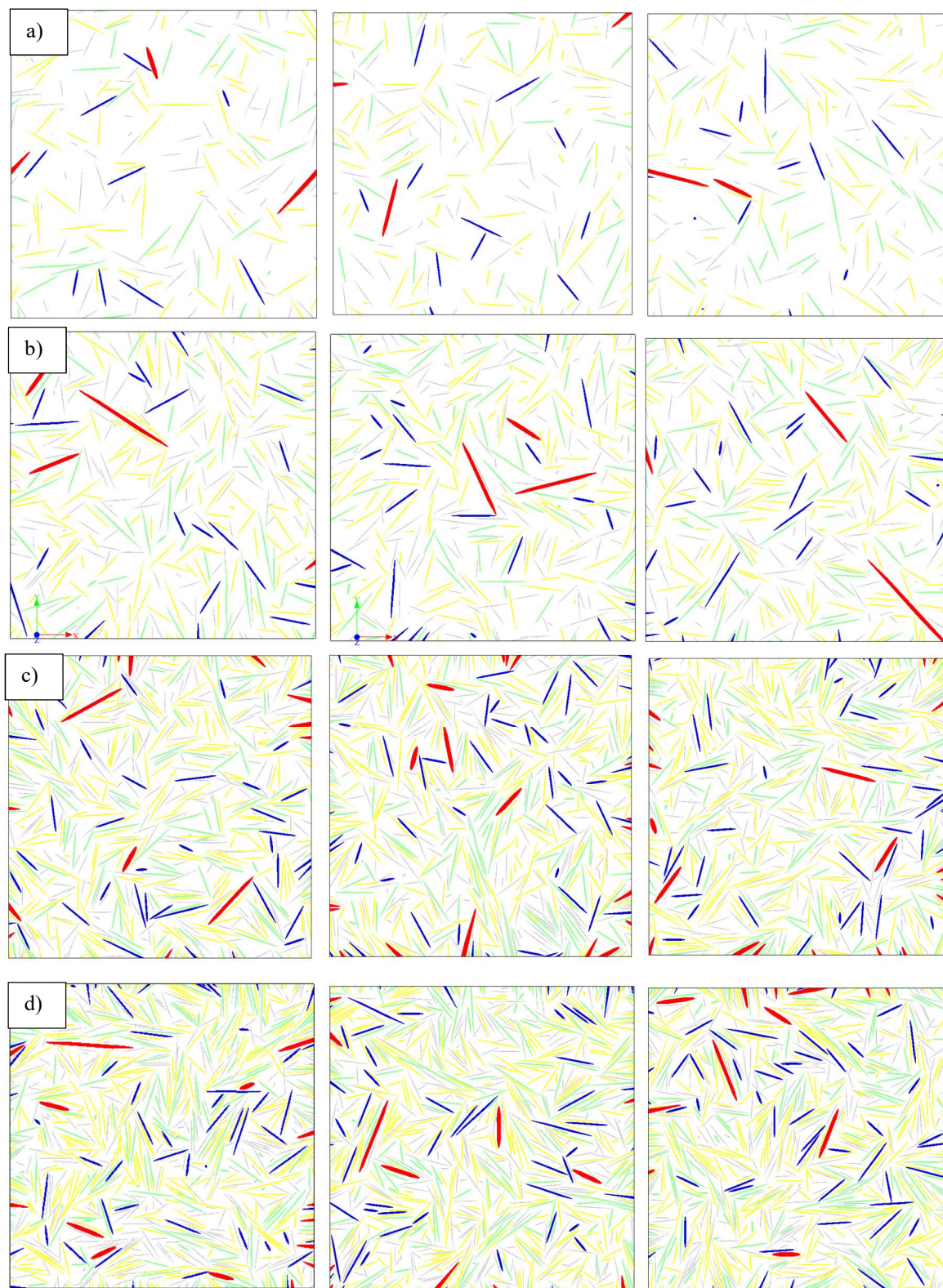


Figure B.III. 26 : VER des NPP : a) NPP-10%. b) NPP-20%. c) NPP-30%. d) NPP-40%.

III.3.3. Résultats et discussions

La Figure B.III. 27 illustre l'évolution du module de Young effectif expérimental et numérique en fonction du taux de chargement.

Dans le cas d'une interface supposée parfaite (cas du modèle numérique), le module augmente avec l'accroissement du taux de chargement en fibres en suivant une évolution quasi linéaire. Nous pouvons également observer la présence d'un domaine d'incertitude étroit pour les résultats numériques indiquant une taille de VER optimale.

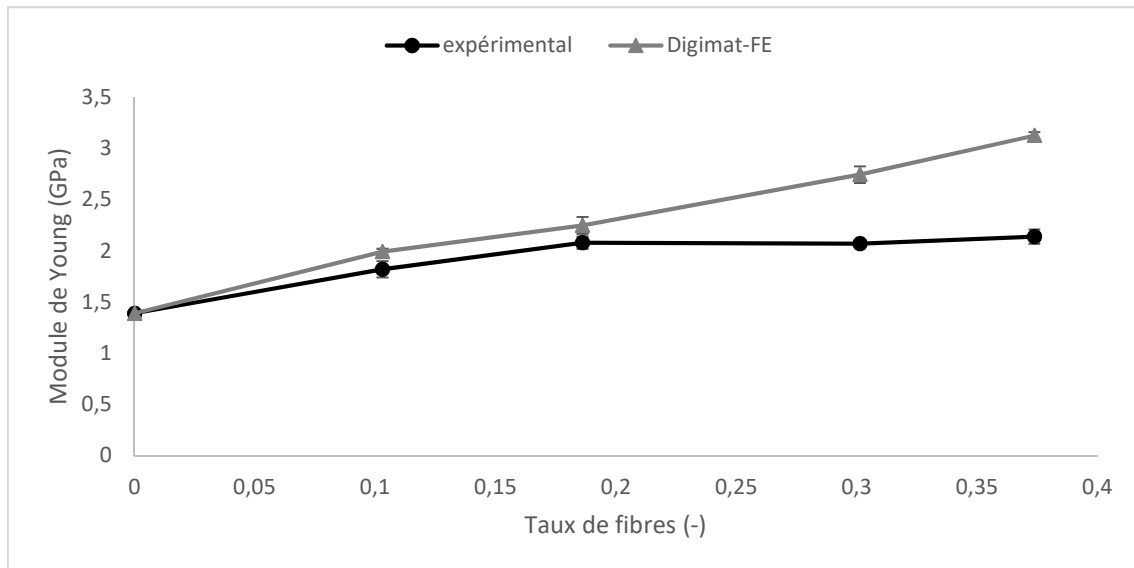


Figure B.III. 27 : Evolution de modules pour le modèle numérique et l'expérimentation en fonction du taux de chargement massique en fibres.

Le modèle numérique a présenté des résultats légèrement supérieurs aux résultats expérimentaux lorsque le taux de chargement est inférieur à 20%. Au-delà, le module numérique continue à progresser alors que le module expérimental n'affiche aucune amélioration.

L'efficacité de l'adhérence mécanique fibre/ matrice a été évaluée pour chaque taux de chargement par le rapport entre les résultats expérimentaux et numériques (Figure B.III. 28).

A des taux de chargement inférieurs à 20%, l'efficacité de l'interface NTFD/PP présente sa valeur maximale à environ 90%. Une fois le taux d'incorporation des fibres dépasse cette valeur, une réduction de l'efficacité de l'adhérence a été constatée d'environ 75% et 68%, respectivement pour 30% et 40% de chargement. Ce manque d'efficacité quand le taux de chargement devient plus important pourrait être expliqué par l'augmentation de contact fibre-fibre ; ce qui diminue la capacité de transfert des charges et augmente la présence des microfissures, (voir § B.III.2.1).

D'après ces remarques, nous pouvons constater qu'au niveau de l'interface fibres-matrice l'emboîtement mécanique dû à la présence des épines a pu récompenser l'adhérence chimique absente lorsque le taux de chargement est inférieur à 20%. Une amélioration de l'adhérence

chimique peut conduire à un maintien de cette efficacité de l'adhérence à des valeurs de chargement plus élevées. L'ajout de MA-g-PP a montré son efficacité dans la littérature [191] [192] [199]. Et il peut être une bonne solution pour les composites fibres de Diss/PP. Cependant, ce traitement n'a pas fait l'objet de cette étude qui a été focalisée sur l'optimisation des propriétés des fibres par la méthode d'extraction et leurs traitements pour un usage comme renfort dans les composites.

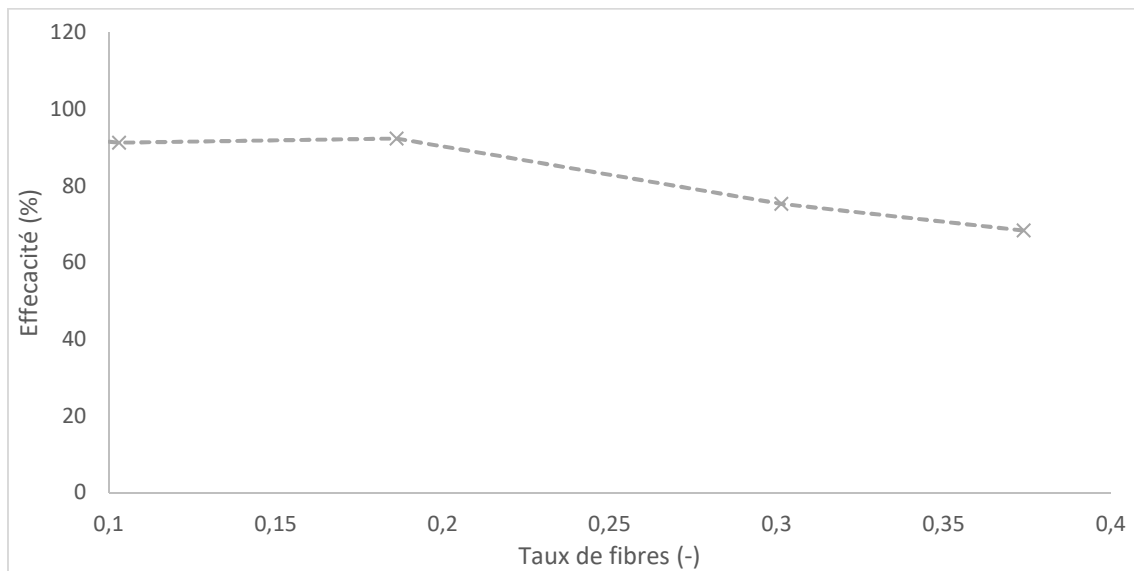


Figure B.III. 28 : Efficacité d'adhérence mécanique fibres/matrice en se reposant sur les résultats du modèle numérique .

III.4. Bilan

Dans ce chapitre un cas d'application des fibres de Diss comme renfort aux composites organiques a été étudié. Le choix de la matrice polypropylène a été effectué après avoir rempli les exigences relatives à l'environnement et à l'application du composite.

Les différents biocomposites ont présenté une structure stratifiée avec l'absence de vide dans la matrice. Cependant, à l'échelle de l'interface fibres/matrice une absence d'adhérence chimique a été remarquée. A 10% de chargement, une amélioration des propriétés mécaniques (module et contrainte) en flexion et en traction a été rapportée, à l'exception de la contrainte de traction. Les NPP-10% ont présenté une meilleure amélioration de ces propriétés par-rapport aux autres composites du même taux de chargement, 30%, 22% et 9% respectivement pour le module de traction, le module de flexion et la contrainte en flexion. Un mécanisme de rupture combinant adhésive et cohésive a été observé selon l'orientation des fibres par-rapport à la direction de chargement.

Avec l'augmentation du taux de chargement, une augmentation de module de traction a été constatée pour les composites NPP lorsque le taux de chargement en fibres est inférieur à 20% ; au-delà de cette valeur cette propriété semble rester constante. Ceci a été expliqué par la présence des microfissures ainsi que la porosité pour les composites NPP-40%.

Une approche numérique basée sur le principe du VER a permis d'évaluer l'effet positif de la présence des épines sur l'adhérence entre les fibres et la matrice notamment lorsque le taux de chargement est inférieur à 20%.

Chapitre IV : Vieillissement hydrothermique des composites à base de fibres de Diss

Les composites à base de fibres végétales sont connus par leurs sensibilités vis-à-vis de la molécule d'eau à cause de leurs renforts. Ce chapitre a pour but de révéler le comportement diffusif des biocomposites à base des fibres de Diss ainsi que l'évolution de leurs propriétés lors d'un vieillissement cyclique accéléré.

Ce chapitre est désassocié en deux volets principaux. Dans un premier temps, le comportement diffusif des différents biocomposites est étudié et discuté puis évalué par une étude numérique microstructurale qui tient compte de l'effet de bords et l'interface fibres matrice. Dans un deuxième temps, la durabilité de ces biocomposites sera abordée par une étude de vieillissement cyclique accéléré dans l'eau à différentes températures, afin d'évaluer l'effet de l'incorporation des fibres de Diss dans la matrice PP sur la durabilité de ces composites.

IV.1. Vieillissement par immersion dans l'eau

IV.1.1. Evaluation du taux d'adsorption par immersion dans l'eau

L'évolution du taux de saturation expérimental ($W_{eq\ exp}$) et théorique ($W_{eq\ théo}$) des UPP en fonction du taux de fibres est illustrée dans la Figure B.IV. 1. Le taux de saturation théorique a été calculé à partir des taux massiques des deux phases (fibres (T_f) et matrice (T_{PP})) ainsi que leur taux d'absorption en immersion. La porosité a été également prise en compte par l'effet de l'interface fibre/matrice et le volume de porosité a été supposé rempli d'eau lors de la saturation (voir Eq. B.IV.1). Le taux de saturation de PP (W_{eq-PP}), déterminé expérimentalement, a présenté une valeur très faible de $0,05 \pm 0,01\%$, tandis que, le point de saturation des UTFD (FSP), rapporté dans § A. IV. 2, est beaucoup plus important avec $41,30 \pm 1,04\%$. Soit l'équation suivante :

$$W_{eq\ théo} = (T_f \times FSP) + (T_{PP} \times W_{eq-PP}) + (V_p \times \rho_{eau}) \quad Eq. B.IV.1$$

D'où ρ_{eau} représente la masse volumique d'eau (0.997 g/cm^3).

A l'exception des UPP-10%, les résultats montrent une augmentation de la capacité d'absorption des biocomposites avec l'augmentation du taux de chargement en fibres. Un comportement identique a été souvent soulevé dans la littérature dont l'ajout des fibres a tendance d'augmenter le taux d'adsorption des composites fibres naturelles/ PP [194], [196], [197], [216], [263].

Les résultats expérimentaux et théoriques ont montré une bonne cohérence, excepté les UPP-10%, notamment lorsque la porosité est considérée. Ceci s'est traduit par une valeur de coefficients de corrélation (R^2) de 0.80 contre 0.74 lorsque la porosité n'est pas comptabilisée. Cela pourrait signifier que la zone interfaciale intervient dans le processus d'adsorption d'eau, cette hypothèse sera discutée davantage par la suite.

En outre, les résultats des UPP-10% sont probablement dus à une agglomération des fibres ou bien une présence importante de porosité.

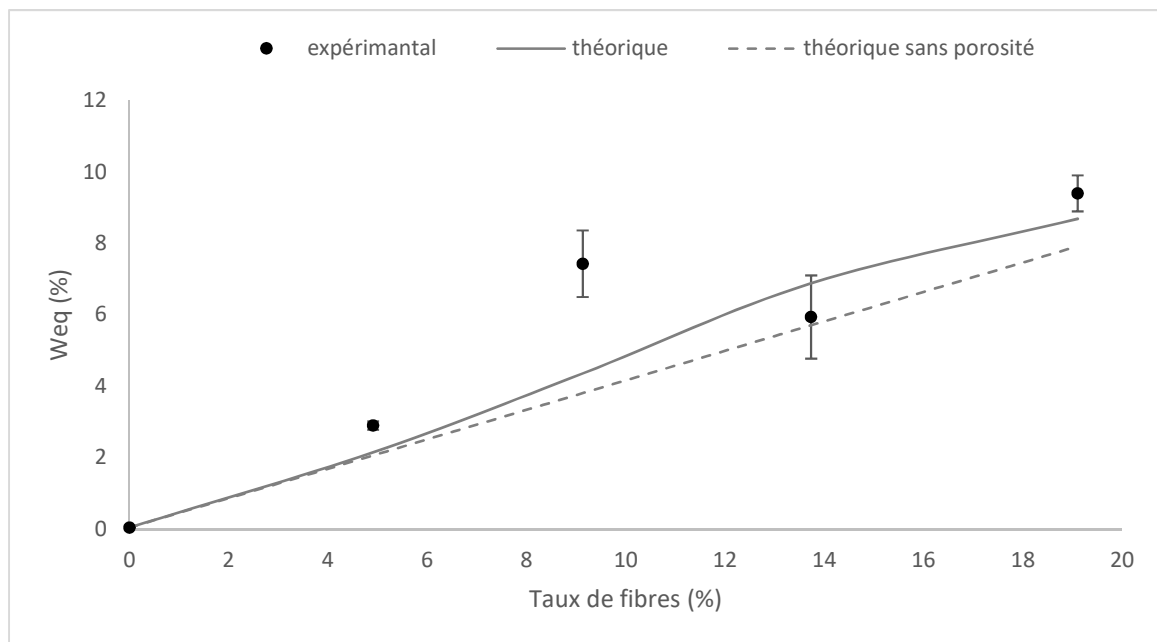


Figure B.IV. 1 : Evolution de l'absorption d'eau des UPP en fonction du taux de chargement en fibres.

La Figure B.IV.2 regroupe les valeurs expérimentales et théoriques des taux de saturation des composites renforcés par les fibres traitées à 10%. Les valeurs théoriques ont été calculées sans prendre compte de la porosité, faute de données. Les résultats ont montré un taux de saturation, plus ou moins similaire sur l'ensemble des biocomposites étudiés, entre 2,77% et 2,89%, qui sont, à l'exception de NPP-10%, en concordance avec les résultats théoriques. Dans la même lignée, Doan et al. [194] ont rapporté des résultats comparables sur les composites fibre de Jute

(10% en mass) / PP + MA-g-PP dont leur taux de saturation est entre 2,09 et 2,74% selon le type de la matrice PP utilisée.

Les NPP-10% ont adsorbé moins que ce qui a été prévu théoriquement. En effet, lors de l'étude de comportement hygrothermique des NTFD (voir § A. IV. 5) il a été conclu que ces fibres ont présenté une forte absorption d'eau par condensation capillaire lorsque a_w est supérieure à 0.70 (le cas d'immersion dans l'eau) en raison de la présence des micropores sur leurs surfaces. Cet effet semble être limité lorsque les NTFD sont imprégnées dans le PP, ces fibres se montrent avoir la même capacité d'adsorption que les autres fibres traitées. Généralement, lorsque l'adhérence entre la matrice et les fibres est parfaite, l'introduction de la matrice dans les pores présents sur la surface des fibres est forte probable et pourrait justifier ce changement de capacité d'adsorption des fibres, quoique, avec un tel état d'interface (voir § B. III. 1.1) il est difficile de conclure les mêmes constats ; au contraire on s'attend généralement à une absorption relativement importante due à la présence de cette interface, comme il a été constaté pour les UPP.

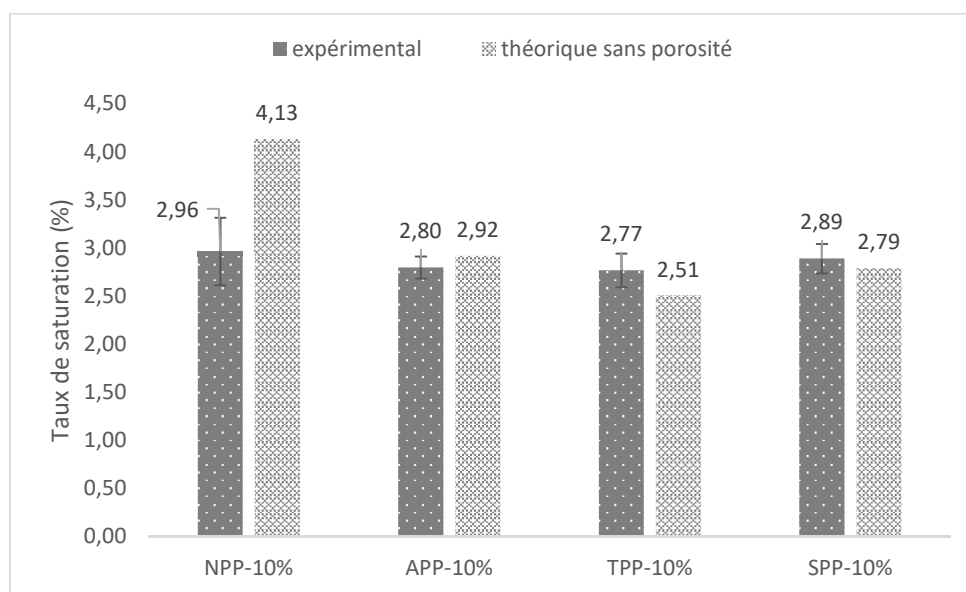


Figure B.IV.2 : Taux de saturation théoriques et expérimentaux des différents composites renforcés par les fibres de Diss traitées.

IV.1.2. Comportement diffusif des biocomposites à base des fibres de Diss

Les Figure B.IV. 3 et Figure B.IV. 4 regroupent les courbes d'adsorption, M_t/M_{eq} en fonction de la racine carré du temps sur l'épaisseur de l'échantillon, de PP et des différents biocomposites étudiés dont leurs pentes sont représentatives de la cinétique de diffusion d'eau.

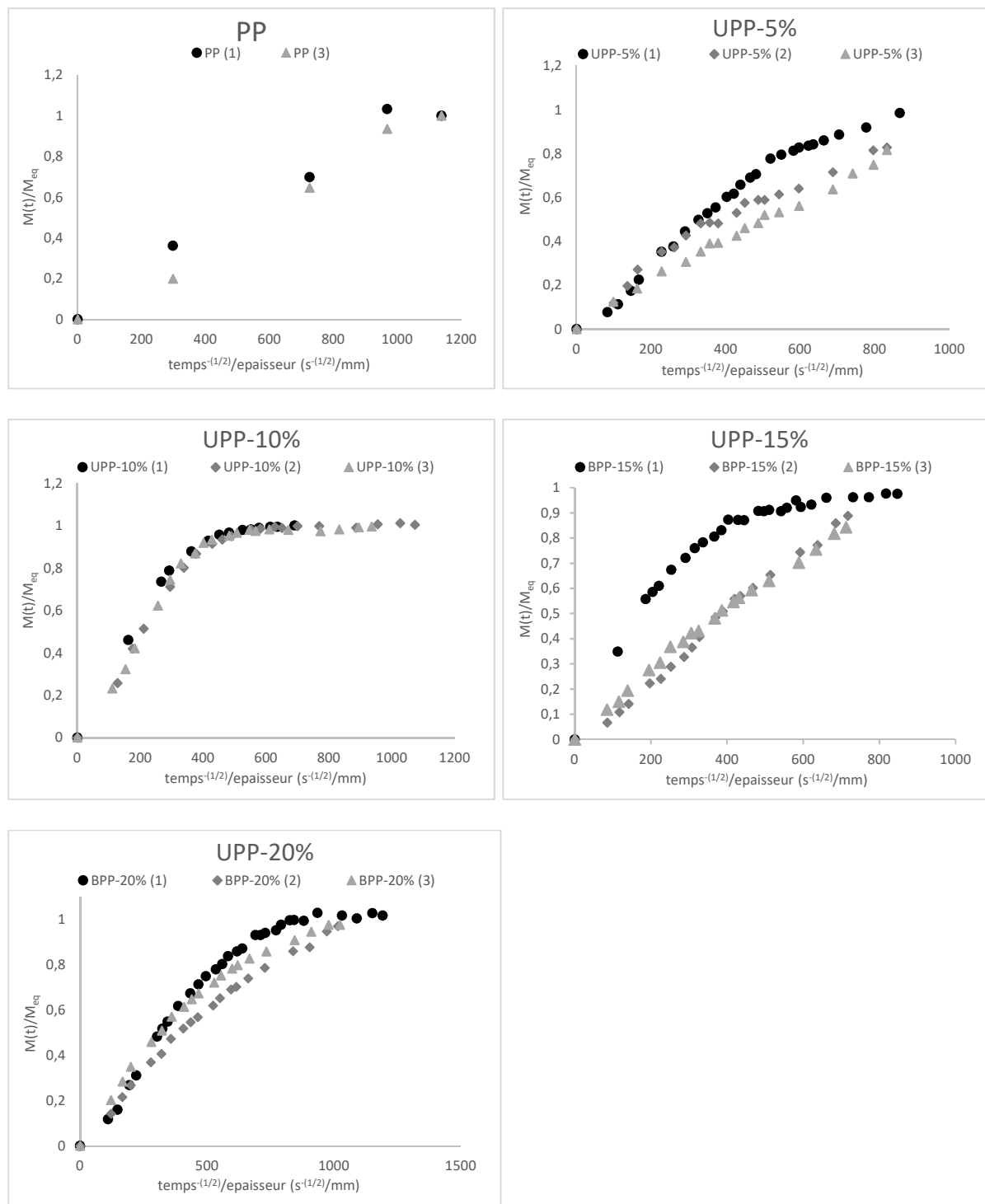


Figure B.IV. 3 : Courbes de diffusion de PP et des composites renforcés par les fibres non traitées.

En raison de leurs faibles taux d'adsorption, les mesures effectuées sur les trois feuilles de PP ont été très perturbées. Seulement deux entre elles ont produit des résultats exploitables. Il convient de noter qu'en raison de leurs faibles épaisseurs, la durée de l'essai était courte (environ 10 jours), et le nombre de mesure était limité. D'autre part, la courbe de l'échantillon (1) des UPP-15% présente un comportement différent par-rapport aux autres courbes, une

adsorption environ 2 fois plus rapide a été observée, cela pourrait être dû à la présence des microfissures qui ont permis de connecter les zones interfaciales des différentes fibres, ce qu'on appelle communément la tortuosité. Par-conséquent cela a conduit à une diffusion plus rapide. Ce comportement n'a pas été observé pour les autres biocomposites. Par-conséquent, cette courbe a été exclue pour ce qui suit.

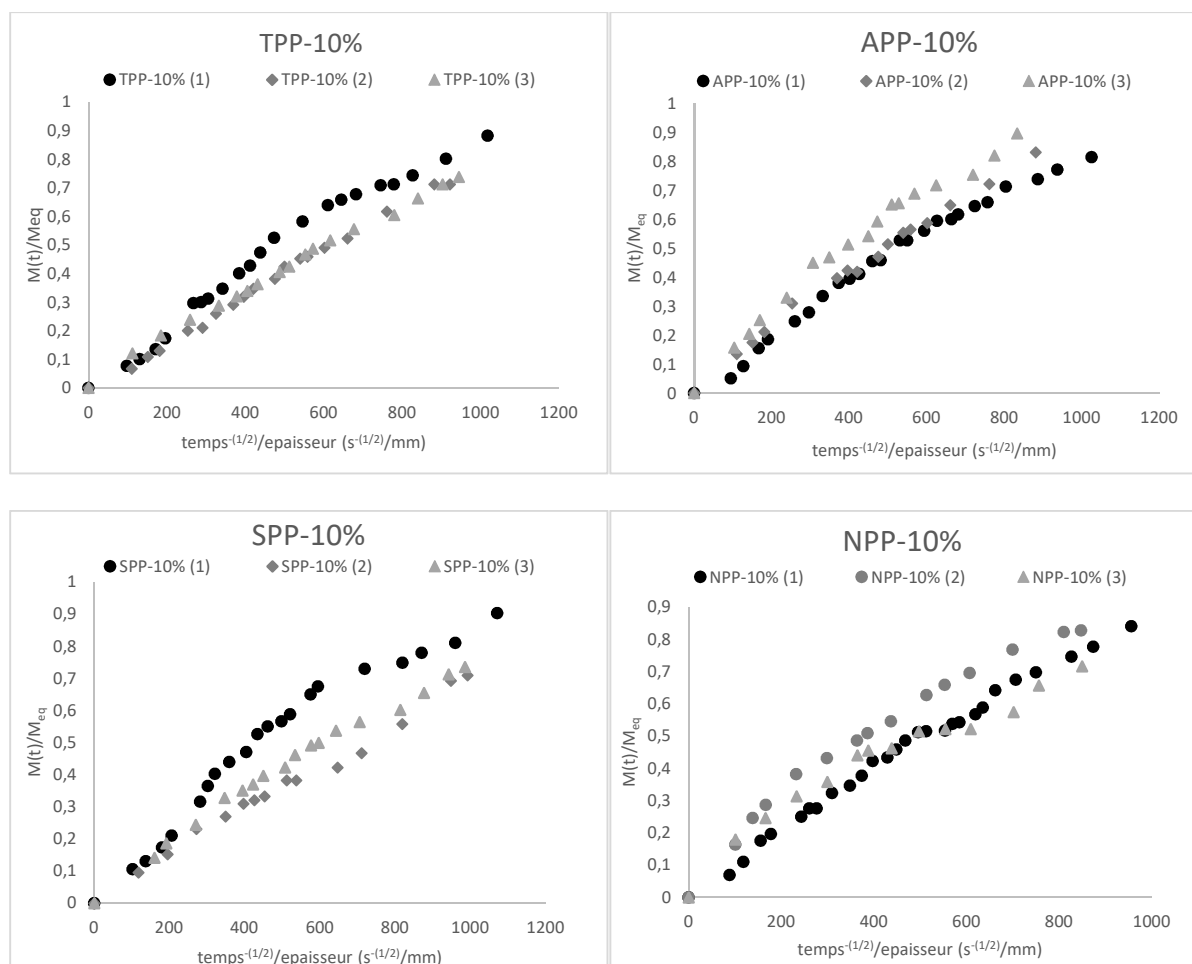


Figure B.IV. 4 : Courbe de Diffusion des différents composites renforcés par les fibres traitées.

Comme il a été déjà indiqué dans le chapitre précédent (voir § B.II. 2) les échantillons ont été immergés dans l'eau pendant environ 4 mois, toutefois, la saturation n'a pas été atteinte, sauf les UPP-10%. Ces derniers ont atteint leurs saturations après environ 2 mois et 15 jours. Il a été observé également que leur taux de saturation était plus élevé que celui des NPP-15% et celui calculé théoriquement à 10% de chargement, (voir la section précédente). Cela est dû probablement à une présence élevée de porosité dans les échantillons prélevés. Une observation de leurs microstructures par MEB aurait aidé à confirmer ou nier cette hypothèse. Néanmoins, en raison des délais de la thèse ces échantillons n'ont pas été observés.

Les coefficients de diffusion des différents composites et de PP ont été calculés à partir de l'Eq. B.I. 1 en supposant que la diffusion est unidirectionnelle et les résultats sont regroupés dans le Tableau B.IV. 1.

Les résultats ont montré un coefficient de diffusion moyen de $(1,89 \pm 1,42) \cdot 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$ pour le PP. Le domaine d'incertitude de ces résultats est important à cause de la difficulté rencontrée pour capter sa variation de masse lors de l'essai d'immersion dans l'eau. Pourtant, Dans la littérature nous pouvons constater une multitude de valeurs pour le coefficient de diffusion de PP qui varie de $1,5 \cdot 10^{-3} \text{ mm}^2/\text{s}$ [198] jusqu'à $1,4 \cdot 10^{-8} \text{ mm}^2/\text{s}$ [226] (Tableau B.I. 2). Parmi ces auteurs, Law et Ishak [196] et Lee et al.[219] ont obtenu une valeur de $1 \cdot 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$, la plus proche de nos résultats ; de même pour leurs résultats sur les composites fibres de Kénaf (30%)/PP.

Tableau B.IV. 1 : Coefficients de diffusion des différents biocomposites.

	$D_1 (\text{mm}^2/\text{s}) \cdot 10^7$	$D_2 (\text{mm}^2/\text{s}) \cdot 10^7$	$D_3 (\text{mm}^2/\text{s}) \cdot 10^7$	$D_{\text{Moyen}} (\text{mm}^2/\text{s}) \cdot 10^7$
PP	2,90	-	0,89	$1,89 \pm 1,42$
UPP-5%	4,41	3,56	2,06	$3,34 \pm 1,12$
UPP-10%	-	11,10	11,05	$11,07 \pm 0,04$
UPP-15%	-	3,07	3,54	$3,30 \pm 0,33$
UPP-20%	4,48	3,28	5,15	$4,30 \pm 0,89$
NPP-10%	1,79	3,77	2,20	$2,59 \pm 0,98$
APP-10%	1,94	2,13	3,65	$2,57 \pm 0,88$
TPP-10%	2,21	1,30	1,39	$1,63 \pm 0,47$
SPP-10%	2,80	0,98	1,44	$1,74 \pm 0,89$

A l'exception de UPP-10%, l'effet du taux de chargement en fibres ne semble pas significativement influencer la diffusion dans les UPP (Figure B.IV. 5). Nous pouvons également remarquer un large domaine d'incertitude dans la plupart des cas. En effet, les UTFD ont présenté un coefficient de diffusion relativement proche de celui de PP, soit $0,9 \cdot 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$, (voir § A.IV.5.2.4). Cependant, la présence de décohésion au niveau de l'interface fibres/matrice pourrait amener à une accélération de la diffusion par infiltration de l'eau à travers cette zone, notamment lorsque l'effet de bords n'est pas complètement maîtrisé. En effet, l'efficacité du produit de colmatage (la résine acrylique) pourrait soulever des questionnements, principalement lorsque l'on constate un tel domaine d'incertitude pour la plupart des cas. Dans cette section nous admettons que la diffusion ne se produit qu'à travers

l'épaisseur et l'incertitude des résultats est dû à l'hétérogénéité des échantillons. L'effet de bords sur le processus de diffusion a été étudié plus en détail et sera présenté dans la section suivante.

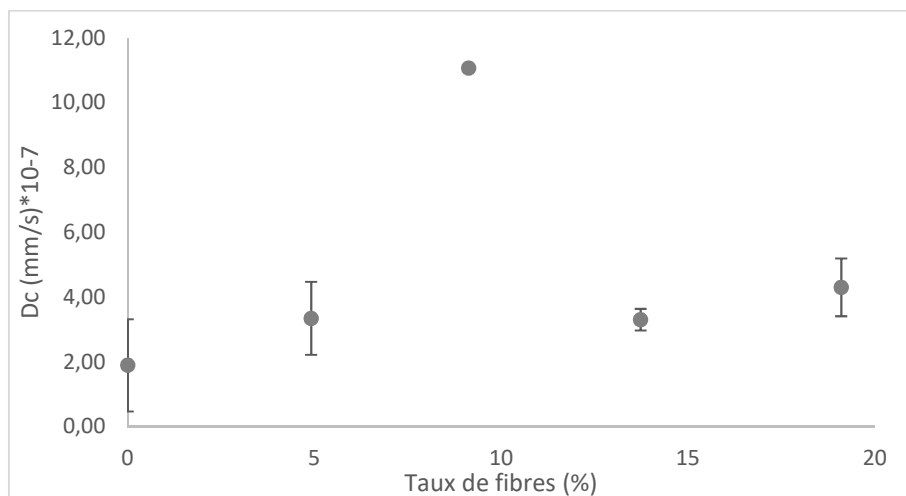


Figure B.IV. 5 : Evolution du coefficient de diffusion des UPP en fonction du taux de chargement en fibres.

Les composites renforcés par les fibres traitées à 10% ont présenté des coefficients de diffusion, plus ou moins similaires en prenant en compte l'incertitude des mesures. D'autre part, leur valeur moyenne semble réduite par-rapport à celles des UPP, notamment, pour les composites TPP-10% et SPP-10%. Cependant il est difficile de conclure un effet explicite des fibres sur le comportement diffusif des biocomposites. En effet, plusieurs paramètres influencent la cinétique de diffusion au sein de ces biocomposites notamment la géométrie et la nature des fibres, l'effet de bords, et l'effet de la zone interfaciale (voir plus loin).

En outre, les résultats obtenus sont du même ordre de grandeur que ceux rapportés dans la littérature. Pérez-Fonseca et al. [193] ont obtenu un coefficient de diffusion de $4,1 \cdot 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$ pour les composites Sciure de Pin (30% en masse)/PP. De leur part, Beg et Pickering [191] ont mentionné un coefficient de diffusion de $2,9 \cdot 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$ pour les composites Kraft (40% en masse) /PP. Dans une autre étude [195], les même auteurs ont cité un coefficient de diffusion de $2,5 \cdot 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$ pour les composites Kraft (40% en masse)/PP + 4% MAPP.

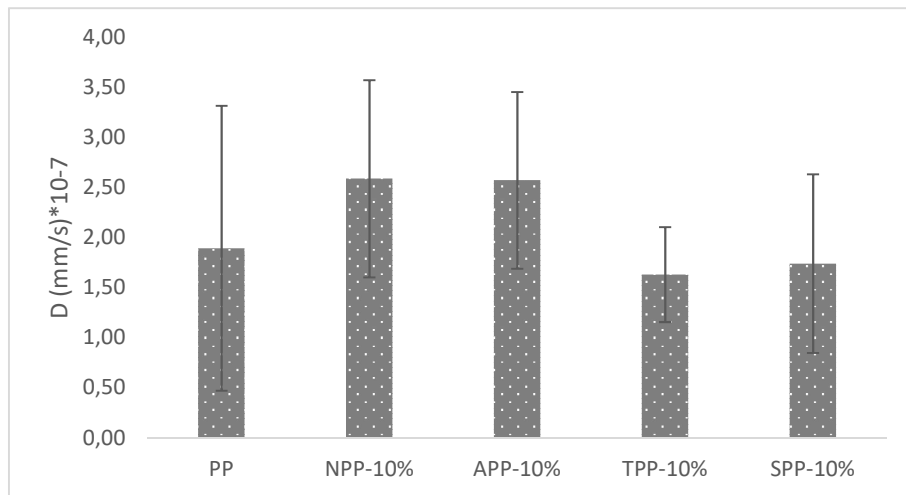


Figure B.IV. 6 : Coefficient de diffusion de PP et des biocomposites renforcés par les fibres traitées.

Comme il a été indiqué précédemment, l'effet de bords pourrait influencer la diffusion à travers les biocomposites, ceci a été nettement observable sur l'échantillon NPP-10% (2) (Figure B.III. 7). Une diffusion par les bords a été constatée dès les premiers jours de l'immersion. Ces observations pourraient expliquer la différence importante des résultats de cet échantillon par rapport aux deux autres.

Afin de comprendre d'avantage le mécanisme de diffusion des biocomposites une étude numérique en éléments finis plus approfondie a été menée en se basant sur les résultats des NPP-10% et leur microstructure.

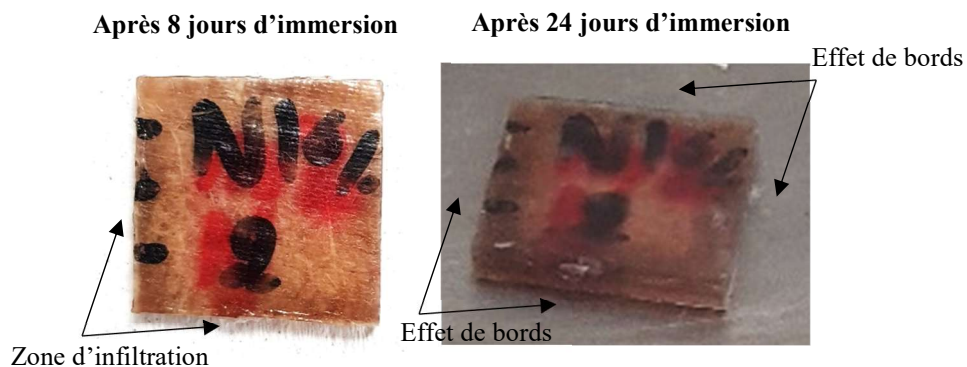


Figure B.IV. 7 : Effet de bords constaté sur l'échantillons NPP-10% (2).

IV.2. Evaluation de l'effet de bords sur le comportement diffusif des biocomposites par une approche numérique à deux échelles

Comme il a été constaté précédemment, un large domaine d'incertitude a été détecté sur l'ensemble des résultats des biocomposites étudiés dû à la contribution des bords dans le processus de diffusion. C'est pourquoi cette section s'intéresse à révéler le mécanisme de diffusion des biocomposites testés dans de différentes conditions ; sans ou avec contribution des bords dans le processus de diffusion de l'eau. De ce fait, une approche numérique multi-échelles basée sur un modèle 2D aux éléments finis a été employée avec une combinaison entre deux logiciels : *Digimat*[®] pour générer la microstructure et *Abaqus* afin d'effectuer les calculs.

Cette étude se focalise dans un premier temps sur le mécanisme de diffusion au sein de la matrice seule, afin de tenir compte de l'effet de bords et corriger le coefficient de diffusion obtenu dans la partie expérimentale. Dans un deuxième temps, une attention particulière a été portée sur le mécanisme de diffusion au sein de la couche active en tenant compte de l'effet d'interface. Ceci par deux modèles en 2D indépendants qui tiennent compte de la diffusion suivant l'épaisseur et la largeur séparément. Les informations obtenues de ces modèles alimentent, par la suite, un modèle mésoscopique qui tient compte de l'effet 3D des fibres dans le mécanisme de diffusion des biocomposites étudiés. Cette partie ne s'intéresse qu'aux échantillons de NPP-10% en raison de la disponibilité des données. D'autre part, le contact fibre/fibre n'a pas été considéré par suite des observations MEB ; par conséquent, l'hypothèse d'une diffusion dans un régime dilué a été retenue.

IV.2.1. Identification du coefficient de diffusion de la matrice

IV.2.1.1. Méthodologie d'implémentation dans *Abaqus CAE*

Le logiciel de calcul aux éléments finis *Abaqus CAE* a été utilisé afin de modéliser le processus d'adsorption d'eau des feuilles de PP. En raison de la symétrie, un quart de la section transversale de la feuille a été représenté, soit $0,5 \times 35 \text{ mm}^2$. Le matériau a été défini par un coefficient de diffusion homogène dénoté $D_{PP\text{-corrigé}}$. Le module physique « mass diffusion » gouverné par la loi de Fick a été employé en transition. Les conditions aux limites de type concentration ont été appliquées sur les bords extérieurs de la feuille modélisée (Figure B.III. 8). La concentration imposée a été estimée à 1 en se référant à la concentration normalisée (M_t/M_{eq}). Des éléments linéaires quadrilatères à 4 nœuds « DC2D4 » ont été utilisés afin de discrétiser la géométrie, avec une taille globale approximative de 0,025 mm (Figure A.IV. 9).

Cette valeur a été déterminée après avoir effectué une étude de convergence du maillage. La courbe normalisée d'adsorption d'eau en fonction du temps d'immersion a été déterminée par la moyenne arithmétique de l'ensemble des concentrations d'eau sur les nœuds à chaque pas de temps.

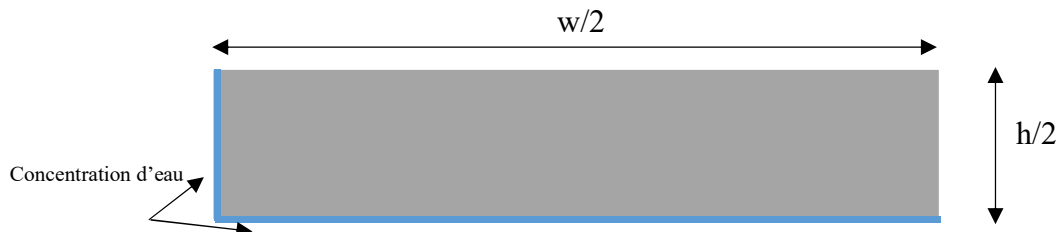


Figure B.IV. 8 : Conditions aux limites appliquées sur la géométrie de PP.

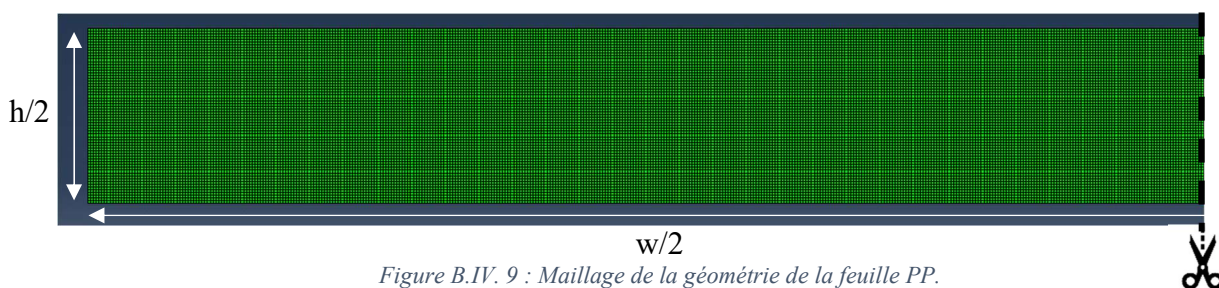


Figure B.IV. 9 : Maillage de la géométrie de la feuille PP.

IV.2.1.2. Résultats et discussions

Le coefficient de diffusion numérique a été déterminé en suivant la méthode illustrée dans la Figure B.IV. 10. Tout d'abord, une concentration d'eau a été imposée sur les bords extérieurs de la géométrie, en conformité avec les essais expérimentaux. Le coefficient de diffusion numérique a été calculé grâce à l'Eq. B.I. 1 sur la base des résultats numériques en supposant que la diffusion est unidirectionnelle. Enfin, le $D_{PP-corrige}$ a été obtenu en utilisant la méthode inverse, qui consiste à varier la valeur de $D_{PP-corrige}$ jusqu'à ce que les valeurs des coefficients de diffusion unidirectionnel expérimental et numérique soient égaux.

Comparant aux résultats expérimentaux ($D_{PP-exp}=1,89.10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$), la valeur de $D_{PP-corrige}$ déterminée ($1,88.10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$) montre un effet mineur des bords sur la direction de diffusion lorsque l'épaisseur de l'échantillon est faible par rapport aux autres dimensions. Des résultats similaires ont été rapportés par Chilali [101], en constatant qu'un rapport w/h de 60 est suffisant pour supprimer l'effet de bord, pour les composites Lin/époxyde et Lin/Elium.

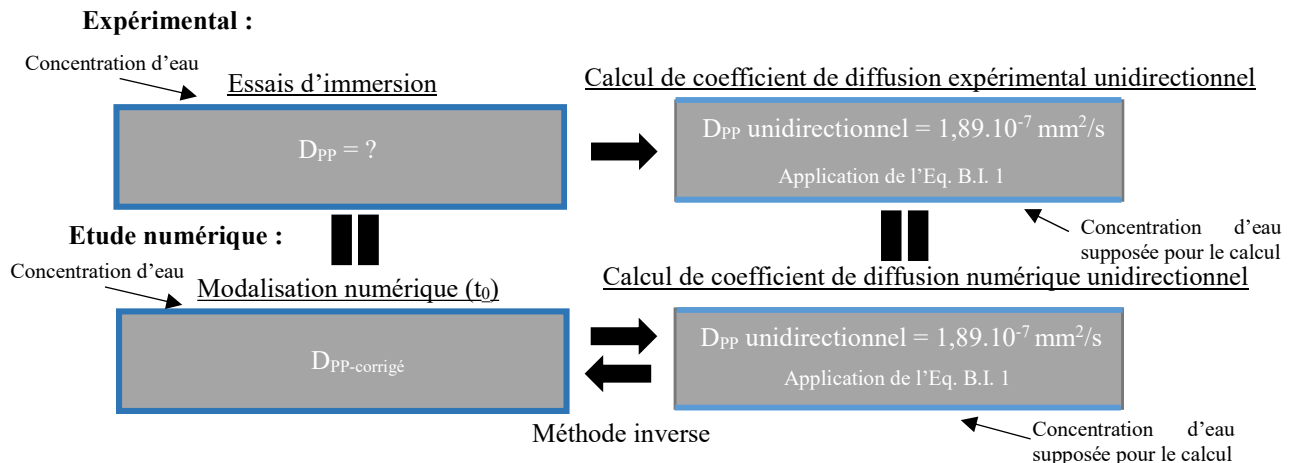


Figure B.IV. 10 : Illustration de la méthode de calcul inverse par approche numérique pour le PP.

La Figure B.IV.11 affiche la courbe de d'adsorption normalisée numérique ainsi que les résultats expérimentaux. Les résultats du modèle numérique sont représentatifs de l'expérimentation. À la suite de ces résultats, le $D_{PP\text{-corrigé}}$ a été employé comme valeur du coefficient de diffusion de PP.

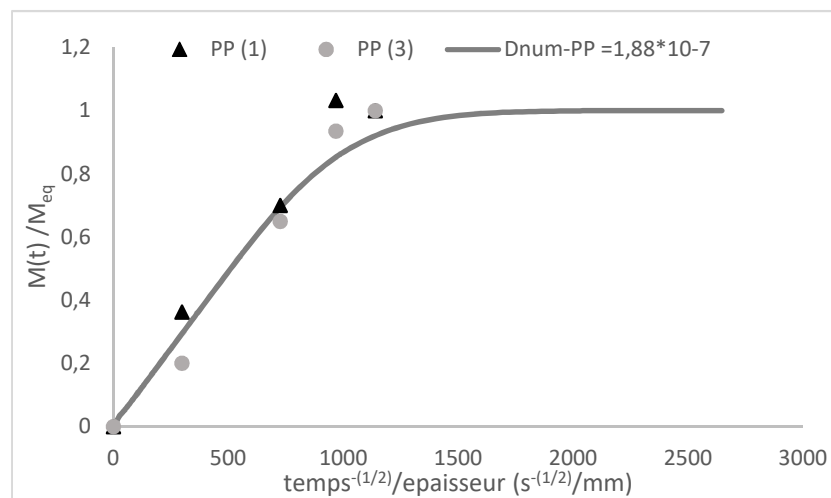


Figure B.IV.11 : Comparaison des résultats expérimentaux de PP (1) et PP (3) avec la courbe d'absorption numérique.

IV.2.2. Identification des coefficients de diffusion de la couche active suivant l'épaisseur

IV.2.2.1. Méthodologie d'implémentation du modèle

La Figure B.IV. 12 présente la méthodologie adoptée dans la présente étude. La microstructure de la section transversale des NPP-10% a été observée par microscope optique et les clichés ont été traités, par la suite, grâce au logiciel de traitement d'image *imageJ*. Tout d'abord, les fibres ont été séparées de la matrice, puis simulées avec une section ellipsoïdale.

Environ 330 fibres ont été analysées sur une surface similaire à celle de l'échantillon modélisé. Les fibres ont été classées en trois catégories selon leurs diamètres, entre 0-40 μm , entre 40-80 μm et supérieur à 80 μm . Chaque catégorie a été représentée par son taux en fibres, son diamètre moyen et son rapport d'aspect moyen L/D. Ces informations ont été utilisées ensuite afin de générer la microstructure de la couche active dans le logiciel *Digimat*®. Enfin, la microstructure générée a été transférée au logiciel de calcul aux éléments finis *Abaqus*.

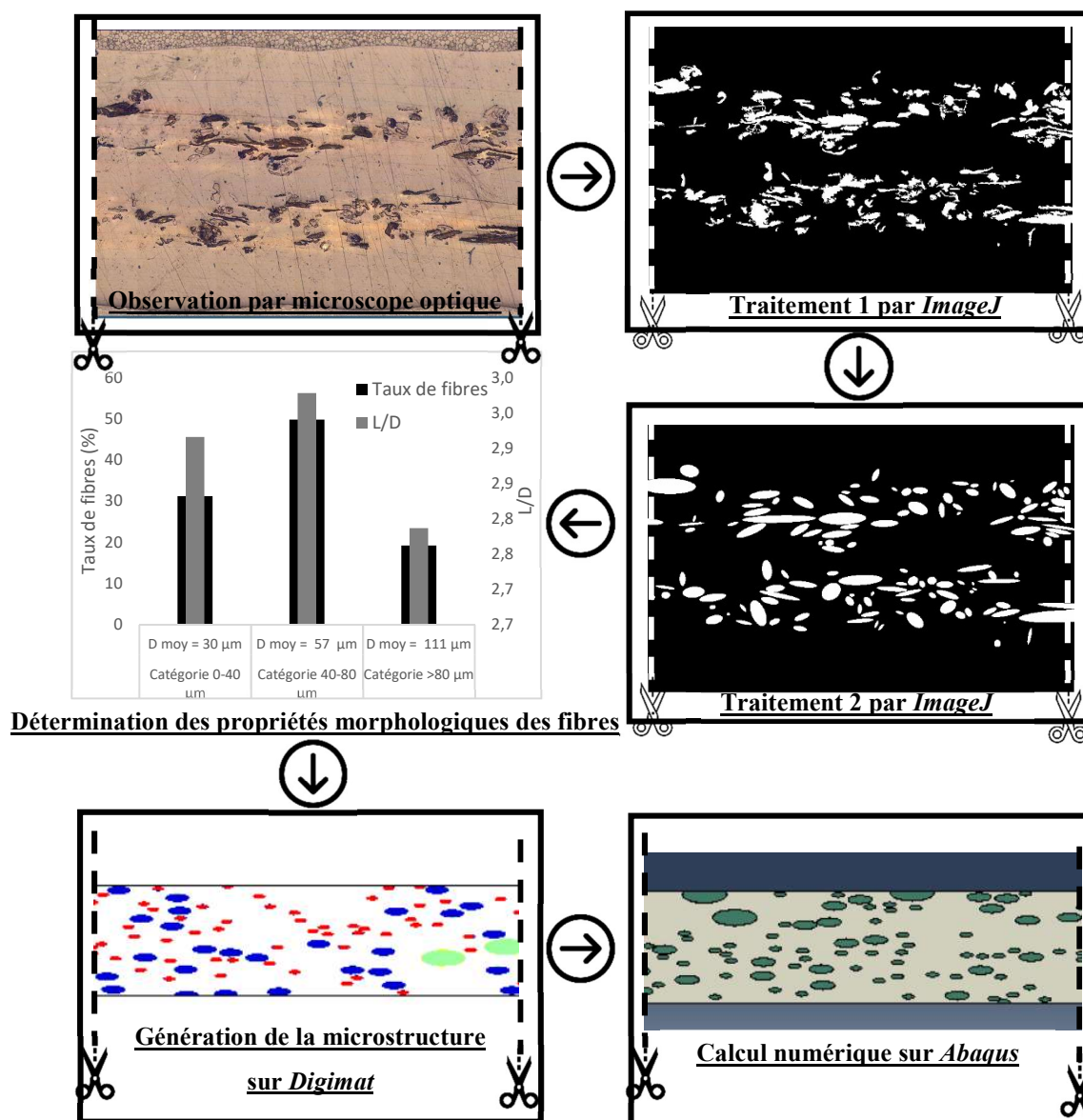


Figure B.IV. 12: Méthodologie adoptée pour l'identification de comportement diffusif à travers la couche active suivant l'épaisseur.

L'étude a été effectuée sans et avec la considération de l'interface fibres/matrice. Cette dernière a été générée par le logiciel *Digimat*® autour des fibres, et son taux volumique a été supposé égal à 5,57%, comme il a été rapporté dans § B.III.1.2 (Figure B.IV. 13). Dans ce cas, trois phases ont été considérées : les fibres, la matrice et l'interface. Les fibres et la matrice ont été

définies par leurs coefficients de diffusion, respectivement, $3,50.10^{-8} \text{ mm}^2/\text{s}$ et $1,88.10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$, alors que l'interface a été représentée par un coefficient de diffusion important qui vaut $1 \text{ mm}^2/\text{s}$ afin de simuler la pénétration d'eau à travers le vide, supposée immédiate. Dans le cas où l'interface n'est pas considérée, la partie qui entoure les fibres a été définie comme une matrice.

Il convient de souligner que les mêmes hypothèses supposées dans § A.IV.5.2 pour la modélisation des fibres de Diss sont maintenues dans cette section.

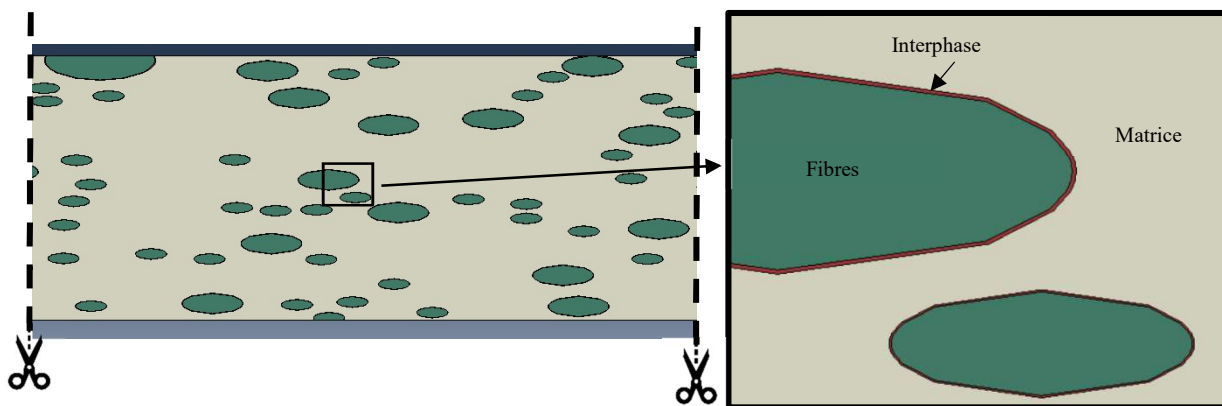


Figure B.IV. 13 : Modélisation de l'interface dans le modèle numérique.

Un quart de la section transversale de la couche active de l'échantillon NPP-10% a été modélisé, soit $0,74 \times 10,34 \text{ mm}^2$. Les mêmes paramètres utilisés pour la modélisation de la feuille de PP ont été utilisés à l'exception de ce qui suit : les conditions aux limites type concentration n'ont été appliquées que sur la borne inférieure afin d'étudier la diffusion à travers l'épaisseur ; une taille globale approximative pour le maillage de $0,008 \text{ mm}$ dont le nombre d'éléments s'élève à environ 154000 (Figure B.IV. 14). Cette valeur a été déterminée après avoir effectué une étude de convergence du maillage.

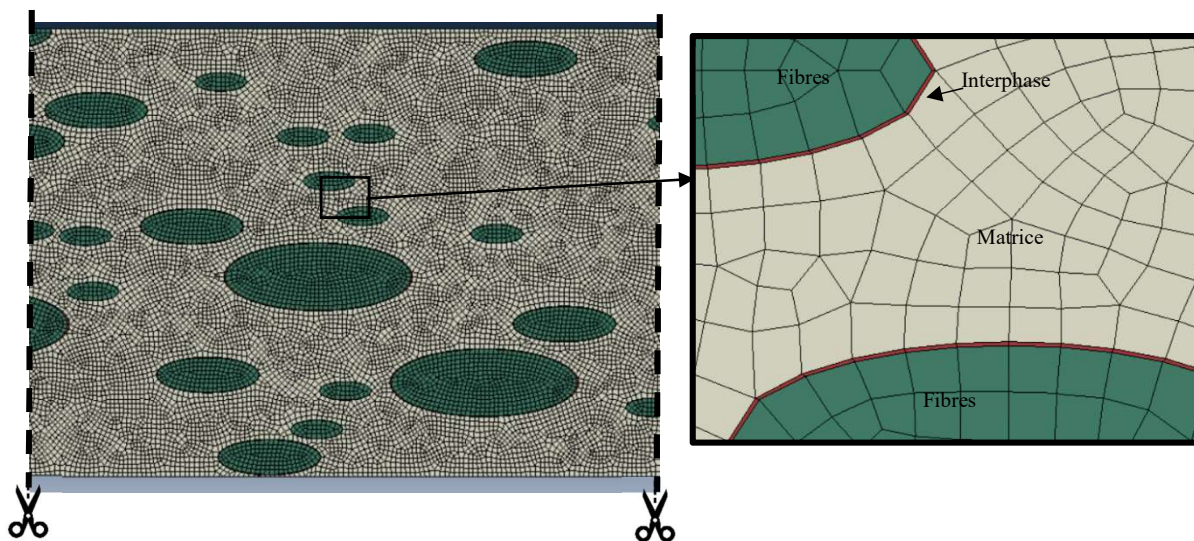


Figure B.IV. 14 : Maillage considéré pour la modélisation de diffusion à travers l'épaisseur.

IV.2.2.2. Résultats et discussion

La Figure B.IV.15 présente le comportement diffusif de la couche active au niveau du contact fibres/matrice avec et sans considération de l'interface. Nous pouvons constater que lorsque l'interface n'est pas modélisée, les fibres freinent la diffusion car elles présentent, d'après les essais expérimentaux, un coefficient de diffusion moins important que celui de PP. Cependant, avec la présence de l'interface, les fibres deviennent des accélérateurs de diffusion. En effet, la diffusion à travers l'interface permet à la concentration d'entourer les fibres et donc une diffusion combinée fibre/interface beaucoup plus importante que celle des fibres seules.

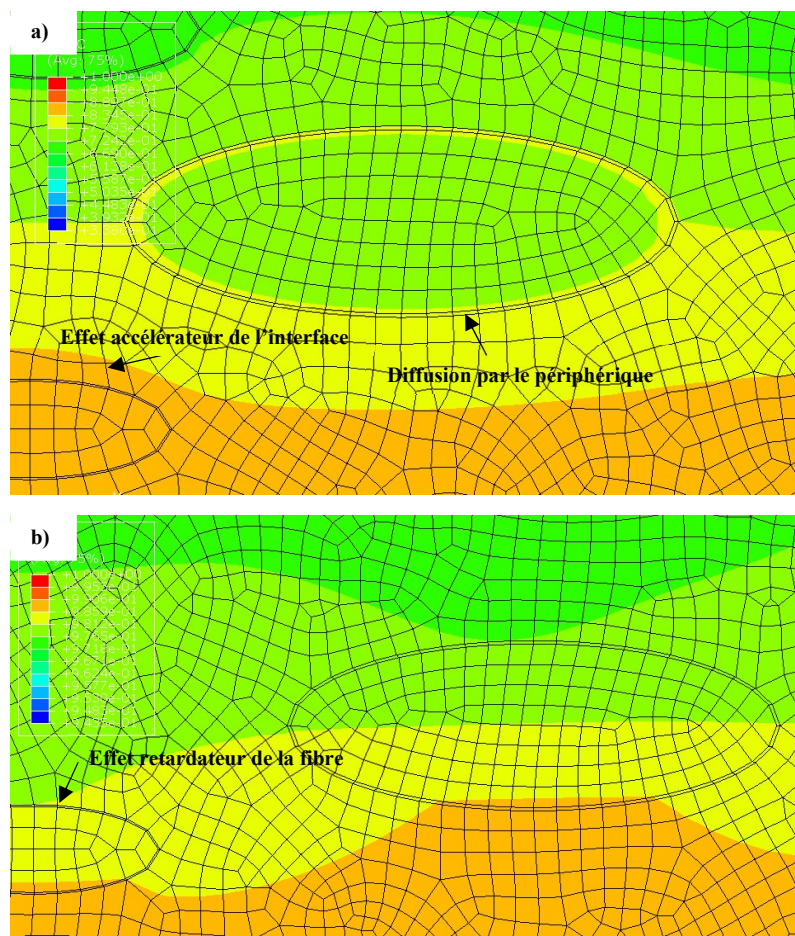


Figure B.IV.15 : Evolution de la concentration d'eau au sein de la couche active au niveau de la zone fibres/matrice : a) avec interface, b) sans interface.

D'autre part, l'effet de l'interface est nettement observé sur les courbes d'absorption normalisées (Figure B.IV.16). La diffusivité de la couche active devient plus importante avec un coefficient de diffusion effectif de $2,36.10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$ contre $1,45.10^{-7}$ sans la considération de l'interface.

La distance entre les fibres est un paramètre qui peut influencer le comportement diffusif de la couche active. Ceci a été constaté lors d'une analyse sur une autre géométrie de la couche active, présentant une distance entre les fibres plus courte. Les résultats ont montré une légère augmentation du coefficient de diffusion de $2,36.10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$ à $2,49.10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$. Une géométrie des fibres avec un rapport d'aspect plus ou moins important affect également les résultats (voir plus loin).

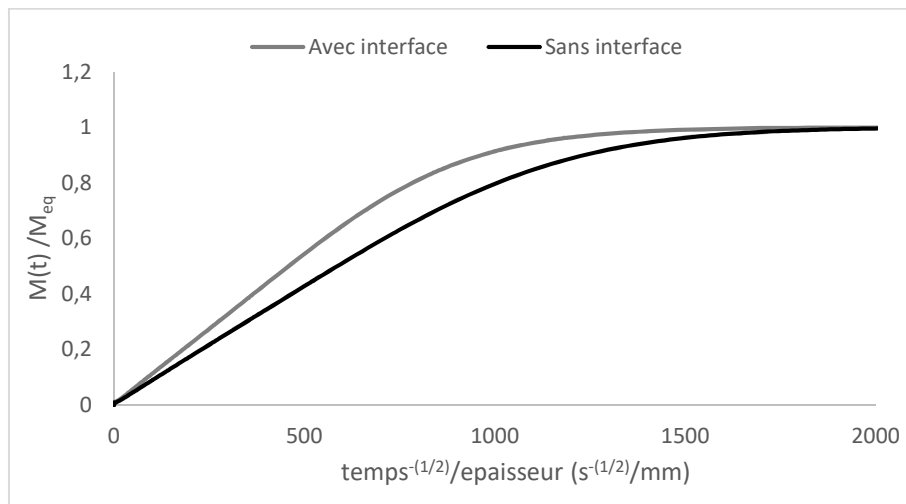


Figure B.IV.16 : Courbes de diffusion à travers l'épaisseur avec et sans la considération de l'interface.

IV.2.3. Identification des coefficients de diffusion à travers la couche active suivant la largeur

IV.2.3.1. Méthodologie d'implémentation du modèle

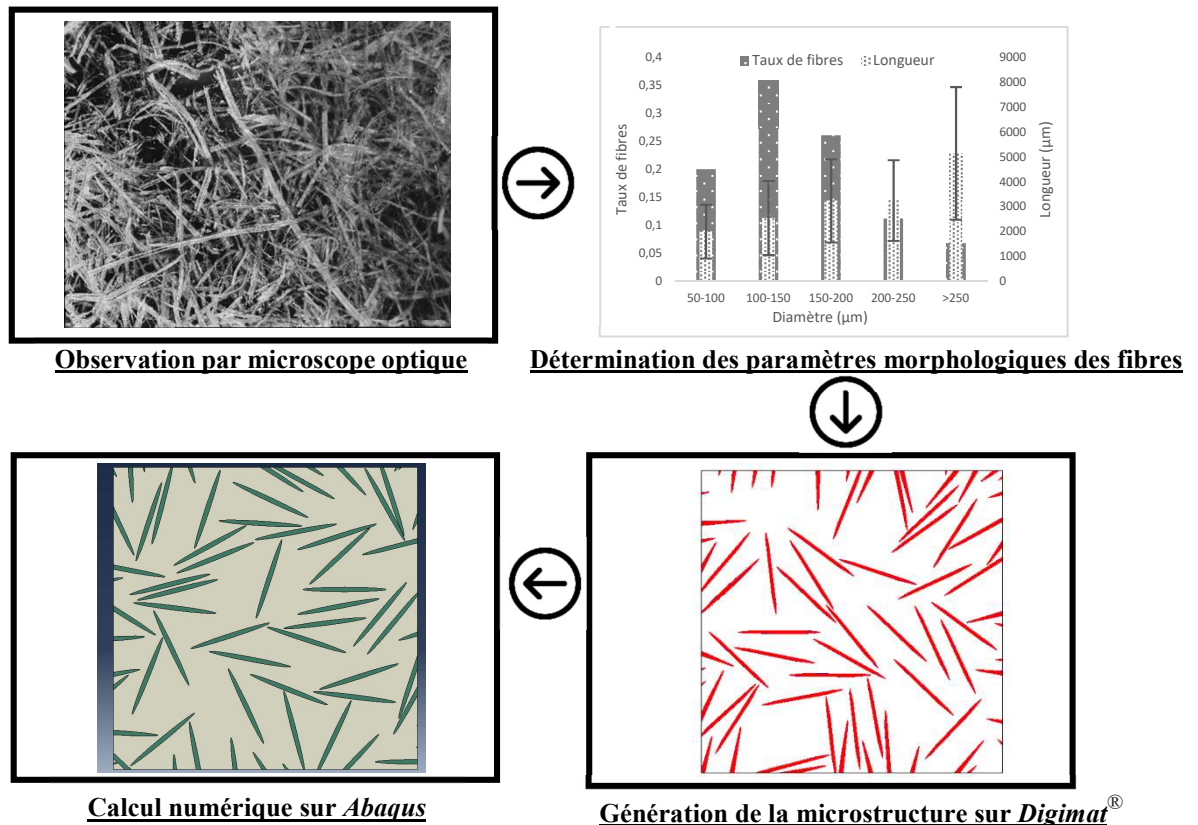


Figure B.IV.17 : Méthodologie adoptée pour l'identification de comportement diffusif à travers la couche active suivant la largeur.

La même méthodologie utilisée dans la section précédente a été reproduite avec quelques modifications (Figure B.IV.17). Les paramètres géométriques moyens des fibres déterminés sur le plan de la couche active dans § III.3.1 ont été exploités. L'étude a été accomplie sans la modélisation de l'interface fibres/matrice à cause de la taille de la microstructure très importante $10,34 \times 10,34 \text{ mm}^2$. Un maillage avec une taille globale approximative de $0,008 \text{ mm}$ n'est plus possible dans ce cas pour que l'interface soit considérée. Une taille globale approximative de $0,04 \text{ mm}$ a été choisie après une étude de convergence des résultats, soit 79900 éléments. L'effet de l'interface a été pris en compte par l'utilisation des coefficients de diffusion effectifs pour l'ensemble fibres/interface.

En effet, il est difficile de conclure un coefficient de diffusion représentatif de l'ensemble fibres/interface, car la diffusion dans ce cas se produit principalement à travers le diamètre de la fibre et elle ne dépend pas de l'orientation des fibres par rapport à la direction de diffusion

(Figure B.IV. 18). À titre d'illustration, si la fibre est orientée parallèlement à la direction de la diffusion et son rapport d'aspect est de 20 (le cas pour la présente étude pour la plupart des catégories) la diffusion sera environ 400 fois plus rapide dans la fibre que lorsque l'interface n'est pas considérée. Alors que la cinétique de diffusion sera peu influencée par la présence de l'interface si la fibre est orientée perpendiculairement à la direction de diffusion dans le composite.

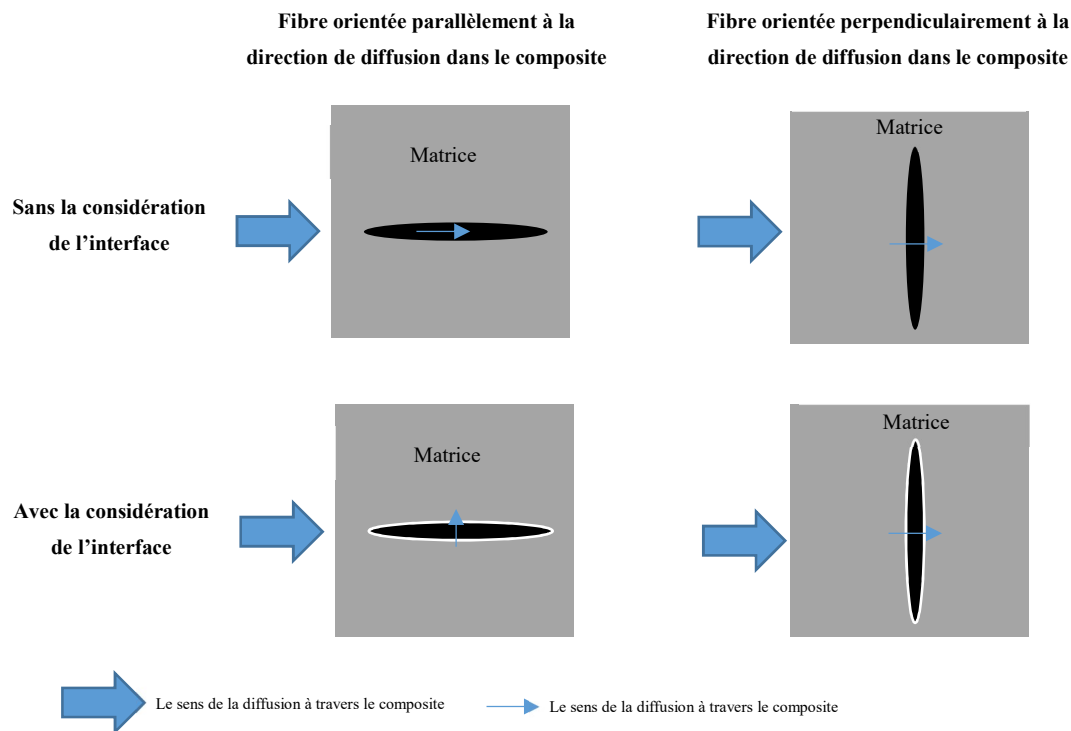


Figure B.IV. 18 : Illustration de la diffusion à travers la fibre lorsque l'interface est considérée ou non en fonction de la direction de diffusion de composite. La géométrie en noir représente la fibre et en blanc l'interface.

Afin de prendre en compte l'effet de l'interface, des coefficients de diffusion compris entre $3,5 \cdot 10^{-8} \text{ mm}^2/\text{s}$ et $3,5 \cdot 10^{-5} \text{ mm}^2/\text{s}$ ont été appliqués. Ces valeurs limites ont été choisies afin de prendre en compte l'effet de l'orientation des fibres par-rapport au sens de la diffusion.

IV.2.3.2. Résultats et discussion

La Figure B.IV.19 regroupe la courbe de diffusion des différents cas étudiés. Nous pouvons constater que les fibres ont un effet marquant sur le comportement diffusif de la couche active lorsque la diffusion se produit à travers la largeur. Ceci a été nettement traduit par le coefficient de diffusion effectif de la couche active qui varie de $1,40 \cdot 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$, lorsque $D_f = 3,5 \cdot 10^{-8} \text{ mm}^2/\text{s}$, à $1,09 \cdot 10^{-6} \text{ mm}^2/\text{s}$, lorsque $D_f = 3,5 \cdot 10^{-5}$.

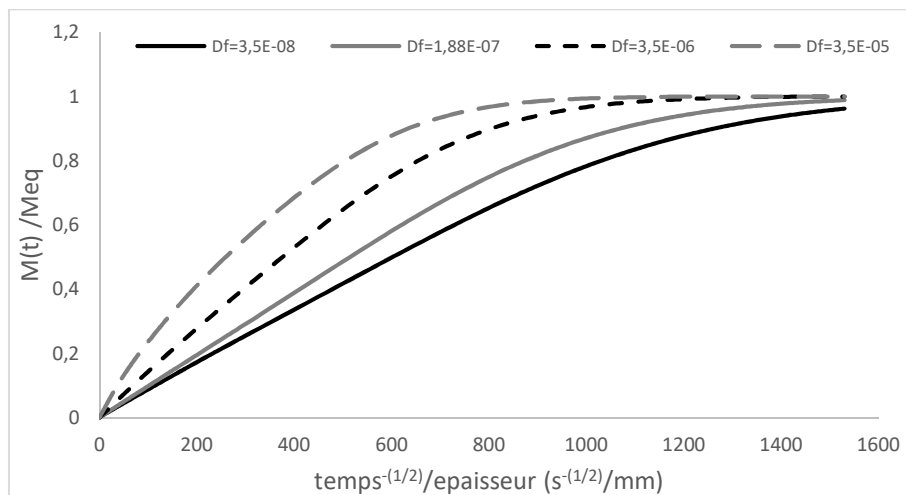


Figure B.IV.19 : Courbes d'absorption normalisées pour la diffusion à travers la largeur de la couche active.

En comparaison avec la diffusion à travers l'épaisseur, il a été remarqué une légère différence entre les coefficients de diffusion lorsque l'interface n'est pas considérée : $1,45 \cdot 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$ et $1,40 \cdot 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$, respectivement, pour la diffusion à travers l'épaisseur et la largeur. Néanmoins, ceci n'est pas le cas lorsque l'interface est prise en compte. Nous pouvons observer à travers les résultats un large domaine de variation pour le coefficient de diffusion à travers la largeur ; jusqu'à 4 fois plus importante que la diffusion à travers l'épaisseur, à cause de l'effet de la géométrie des fibres, plus précisément le rapport d'aspect. Par conséquent, la couche active a été considérée par la suite comme un matériau orthotrope.

IV.2.4. Identification du comportement diffusif des biocomposites par le modèle mésoscopique

IV.2.4.1. Méthodologie d'implémentation du modèle

La même méthodologie utilisée pour la feuille de PP a été reproduite pour ce modèle à l'exception des changements suivants : la géométrie ($1,57 \times 10,35 \text{ mm}^2$) a été générée directement sur le logiciel *Abaqus* en modélisant trois couches, comme le montre la Figure B.IV.20. La couche de peau et la couche intermédiaire ont été considérées comme un matériau isotrope défini par le coefficient de diffusion de PP. La couche active, quant à elle, a été supposée comme un matériau orthotrope et représentée par deux coefficients de diffusion suivant l'épaisseur et la largeur.

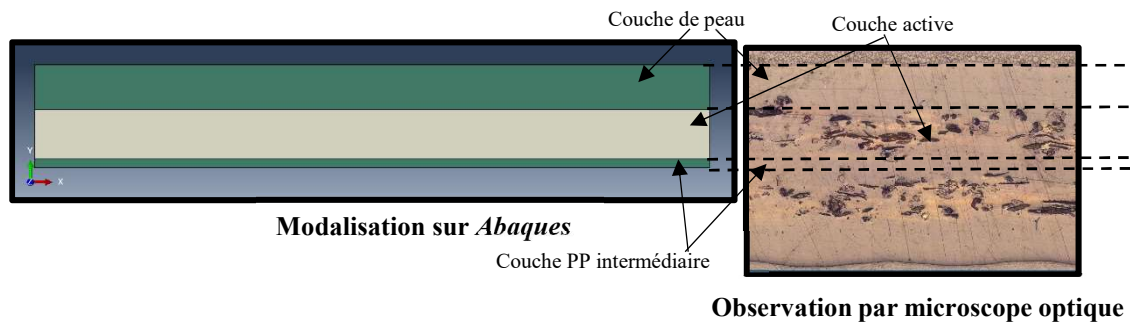


Figure B.IV.20 : Géométrie considérée pour le modèle mésoscopique.

Cinq cas ont été étudiés en combinant les différents paramètres suivants : la considération ou non de l'interface, le sens de diffusion et la valeur du coefficient de diffusion à travers la largeur de la couche active (Tableau B.IV.2). Les coefficients de diffusion effectifs ont été calculés en supposant que la diffusion est unidirectionnelle afin de les comparer avec l'expérimentation (hypothèse de diffusion unidirectionnelle).

Tableau B.IV.2 : Cas d'étude considérés pour le modèle mésoscopique.

Cas d'étude	Sens de diffusion	Couche active		Couche de peau
		D épaisseur	D largeur	D PP
Cas 1	1D (sans interface)	$1,45.10^{-7}$	-	$1,88.10^{-7}$
Cas 2	1D (avec interface)	$2,36.10^{-7}$	-	$1,88.10^{-7}$
Cas 3	2D (sans interface)	$1,45.10^{-7}$	$1,40.10^{-7}$	$1,88.10^{-7}$
Cas 4	2D (avec interface)	$2,36.10^{-7}$	$1,5.10^{-6}$	$1,88.10^{-7}$
Cas 5	2D (avec interface)	$2,36.10^{-7}$	$3,10^{-6}$	$1,88.10^{-7}$

IV.2.4.2. Résultats et discussion

Le Tableau B.IV.3 regroupe les valeurs du coefficient de diffusion effectif (D_{eff}) pour les cas étudiés. Les résultats des cas 1 et 2 montrent que l'effet de l'interface a peu d'influence sur les valeurs de D_{eff} du biocomposite lorsque le sens de diffusion est considéré 1D, en comparaison avec l'étude menée sur la couche active isolée (voir § IV.2.2). Ces résultats sont expliqués par la contribution des différentes couches dans le comportement diffusif effectif du composite, ainsi que par l'effet ralentissant de la couche de peau. Ceci est clairement observable en analysant l'évolution de la concentration au sein de la couche active (Figure B.IV. 21).

L'effet de bords a été également étudié par la prise en compte de la diffusion à travers la largeur (cas 3, 4 et 5). Il a été constaté que D_{eff} augmente avec l'augmentation de D_{largeur} de la couche active. Contrairement à la diffusion à travers l'épaisseur, la diffusion de la couche active à

travers la largeur n'a pas été ralentie car elle est en contact direct avec l'extérieur et sa contribution dans la diffusion est maximale.

Tableau B.IV.3 : Coefficients de diffusion effectif (1D) pour les cas étudiés.

Cas d'étude	Coefficient de diffusion effectif (1D)
Cas 1	$1,80.10^{-7}$
Cas 2	$1,90.10^{-7}$
Cas 3	$2,16.10^{-7}$
Cas 4	$2,83.10^{-7}$
Cas 5	$3,31.10^{-7}$

Dans le cas 3, il a été supposé que l'effet de l'interface n'intervienne pas dans le processus de diffusion. Comparativement au cas 1, l'effet de bord est nettement observable, où D_{eff} a significativement augmenté de 20%. Cette évolution est liée à la taille de l'échantillon. En effet, comme rapporté dans § 0, lorsque le rapport w/h est important, environ 70, l'effet de bord n'a pas de conséquence significative sur les résultats. Dans le cas des NPP-10% ce rapport est d'environ 6 ce qui explique cette augmentation.

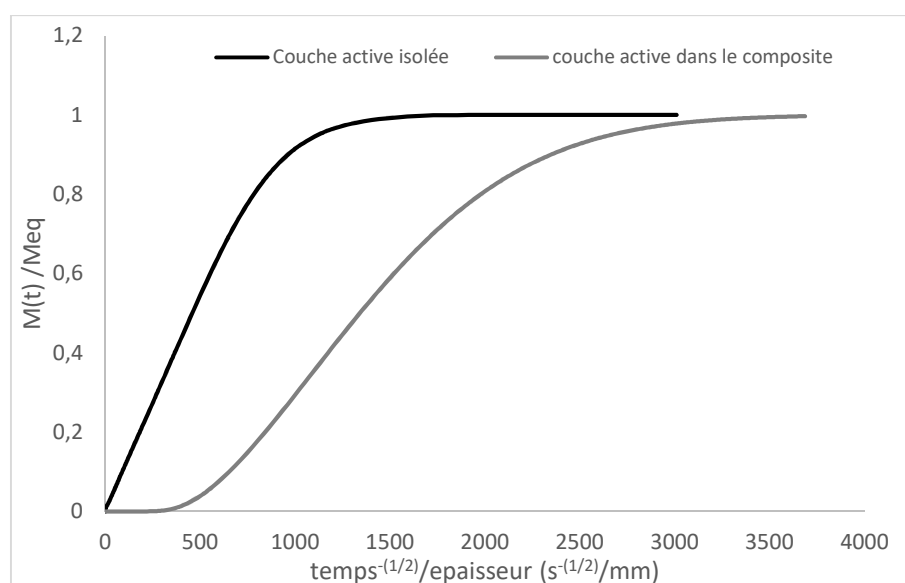


Figure B.IV. 21 : Courbe de l'évolution du taux d'adsorption normalisé de la couche active au sein du composite et isolée.

Pour les cas 4 et 5, avec la prise en compte de l'effet de l'interface, l'effet de bords est plus important sur le comportement diffusif des NPP-10%, traduit par une augmentation significative de D_{eff} .

Afin de mieux comprendre l'effet de bords sur nos expérimentations, ces résultats ont été comparés avec les valeurs expérimentales des échantillons NPP-10% (1), (2) et (3) (voir, respectivement, les Figure B.IV. 22, Figure B.IV.23 et Figure B.IV. 24).

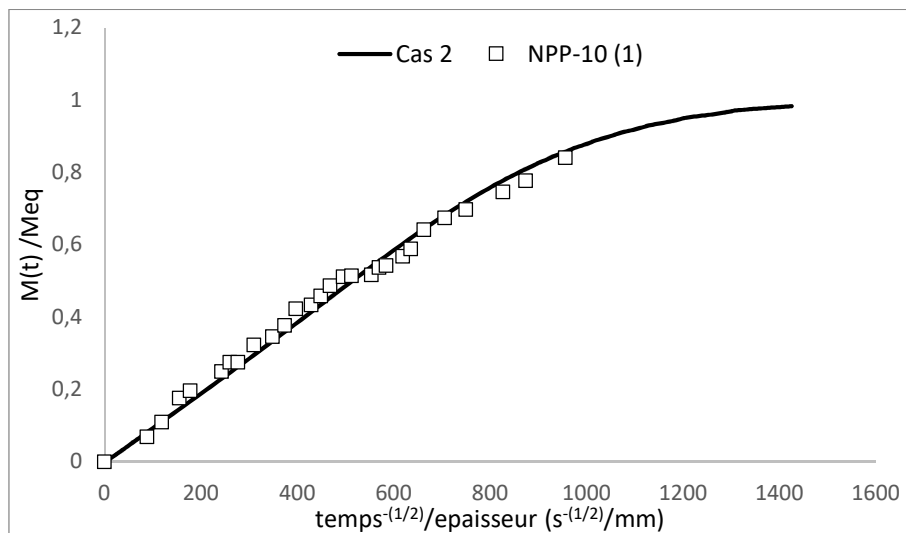


Figure B.IV. 22 : Comparaison des résultats expérimentaux de NPP-10% (1) avec la courbe de cas 3.

Les résultats du cas 2 présentent une très bonne concordance avec les valeurs expérimentales de NPP-10% (1). Ceci peut être expliqué par le fait que le comportement diffusif dans le cas de NPP-10% (1) est unidimensionnel avec l'intervention de l'interface sans effet de bord. En effet, la résine utilisée pour le colmatage des bords semble empêcher la diffusion à travers la largeur dans ce cas.

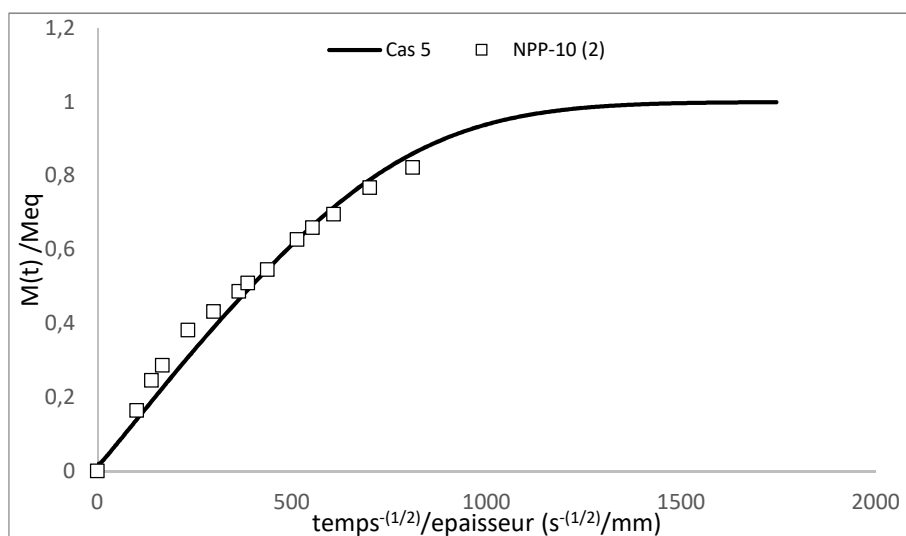


Figure B.IV.23 : Comparaison des résultats expérimentaux de NPP-10% (2) avec la courbe de cas 5.

D'autre part, les résultats du cas 5 semblent mieux présenter les valeurs expérimentales de NPP-10% (2). Ces résultats peuvent s'expliquer par une intervention importante de l'interface dans le comportement diffusif de l'échantillon NPP-10% (2) qui a été traduit par un effet de bords important. Ceci, peut-être, à cause d'une mauvaise application de la résine de colmatage ou une mauvaise adhérence entre la surface colmatée et le produit. Les mêmes constats ont été

soulevés pour l'échantillon NPP-10% (3) avec un effet moins important des bords. Cet échantillon semble en conformité avec le cas 4, notamment lorsque $M(t)/M_{eq}$ est inférieur à 0.5. Au-delà de cette valeur, l'évolution de $M(t)/M_{eq}$ semble être interrompue pendant une bonne durée, puis repartie. Ceci peut être expliqué soit par une perte de poids qui était compensée rapidement par l'eau absorbée, ce qui est peu probable, soit à cause d'une hétérogénéité de l'échantillon.

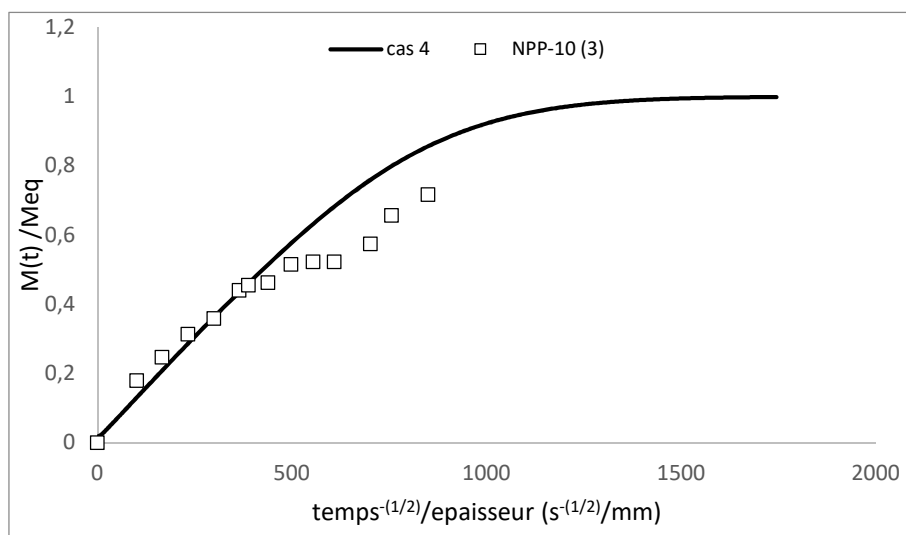


Figure B.IV. 24 : Comparaison des résultats expérimentaux de NPP-10% (3) avec la courbe de cas 4.

Cette présente étude a montré que le cas 2 est le plus représentatif d'un comportement diffusif à travers l'épaisseur lorsque l'effet de bords n'intervient pas. Cela représente le cas d'une plaque de biocomposite dont sa largeur est beaucoup plus importante que son épaisseur. Nous pouvons également modéliser ce cas de figure par un seul modèle qui tient compte de la structure stratifiée de notre biocomposite et les différentes phases (fibres, matrice et interface) comme le montre la Figure B.IV. 25.

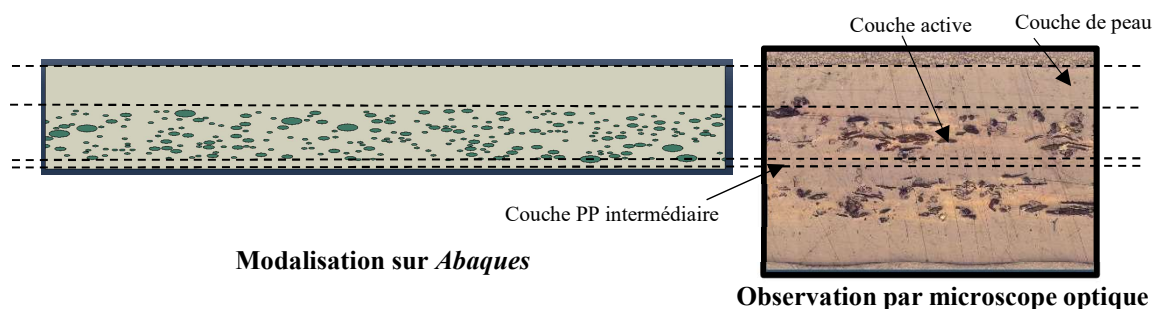


Figure B.IV. 25 : Modèle à deux échelles représentatif de la diffusion à travers l'épaisseur de l'échantillon NPP-10% (1).

Il serait intéressant de valider ce modèle avec l'effet de chargement en fibres. Cependant, ceci n'a pas été réalisé dans la présente étude en raison des délais de la thèse.

IV.3. Vieillissement cyclique par immersion dans l'eau

Lors de leur exposition à un milieu hostile, en contact direct avec l'environnement, plusieurs contraintes environnementales peuvent affecter les propriétés des composites : la variation de température, l'exposition aux rayonnements ultraviolet ou radiochimique, contact avec un liquide (eau, lubrifiants, acides, bases...), atmosphère humide ou saline, environnement biologique [237]. Par ailleurs, lorsqu'il s'agit des composites renforcés par des fibres végétales, l'effet d'humidité est le plus contraignant, notamment s'ils sont exposés de manière périodique par l'action des conditions météorologiques différentes (pluies / soleil / vent...).

Ces contraintes induisent une dégradation irréversible des propriétés des biocomposites, auxquelles la liaison renfort/matrice est particulièrement sensible. Nous évaluons, également, l'efficacité des traitements des fibres vis-à-vis cette contrainte. De ce fait, les différents composites renforcés par les fibres de Diss traitées à 10% ainsi que la matrice PP ont subi des vieillissements cycliques par immersion dans l'eau. L'effet de vieillissement a été évalué par un suivi de la masse des échantillons avant et après chaque cycle, un examen de la microstructure des composites vieillis et une caractérisation mécanique par des essais de traction à faible déformation, pour déterminer le module de Young, suivis par des essais de flexion.

IV.3.1. Evaluation du taux d'adsorption en fonction des cycles séchage/saturation

Les Figure B.IV. 26, Figure B.IV. 27 et Figure B.IV. 28 présentent l'évolution du taux d'adsorption, respectivement, de PP (à 60°C et à 90°C), des biocomposites (à 60°C et à 90°C) en fonction des cycles de vieillissement. Il faut savoir que la durée totale du vieillissement est d'environ 6 mois.

Les résultats montrent que le PP absorbe peu d'eau durant le vieillissement. Par-conséquent, il est difficile de soulever des conclusions sur l'évolution de son taux d'adsorption en fonction des cycles saturation/séchage ; quoiqu'il est possible d'affirmer qu'aucune perte significative de la masse sèche de la matrice n'a été constatée après les différents vieillissements.

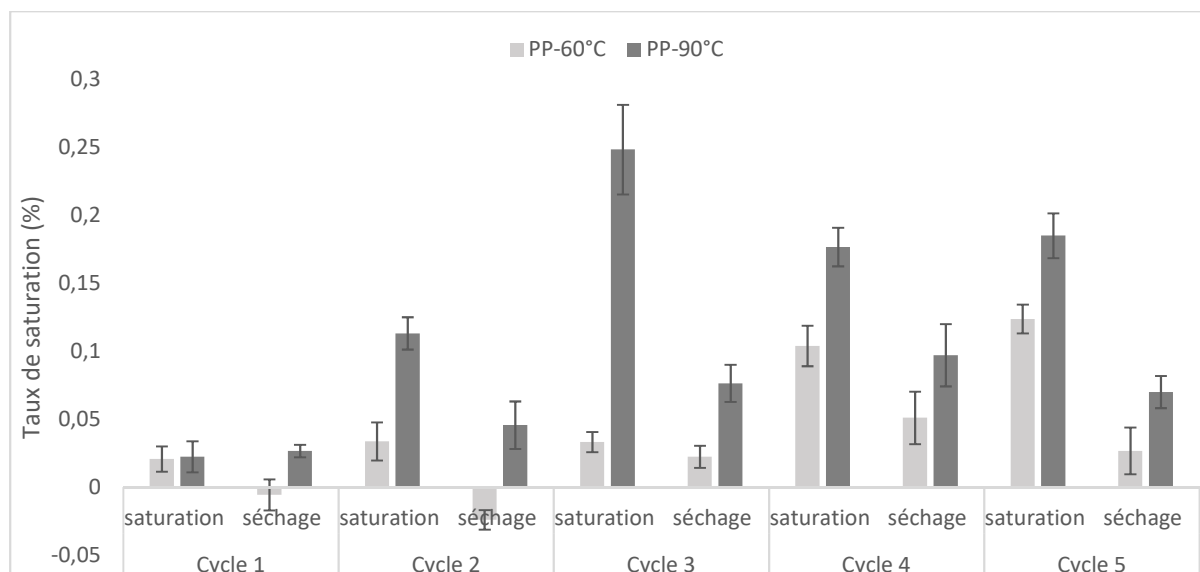


Figure B.IV. 26 : Evolution du taux d'adsorption de PP en fonction des cycles de vieillissement.

D'autre part, nous pouvons remarquer que la quantité d'eau adsorbée pour les biocomposites vieillis dans l'eau à 60°C est reproductible en tenant compte du domaine d'incertitude. Les composites affichent un taux d'adsorption plus ou moins proche de 2,5% en moyenne. Après le séchage, aucune perte de masse significative n'a été constatée. Il est important de noter que le séchage du premier cycle a été effectué à l'air libre pour des raisons techniques.

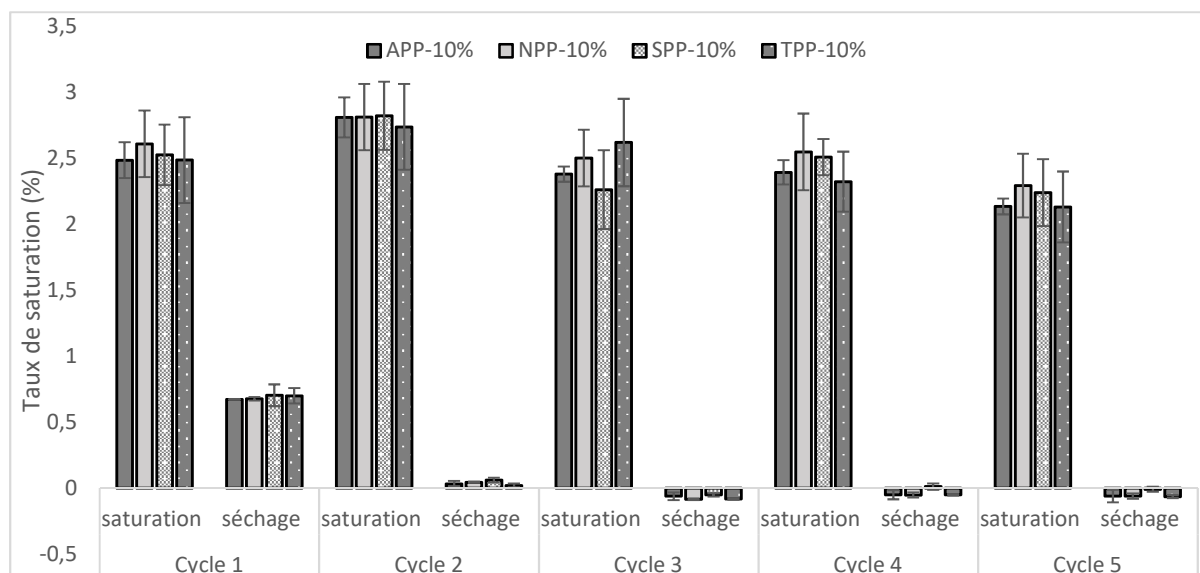


Figure B.IV. 27 : Evolution du taux d'adsorption des biocomposites en fonction des cycles de vieillissement à 60°C.

Pour les composites vieillis dans l'eau à 90°C, nous observons une diminution du taux d'eau absorbée avec le nombre de cycle séchage/adsorption accompagné par une diminution de la matière sèche. Cette dimension semble plus importante pour les APP-10%, notamment après le premier cycle. Au bout de 4 cycles de saturation/séchage, il semble que la masse sèche se

stabilise. Cette perte semble être due à une hydrolyse des fibres, sachant que le PP seul n'a présenté aucune dégradation. Néanmoins, la composition des fibres ne semble pas rester la même après les différents traitements. D'après les résultats expérimentaux (voir chapitre A.III), les NTFD contiennent plus de cellulose que les autres fibres à cause d'une dégradation intense d'hémicellulose et lignine par ce traitement. Les TTFD, quant à eux, leurs compositions chimiques ne diffèrent pas de la composition des UTFD à cause de la nature du traitement qui ne change pas significativement la composition chimique des fibres. Cela peut supposer la possibilité d'une dégradation au niveau des composants amorphes ainsi que la cellulose.

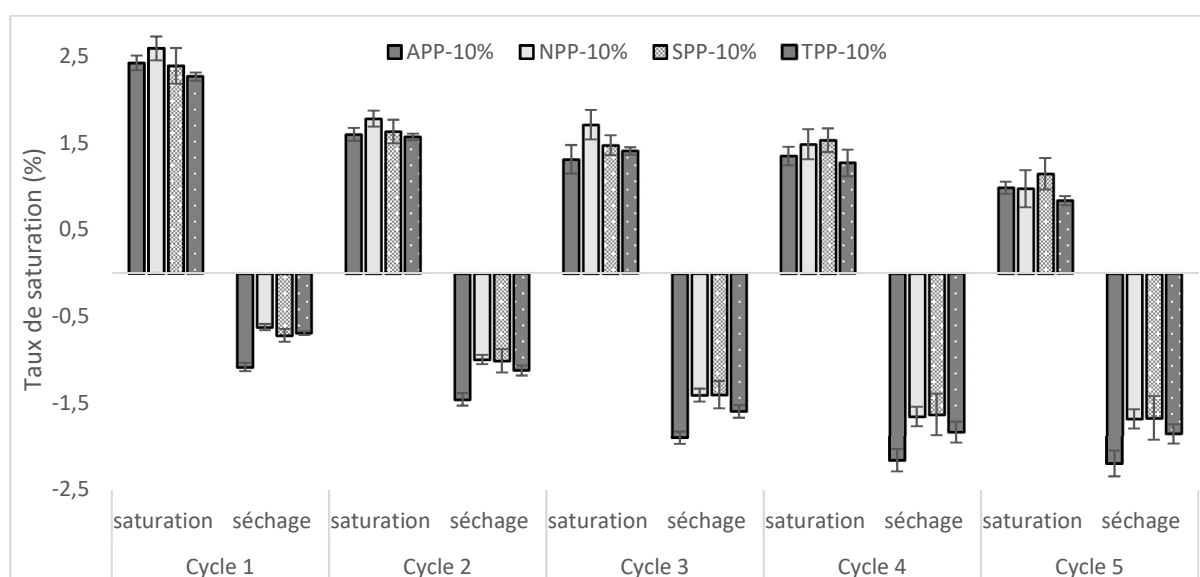


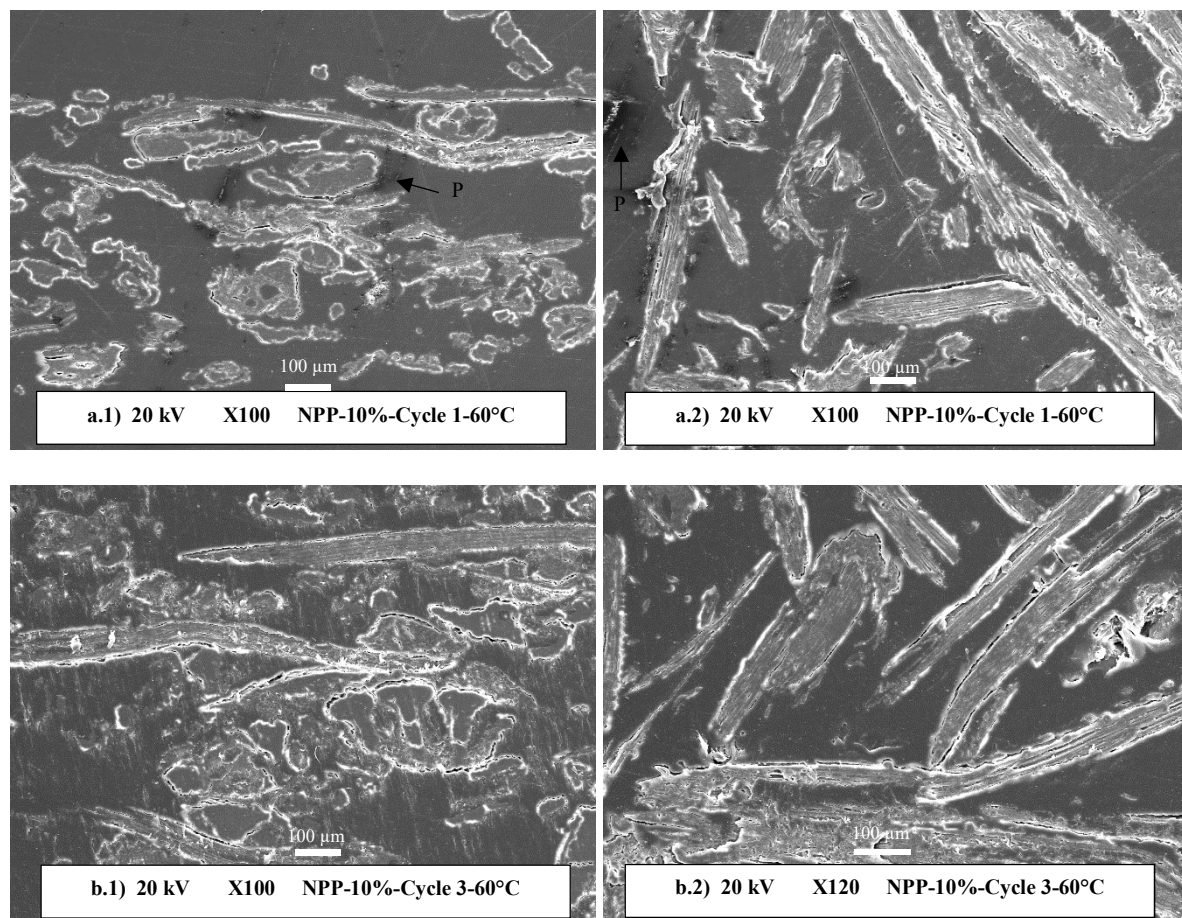
Figure B.IV. 28 : Evolution du taux d'adsorption des biocomposites en fonction des cycles de vieillissement à 90°C.

Plusieurs auteurs dans la littérature ont rapporté qu'un vieillissement accéléré peut conduire à la dégradation des fibres végétales. Islam et al. [264] ont conclu que la cellulose a été significativement dégradée après avoir analysé des résultats obtenus par diffraction de rayon x (DRX) pour différents composites Chanvre/PLA subissant un vieillissement accéléré de 1000 h à 50°C. De leurs côtés, Singh et al. [265] ont mentionné une perte de masse significative, d'environ 22 %, pour les composites de toile de Jute (70% en volume) /résine phénolique après un vieillissement par immersion dans l'eau pendant 8 semaines. Les auteurs ont lié cette réduction à une dégradation biologique des fibres après avoir constaté une présence fongique sur la surface des fibres. Ces derniers constats sont peu probables dans la présente étude en raison de la température de vieillissement élevée ; de plus, aucune présence fongique n'a été observée.

IV.3.2. Microstructure des composites vieillis

La Figure B.IV. 29 regroupe les clichés MEB des NPP-10% après un, deux et cinq cycles de séchage/saturation dans l'eau à 60°C, ainsi qu'après cinq cycles de séchage/saturation dans l'eau à 90°C. Pour chaque cycle, deux clichés sont présentés, dont le premier représente le plan de la section transversal du composite et le deuxième représente le plan de la couche active.

Après les trois premiers cycles, aucun changement significatif n'a pu être observé. Les fibres semblent bien être entourées par la matrice à faible agrandissement et l'interface est observable à grand agrandissement. Après cinq cycles de séchage/saturation, une détérioration des fibres par l'effet de polissage peut être observée. En effet des petits morceaux de fibres semblent être arrachés de la fibre, notamment pour le cas du vieillissement à 90°C (Figure B.IV. 29 (c) et (d)). Cependant, la matrice au niveau de la zone interfaciale ne semble pas avoir subi des changements et aucune fissure n'a été observée. Le processus de vieillissement semble fragiliser les fibres ; ce qui conduit à leurs détériorations. Dans la section suivante le comportement mécanique de ces composites est analysé afin de valider ces constatations.



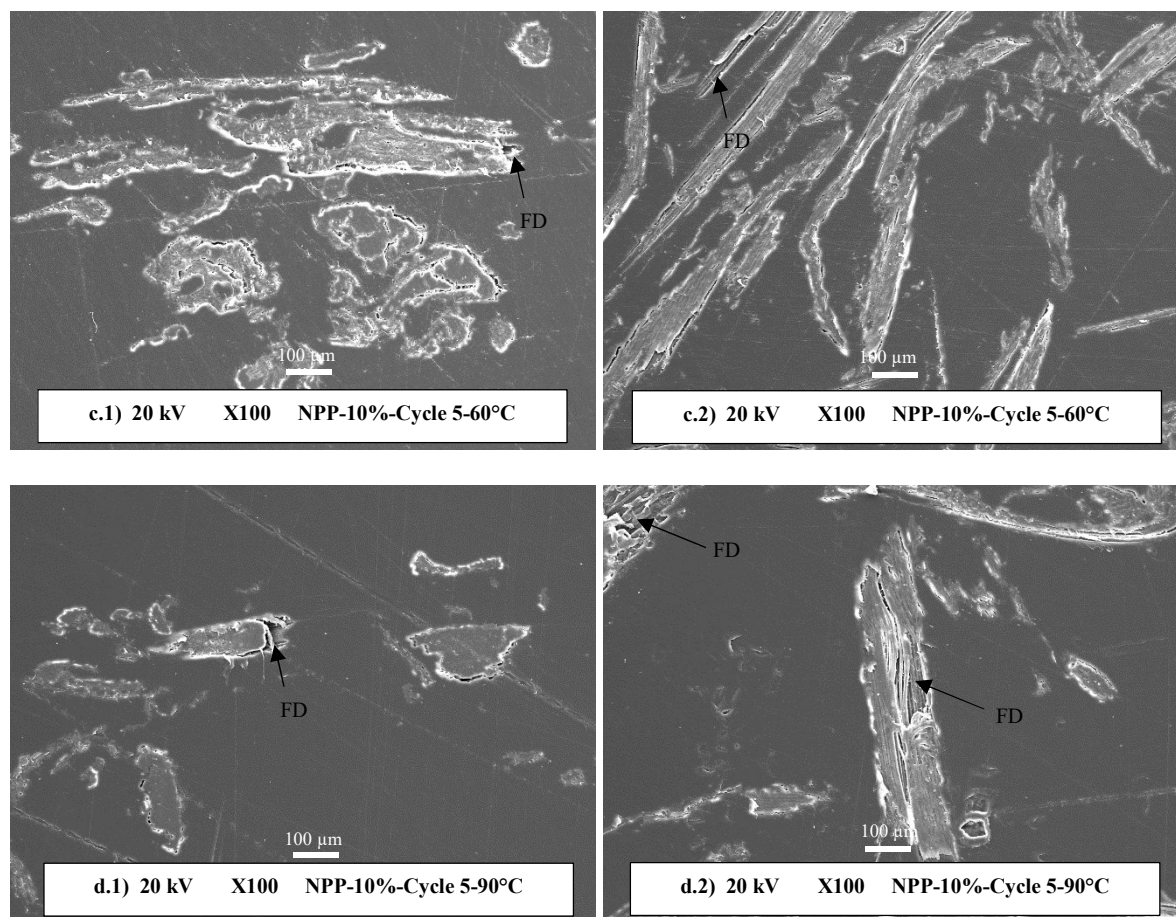


Figure B.IV. 29 : Clichés de la section transversale (1) et le plan de la couche active (2) après : un cycle (a), trois cycles (b) et cinq cycle (c) de vieillissement à 60°C, et à cinq cycles de vieillissement à 90°C (d). P: parasite. FD : fibre détériorée.

Dans la littérature les attentions sont souvent portées à l'état d'interface fibres matrice car elle présente la partie la plus sensible du composite dont les changements sont faciles à détecter. Alors que la détérioration des fibres est difficile à examiner. Freund [238] a observé un lissage des fibres après avoir effectué un vieillissement hygrothermique cyclique sur les composites Lin/Elium. Dans la même lignée, Duigou et al. [266] ont montré qu'un traitement à l'eau pendant 72h est efficace pour nettoyer la surface des fibres de Lin avec une légère diminution de leurs propriétés mécaniques. De leurs côtés, Thwe et Liao [267] ont rapporté, après avoir observé par MEB des faciès de rupture de composite Bambou/PP, une dégradation des fibres de Bambou après un vieillissement dans l'eau pendant 3 mois à 75°C et aussi à 25°C pendant 6 mois. Selon les auteurs, ces dégradations se manifestent par une destruction des liaisons entre les différentes couches de la structure des fibres de Bambou.

IV.3.3. Propriétés mécaniques

La Figure B.IV.30 présente les modules d'Young des différents biocomposites et la matrice PP en fonction des cycles séchage/saturation et la température du vieillissement.

Nous pouvons constater pour les biocomposites vieillis dans l'eau à 60°C une diminution progressive de leur module d'Young, jusqu'à atteindre sa valeur minimale après cinq cycles. Classés selon leurs résultats mécaniques avant le vieillissement, les NPP-10%, les TPP-10%, les APP-10% et les SPP-10%, ont présenté une réduction du module après 5 cycles à 60°C, respectivement, de 9,40%, 13,20%, 6,30% et 5,60%. Ces valeurs ont été réduites davantage après le vieillissement à 90°C, respectivement, de 22,50%, 24,20%, 12,40% et 16,40%. Cette baisse peut être expliquée par une perte d'adhésion progressive et/ou une dégradation des fibres notamment pour le vieillissement à 90°C, comme il a été rapporté dans § B.IV.3.1. D'autre part, aucune baisse significative du module n'a été notée pour la matrice PP après les différents vieillissements.

Des constatations, plus ou moins similaires, sont souvent rapportées dans la littérature pour des vieillissements cycliques accélérés ou bien pour des vieillissements à long terme sur des différents biocomposites [101], [191], [236], [238], [264], [265], [267].

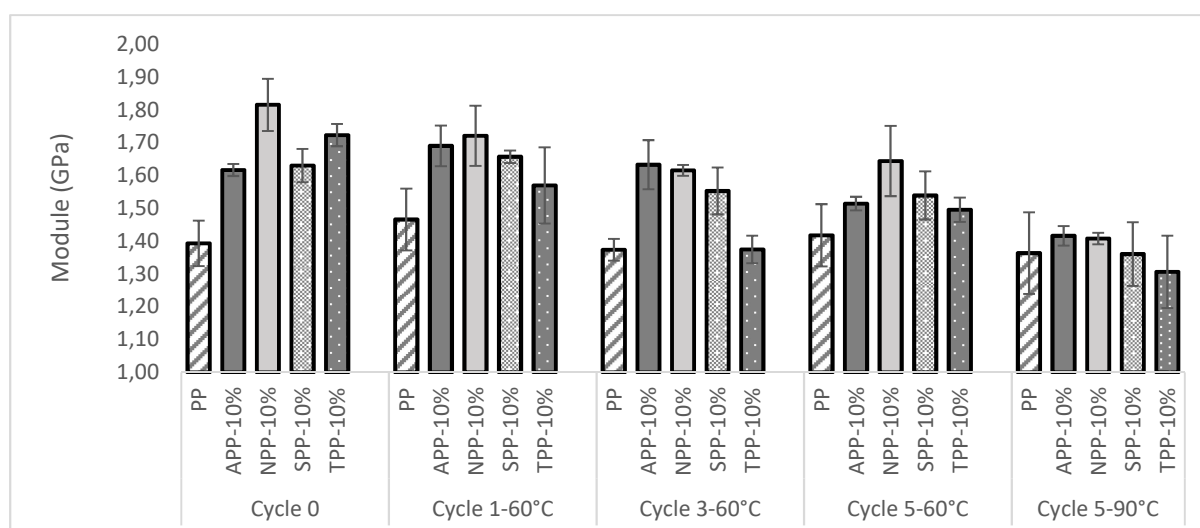


Figure B.IV.30 : Evolution de module de Young des différents biocomposites à 10% de chargement et la matrice PP en fonction des cycles séchage/saturation et la température de vieillissement.

En tenant compte des domaines d'incertitude, les différents composites semblent afficher, plus ou moins, des résultats similaires après les cinq cycles de vieillissement, notamment après le vieillissement à 90°C. A l'exception de NPP-10% pour le vieillissement à 60°C, la matrice PP a présenté un module semblable à ceux des biocomposites après 5 cycles de vieillissement. A partir de ces résultats, il est difficile de conclure l'efficacité d'un traitement par-rapport à un autre vis-à-vis du vieillissement hydrothermique. En effet, il a été constaté que la réduction du module de Young des APP-10% et SPP-10% est moins importante que celle des NPP-10% et

TPP-10%. Cependant l'amélioration apportée par ceux-là, avant le vieillissement par-rapport à la matrice PP, n'est pas aussi significative que celle des NPP-10 et TPP-10%.

En ce qui concerne les propriétés en flexion, la réduction de l'ensemble des propriétés semble être progressive jusqu'au 3ème cycle. Une diminution beaucoup plus marquante que celle observée en traction a été rapportée pour le module de flexion après 5 cycles de séchage/saturation à 60°C, d'environ 20,80%, 20,40%, 18,40% et 17,60%, respectivement, pour les composites APP-10%, NPP-10%, TPP-10% et SPP-10%. D'autre part, les composites APP-10% et TPP-10% vieilliss à 90°C affichent des résultats similaires au vieillissement à 60°C, tandis que les NPP10% et SPP-10% subissent plus de dégradations avec des réductions, respectivement, de 29,70% et 23,10% par-rapport aux composites non vieillis. En outre, comme il a été constaté pour les essais de traction, le module de flexion de la matrice PP ne semble pas être impacté par ces vieillissements.

En tenant compte des domaines d'incertitude, les valeurs de module de flexion des différents biocomposites semblent plus ou moins comparables après 5 cycles de vieillissement dans l'eau à 60°C, alors qu'il est clair que les APP-10% représentent le meilleur module de flexion pour les cas du vieillissement à 90°C, suivi par les TPP-10% puis par les NPP-10% et les SPP-10% avec des résultats plus ou moins similaires. Ces résultats semblent être du même ordre de grandeur que celles de la matrice PP.

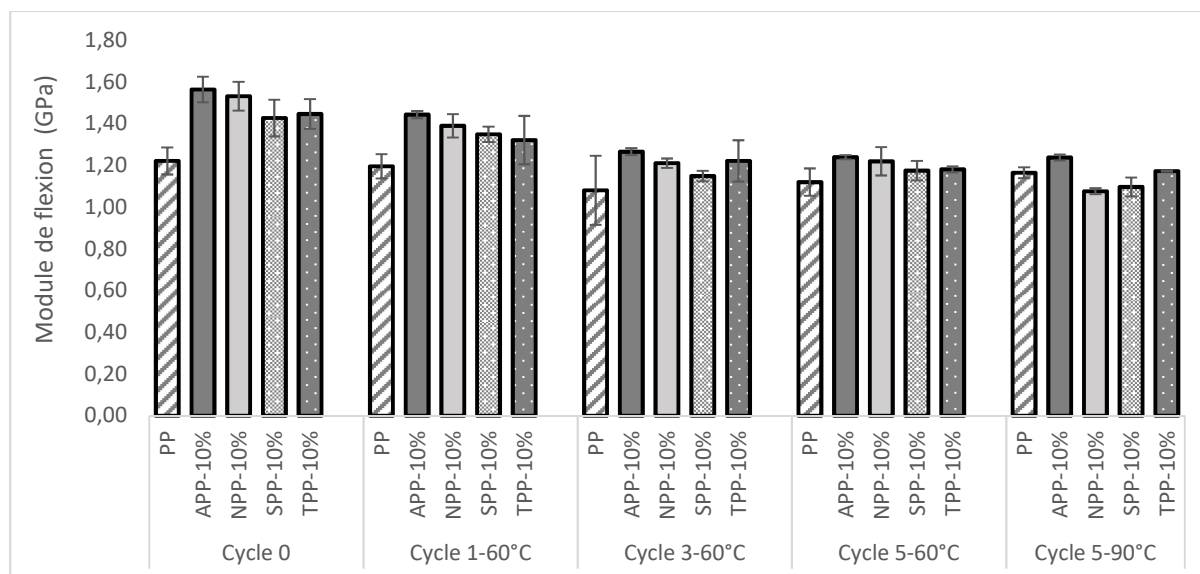


Figure B.IV.31 : Evolution de module de flexion des différents biocomposites à 10% de chargement et la matrice PP en fonction des cycles séchage/saturation et la température de vieillissement

La Figure B.IV.32 présente les valeurs de la contrainte en flexion pour les différents composites. Le taux de réduction est plus intense pour les NPP-10% avec 21%, suivi par les APP-10% avec 15,90, les TPP-10% avec 14,20% et les SPP-10% avec 8%.

En tenant compte des domaines d'incertitude, cette réduction semble similaire à celle présentée par les échantillons vieillis dans l'eau à 90°C. D'autre part, les différents biocomposites semblent présenter des résultats similaires.

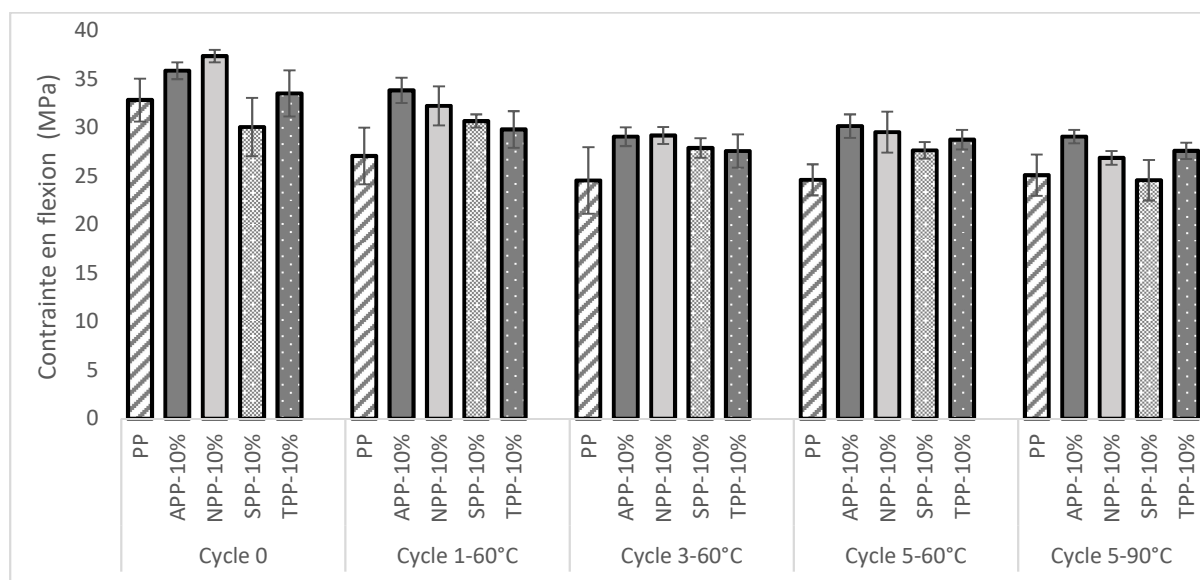


Figure B.IV.32 : Evolution de la contrainte en flexion des différents biocomposite à 10% de chargement et la matrice PP en fonction des cycles séchage/saturation et la température de vieillissement.

La matrice PP, quant à elle, voit sa contrainte en flexion significativement réduite après le premier cycle de vieillissement, environ 18%, et depuis aucune réduction significative n'a été marquée par la suite du vieillissement. Ces résultats peuvent être dus à la création des zones de concentration de contrainte après le vieillissement, notamment après le premier cycle, mais la validation de cette hypothèse est difficile par le présent travail.

Comme il a été rapporté précédemment (voir § B.III.1.3.2), la position des fibres dans la structure stratifiée des biocomposites ne leur procure pas une sollicitation maximale au cours du chargement mécanique des composites en flexion. Ceci est nettement observable lorsqu'on compare les résultats de vieillissement à 90°C et à 60°C. Dans le premier vieillissement les fibres ont subi une dégradation importante, traduite par une perte de masse, contrairement au deuxième vieillissement. En conformité avec ces constats, les essais de traction, où la sollicitation des fibres est maximale, ont montré une perte significative des propriétés. Cette différence n'a pas été constatée dans le cas de la flexion et peut signifier que le rôle des fibres

dans la résistance lors une telle sollicitation a été limité que sur les 3 premiers cycles ; par la suite, les performances mécaniques viennent principalement de la matrice.

IV.4. **Bilan**

Les résultats ont montré l'efficacité des différents traitements sur la réduction du taux de saturation et la cinétique d'adsorption des biocomposites. Les NPP-10%, et contrairement à ce qui a été attendu à la suite des taux d'adsorption de leurs fibres NTFD, ont présenté un comportement similaire aux APP-10%, TPP-10%, SPP-10%.

Afin de mieux comprendre le comportement diffusif des biocomposites, une étude numérique basée sur leurs microstructures a été réalisée en tenant compte de l'effet de la zone interfaciale et des bords. Les résultats ont montré une bonne concordance entre l'expérimentation et la modélisation numérique et ont permis d'expliquer l'étendu du domaine d'incertitude. Il a été conclu à travers cette comparaison que la diffusion à travers la largeur de la couche active est la principale cause de la variation des résultats expérimentaux, probablement à cause d'une mauvaise adhérence entre la résine de colmatage et la surface de certain échantillon. De plus, il a été déduit que le colmatage des bords n'a une influence que sur l'effet de l'interface, cependant la diffusion à travers les bords n'a pas été empêchée.

L'étude du vieillissement cyclique accéléré sur différents composites à fibres traitées à 10% a montré une perte des propriétés mécaniques des biocomposites en traction et en flexion dès le premier cycle de saturation/séchage. Cette perte devient plus importante après 5 cycles de vieillissement et les propriétés des biocomposites deviennent comparables à celles de la matrice. L'effet de la température a été également marquant sur la dégradation des fibres, dont le vieillissement à 90°C a conduit à une perte de masse significative des fibres sur l'ensemble des composites étudiés, et par conséquent une réduction supplémentaire du module de traction des biocomposites.

Chapitre V : Analyse de cycle de vie comparative des panneaux de bardage biosourcés.

V.1. Champs et objets d'étude

Dans le cadre de l'éco-conception, des scénarios éco-responsables pour la production d'un matériau biosourcé à base des fibres de Diss (NPP-30%) ont été imaginés, afin de les destiner à être utilisés comme panneaux de bardage dans les bâtiments. De ce fait, une étude d'analyse de cycle de vie (ACV), type de berceau à la porte, a été réalisée.

Les impacts environnementaux de ce matériau ont été comparés, dans un premier temps, avec ceux des autres biocomposites renforcés par des fibres de Lin (LPP-30%) et de Chanvre (CPP-30%). Ces biocomposites ont été privilégiés car leurs fibres sont les plus produites et commercialisées en France. Par conséquent, un nombre important de données concernant la culture des plantes, dont elles sont issues, et leur extraction est documenté dans la littérature. Le cas d'une matrice seule (polypropylène) a été envisagé afin d'identifier l'intérêt écologique de l'incorporation des fibres végétales. Cette comparaison a été accompagnée d'une analyse des contributeurs pour identifier les processus les plus polluants afin de préconiser, dans un deuxième temps, des solutions alternatives plus écologiques.

Le cycle de vie des panneaux bardages comprend plusieurs sous-systèmes : la production des matières premières, la mise en œuvre des panneaux, la phase d'usage et la fin de vie. L'analyse qui suit se limite aux deux premières étapes (Figure B.V. 1).

Le champ de l'étude couvre uniquement les énergies consommées, la matière première utilisée lors des différents processus étudiés et le transport. La fabrication des machines et leur maintenance (à l'exception des machines agricoles), les sites de stockage et les moyens de conditionnement, l'emballage et leur déchet, n'ont pas été comptabilisés en raison du manque de données. La confection des composites a été supposée avoir lieu dans des ateliers d'extraction ; par-conséquent, le transport n'a pas été comptabilisé. L'occupation des terres agricoles a été incluse dans le système.

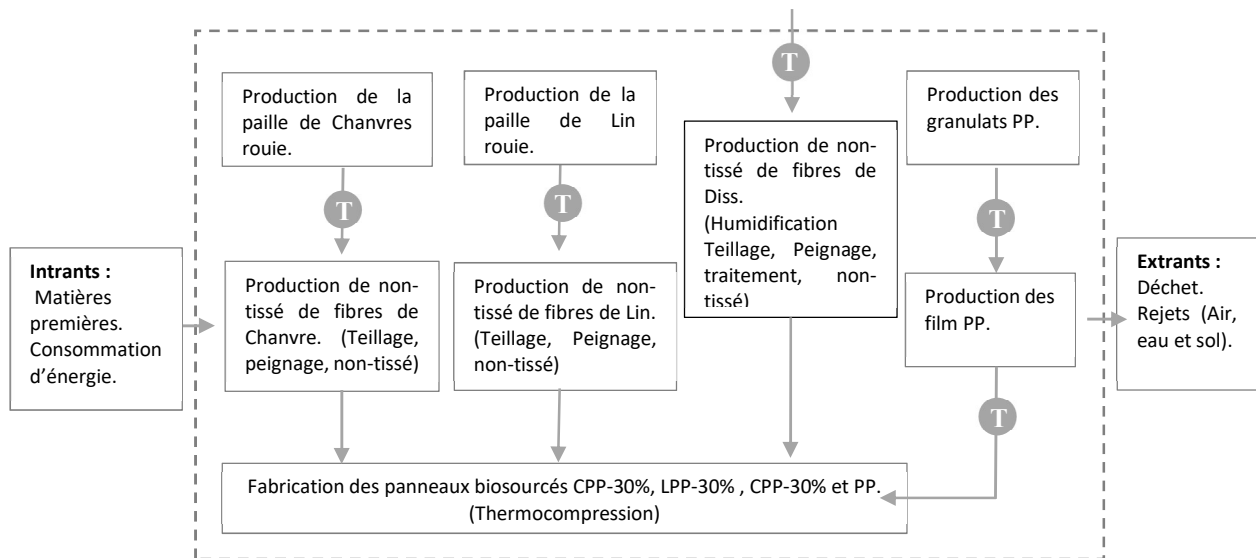


Figure B.V. 1: Etapes considérées dans la production des bardages. T : représente le transport.

Les données du premier plan pour le scénario de la production des fibres de Diss reposent sur les résultats obtenus dans la littérature et dans la présente étude. En ce qui concerne les fibres de Lin et de chanvres, les données sont issues de la littérature. Pour les données d'arrière-plan, nous avons fait recours à la base de données *ecoinvent 3* [105].

V.1.1.1. Unité fonctionnelle et critères de sélection

Le système étudié produit des panneaux de bardage. Selon les recommandations de règles de l'Art Grenelle Environnement 2012 [269], la conception des bardages tient compte de plusieurs critères, notamment la résistance au vent. La charge de ce dernier s'exprime sous forme de pression et dépression sur les parements. Elle dépend, selon la norme NF EN 1991-1-4 [270], de la zone de vent, de site, et de la hauteur et la forme de bâtiment. La dépression a été retenue pour le dimensionnement car elle représente le cas le plus défavorable. Sa valeur a été déterminée conformément aux normes Neige et Vent 65 [67] et NF EN 1991-1-4 [270] en suivant une méthode simplifiée décrite dans le document [269].

Dans notre cas, le bardage a été supposé à joints fermés, cas le plus défavorable, destiné à un usage dans la ville de Nantes (Figure B.V. 2). La dépression du vent de dimensionnement la plus défavorable se situe en rive, et sa valeur pour les états limites ultime (ELU) et en service (ELS) sont, respectivement, -1480.5 Pa et -987 Pa.

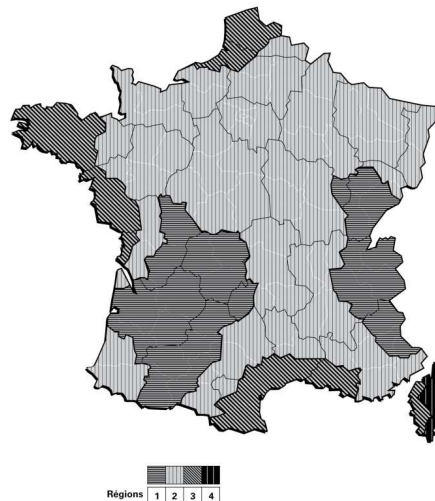


Figure B.V. 2 : Définition des régions climatiques de vent [269]

La présente étude compare quatre types de bardage fabriqués en thermocompression par le même procédé :

- Panneau de bardage en NPP-30% ;
- Panneau de bardage en LPP-30% ;
- Panneau de bardage en CPP-30% ;
- Panneau de bardage en Polypropylène (PP).

En se référant aux résultats du chapitre B.III, les propriétés mécaniques et physiques moyennes de ces panneaux sont récapitulées dans le Tableau B.V. 2.

Tableau B.V. 1: Paramètres de site et de bâtiment de références pour le calcul de la dépression causée par le vent.

Zone de vente (Ville de Nantes)	3
Hauteur H du bâtiment (m)	18<H<28
Catégorie de Terrain	IV
Dépression en rive (Zone A) C_{pe}	1,4
Equilibrage des pressions C_{eq}	1

Les dimensions du panneau retenues sont : $0,6 \times 1,2 \text{ m}^2$ (Figure B.V. 3). Les panneaux, dans ce cas, sont sollicités en flexion et leur épaisseur a été déterminée en se reposant sur deux critères :

- La limite d'élasticité en flexion du panneau est inférieure à la contrainte ultime occasionnée par la dépression de vent.
- La flèche maximale des panneaux, occasionnée par la dépression de vent, est inférieure à la flèche admissible. Cette dernière est estimée à 1/175 de la distance entre appuis de fixation, selon les recommandations des règles de l'Art Grenelle Environnement 2012 [269].

Tableau B.V. 2 : Propriétés mécaniques et physique des panneaux étudiés.

	NPP-30%	LPP-30%	CPP-30%	PP
Résistance à la flexion (MPa)	27,80	32,70	28,50	34
Module de flexion (GPa)	1,50	1,60	1,50	1,28
Masse volumique (g/cm³)	1,01	0,95	0,920	0,91

La flèche est le critère le plus défavorable ; la contrainte maximale en flexion ne dépasse pas les 2 MPa. Les épaisseurs retenues et la vérification du critère de la flèche sont présentées dans le Tableau B.V. 3.

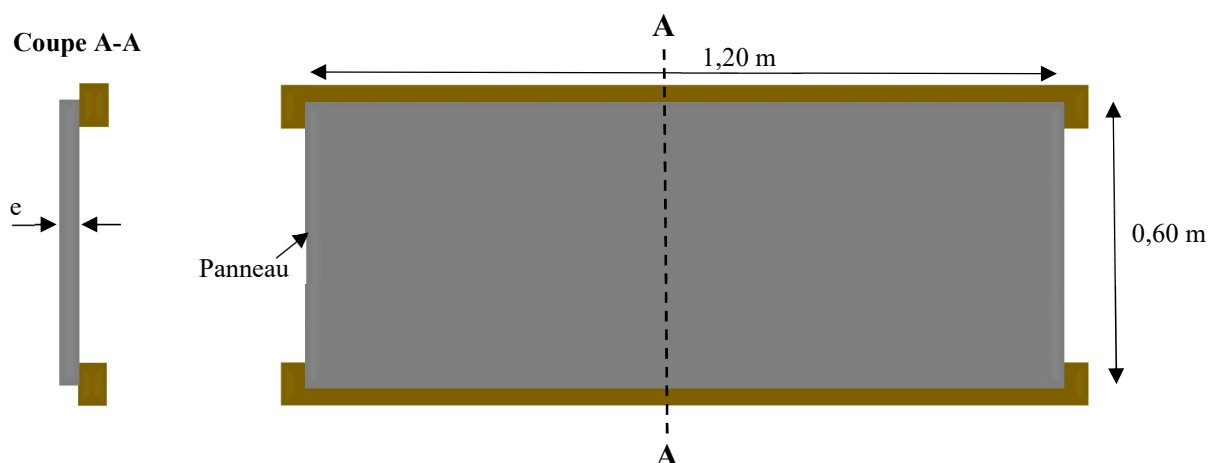


Figure B.V. 3 : Schéma du panneau de bardage.

L'unité fonctionnelle retenue est : « Un Parement destiné à une utilisation dans les bâtiments de moins de 28 m de hauteur situés dans une zone de vent 3 et une catégorie de terrain IV ». Par conséquent, le flux de référence est : « un panneau de 1 mètre linéaire de largeur qui résiste à la pression du vent appliquée ».

Tableau B.V. 3 : Vérification de critère de la flèche pour les différents panneaux étudiés.

	NPP-30%	LPP-30%	CPP-30%	PP
Épaisseur (mm)	16	16	16	17
Flèche maximal (mm)	3,2 < 3,4*	3,0 < 3,4*	3,3 < 3,4*	3,2 < 3,4*

*la flèche maximale admissible = 600/175.

V.1.2. Système d'allocation

Une allocation économique a été utilisée pour les produits de la phase d'extraction des fibres de Lin et de Chanvre. En ce qui concerne les fibres de Diss et en raison du manque d'un marché destiné à ce type de fibres, une allocation massique a été retenue.

Les coefficients d'allocation massique pour le processus d'extraction des fibres de Diss ont été calculés comme suit :

$$Cm_i^j = \frac{m_i}{\sum(m_r + m_i)}$$

Où m_i représente la masse de produit i issue de processus j , m_r la masse des produits restants issue de processus j et Cm_i le coefficient d'allocation massique de produit i issue du processus j .

V.1.3. Séquestration biogénique du dioxyde de carbone

Durant leur croissance, les plantes capturent le CO_2 de l'atmosphère et le convertissent en carbone grâce à la photosynthèse. Cette quantité de carbone reste stockée dans la plante durant son existence et elle peut être calculée selon l'équation proposée par Boutin et al. [251]:

$$Q_{\text{CO}_2} = (Q_{\text{MS}} \times P_{\text{CMS}}) \times (M_{\text{CO}_2}/M_c)$$

où Q_{CO_2} représente la masse de CO_2 nécessaire pour constituer une masse de matière sèche, Q_{MS} la masse de matière sèche considérée (g), P_{CMS} la proportion de carbone dans la matière sèche, M_{CO_2} la masse molaire du CO_2 (elle vaut 44 g.mol^{-1}) et M_c la masse molaire du carbone, qui vaut 12 g.mol^{-1} .

La matière sèche de chanvre est composée de carbone à 45,9% [251] et 45% pour le lin [272]. En raison du manque de données, une valeur moyenne de ces dernières a été estimée pour la plante de Diss, soit 45,45%.

V.1.4. Catégories d'impacts et méthodes de caractérisation

La méthode multicritères CML-IA, développée par le *Center of Environmental Science* (CML) de l'Université de Leiden aux Pays-Bas [273], et la méthode monocritère *Cumulative Energy Demand* (CED) [274] ont été utilisées avec le logiciel d'ACV *SimaPro* afin d'identifier les impacts causés par la production des différents panneaux.

Les catégories d'impacts suivantes ont été choisies, répondant aux exigences de l'arrêté AR20131223B [275] relative à la déclaration environnementale des produits de construction et de décoration à un usage dans les ouvrages de bâtiment :

- Épuisement des ressources abiotiques : représenté par deux catégories d'impacts : l'épuisement abiotique (éléments, réserves ultimes) et l'épuisement abiotique (combustibles fossiles). Le premier est lié à l'extraction de minéraux et il s'exprime en kg équivalent antimoine (kg éq. Sb). Le deuxième est lié au Pouvoir Calorifique Inférieur (en anglais *Lower Heating Value*, LHV) exprimé en MJ et représente l'énergie produite par des ressources non renouvelables d'origine fossiles.

- Réchauffement climatique : potentiel de réchauffement planétaire pour un horizon temporel de 100 ans (GWP100), en kg équivalent dioxyde de carbone (kg éq. CO₂).
- Destruction de la couche d'ozone (état stable) : définit le potentiel d'appauvrissement de la couche d'ozone de différents gaz, en kg équivalent chlorofluorocarbures (kg éq. CFC-11).
- Toxicité humaine, Écotoxicité aquatique d'eau douce, Écotoxicologie aquatique marine, Écotoxicité terrestre : décrivent l'exposition et les effets des substances toxiques pour un horizon temporel infini, en kg équivalent 1,4-dichlorobenzène (kg éq. 1.4-DB).
- Oxydation photochimique : définit l'oxydation photochimique exprimée en kg équivalent éthylène (kg éq. C₂H₄).
- Acidification : décrit le potentiel d'acidification exprimé en kg équivalent SO₂ (kg éq. SO₂).
- Eutrophisation : Potentiel d'eutrophisation exprimé en kg équivalent PO₄ (kg éq. PO₄).
- Demande d'énergie cumulée : permet de déterminer la consommation énergétique des ressources renouvelables et non-renouvelables, en MJ.

V.2. Analyse d'inventaires

V.2.1. Scénarii de référence de la production des fibres

V.2.1.1. Scénario de référence de la production des fibres de chanvre et de lin

Généralement, la production de chanvre précède la culture de blé, de mi-avril à mi-septembre [246], [276]. La première étape consiste à préparer le sol pour la semence : un labour d'hiver suivi par une reprise et une préparation des lits de semence au début du printemps [251]. Pendant ce temps, l'épandage d'engrais s'effectue à deux reprises à l'aide d'un tracteur équipé. Le premier épandage a lieu lors du labour d'hiver avec du phosphate (P) du potassium (K), tandis que, le deuxième s'opère lors de la reprise au printemps avec principalement de l'azote (N) [251], [276]. L'application de la chaux s'accomplit une fois tous les trois ans [276]. Par la suite, le semis a lieu, principalement, pour la France vers mi-avril, avec une densité qui varie entre 40 et 70 kg/ha [251]. A la fin de la culture, généralement en août, le Chanvre est fauché juste avant la fin de la floraison, culture non battue, à l'aide d'une faucheuse conditionneuse dans le cas d'une production destinée à la filature [251], [276]. Ensuite, la paille est mise en andains pour être séchée et rouie. Le rendement en paille est compris entre 8 et 12 t/ha [251]. Selon Bleuze et al. [277], la perte de masse en matière sèche est estimée à 18% après le rouissage pour une culture non battue.

D'autre part, la culture de lin en France s'accomplit comme suit [276], [278]:

- Une préparation du sol, déchaumage et labour en hiver. Lors de cette période les engrais (P et K) sont apportés.
- Une reprise et une préparation des lits de semence s'effectuent au début du printemps avec l'apport d'azote. Ensuite, environ 115 kg de graines prétraitées (traitement fongicide et zinc) sont semés par hectare.
- Contrairement au chanvre, des traitements (herbicide – insecticide – fongicide) sont nécessaires pour protéger le Lin pendant toute la durée de croissance et même après la récolte pendant le rouissage.
- Un apport de zinc est nécessaire après le semis.
- En fin de maturité, en été, le Lin est arraché et mis en andain pour le rouissage au champ.

Tableau B.V. 4 : Procédés agricole de la phase de culture de Lin et de Chanvre.

Procédés agricole	Lin	Chanvre
Déchaumage	1	1
Labourage	1	1
Passage de rotative	1	1
Passage à la herse	1	1
Semis	1	1
Passage pour apport de zinc/chaux	1	0,33
Passages d'engrais		
- La fertilisation N	1	1
- La fertilisation P et K	1	1
Passages de pesticides		
- Passages d'herbicides	2	-
- Passages d'insecticides	2	-
- Passage de fongicides	1,5	-
Arrachage avec mise en andain	1	1
Retournements durant le rouissage	2	2
Ramassage de pailles rouies (m ³) *	42,2	41,6

* : calculé en se basant sur le scénarios de Boutin et al [251] (un volume de stockage de 49.14 m³ pour une quantité de paille de 7,75 t).

Les quantités d'engrais et de pesticides considérées dans cette étude proviennent des scénarii de Turunen et Van Der Werf [276] et Labouze al [278], respectivement, pour les fibres de Chanvre et de Lin, et leurs émissions ont été calculées selon les méthodes utilisées par Labouze et al [278].

Les procédés agricoles retenus dans la présente étude sont listés dans le Tableau B.V. 4. La base de données *ecoinvent 3* possède les flux nécessaires pour le travail d'un hectare de champ relatif aux procédés agricoles en Suisse. Ces inventaires prennent en compte la consommation de diesel des machines, leur utilisation et les émissions dues à la consommation de diesel (dans

l'air) et l'abrasion des pneus (dans le sol). La distance parcourue des machines entre la ferme et le champ (estimée à 2 km) et leur préparation ont été également prises en compte.

Tableau B.V. 5: Allocation des produits d'extraction des fibres de Lin et de Chanvre considérée dans l'étude.

Teillage		
Allocations		
	Lin	Chanvre
Fibre courte	12,1%	60,6%
Fibres longues	79,4%	36,9%
Chènevottes /anas	5,4%	-
Poussière	-	2,5%
Graines	3,1%	-
Peignage		
	Lin	Chanvre
Fibres courtes	94%	94,5%
Chènevottes / anas	6%	5,2%
Déchet	-	0,3%

Le scénario proposé par Quantis, FRD, et EcoTechnilin [246] pour l'extraction des fibres de lin et de chanvres courtes et la production de non-tissé a été adopté. Il consiste à suivre trois étapes principales : le teillage, le peignage et la production de non-tissé. Les allocations attribuées à chaque produit sont regroupées dans le Tableau B.V. 5.

Tableau B.V. 6 : Consommation d'énergie dans le processus d'extraction des fibres de Lin et de Chanvre pour 1 kg.

		Teillage	Peignage	Non-tissé
Gazole (l)	Lin	0,0027	-	-
	Chanvre	-	-	-
Fioul (l)	Lin	0,006	-	-
	Chanvre	-	-	-
Gaz naturel (kWh)	Lin	0,026	-	-
	Chanvre	0,0013	-	-
Electricité (kWh)	Lin	0,94	0,21	0,4234
	Chanvre	0,33	0,09	0,4234

Le Tableau B.V. 6 présente l'énergie consommée dans cette étape. Le transport entre le lieu de stockage et l'atelier d'extraction a été estimé à 82 km ; c'est une valeur moyenne des distances considérées dans plusieurs études [246] [251] [276].

V.2.1.2. Scénario de référence de la production des fibres de Diss

Dans cette partie un scénario pour l'industrialisation de l'extraction des fibres de Diss est proposé en se basant sur les acquis du chapitre A-III. Ce scénario suppose la localisation des ateliers sur les régions à forte présence de cette plante. L'atelier sera destiné à la production

des fibres et la confection des biocomposites. Le déchet résultant du processus d'extraction pourrait être également exploité. Selon Luz et al. [279], la plante de Diss pourrait être utilisée pour la production de biogaz à partir de son biochar de pyrolyse. Ce dernier pourrait être employé comme un amendement au sol.

En France, la plante de Diss se répartit sur la façade méditerranéenne (Figure B.V. 4). En se basant sur les données de distribution de la plante de Diss en France, issues de l'inventaire national du patrimoine naturel (INPN) [280], deux zones de concentration importante de cette plante ont été détectées. La première zone est située le long de la côte méditerranéenne, des départements du Var et des Alpes-Maritimes dans un rayon de 40 km. La deuxième zone, quant à elle, est située dans le département des Bouches-du-Rhône avec un rayon de 30 km. En ce qui concerne le rendement de cette plante dans ces régions, les données ne sont pas disponibles. Cependant, Luz et al. [279] affirment que le rendement de cette plante est d'environ 15 tonnes par hectare par an.

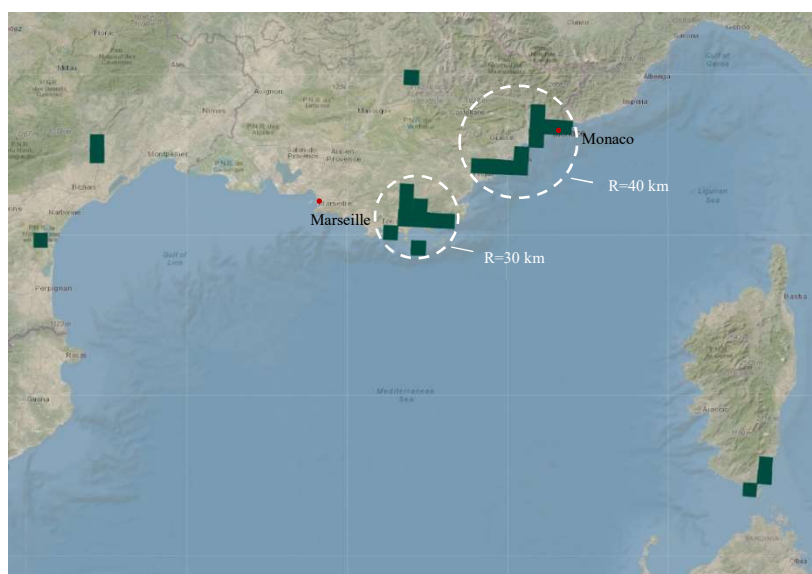


Figure B.V. 4: Zone de présence de la plante de Diss, en vert, selon l'inventaire national du patrimoine naturel (INPN) : <https://inpn.mnhn.fr/viewer-carto/especes/82173>

La plante de Diss pousse de façon sauvage sous forme de touffe sur les différents reliefs dont l'altitude ne dépasse pas les 1200 m [281]. Généralement, sa récolte se réalise de façon manuelle à l'aide d'une faucille. Cette opération, donc, n'a aucun effet néfaste sur l'environnement. Par-conséquent, la plante de Diss peut être considérée dans cette étude comme un flux élémentaire.

En ce qui concerne le transport des feuilles entre les lieux de récolte et l'atelier, la distance moyenne retenue est de 20 km, soit $R_{\max}/2$ (Figure B.V. 4). Le transport des feuilles s'effectue

par un camion à benne d'une capacité de 3.5 tonnes. Une fois arrivées à l'atelier d'extraction, les feuilles sont stockées.

Le processus d'extraction se lance avec une humidification des feuilles dans des bassins d'eau. En se reposant sur les données industrielles de la société Hungarohemp [276], un rapport de 1:14 en masse (feuilles : eau) a été choisi. Pendant cette étape, les feuilles perdent environ 4,8% de leur masse. L'eau usée de l'humidification, ou bien le liquide de rouissage, est supposée être traitée dans une station d'épuration municipale. Les intrants et les émissions liées au traitement des eaux usées (électricité, produits chimiques) ont été déterminées en se basant sur le scénario de Turunen et Van Der Werf [276] pour le traitement de l'eau de rouissage dans une station de traitement des eaux usées municipales.

Une fois humidifiées, les feuilles vont subir un passage sur une décortiqueuse, suivi par un autre passage sur une cardeuse. La quantité des fibres végétales extraites est estimée à 53% de la masse des feuilles non humidifiées, selon les mesures relatives à la méthode d'extraction manuelle. L'énergie consommée dans cette partie a été déduite à partir des travaux Turunen et Van Der Werf [276] et les données de Quantis / FRD / EcoTechnilin [246] pour des procédés similaires. Les différentes étapes retenues et leur consommation en énergie sont récapitulées dans le Tableau B.V. 7.

Tableau B.V. 7: Consommation d'énergie adoptée pour la phase d'extraction des fibres de Diss.

Processus	Consommation d'électricité – (kWh/kg)	Références
Décortication	0,105	[276]
Extraction des poussières et évacuation des déchets	0,012	[276]
Affinage (peignage)	0,210	[246]

Enfin, les fibres extraites sont traitées à la soude en suivant les étapes décrites dans § A.III.1.2. Tout d'abord, les fibres sont submergées dans une solution aqueuse contenant 5% NaOH pendant 5h, avec un ratio fibres/solution de 1:14 en masse en suivant le scénario de rouissage. Ensuite, un rinçage a été adopté pour éliminer les produits chimiques et réguler le pH des fibres. La quantité d'eau consommée pendant cette étape a été estimée à 50 l/kg en se reposant sur le scénario de blanchiment des fibres de lin proposé par Labouze et al. [278]. Pour l'eau usée du traitement des fibres, le scénario proposé par Turunen et Van Der Werf [276] pour le traitement des eaux usées de blanchiment a été retenu. Enfin, les fibres ont été séchées et stockées. Le séchage a été supposé être effectué grâce un séchoir à air chaud fonctionnant au gaz naturel selon le scénario de Turunen et Van Der Werf [276], avec une consommation de 25MJ/kg. La

perte de masse a été estimée après le traitement à 35% de la masse des fibres brute à la suite des mesures effectuées dans le Labo.

Le non-tissé de fibres de Diss est supposé être produit par le même scénario adopté pour les fibres de Lin et de chanvres.

V.2.2. Scénarii de la confection des composites

Les panneaux biosourcés ont été supposés être confectionnés en thermocompression, en alternant des films en PP et de non-tissé des fibres naturelles, jusqu'à atteindre l'épaisseur voulue.

Les films en PP ont été supposés être produits par extrusion des granulats de PP. Les données relatives à la production des granulats de PP et le procédé d'extrusion sont tirées de la base de données *ecoinvent 3.3*. Une distance générique de 500 km a été retenue pour le transport des granulats de PP ainsi que pour les films de PP, en suivant les travaux de Labouze et al. [278].

L'énergie consommée pendant le processus de thermocompression a été déduite de la base de données de ADEME [282], soit 7,53 MJ pour une production de 1 kg. La perte a été estimée selon la même base de données de 0,01 kg/kg. Une hypothèse d'incinération a été supposée pour cette perte qui a également été supposée provenir principalement de PP.

L'annexe C regroupe les inventaires utilisés dans la présente étude ainsi que leurs quantités.

V.3. Résultats et discussion

V.3.1. Identification des impacts par normalisation

La Figure B.V. 5 et Tableau B.V. 8 regroupent les données correspondantes à la normalisation des catégories d'impacts par la méthode EU25+3 de CML. L'objectif principal de cette normalisation est de fournir un outil de comparaison entre l'ensemble des impacts environnementaux étudiés pour permettre de juger leur importance et hiérarchiser les enjeux environnementaux de la fabrication des différents panneaux.

Les résultats montrent que la catégorie d'impact *Marine aquatic ecotoxicity* présente les impacts les plus significatifs associés à la production des différents panneaux (entre $3,35\text{e-}10$ et $4,66\text{e-}10$), suivie par la catégorie d'impact *Fresh water aquatic ecotox* (entre $3,69\text{e-}11$ et $2,11\text{e-}10$). Les catégories d'impacts *Abiotic depletion (fossil fuels)*, *Abiotic depletion*, et *Human toxicity* ont présenté des impacts modérés, tandis que les catégories d'impacts *Acidification*, *Photochemical oxidation*, *Global warming (GWP100a)*, *Ozone layer depletion (ODP)*, *Terrestrial ecotoxicity* et *Eutrophication* ont montré des impacts modestes.

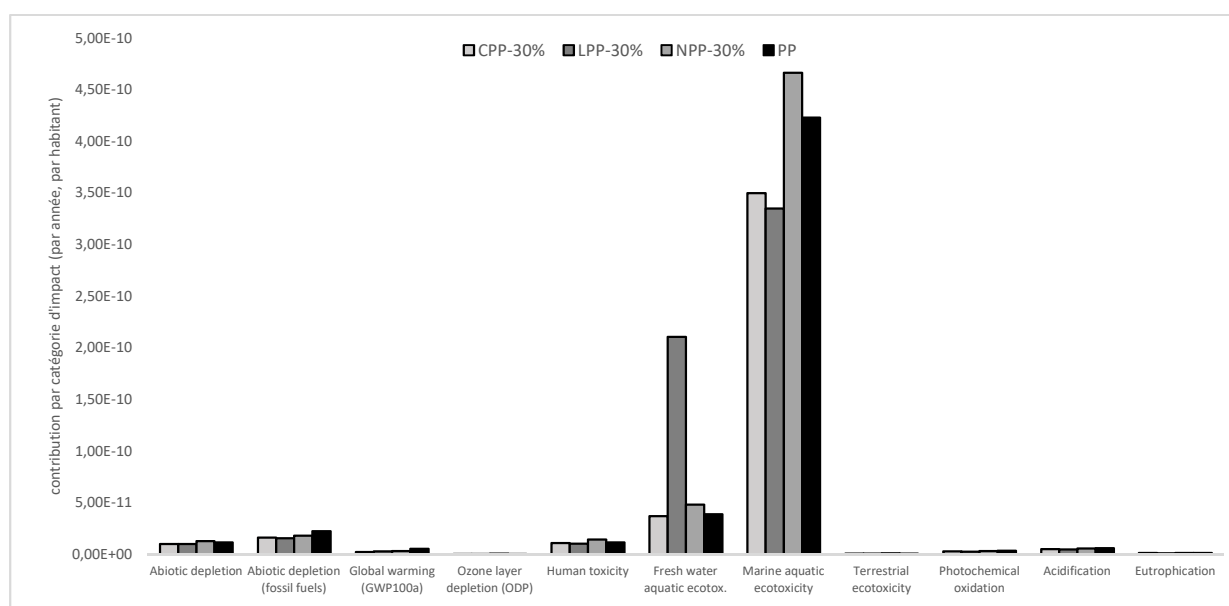


Figure B.V. 5 : Impacts de la phase de production des panneaux normalisés.

En ce qui concerne la catégorie d'impact *Marine aquatic ecotoxicity*, la production des panneaux NPP-30% est la plus impactante suivie par la production des panneaux PP, environ 9% de moins, puis les panneaux CPP-30% et LPP-30% avec, respectivement, environ 25% et 28% de moins. D'autre part, la production des panneaux LPP-30% a causé plus d'impact dans la catégorie *Fresh water aquatic ecotox*, dont elle représente environ 82%, 81% et 77% de plus que la production, respectivement, des panneaux CPP-30%, NPP-30% et PP.

Tableau B.V. 8 : Impacts de la phase de production des panneaux normalisés

	CPP-30%	LPP-30%	NPP-30%	PP
Abiotic depletion	9,89e-12	1,01e-11	1,26e-11	1,14e-11
Abiotic depletion (fossil fuels)	1,61e-11	1,54e-11	1,80e-11	2,22e-11
Global warming (GWP100a)	2,27e-12	2,78e-12	3,23e-12	5,24e-12
Ozone layer depletion (ODP)	2,57e-13	2,44e-13	5,06e-13	2,43e-13
Human toxicity	1,08e-11	1,02e-11	1,41e-11	1,14e-11
Fresh water aquatic ecotox	3,69e-11	2,11e-10	4,81e-11	3,87e-11
Marine aquatic ecotoxicity	3,50e-10	3,35e-10	4,66e-10	4,23e-10
Terrestrial ecotoxicity	7,48e-13	7,20e-13	8,32e-13	6,79e-13
Photochemical oxidation	2,73e-12	2,55e-12	3,17e-12	3,47e-12
Acidification	4,97e-12	4,52e-12	5,69e-12	5,98e-12
Eutrophication	1,30e-12	9,95e-13	1,38e-12	1,14e-12

Une comparaison plus complète, avec l'identification des contributeurs dans chaque catégorie d'impact, sera effectuée dans la section prochaine.

V.3.2. Etude comparative des contributeurs

La Figure B.V. 6 identifie les contributeurs de toutes les phases de production des différents panneaux étudiés sur les différentes catégories d'impacts. A l'exception de la catégorie d'impact *Ozone layer depletion* pour les NPP-30% et *Fresh water aquatic ecotox* pour les LPP-30, la phase de confection des composites est la plus polluante sur l'ensemble des catégories d'impacts.

En effet, la production des films en PP représente le principal contributeur dans l'ensemble des catégories d'impacts, à l'exception de : *Ozone layer depletion*, *Fresh water aquatic ecotox* et *Terrestrial ecotoxicity* dont le processus de thermocompression est le plus dominant à cause de sa demande importante en énergie. D'autre part, La contribution de ces deux processus pour chaque panneau dépend de son épaisseur et de sa masse volumique. Autrement dit, l'énergie consommée et la quantité de film PP dépend du poids du panneau. Par conséquent, la catégorie d'impact *Fresh water aquatic ecotox* pour la production des panneaux en LPP-30%, la production des panneaux en PP et en NPP-30% départagent le profil de produit le plus polluant sur l'ensemble des catégories d'impacts : *Abiotic depletion*, *Ozone layer depletion*, *Human toxicity*, *Marine aquatic ecotoxicity*, *Terrestrial ecotoxicity* et *Eutrophication* pour NPP-30% ; et *Abiotic depletion (fossil fuels)*, *Global warming*, *Photochemical oxidation* et *Acidification* pour PP.

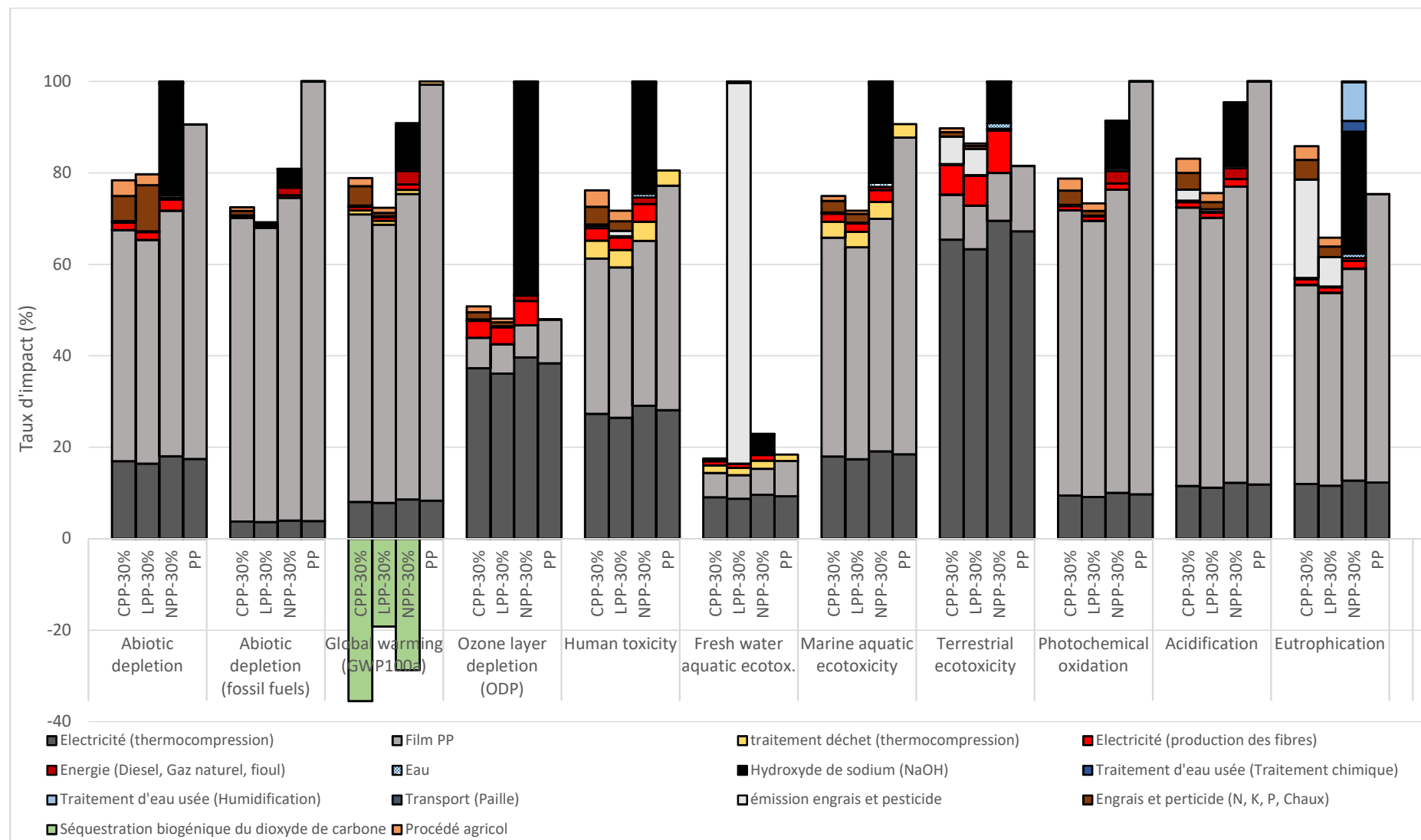


Figure B.V. 6 : Identification des contributeurs de la phase de production pour les différents panneaux étudiés sur l'ensemble des catégories d'impacts.

De plus, pour les Panneaux NPP-30, la production des fibres a une contribution importante, principalement, à cause de la phase de traitement des fibres. Cette dernière est influencée par la production de NaOH, notamment sur les catégories d'impacts *Ozone layer depletion*, *Eutrophication*, *Abiotic depletion*, *Human toxicity* et *Marine aquatic ecotoxicity* dont elle y contribue, respectivement, d'environ 46%, 27%, 24%, 24% et 21%. D'autre part, l'effet des traitements des eaux a été observé dans la catégorie d'impact *Eutrophication*. La contribution du traitement des eaux usées pour l'humidification est beaucoup plus marquante que celle des eaux usées pour le traitement des fibres ; elles contribuent, respectivement, à 8% et 2%. En outre, la contribution de la consommation d'énergie pendant la phase de production des fibres est plus considérable sur les catégories d'impacts *Terrestrial ecotoxicity*, *Ozone layer depletion* et *Human toxicity*, respectivement, avec 9%, 5%, et 4% pour l'électricité, et sur les catégories d'impacts *Global warming*, *Photochemical oxidation* et *Acidification* avec environ 2% chacune pour le gaz naturel.

En ce qui concerne la production des fibres de Chanvre et de Lin, ces dernières sont pénalisées par l'utilisation d'engrais, notamment pour le lin où il s'ajoute à cela l'utilisation des pesticides. Ceci est nettement observable sur la catégorie d'impact *Fresh water aquatic ecotox* dont les émissions d'engrais et des pesticides y participent avec 83%. Pour les fibres de Chanvre, l'effet des émissions d'engrais est marqué dans la catégorie *Eutrophication* avec 25% des impacts relatifs aux panneaux CPP-30%. De plus, la production d'engrais et des pesticides contribue, également, dans l'ensemble des catégories d'impacts, à l'exception de *Abiotic depletion (fossil fuels)*, *Fresh water aquatic ecotox*, *Ozone layer depletion* et *Terrestrial ecotoxicity* où leur contribution est peu notable. D'autre part, la contribution de la consommation d'électricité a des impacts similaires à ceux constatés pour les fibres de Diss.

Par ailleurs, la considération de la séquestration biogénique du dioxyde de carbone dans l'étude ACV des biocomposites s'est avérée bénéfique pour la réduction de leurs impacts relatifs à l'effet de serre. Elle contribue à une réduction de 45%, 32%, 27% de la catégorie d'impact *Global warming*, respectivement, pour les CPP-30% les NPP-30% et les LPP-30%.

La Figure B.V. 7 regroupe les contributeurs dans la phase de production des différents panneaux sur la consommation énergétique des ressources renouvelables et non-renouvelables.

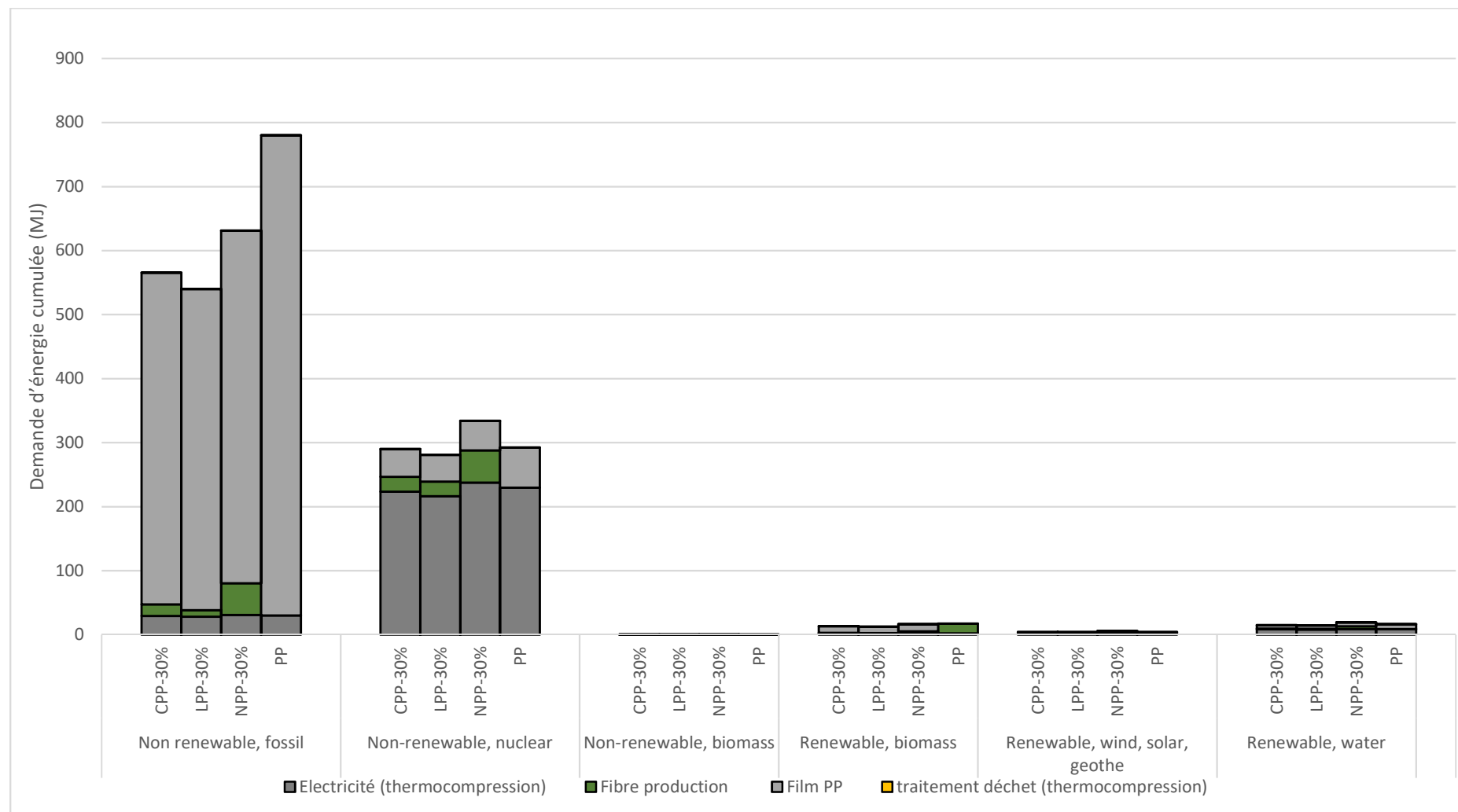


Figure B.V. 7 : Identification des contributeurs de la phase de production des panneaux des différents composites vis-à-vis la demande d'énergie cumulée.

Sur l'ensemble des sources d'énergie, renouvelable ou non renouvelable, la production des panneaux de biocomposites en NPP-30% est relativement consommatrice. Ceci pour deux raisons : la masse volumique des NPP-30% est plus importante donc un processus de thermocompression plus consommateur et le processus de traitement des fibres qui s'est avéré plus énergivore, notamment pour la production des NaOH qui représente environ 50% de la totalité d'énergie destinée à la production des fibres. Le reste est départagé, principalement, entre le teillage, la production de non-tissé et le séchage des fibres, respectivement, avec 21%, 16, et 12%.

Les résultats montrent aussi une consommation majoritaire de l'énergie non-renouvelable pour l'ensemble des panneaux. La consommation d'énergie est principalement due au processus de production des films PP, notamment pour l'énergie d'origine fossile. La consommation de l'énergie non-renouvelable d'origine nucléaire est provenue de l'utilisation de l'électricité, surtout pour le processus de thermocompression. En effet, en France, l'électricité est produite principalement dans les centrales nucléaires. L'énergie renouvelable, quant à elle, est très peu présente dans le système de production des panneaux.

V.3.3. Optimisation du scénario de référence des Panneaux en NPP-30%

Des solutions alternatives sont aussi proposées afin d'améliorer l'aspect écologique du processus d'extraction des fibres de Diss. Tout cela en supposant que ces changements n'affectent pas les propriétés mécaniques des biocomposites, notamment le module de Young. Cette hypothèse devrait être vérifiée par des essais de caractérisation mécanique ; cependant, cela n'a pas fait l'objet de la présente étude.

Compte tenu des résultats de la section précédente, il s'est avéré que le traitement des fibres de Diss est l'étape la plus polluante dans la phase de production des fibres. L'humidification, quant à elle, a présenté une contribution de l'ordre de 8% dans la catégorie d'impact *Eutrophication*.

Afin de remédier à cela, tout d'abord remplaçons le processus de traitement effectué dans le laboratoire par un processus de blanchiment des fibres végétales, destinées au secteur de textile selon le scénario proposé par Labouze et al. [278]. Les données relatives à ce scénario sont présentées dans l'annexe C (tableau 5). Un autre scénario est présenté, en supposant que la réduction de la concentration de NaOH dans la solution du traitement est d'1%. Dans un autre scénario, nous admettons une utilisation des fibres sans traitement dont la masse volumique calculée par la loi de mélange est égale à 0.917 g/cm^3 . Enfin, il est présumé un usage de l'eau d'humidification dans l'irrigation. Dans ce dernier scénario, nous considérons uniquement la

partie relative au transport du processus de traitement des eaux usées. Le Tableau B.V. 9 résume les différents scénarii choisis.

Tableau B.V. 9 : Scénarios adoptés pour l'optimisation de la phase de production des panneaux à base des fibres de Diss.

	Traitement des fibres de Diss	Eaux usées de l'humidification
Scénario de référence	Dans une solution contenant 5% de NaOH	Traitement dans une station d'épuration
Scénario 1	Blanchement selon le scénario de Labouze et al. [278]	Traitement dans une station d'épuration
Scénario 2	Dans une solution contenant 1% de NaOH	Traitement dans une station d'épuration
Scénario 3	Sans traitement	Traitement dans une station d'épuration
Scénario 4	Sans traitement	Destinées à l'irrigation.

La Figure B.V. 8 présente les résultats des différents scénarii proposés. Le scénario 1 a conduit à une diminution importante de l'ordre de 37% de la catégorie d'impact *Ozone layer depletion* et une réduction de l'ordre de 15% et 13%, respectivement, pour les catégories d'impacts *Eutrophication* et *Abiotic depletion*. Cependant, la catégorie d'impact *Marine aquatic ecotoxicity* a connu une augmentation relativement importante. En ce qui concerne les catégories restantes, les résultats étaient plus au moins similaires.

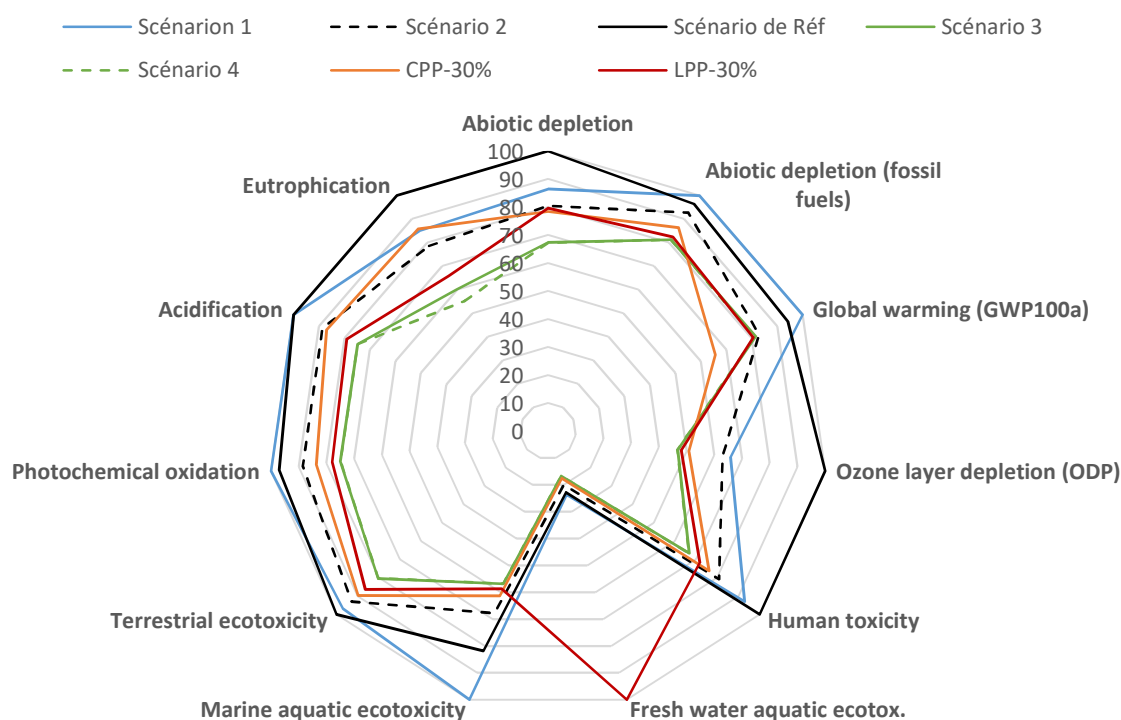


Figure B.V. 8 : Evaluation de l'effet des différents scénarios sur l'ensemble des catégories d'impacts.

Le scénario 2 a conduit à des baisses importantes sur l'ensemble des catégories, notamment *Ozone layer depletion* et *Eutrophication* dont la diminution est de 20%. Ces améliorations sont meilleures que celles du scénario 1.

A l'exception de la catégorie d'impact *Eutrophication*, dont le scénario 4 est le plus efficace, les scénarios 3 et 4 ont affiché des résultats similaires. D'autre part, ces scénarii ont montré une forte efficacité sur l'ensemble des catégories d'impacts par-rapport au scénario de référence, notamment sur les catégories *Abiotic depletion*, *Ozone layer depletion*, *Human toxicity*, *Marine aquatic ecotoxicity* et *Eutrophication* dont l'amélioration est supérieure à 30%.

Comparativement aux résultats de CPP-30% et LPP-30%, les scénarios 3 et 4 montrent les impacts les plus faibles, à l'exception de la catégorie d'impact *Global warming* pour les CPP-30%. En outre, le scénario 2 semble dévoiler des résultats semblables légèrement plus importants dont la différence d'impact ne dépasse pas les 15%, exceptées les catégories d'impacts *Global warming*, *Ozone layer depletion* et *Eutrophication* dont la différence varie entre 20% et 30%, et la catégorie d'impact *Fresh water aquatic ecotox* où les LPP-30% restent de loin les plus impactant. Les impacts du scénario 1 restent proches de ceux du scénario de référence et plus importants que ceux de LPP-30% et CPP-30%.

En fonction de ces résultats, deux scénarii sont favorables à l'industrialisation des fibres de Diss : le scénario 2 et le scénario 3. Le scénario 3 reste le plus approprié mais son efficacité mécanique pose des questions. Pour le scénario 2, une telle concentration est souvent utilisée pour le traitement des fibres végétales. En effet, la réduction de la concentration avec l'augmentation de la durée de traitement peut donner des résultats similaires. L'augmentation de la température de traitement peut aussi réduire cette durée. D'autres solutions peuvent être adoptées comme l'utilisation des traitements enzymatiques, bien que ces derniers soient plus coûteux.

V.4. **Bilan**

Dans le présent chapitre un scénario a été présenté pour l'industrialisation des panneaux de bardage renforcés par des fibres de Diss (NPP-30%). L'évaluation environnementale de ce scénario a été réalisée grâce à une étude d'analyse de cycle de vie. Le but est d'optimiser ce scénario par une approche de l'éco-conception. Les résultats ont été comparés à d'autres panneaux biosourcés (CPP-30% et LPP-30%) et à la matrice seule (PP) afin de juger de l'efficacité environnementale de l'utilisation des fibres de Diss comme renforts aux panneaux de bardage.

Les résultats ont montré que l'utilisation des fibres de Diss avait un effet nettement positif sur la réduction des impacts relatifs au réchauffement climatique grâce à la séquestration biogénique du CO₂. Cependant, il s'est avéré après une analyse de contributeur que la phase de production des fibres de Diss, plus précisément le traitement des fibres, est beaucoup plus polluante en comparaison avec les autres fibres étudiées, le Chanvre et le Lin sur l'ensemble des catégories d'impacts.

Une étude d'optimisation de scénario de référence a permis de réduire ces impacts environnementaux, notamment lorsque la phase de traitement est éliminée ou bien de façon moins considérable lorsque la concentration en NaOH est réduite de 5% à 1%. Ces résultats aident à mieux anticiper une future industrialisation de ces fibres et mettre en amont leurs effets bénéfiques sur l'environnement et s'abstenir aux processus polluants.

Conclusions et perspectives

Les travaux présentés dans ce manuscrit avaient pour objectif de répondre à la demande du marché des matériaux biosourcés en France pour la réhabilitation énergétique des bâtiments, en exploitant des nouvelles ressources naturelles, telle que la plante de Diss. En premier lieu, une étude sur l'extraction, le traitement et la caractérisation des fibres de Diss a été menée, suivie, en deuxième lieu, par une application de ces fibres comme renfort à une matrice thermoplastique, le polypropylène, dont la caractérisation mécanique, l'étude de durabilité et l'évaluation environnementale de ces biocomposites ont été traitées.

La première partie a permis de montrer le potentiel des fibres de Diss pour un tel marché. Les fibres brutes extraites par la méthode manuelle (UTFD), composées principalement de cellulose hémicellulose et lignine, ont présenté une faible densité de $0,93 \text{ g/cm}^3$. Ces fibres sont fréquemment liées à une partie de l'épiderme intérieur épineux qui pourrait, par la suite, contribuer à l'adhérence entre la matrice et la fibre. D'autre part, les UTFD ont révélé des propriétés mécaniques intéressantes, nettement supérieures à celles tirées dans la littérature pour ce type de fibres, avec une résistance à la traction, un module de Young et une déformation à la rupture, respectivement, de $273 \pm 36 \text{ MPa}$, $11,46 \pm 2,25 \text{ GPa}$ et $2,67 \pm 0,60\%$. De plus, les fibres de Diss étudiées ont présenté une isotherme de sorption de type II avec une hystérésis dont le modèle mathématique GDW semble décrire mieux ces isothermes.

Par ailleurs, les différents traitements adoptés ont montré des améliorations sur certaines propriétés des UTFD. Les traitements chimiques (NaOH, au silane et à l'acide acétique) ont considérablement réduit le diamètre des fibres avec une meilleure finesse pour les fibres traitées au NaOH (NTFD) et la surface se montre propre et rugueuse. De plus, les fibres traitées au silane (STFD) ont affiché une meilleure stabilité thermique. D'autre part, le traitement thermique a présenté des améliorations par-rapport à la rigidité des fibres, dont les meilleurs résultats ont été rapportés par les STFD et les NTFD. D'ailleurs, les traitements thermique, au silane et à l'acide acétique ont nettement diminué le caractère hydrophile des fibres de Diss, respectivement, de 35%, 28% et 25% pour l'absorption d'eau. Cependant, les NTFD ont présenté un comportement similaire à celui des UTFD ; ceci a été expliqué, sur la base des résultats du modèle mathématique H-H, par une augmentation de la quantité des micropores sur leurs surfaces après un tel traitement, ce qui est en outre propice à l'adsorption par

condensation capillaire à a_w élevé. En outre, une réduction des coefficients de diffusion a été nettement observée après les différents traitements, surtout après les traitements chimiques.

Dans la deuxième partie, un cas d'application des fibres de Diss comme renfort à la matrice polypropylène (PP) a été étudié. Le choix de cette matrice a été effectué après avoir rempli les exigences relatives à l'environnement et à l'usage du matériau. L'effet de traitement a été évalué à 10% de chargement en fibres. Les différents biocomposites ont présenté une structure stratifiée sans la présence de porosité dans la matrice ; même si à l'échelle de l'interface fibres/matrice un manque d'adhérence chimique a été constaté, traduisant la présence d'un micro-void entre la fibre et la matrice. À l'exception de la contrainte de traction, l'incorporation des différentes fibres dans la matrice PP a conduit à une amélioration des propriétés mécaniques en flexion et en traction, dont le composite renforcé par des NTFD (NPP-10%) a présenté les meilleurs résultats avec une amélioration de 30%, 22% et 9%, respectivement, pour le module de traction, le module de flexion et la contrainte en flexion. Par la suite, grâce à leurs propriétés mécaniques les NPP ont été choisis pour étudier l'effet de chargement sur l'évolution de ces propriétés. Une amélioration a été constatée lorsque le taux de chargement en fibres est inférieur à 20%. Au-delà de cette valeur les modules de traction et de flexion semblent rester constants, contrairement aux contraintes en traction et en flexion qui ont diminuées. Ces résultats sont probablement dus à la présence de microfissures et la porosité dans les biocomposites à un taux de chargement élevé, notamment pour les NPP-40%. En outre, un mécanisme de rupture combiné entre adhésif et cohésif a été constaté en raison de l'orientation aléatoire des fibres dont les épines semblent jouer un rôle important dans l'adhérence mécanique entre les fibres et la matrice. Dans la même lignée, une approche numérique basée sur le principe du volume élémentaire représentative (VER) a permis de valider ces constats, notamment lorsque le taux de chargement est inférieur à 20%.

D'autre part, Les résultats ont montré l'efficacité des différents traitements sur la réduction du taux de saturation et la cinétique d'adsorption des biocomposites par-rapport aux composites renforcés par les UTFD. Les composites renforcés par les NTFD à 10% (NPP-10%), et contrairement à ce qui a été attendu à la suite du taux d'adsorption de leurs fibres (NTFD), ont présenté un taux de saturation similaire aux autres biocomposites renforcés par les fibres traitées avec un faible coefficient de diffusion, soit $2,59 \pm 0,98 \cdot 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$. L'étendu du domaine d'incertitude de ces résultats a été expliqué, grâce à une étude numérique basée sur leur microstructure et les propriétés de chaque phase, par l'intervention de l'interface et des

bords dans le mécanisme de diffusion, notamment au niveau de la couche active. En outre, l'étude de vieillissement cyclique accéléré sur les différents biocomposites à 10% du taux de chargement en fibres a montré une perte des propriétés mécaniques de ces composites en traction et en flexion dès le premier cycle de saturation/séchage. Cette perte devient plus importante après 5 cycles de vieillissement où les propriétés des biocomposites deviennent comparables à celles de la matrice. L'effet de la température a été également marquant sur la dégradation des fibres dont le vieillissement à 90°C a conduit à une perte significative de la masse des fibres sur l'ensemble des biocomposites étudiés. Par-conséquent, une réduction supplémentaire du module de traction a été observée par-rapport au vieillissement à 60°C, notamment pour les propriétés en traction.

Enfin, un scénario a été proposé pour l'industrialisation des panneaux de bardage renforcés par des fibres de Diss (NPP-30%). L'évaluation environnementale de ce scénario a été réalisée grâce à une étude d'analyse de cycle de vie (ACV). Le but était d'optimiser ce scénario en se basant sur l'approche de l'éco-conception. Ces résultats ont été comparés à ceux d'autres panneaux biosourcés (CPP-30% et LPP-30%) et à la matrice PP afin de pouvoir juger de l'efficacité environnementale de l'exploitation des fibres de Diss. Il a été conclu que l'utilisation des fibres de Diss avait un effet nettement positif sur la réduction des impacts relatifs au réchauffement climatique grâce à la séquestration biogénique du CO₂. Cependant, il s'est avéré après une analyse de contributeur que la phase de production des fibres de Diss, plus précisément le traitement des fibres, est beaucoup plus polluante en comparaison avec celle des autres fibres étudiées, le Chanvre et le Lin, sur l'ensemble des catégories d'impacts. Une étude d'optimisation de scénario de référence a permis, par la suite, de réduire ces impacts environnementaux, notamment lorsque la phase de traitement est éliminée ou la concentration en NaOH est réduite de 5% à 1%. Ces résultats aident à mieux anticiper une future industrialisation de ces fibres et mettre en avant leurs effets bénéfiques sur l'environnement qui entre dans la stratégie nationale Bas-Carbone (SNBC).

Les présents travaux ont mis en évidence le potentiel des fibres de Diss pour une future industrialisation, en particulier pour une utilisation pour la réhabilitation énergétique des bâtiments. Cependant, cette étude reste non exhaustive et une attention particulière doit être portée sur les points suivants :

- Développer une machine d'extraction sur la base de la méthode d'extraction manuelle ;

- Envisager un traitement de la matrice PP par l'anhydride maléique qui s'est avéré efficace dans la littérature lors de l'utilisation d'une telle matrice hydrophile, avec la possibilité de remplacer le traitement par NaOH lors du processus d'extraction par un traitement enzymatique ;
- Opter pour l'application d'une autre méthode de mise en œuvre, notamment la méthode de moulage par injection, cela afin de minimiser le coût énergétique de la mise en forme des feuilles en PP ;
- Une caractérisation à l'échelle du panneau afin de définir mieux les propriétés de ces matériaux, notamment en flexion où les résultats présentés dans cette étude semblent être influencés par la structure multicouche ;
- Vérification des exigences spécifiques des réglementations incendie par la réalisation d'une étude du comportement au feu des panneaux résultants ;
- Suite aux résultats d'une étude préliminaire sur la conductivité thermique (λ) de ces panneaux, où les N40% ont présenté un λ de 0,19 W/m.k, une étude sur leur contribution dans l'isolation thermique des bâtiments pourrait valoriser davantage le potentiel de ces fibres.
- Donner suite à l'étude de durabilité réalisée pour les composites à 30% de taux de chargement en fibres, suivie par une étude de recyclage de ces biocomposites vieilliss ;
- Réalisation d'une étude d'analyse de cycle de vie plus complète en prenant en compte les propriétés à l'échelle du panneau et aussi de tout le cycle de vie des bâtiments avec un scénario plus réaliste qui considère également la pose des panneaux.

Référence

- [1] Commissariat général au développement durable, « Chiffres clés de l'énergie - Édition 2019 ». Le service de la donnée et des études statistiques (SDES), sept. 2019.
- [2] Haut Conseil pour le climat (HCC), « REDRESSER LE CAP, RELANCER LA TRANSITION ». Haut Conseil pour le climat (HCC), 2020.
- [3] Ministère de la transition écologique et solidaire, « Stratégie nationale bas-carbone : La transition écologique et solidaire vers la neutralité carbone ». mars 2020.
- [4] « Climat Air et Energie : chiffres clés ». ADEME, 2018.
- [5] « LOI n° 2015-992 du 17 août 2015 relative à la transition énergétique pour la croissance verte (1) - Légifrance ». <https://www.legifrance.gouv.fr/jorf/id/JORFARTI000031044425> (consulté le sept. 25, 2020).
- [6] J. Daunay, C. Dugast, L. Bachelet, et H. Schmitt Foudhil, « Neutralité et Batiment : comment les acteurs du secteur peuvent s'inscrire dans une démarche zéro émissions ». ADEME, juin 2019.
- [7] M. Merzoud et M. F. Habita, « Elaboration de composite cimentaire à base de diss « *Ampelodesma Mauritanica* » », *Afr. Sci. Rev. Int. Sci. Technol.*, vol. 4, n° 2, janv. 2008, doi: 10.4314/afsci.v4i2.61682.
- [8] A. Achour, F. Ghomari, et N. Belayachi, « Properties of cementitious mortars reinforced with natural fibers », *J. Adhes. Sci. Technol.*, vol. 31, n° 17, p. 1938-1962, sept. 2017, doi: 10.1080/01694243.2017.1290572.
- [9] M. E. H. BOURAHLI, « Caractérisation d'un composite verre / époxy », UNIVERSITE FERHAT ABBAS-SETIF 1, 2014.
- [10] F. Sarasini *et al.*, « Thermal and mechanical behavior of thermoplastic composites reinforced with fibers enzymatically extracted from *Ampelodesmos mauritanicus* », *Polym. Eng. Sci.*, vol. 0, n° 0, mars 2019, doi: 10.1002/pen.25093.
- [11] Z. Touati, H. Boulahia, N. Belhaneche-Bensemra, et V. Massardier-Nageotte, « Modification of Diss Fibers for Biocomposites Based on Recycled Low-Density Polyethylene and Polypropylene Blends », *Waste Biomass Valorization*, févr. 2018, doi: 10.1007/s12649-018-0225-x.
- [12] G. Abderrahim et A. Hamrouni, « Treatment of an Expansive Soil using Vegetable (DISS) Fibre », *Innov. Infrastruct. Solut.*, vol. 5, mars 2020, doi: 10.1007/s41062-020-0281-5.
- [13] C. BALEY, « Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites », *Ref: TIP100WEB - « Plastiques et composites »*. janv. 10, 2013, Consulté le: mai 29, 2018. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/42142210-materiaux-composites-presentation-et-renforts/download/am5130/fibres-naturelles-de-renfort-pour-materiaux-composites.html>.
- [14] C. BALEY, « Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites », *Ref: TIP100WEB - « Plastiques et composites »*, oct. 10, 2004. <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/tiaam-archives-plastiques-et-composites/download/am5130/1/fibres-naturelles-de-renfort-pour-materiaux-composites.html> (consulté le mai 29, 2018).

- [15] C. MEIRHAEGHE et F. R. Développement, « Evaluation de la disponibilité et de l'accessibilité de fibres végétales à usages matériaux en France », ADEME, 2011.
- [16] F. Chegiani, « Analyse multiéchelle de l'usinage des matériaux biosourcés : Application aux agrocomposites », Paris, ENSAM, 2016.
- [17] O. Faruk, A. K. Bledzki, H.-P. Fink, et M. Sain, « Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010 », *Prog. Polym. Sci.*, vol. 37, n° 11, p. 1552-1596, nov. 2012, doi: 10.1016/j.progpolymsci.2012.04.003.
- [18] Y. Nishitani, T. Kajiyama, et T. Yamanaka, « Effect of Silane Coupling Agent on Tribological Properties of Hemp Fiber-Reinforced Plant-Derived Polyamide 1010 Biomass Composites », *Mater. Basel Switz.*, vol. 10, n° 9, sept. 2017, doi: 10.3390/ma10091040.
- [19] B. A. Amel, M. T. Paridah, R. Sudin, U. M. K. Anwar, et A. S. Hussein, « Effect of fiber extraction methods on some properties of kenaf bast fiber », *Ind. Crops Prod.*, vol. 46, p. 117-123, avr. 2013, doi: 10.1016/j.indcrop.2012.12.015.
- [20] N. Chand, R. K. Tiwary, et P. K. Rohatgi, « Bibliography Resource structure properties of natural cellulosic fibres ? an annotated bibliography », *J. Mater. Sci.*, vol. 23, n° 2, p. 381-387, févr. 1988, doi: 10.1007/BF01174659.
- [21] S. Banik, D. Nag, et S. Debnath, « Utilization of pineapple leaf agro-waste for extraction of fibre and the residual biomass for vermicomposting », *Indian J. Fibre Text. Res.*, vol. 36, n° 2, p. 172-177, juin 2011.
- [22] C. Mooney, T. Stolle-Smits, H. Schols, et E. de Jong, « Analysis of retted and non retted flax fibres by chemical and enzymatic means », *J. Biotechnol.*, vol. 89, n° 2-3, p. 205-216, août 2001, doi: 10.1016/S0168-1656(01)00299-1.
- [23] Y. Li, Y.-W. Mai, et L. Ye, « Sisal fibre and its composites: a review of recent developments », *Compos. Sci. Technol.*, p. 19, 2000.
- [24] R. Kannojiya, K. Gaurav, R. Ranjan, N. K. Tiyyer, et K. M. Pandey, « Extraction of pineapple fibres for making commercial products », *Journal of Environmental Research And Development*, vol 7, n° 4, p. 1385-1390, 2013.
- [25] H. Yu et C. Yu, « Influence of various retting methods on properties of kenaf fiber », *J. Text. Inst.*, vol. 101, n° 5, p. 452-456, avr. 2010, doi: 10.1080/00405000802472564.
- [26] M. K. Moghaddam et S. M. Mortazavi, « Physical and Chemical Properties of Natural Fibers Extracted from *Typha Australis* Leaves », *J. Nat. Fibers*, vol. 13, n° 3, p. 353-361, mai 2016, doi: 10.1080/15440478.2015.1029199.
- [27] D. Thi et V. Vi, « Matériaux composites à fibres naturelles / polymère biodégradables ou non », Grenoble, 2011.
- [28] N. Tarabi, H. Mousazadeh, A. Jafari, et J. Taghizadeh-Tameh, « Evaluation of properties of bast fiber extracted from Calotropis (Millkweed) by a new decorticator machine and manual methods », *Ind. Crops Prod.*, vol. 83, p. 545-550, mai 2016, doi: 10.1016/j.indcrop.2015.12.071.
- [29] A. Bledzki, « Composites reinforced with cellulose based fibres », *Prog. Polym. Sci.*, vol. 24, n° 2, p. 221-274, mai 1999, doi: 10.1016/S0079-6700(98)00018-5.

- [30] M. Jawaid et H. P. S. Abdul Khalil, « Cellulosic/synthetic fibre reinforced polymer hybrid composites: A review », *Carbohydr. Polym.*, vol. 86, n° 1, p. 1-18, août 2011, doi: 10.1016/j.carbpol.2011.04.043.
- [31] M. M. Kabir, H. Wang, K. T. Lau, et F. Cardona, « Chemical treatments on plant-based natural fibre reinforced polymer composites: An overview », *Compos. Part B Eng.*, vol. 43, n° 7, p. 2883-2892, oct. 2012, doi: 10.1016/j.compositesb.2012.04.053.
- [32] J. Guillou, D. N. Lavadiya, T. Munro, T. Fronk, et H. Ban, « From lignocellulose to biocomposite: Multi-level modelling and experimental investigation of the thermal properties of kenaf fiber reinforced composites based on constituent materials », *Appl. Therm. Eng.*, vol. 128, p. 1372-1381, janv. 2018, doi: 10.1016/j.applthermaleng.2017.09.095.
- [33] C. Cuissinat, « Etude des mécanismes de gonflement et de dissolution des fibres de cellulose native », École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2006.
- [34] M. E. H. BOURAHILI, « Caractérisation d'un composite verre / époxy », Université Ferhat Abbas- Setif-1, 2014.
- [35] D. Pouzet, *Production durable de biomasse: La lignocellulose des poacées*. Quae, 2012.
- [36] E. Privas, « Matériaux ligno-cellulosiques: Élaboration et caractérisation », École nationale supérieure des mines de Paris, 2013.
- [37] R. Hatfield et R. S. Fukushima, « Can lignin be accurately measured? », *Crop Sci.*, vol. 45, n° 3, p. 832-839, juin 2005, doi: 10.2135/cropsci2004.0238.
- [38] R. Vanholme, B. Demedts, K. Morreel, J. Ralph, et W. Boerjan, « Lignin Biosynthesis and Structure », *Plant Physiol.*, vol. 153, n° 3, p. 895-905, juill. 2010, doi: 10.1104/pp.110.155119.
- [39] L. Yan, N. Chouw, et K. Jayaraman, « Flax fibre and its composites – A review », *Compos. Part B Eng.*, vol. 56, p. 296-317, janv. 2014, doi: 10.1016/j.compositesb.2013.08.014.
- [40] M. Dashtban, H. Schraft, T. A. Syed, et W. Qin, « Fungal biodegradation and enzymatic modification of lignin », *Int. J. Biochem. Mol. Biol.*, vol. 1, n° 1, p. 36-50, mai 2010.
- [41] D. Sedan, Etude des interactions physico-chimiques aux interfaces fibres de chanvre/ciment : influence sur les propriétés mécaniques du composite. Limoges, 2007.
- [42] M. Pauly *et al.*, « Hemicellulose biosynthesis », *Planta*, vol. 238, n° 4, p. 627-642, oct. 2013, doi: 10.1007/s00425-013-1921-1.
- [43] E. Privas, « Rhamnogalacturonan I in Solanum tuberosum tubers contains complex arabinogalactan structures », École nationale supérieure des mines de Paris, Paris, 2013.
- [44] Nicolas Martin, « Contribution à l'étude de paramètres influençant les propriétés mécaniques de fibres élémentaires de lin : Corrélation avec les propriétés de matériaux composites », Université de Bretagne Sud, 2014.
- [45] L. Osorio, E. Trujillo, A. W. Van Vuure, et I. Verpoest, « Morphological aspects and mechanical properties of single bamboo fibers and flexural characterization of bamboo/ epoxy composites », *J. Reinf. Plast. Compos.*, vol. 30, n° 5, p. 396-408, mars 2011, doi: 10.1177/0731684410397683.

- [46] D. B. Dittenber et H. V. S. GangaRao, « Critical review of recent publications on use of natural composites in infrastructure », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 43, n° 8, p. 1419-1429, août 2012, doi: 10.1016/j.compositesa.2011.11.019.
- [47] M. Gibaud, A. Bourmaud, et C. Baley, « Understanding the lodging stability of green flax stems; The importance of morphology and fibre stiffness », *Biosyst. Eng.*, vol. 137, p. 9-21, sept. 2015, doi: 10.1016/j.biosystemseng.2015.06.005.
- [48] E. T. N. Bisanda et M. P. Ansell, « Properties of sisal-CNSL composites », *J. Mater. Sci.*, vol. 27, n° 6, p. 1690-1700, mars 1992, doi: 10.1007/BF00542934.
- [49] I. Van de Weyenberg, J. Ivens, A. De Coster, B. Kino, E. Baetens, et I. Verpoest, « Influence of processing and chemical treatment of flax fibres on their composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 63, n° 9, p. 1241-1246, juill. 2003, doi: 10.1016/S0266-3538(03)00093-9.
- [50] R. N. Hobson, D. G. Hepworth, et D. M. Bruce, « PH—Postharvest Technology: Quality of Fibre Separated from Unretted Hemp Stems by Decortication », *Journal of Agricultural Engineering Research*, vol. 78, no 2, p. 153-158, févr. 2001, doi: 10.1006/jaer.2000.0631.
- [51] D. Zhao, P. Liu, C. Pan, R. Du, W. Ping, et J. Ge, « Flax retting by degumming composite enzyme produced by *Bacillus licheniformis* HDYM-04 and effect on fiber properties », *J. Text. Inst.*, vol. 108, n° 4, p. 507-510, avr. 2017, doi: 10.1080/00405000.2016.1171482.
- [52] V. Placet, A. Day, et J. Beaugrand, « The influence of unintended field retting on the physicochemical and mechanical properties of industrial hemp bast fibres », *Journal of Materials Science*, vol. 52, no 10, p. 5759-5777, mai 2017, doi: 10.1007/s10853-017-0811-5
- [53] M. Liu *et al.*, « Comparison of traditional field retting and *Phlebia radiata* Cel 26 retting of hemp fibres for fibre-reinforced composites », *AMB Express*, vol. 7, n° 1, déc. 2017, doi: 10.1186/s13568-017-0355-8.
- [54] A. Boukhoulda, F. B. Boukhoulda, H. Makich, M. Nouari, et B. Haddag, « Microstructural and Mechanical Characterizations of Natural Long Alfa Fibers Obtained with Different Extractions Processes », *J. Nat. Fibers*, vol. 14, n° 6, p. 897-908, nov. 2017, doi: 10.1080/15440478.2017.1302384.
- [55] D. E. Akin, J. A. Foulk, R. B. Dodd, et D. D. McAlister, « Enzyme-retting of flax and characterization of processed fibers », *J. Biotechnol.*, vol. 89, n° 2-3, p. 193-203, août 2001, doi: 10.1016/S0168-1656(01)00298-X.
- [56] V. Placet, A. Day, et J. Beaugrand, « The influence of unintended field retting on the physicochemical and mechanical properties of industrial hemp bast fibres », *J. Mater. Sci.*, vol. 52, n° 10, p. 5759-5777, mai 2017, doi: 10.1007/s10853-017-0811-5.
- [57] L. G. Angelini, M. Scalabrelli, S. Tavarini, P. Cinelli, I. Anguillesi, et A. Lazzeri, « Ramie fibers in a comparison between chemical and microbiological retting proposed for application in biocomposites », *Ind. Crops Prod.*, vol. 75, p. 178-184, nov. 2015, doi: 10.1016/j.indcrop.2015.05.004.
- [58] M. Liu, A. S. Meyer, D. Fernando, D. A. S. Silva, G. Daniel, et A. Thygesen, « Effect of pectin and hemicellulose removal from hemp fibres on the mechanical properties of unidirectional hemp/epoxy composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 90, p. 724-735, nov. 2016, doi: 10.1016/j.compositesa.2016.08.037.

- [59] M. Liu *et al.*, « Controlled retting of hemp fibres: Effect of hydrothermal pre-treatment and enzymatic retting on the mechanical properties of unidirectional hemp/epoxy composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 88, p. 253-262, sept. 2016, doi: 10.1016/j.compositesa.2016.06.003.
- [60] C. Gourier, « Contribution à l'étude de matériaux biocomposites à matrice thermoplastique polyamide-11 et renforcés par des fibres de lin », Lorient, 2016.
- [61] N. Tarabi, H. Mousazadeh, A. Jafari, et J. Taghizadeh-Tameh, « Design, construction and evaluation of a fiber extracting machine from Calotropis (milkweed) stems », *Eng. Agric. Environ. Food*, vol. 8, n° 2, p. 88-94, mars 2015, doi: 10.1016/j.eaef.2014.11.001.
- [62] T. Ahmad, H. S. Mahmood, Z. Ali, M. A. Khan, et S. Zia, « Design and Development of a Portable Sisal Decorticator », *Pak. J. Agric. Res.*, vol. 30, n° 3, sept. 2017, doi: 10.17582/journal.pjar/2017.30.3.209.217.
- [63] Y. Yusof, S. A. Yahya, et A. Adam, « PINEAPPLE LEAF FIBRE EXTRACTIONS: COMPARISON BETWEEN PALF M1 AND HAND SCRAPPING », vol. 11, n° 3, p. 5, 2016.
- [64] S. Sarah *et al.*, « Optimization of Pineapple Leaf Fibre Extraction Methods and Their Biodegradabilities for Soil Cover Application », *J. Polym. Environ.*, vol. 26, n° 1, p. 319-329, janv. 2018, doi: 10.1007/s10924-017-0942-4.
- [65] N. Kengkhetkit et T. Amornsakchai, « Utilisation of pineapple leaf waste for plastic reinforcement: 1. A novel extraction method for short pineapple leaf fiber », *Ind. Crops Prod.*, vol. 40, p. 55-61, nov. 2012, doi: 10.1016/j.indcrop.2012.02.037.
- [66] S. Ben Brahim et R. Ben Cheikh, « Influence of fibre orientation and volume fraction on the tensile properties of unidirectional Alfa-polyester composite », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 67, n° 1, p. 140-147, janv. 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2005.10.006.
- [67] A. Bessadok *et al.*, « Effect of chemical treatments of Alfa (*Stipa tenacissima*) fibres on water-sorption properties », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 67, n° 3, p. 685-697, mars 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2006.04.013.
- [68] M. Merzoud et M. F. Habita, « Elaboration de composite cimentaire à base de diss « *Ampelodesma Mauritanica* » », *Afr. Sci. Rev. Int. Sci. Technol.*, vol. 4, n° 2, janv. 2008, doi: 10.4314/afsci.v4i2.61682.
- [69] M. E. H. Bourahli, « Uni- and bimodal Weibull distribution for analyzing the tensile strength of Diss fibers », *J. Nat. Fibers*, vol. 15, n° 6, p. 843-852, nov. 2018, doi: 10.1080/15440478.2017.1371094.
- [70] M. Asim, M. Jawaaid, K. Abdan, et M. R. Ishak, « Effect of Alkali and Silane Treatments on Mechanical and Fibre-matrix Bond Strength of Kenaf and Pineapple Leaf Fibres », *J. Bionic Eng.*, vol. 13, n° 3, p. 426-435, juill. 2016, doi: 10.1016/S1672-6529(16)60315-3.
- [71] R. Sepe, F. Bollino, L. Boccarusso, et F. Caputo, « Influence of chemical treatments on mechanical properties of hemp fiber reinforced composites », *Compos. Part B Eng.*, vol. 133, p. 210-217, janv. 2018, doi: 10.1016/j.compositesb.2017.09.030.
- [72] B. A.n. et N. K.j., « Characterization of alkali treated and untreated new cellulosic fiber from Saharan aloe vera cactus leaves », *Carbohydr. Polym.*, vol. 174, p. 200-208, oct. 2017, doi: 10.1016/j.carbpol.2017.06.065.

- [73] T. E. Motaung, L. Z. Linganisio, R. Kumar, et R. D. Anandjiwala, « Agave and sisal fibre-reinforced polyfurfuryl alcohol composites », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 30, n° 10, p. 1323-1343, oct. 2017, doi: 10.1177/0892705716632858.
- [74] P. Krishnaiah, C. T. Ratnam, et S. Manickam, « Enhancements in crystallinity, thermal stability, tensile modulus and strength of sisal fibres and their PP composites induced by the synergistic effects of alkali and high intensity ultrasound (HIU) treatments », *Ultrason. Sonochem.*, vol. 34, p. 729-742, 2017, doi: 10.1016/j.ultsonch.2016.07.008.
- [75] Z. Huang, H. Ge, J. Yin, et F. Liu, « Effects of fiber loading and chemical treatments on properties of sisal fiber-reinforced sheet molding compounds », *J. Compos. Mater.*, vol. 51, n° 22, p. 3175-3185, sept. 2017, doi: 10.1177/0021998316683440.
- [76] T. Behzad et M. Sain, « Measurement and prediction of thermal conductivity for hemp fiber reinforced composites », *Polym. Eng. Sci.*, vol. 47, n° 7, p. 977-983, juill. 2007, doi: 10.1002/pen.20632.
- [77] X. Li, L. G. Tabil, et S. Panigrahi, « Chemical Treatments of Natural Fiber for Use in Natural Fiber-Reinforced Composites: A Review », *J. Polym. Environ.*, vol. 15, n° 1, p. 25-33, févr. 2007, doi: 10.1007/s10924-006-0042-3.
- [78] S. Dhanalakshmi, P. Ramadevi, et B. Basavaraju, « A study of the effect of chemical treatments on areca fiber reinforced polypropylene composite properties », *Sci. Eng. Compos. Mater.*, vol. 24, n° 4, p. 501-520, juill. 2017, doi: 10.1515/secm-2015-0292.
- [79] K. Vishnu Vardhini, R. Murugan, et R. Surjit, « Effect of alkali and enzymatic treatments of banana fibre on properties of banana/polypropylene composites », *J. Ind. Text.*, vol. 47, n° 7, p. 1849-1864, mars 2018, doi: 10.1177/1528083717714479.
- [80] M. Rajesh et J. Pitchaimani, « Mechanical characterization of natural fiber intra-ply fabric polymer composites: Influence of chemical modifications », *J. Reinf. Plast. Compos.*, vol. 36, n° 22, p. 1651-1664, nov. 2017, doi: 10.1177/0731684417723084.
- [81] Y. Xie, C. A. S. Hill, Z. Xiao, H. Militz, et C. Mai, « Silane coupling agents used for natural fiber/polymer composites: A review », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 41, n° 7, p. 806-819, juill. 2010, doi: 10.1016/j.compositesa.2010.03.005.
- [82] T. M. Le et K. L. Pickering, « The potential of harakeke fibre as reinforcement in polymer matrix composites including modelling of long harakeke fibre composite strength », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 76, p. 44-53, sept. 2015, doi: 10.1016/j.compositesa.2015.05.005.
- [83] M. Asim, M. Jawaid, K. Abdan, et M. R. Ishak, « The Effect of Silane Treated Fibre Loading on Mechanical Properties of Pineapple Leaf/Kenaf Fibre Filler Phenolic Composites », *J. Polym. Environ.*, vol. 26, n° 4, p. 1520-1527, avr. 2018, doi: 10.1007/s10924-017-1060-z.
- [84] A. K. Bledzki, A. A. Mamun, M. Lucka-Gabor, et V. S. Gutowski, « The effects of acetylation on properties of flax fibre and its polypropylene composites », *Express Polym. Lett.*, vol. 2, n° 6, p. 413-422, juin 2008, doi: 10.3144/expresspolymlett.2008.50.
- [85] J. Mukaida, Y. Nishitani, T. Yamanaka, T. Kajiyama, et T. Kitano, « Influence of types of alkali treatment on the mechanical properties of hemp fiber reinforced polyamide 1010 composites », *AIP Conf. Proc.*, vol. 1779, n° 1, p. 060005, oct. 2016, doi: 10.1063/1.4965526.

- [86] A. K. Bledzki, S. Reihmane, et J. Gassan, « Properties and modification methods for vegetable fibers for natural fiber composites », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 59, n° 8, p. 1329-1336, 1996.
- [87] M. Ragoubi, D. Bienaimé, S. Molina, B. George, et A. Merlin, « Impact of corona treated hemp fibres onto mechanical properties of polypropylene composites made thereof », *Ind. Crops Prod.*, vol. 31, n° 2, p. 344-349, mars 2010, doi: 10.1016/j.indcrop.2009.12.004.
- [88] A. Pizzi *et al.*, « High resin content natural matrix–natural fibre biocomposites », *Ind. Crops Prod.*, vol. 30, n° 2, p. 235-240, sept. 2009, doi: 10.1016/j.indcrop.2009.03.013.
- [89] J. Gassan et V. S. Gutowski, « Effects of corona discharge and UV treatment on the properties of jute-fibre epoxy composites », *Compos. Sci. Technol.*, p. 7, 2000.
- [90] S. Marais *et al.*, « Unsaturated polyester composites reinforced with flax fibers: effect of cold plasma and autoclave treatments on mechanical and permeation properties », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 36, n° 7, p. 975-986, juill. 2005, doi: 10.1016/j.compositesa.2004.11.008.
- [91] N. Graupner, K. Albrecht, D. Hegemann, et J. Müssig, « Plasma modification of man-made cellulose fibers (Lyocell) for improved fiber/matrix adhesion in poly(lactic acid) composites », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 128, n° 6, p. 4378-4386, 2013, doi: 10.1002/app.38663.
- [92] E. Sinha et S. Panigrahi, « Effect of Plasma Treatment on Structure, Wettability of Jute Fiber and Flexural Strength of its Composite », *J. Compos. Mater.*, vol. 43, n° 17, p. 1791-1802, août 2009, doi: 10.1177/0021998309338078.
- [93] A. Stamboulis, C. A. Baillie, et T. Peijs, « Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers », p. 11, 2001.
- [94] D. Ariawan, M. S. Salim, R. M. Taib, M. Z. A. Thirmizir, et Z. A. M. Ishak, « Interfacial characterisation and mechanical properties of heat treated non-woven kenaf fibre and its reinforced composites », *Compos. Interfaces*, vol. 25, n° 2, p. 187-203, févr. 2018, doi: 10.1080/09276440.2017.1354562.
- [95] 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 », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 61, n° 10, p. 1437-1447, août 2001, doi: 10.1016/S0266-3538(01)00046-X.
- [96] M. Liu, A. Thygesen, J. Summerscales, et A. S. Meyer, « Targeted pre-treatment of hemp bast fibres for optimal performance in biocomposite materials: A review », *Ind. Crops Prod.*, vol. 108, p. 660-683, déc. 2017, doi: 10.1016/j.indcrop.2017.07.027.
- [97] M. Thommes *et al.*, « Physisorption of gases, with special reference to the evaluation of surface area and pore size distribution (IUPAC Technical Report) », *Pure Appl. Chem.*, vol. 87, n° 9-10, p. 1051-1069, oct. 2015, doi: 10.1515/pac-2014-1117.
- [98] A. Regazzi, « Contribution à l'étude du vieillissement couplé thermo-hydro-mécanique de biocomposite PLA/lin », phdthesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2013.
- [99] G. A. Testoni, « In situ long-term durability analysis of biocomposites in the marine environment », Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2015.
- [100] A. N. Fraga, V. A. Alvarez, A. Vazquez, et O. de la Osa, « Relationship between Dynamic Mechanical Properties and Water Absorption of Unsaturated Polyester

- and Vinyl Ester Glass Fiber Composites », *J. Compos. Mater.*, vol. 37, n° 17, p. 1553-1574, sept. 2003, doi: 10.1177/0021998303029421.
- [101] A. Chilali, « Étude expérimentale et modélisation de la durabilité des biocomposites à fibres de lin », Reims, 2017.
- [102] Y. J. Weitsman et M. Elahi, « Effects of Fluids on the Deformation, Strength and Durability of Polymeric Composites – An Overview », *Mechanics of Time-Dependent Materials*, vol. 4, n° 4, p. 107–126, 2000.
- [103] A. Roudier, « Analyse multi-échelle du comportement hygro-mécanique des fibres de lin », *Génie Mécanique*, Université BLAISE PASCAL - Clermont II, 2012.
- [104] J. Crank, *The mathematics of diffusion*, 2d ed. Oxford, [Eng]: Clarendon Press, 1975.
- [105] F. Gouanvé, S. Marais, A. Bessadok, D. Langevin, et M. Métayer, « Kinetics of water sorption in flax and PET fibers », *Eur. Polym. J.*, vol. 43, n° 2, p. 586-598, févr. 2007, doi: 10.1016/j.eurpolymj.2006.10.023.
- [106] L.-M. Sun, F. Meunier, N. Brodu, et M.-H. Manero, « Adsorption - Aspects théoriques », *Technique d'ingénieur*, Réf J2730 V2, 2016.
- [107] Z. N. Azwa, B. F. Yousif, A. C. Manalo, et W. Karunasena, « A review on the degradability of polymeric composites based on natural fibres », *Mater. Des.*, vol. 47, p. 424-442, mai 2013, doi: 10.1016/j.matdes.2012.11.025.
- [108] X. Guo et Y. Wu, « Characterizing Molecular Structure of Water Adsorbed by Cellulose Nanofiber Film Using *in situ* Micro-FTIR Spectroscopy », *J. Wood Chem. Technol.*, vol. 37, n° 5, p. 383-392, sept. 2017, doi: 10.1080/02773813.2017.1306078.
- [109] A. Céline, O. Gonçalves, F. Jacquemin, et S. Fréour, « Utilisation de la spectrométrie infrarouge pour une quantification rapide du taux d'humidité dans des fibres végétales », *Rev. Compos. Matér. Avancés*, vol. 24, n° 1, p. 81-95, avr. 2014, doi: 10.3166/rcma.24.81-95.
- [110] X. Guo, L. Liu, J. Wu, J. Fan, et Y. Wu, « Qualitatively and quantitatively characterizing water adsorption of a cellulose nanofiber film using micro-FTIR spectroscopy », *RSC Adv.*, vol. 8, n° 8, p. 4214-4220, 2018, doi: 10.1039/C7RA09894D.
- [111] S. Himmel et C. Mai, « Effects of acetylation and formalization on the dynamic water vapor sorption behavior of wood », *Holzforschung*, vol. 69, n° 5, p. 633–643, 2014, doi: 10.1515/hf-2014-0161.
- [112] C. A. S. Hill, A. Norton, et G. Newman, « The water vapor sorption behavior of natural fibers », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 112, n° 3, p. 1524-1537, mai 2009, doi: 10.1002/app.29725.
- [113] A. Bessadok, S. Marais, S. Roudesli, C. Lixon, et M. Métayer, « Influence of chemical modifications on water-sorption and mechanical properties of Agave fibres », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, n° 1, p. 29-45, janv. 2008, doi: 10.1016/j.compositesa.2007.09.007.
- [114] S. Alix, E. Philippe, A. Bessadok, L. Lebrun, C. Morvan, et S. Marais, « Effect of chemical treatments on water sorption and mechanical properties of flax fibres », *Bioresour. Technol.*, vol. 100, n° 20, p. 4742-4749, oct. 2009, doi: 10.1016/j.biortech.2009.04.067.

- [115] S. Kalia, B. S. Kaith, et I. Kaur, « Pretreatments of natural fibers and their application as reinforcing material in polymer composites—A review », *Polym. Eng. Sci.*, vol. 49, n° 7, p. 1253-1272, 2009, doi: 10.1002/pen.21328.
- [116] R. Haque, M. Saxena, S. C. Shit, et P. Asokan, « Fibre-matrix Adhesion and Properties Evaluation of Sisal Polymer Composite », *Fibers Polym.*, vol. 16, n° 1, p. 146-152, janv. 2015, doi: 10.1007/s12221-015-0146-2.
- [117] L. Salmén et P. A. Larsson, « On the origin of sorption hysteresis in cellulosic materials », *Carbohydr. Polym.*, vol. 182, p. 15-20, févr. 2018, doi: 10.1016/j.carbpol.2017.11.005.
- [118] J. Shi et S. Avramidis, « Water sorption hysteresis in wood: I review and experimental patterns - Geometric characteristics of scanning curves », *Holzforschung*, vol. 71, janv. 2017, doi: 10.1515/hf-2016-0120.
- [119] M. Fredriksson et E. E. Thybring, « Scanning or desorption isotherms? Characterising sorption hysteresis of wood », *Cellulose*, vol. 25, n° 8, p. 4477-4485, août 2018, doi: 10.1007/s10570-018-1898-9.
- [120] B. A. Keating, C. A. S. Hill, D. Sun, R. English, P. Davies, et C. McCue, « The water vapor sorption behavior of a galactomannan cellulose nanocomposite film analyzed using parallel exponential kinetics and the Kelvin-Voigt viscoelastic model », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 129, n° 4, p. 2352-2359, août 2013, doi: 10.1002/app.39132.
- [121] L. Thygesen, E. Thybring, et P. Hoffmeyer, « Water sorption in wood and modified wood at high values of relative humidity. Part I: Results for untreated, acetylated, and furfurylated Norway spruce », *Holzforschung*, vol. 64, p. 315-323, avr. 2010, doi: 10.1515/HF.2010.044.
- [122] A. Trabelsi, A. Hamami, R. Belarbi, P. Turcry, K. Aït-Mokhtar, « Characterization of water vapor desorption variability and its effects on drying simulation for an in-situ high performances concrete », *Magazine of Concrete Research*, Vol. 63, Issue 5, p. 333 –342, 2011.
- [123] A. Bessadok, D. Langevin, F. Gouanvé, C. Chappey, S. Roudesli, et S. Marais, « Study of water sorption on modified Agave fibres », *Carbohydr. Polym.*, vol. 76, n° 1, p. 74-85, mars 2009, doi: 10.1016/j.carbpol.2008.09.033.
- [124] A. Marzec et P. P. Lewicki, « Antiplasticization of cereal-based products by water. Part I. Extruded flat bread », *J. Food Eng.*, vol. 73, n° 1, p. 1-8, mars 2006, doi: 10.1016/j.jfoodeng.2004.12.002.
- [125] C. A. Koko, M. Diomande, B. K. Kouame, et E. N. Assidjo, « Détermination expérimentale et modélisation des isothermes d'adsorption d'eau des amandes d'*Irvingia gabonensis* de la région du Haut-Sassandra (Côte d'Ivoire) », p. 17.
- [126] R. Bui, M. Labat, et J.-E. Aubert, « Comparison of the Saturated Salt Solution and the Dynamic Vapor Sorption techniques based on the measured sorption isotherm of barley straw », *Constr. Build. Mater.*, vol. 141, p. 140-151, juin 2017, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2017.03.005.
- [127] A. Patcharawijit, N. Choodum, et R. Yamsaengsung, « Effects of superheated steam treatment on moisture adsorption and mechanical properties of pre-dried rubberwood », *Dry. Technol.*, vol. 37, n° 13, p. 1647-1655, oct. 2019, doi: 10.1080/07373937.2018.1529037.

- [128] S. Furmaniak, A. P. Terzyk, P. A. Gauden, et G. Rychlicki, « Applicability of the generalised D'Arcy and Watt model to description of water sorption on pineapple and other foodstuffs », *J. Food Eng.*, vol. 79, n° 2, p. 718-723, mars 2007, doi: 10.1016/j.jfoodeng.2006.02.036.
- [129] A. Céline, S. Fréour, F. Jacquemin, et P. Casari, « Characterization and modeling of the moisture diffusion behavior of natural fibers », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 130, n° 1, p. 297-306, 2013, doi: 10.1002/app.39148.
- [130] Kh. M. Mannan et M. A. I. Talukder, « Characterization of raw, delignified and bleached jute fibres by study of absorption of moisture and some mechanical properties », *Polymer*, vol. 38, n° 10, p. 2493-2500, mai 1997, doi: 10.1016/S0032-3861(96)00804-X.
- [131] D. Saikia, « Studies of Water Absorption Behavior of Plant Fibers at Different Temperatures », *Int. J. Thermophys.*, vol. 31, n° 4-5, p. 1020-1026, mai 2010, doi: 10.1007/s10765-010-0774-0.
- [132] W. K. Loh, A. D. Crocombe, M. M. Abdel Wahab, et I. A. Ashcroft, « Modelling anomalous moisture uptake, swelling and thermal characteristics of a rubber toughened epoxy adhesive », *Int. J. Adhes. Adhes.*, vol. 25, n° 1, p. 1-12, févr. 2005, doi: 10.1016/j.ijadhadh.2004.02.002.
- [133] H. G. Carter et K. G. Kibler, « Langmuir-Type Model for Anomalous Moisture Diffusion In Composite Resins », *J. Compos. Mater.*, vol. 12, n° 2, p. 118-131, juill. 1978, doi: 10.1177/002199837801200201.
- [134] A. DAMERDJI, « Les Orthoptéroïdes sur différentes plantes dans la région de Tlemcen (Algérie) », *Afr. Sci.*, p. 82-92, 2012.
- [135] J.-C. Rameau, D. Mansion, et G. Dumé, Flore forestière française: Région Méditerranéenne. Forêt privée française, 1989.
- [136] A. Bernard et E. Douthe, « L'habitation rurale des indigènes de l'Algérie », *Annales de géographie*, vol. 26, no 141, p. 219-228, 1917, doi: 10.3406/geo.1917.8629.
- [137] S. Amziane, F. Collet, M. Lawrence, C. Magniont, V. Picandet, et M. Sonebi, « Recommendation of the RILEM TC 236-BBM: characterisation testing of hemp shiv to determine the initial water content, water absorption, dry density, particle size distribution and thermal conductivity », *Mater. Struct.*, vol. 50, n° 3, juin 2017, doi: 10.1617/s11527-017-1029-3.
- [138] Jf Thibault, « Automatisation du dosage des substances pectiques par la methode au metahydroxydiphenyle | Scinapse | Academic search engine for paper », *Lebensm. Wiss Technol*, vol. 12, p. 247-251, 1979.
- [139] B. Blakeney, P. Harris, et R. Henry, « A simple and rapid preparation of alditol acetates for monosaccharide analysis », *Carbohydr. Res.*, vol. 113, n° 2, p. 291-299, 1983.
- [140] NF T25-501-3, « Fibres de renfort - Fibres de lin pour composites plastiques - Partie 3 : détermination des propriétés en traction des fibres techniques-NF T25-501-3- ». mars 11, 2015, Consulté le: févr. 04, 2020. [En ligne]. Disponible sur: <https://sagaweb-afnor-org.bases-doc.univ-lorraine.fr/fr-FR/sw/Consultation/Notice/1422148?directFromSearch=true>.
- [141] W. Hu, M.-T. Ton-That, F. Perrin-Sarazin, et J. Denault, « An improved method for single fiber tensile test of natural fibers », *Polym. Eng. Sci.*, vol. 50, n° 4, p. 819-825, 2010, doi: 10.1002/pen.21593.

- [142] W. J. Dixon, « Processing Data for Outliers », *Biometrics*, vol. 9, n° 1, p. 74, mars 1953, doi: 10.2307/3001634.
- [143] S. Dhanalakshmi, P. Ramadevi, et B. Basavaraju, « A study of the effect of chemical treatments on areca fiber reinforced polypropylene composite properties », *Sci. Eng. Compos. Mater.*, vol. 24, n° 4, p. 501-520, juill. 2017, doi: 10.1515/secm-2015-0292.
- [144] Q. minh Do, « Etude des matériaux composites de matrices polymères issues de ressources renouvelable et fibres de bambou. », Reims, 2016.
- [145] R. H. Newman, M. J. Le Guen, M. A. Battley, et J. E. P. Carpenter, « Failure mechanisms in composites reinforced with unidirectional Phormium leaf fibre », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 41, n° 3, p. 353-359, mars 2010, doi: 10.1016/j.compositesa.2009.11.001.
- [146] F. Zhou, G. Cheng, et B. Jiang, « Effect of silane treatment on microstructure of sisal fibers », *Appl. Surf. Sci.*, vol. 292, p. 806-812, févr. 2014, doi: 10.1016/j.apsusc.2013.12.054.
- [147] M. Asim, M. Jawaid, K. Abdan, et M. R. Ishak, « Effect of Alkali and Silane Treatments on Mechanical and Fibre-matrix Bond Strength of Kenaf and Pineapple Leaf Fibres », *J. Bionic Eng.*, vol. 13, n° 3, p. 426-435, juill. 2016, doi: 10.1016/S1672-6529(16)60315-3.
- [148] E. M. Fernandes, J. F. Mano, et R. L. Reis, « Hybrid cork–polymer composites containing sisal fibre: Morphology, effect of the fibre treatment on the mechanical properties and tensile failure prediction », *Compos. Struct.*, vol. 105, p. 153-162, nov. 2013, doi: 10.1016/j.compstruct.2013.05.012.
- [149] M. S. Sreekala, M. G. Kumaran, S. Joseph, M. Jacob, et S. Thomas, « Oil Palm Fibre Reinforced Phenol Formaldehyde Composites: Influence of Fibre Surface Modifications on the Mechanical Performance », *Appl. Compos. Mater.*, vol. 7, n° 5, p. 295-329, nov. 2000, doi: 10.1023/A:1026534006291.
- [150] V. Tserki, N. E. Zafeiropoulos, F. Simon, et C. Panayiotou, « A study of the effect of acetylation and propionylation surface treatments on natural fibres », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 36, n° 8, p. 1110-1118, août 2005, doi: 10.1016/j.compositesa.2005.01.004.
- [151] T.-J. Chung *et al.*, « The Improvement of Mechanical Properties, Thermal Stability, and Water Absorption Resistance of an Eco-Friendly PLA/Kenaf Biocomposite Using Acetylation », *Appl. Sci.*, vol. 8, n° 3, p. 376, mars 2018, doi: 10.3390/app8030376.
- [152] M. Nouri, I. Griballah, M. Tahlaiti, F. Grondin, et J. Beaugrand, « Plant Extraction and Physicochemical Characterizations of Untreated and Pretreated Diss Fibers (*Ampelodesmos mauritanicus*) », *J. Nat. Fibers*, vol. 0, n° 0, p. 1-11, nov. 2019, doi: 10.1080/15440478.2019.1687062.
- [153] F. Sarasini, J. Tirillò, G. Maffei, A. Zuorro, R. Lavecchia, et M. Abdelhak, « Enzyme-assisted extraction of fibres from *Ampelodesmos mauritanicus* and mechanical characterization of their composites », *AIP Conf. Proc.*, vol. 1981, n° 1, p. 020020, juill. 2018, doi: 10.1063/1.5045882.
- [154] A. Bourmaud, J. Beaugrand, D. U. Shah, V. Placet, et C. Baley, « Towards the design of high-performance plant fibre composites », *Prog. Mater. Sci.*, vol. 97, p. 347-408, août 2018, doi: 10.1016/j.pmatsci.2018.05.005.

- [155] K. Merkel, H. Rydarowski, J. Kazimierczak, et A. Bloda, « Processing and characterization of reinforced polyethylene composites made with lignocellulosic fibres isolated from waste plant biomass such as hemp », *Compos. Part B Eng.*, vol. 67, p. 138-144, déc. 2014, doi: 10.1016/j.compositesb.2014.06.007.
- [156] H. Yang, R. Yan, H. Chen, D. H. Lee, et C. Zheng, « Characteristics of hemicellulose, cellulose and lignin pyrolysis », *Fuel*, vol. 86, n° 12-13, p. 1781-1788, août 2007, doi: 10.1016/j.fuel.2006.12.013.
- [157] N. Sgriccia, M. C. Hawley, et M. Misra, « Characterization of natural fiber surfaces and natural fiber composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, n° 10, p. 1632-1637, oct. 2008, doi: 10.1016/j.compositesa.2008.07.007.
- [158] S. S. Saravanakumar, A. Kumaravel, T. Nagarajan, et I. G. Moorthy, « Investigation of Physico-Chemical Properties of Alkali-Treated *Prosopis juliflora* Fibers », *Int. J. Polym. Anal. Charact.*, vol. 19, n° 4, p. 309-317, mai 2014, doi: 10.1080/1023666X.2014.902527.
- [159] Y. Cao, S. Sakamoto, et K. Goda, « EFFECTS OF HEAT AND ALKALI TREATMENTS ON MECHANICAL PROPERTIES OF KENAF FIBERS », 6TH INTERNATIONAL CONFERENCE ON COMPOSITE MATERIALS, 2007.
- [160] A. Rachini, M. L. Troedec, C. Peyratout, et A. Smith, « Comparison of the thermal degradation of natural, alkali-treated and silane-treated hemp fibers under air and an inert atmosphere », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 112, n° 1, p. 226-234, avr. 2009, doi: 10.1002/app.29412.
- [161] D. Ariawan, M. S. Salim, R. M. Taib, M. Z. A. Thirmizir, et Z. A. M. Ishak, « Durability of alkali and heat-treated kenaf fiber/unsaturated polyester composite fabricated by resin transfer molding under natural weathering exposure », *Adv. Polym. Technol.*, vol. 37, n° 5, p. 1420-1434, sept. 2018, doi: 10.1002/adv.21801.
- [162] H. Yang, R. Yan, T. Chin, D. T. Liang, H. Chen, et C. Zheng, « Thermogravimetric Analysis–Fourier Transform Infrared Analysis of Palm Oil Waste Pyrolysis », *Energy Fuels*, vol. 18, n° 6, p. 1814-1821, nov. 2004, doi: 10.1021/ef030193m.
- [163] S. N., R. I., et R. T., « Characterization of untreated and alkali treated new cellulosic fiber from an Areca palm leaf stalk as potential reinforcement in polymer composites », *Carbohydr. Polym.*, vol. 195, p. 566-575, sept. 2018, doi: 10.1016/j.carbpol.2018.04.127.
- [164] K. Charlet, J. P. Jernot, M. Gomina, J. Bréard, C. Morvan, et C. Baley, « Influence of an Agatha flax fibre location in a stem on its mechanical, chemical and morphological properties », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 69, n° 9, p. 1399-1403, juill. 2009, doi: 10.1016/j.compscitech.2008.09.002.
- [165] L. Zhang, Z. Sun, D. Liang, J. Lin, et W. Xiao, « Preparation and Performance Evaluation of PLA/Coir Fibre Biocomposites », *BioResources*, vol. 12, n° 4, p. 7349-7362, août 2017, doi: 10.15376/biores.12.4.7349-7362.
- [166] M. E. H. Bourahli et H. Osmani, « Chemical and Mechanical Properties of Diss (*Ampelodesmos mauritanicus*) Fibers », *J. Nat. Fibers*, vol. 10, n° 3, p. 219-232, juill. 2013, doi: 10.1080/15440478.2012.761115.
- [167] R. Sepe, F. Bollino, L. Boccarusso, et F. Caputo, « Influence of chemical treatments on mechanical properties of hemp fiber reinforced composites », *Compos. Part B Eng.*, vol. 133, p. 210-217, janv. 2018, doi: 10.1016/j.compositesb.2017.09.030.

- [168] X. Li, L. G. Tabil, et S. Panigrahi, « Chemical Treatments of Natural Fiber for Use in Natural Fiber-Reinforced Composites: A Review », *J. Polym. Environ.*, vol. 15, n° 1, p. 25-33, févr. 2007, doi: 10.1007/s10924-006-0042-3.
- [169] M. S. Sreekala et S. Thomas, « Effect of fibre surface modification on water-sorption characteristics of oil palm fibres », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 63, n° 6, p. 861-869, mai 2003, doi: 10.1016/S0266-3538(02)00270-1.
- [170] R. Kohler, R. Dück, B. Ausperger, et R. Alex, « A numeric model for the kinetics of water vapor sorption on cellulosic reinforcement fibers », *Compos. Interfaces*, vol. 10, n° 2-3, p. 255-276, janv. 2003, doi: 10.1163/156855403765826900.
- [171] K. Kachrimanis, M. Noisternig, U. Griesser, et S. Malamataris, « Dynamic moisture sorption and desorption of standard and silicified microcrystalline cellulose », *Eur. J. Pharm. Biopharm.*, vol. 64, n° 3, p. 307-315, nov. 2006, doi: 10.1016/j.ejpb.2006.05.019.
- [172] A. Laborel-Préneron, C. Magniont, et J.-E. Aubert, « Hygrothermal properties of unfired earth bricks: Effect of barley straw, hemp shiv and corn cob addition », *Energy Build.*, vol. 178, p. 265-278, nov. 2018, doi: 10.1016/j.enbuild.2018.08.021.
- [173] K. L. Pickering, M. G. A. Efendy, et T. M. Le, « A review of recent developments in natural fibre composites and their mechanical performance », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 83, p. 98-112, avr. 2016, doi: 10.1016/j.compositesa.2015.08.038.
- [174] O. Faruk, A. K. Bledzki, H.-P. Fink, et M. Sain, « Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010 », *Prog. Polym. Sci.*, vol. 37, n° 11, p. 1552-1596, nov. 2012, doi: 10.1016/j.progpolymsci.2012.04.003.
- [175] X. Cao, Y. Chen, P. R. Chang, M. Stumborg, et M. A. Huneault, « Green composites reinforced with hemp nanocrystals in plasticized starch », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 109, n° 6, p. 3804-3810, 2008, doi: 10.1002/app.28418.
- [176] S. Ochi, « Development of high strength biodegradable composites using Manila hemp fiber and starch-based biodegradable resin », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 37, n° 11, p. 1879-1883, nov. 2006, doi: 10.1016/j.compositesa.2005.12.019.
- [177] A. T. Le, A. Gacoin, A. Li, T. H. Mai, M. Rebay, et Y. Delmas, « Experimental investigation on the mechanical performance of starch–hemp composite materials », *Constr. Build. Mater.*, vol. 61, p. 106-113, juin 2014, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2014.01.084.
- [178] K. Kusano, H. Takagi, S. Kako, Y. Gennai, et A. Ousaka, « Thermal characteristics of PLA-bamboo composites », avr. 2008, vol. I, p. 175-183, doi: 10.2495/HPSM080191.
- [179] J. Beigbeder, L. Soccalingame, D. Perrin, J.-C. Bénézet, et A. Bergeret, « How to manage biocomposites wastes end of life? A life cycle assessment approach (LCA) focused on polypropylene (PP)/wood flour and polylactic acid (PLA)/flax fibres biocomposites », *Waste Manag.*, vol. 83, p. 184-193, janv. 2019, doi: 10.1016/j.wasman.2018.11.012.
- [180] O. Gil-Castell *et al.*, « Impact of hydrothermal ageing on the thermal stability, morphology and viscoelastic performance of PLA/sisal biocomposites », *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 132, p. 87-96, oct. 2016, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2016.03.038.
- [181] C. Gourier, « Contribution à l'étude de matériaux biocomposites à matrice thermoplastique polyamide-11 et renforcés par des fibres de lin », Lorient, 2016.

- [182] A. Bourmaud, A. Le Duigou, C. Gourier, et C. Baley, « Influence of processing temperature on mechanical performance of unidirectional polyamide 11–flax fibre composites », *Ind. Crops Prod.*, vol. 84, p. 151-165, juin 2016, doi: 10.1016/j.indcrop.2016.02.007.
- [183] Y. Lebaupin, M. Chauvin, T.-Q. T. Hoang, F. Touchard, et A. Beigbeder, « Influence of constituents and process parameters on mechanical properties of flax fibre-reinforced polyamide 11 composite », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 30, n° 11, p. 1503-1521, nov. 2017, doi: 10.1177/0892705716644669.
- [184] A. Le Duigou, A. Bourmaud, C. Gourier, et C. Baley, « Multi-scale shear properties of flax fibre reinforced polyamide 11 biocomposites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 85, p. 123-129, juin 2016, doi: 10.1016/j.compositesa.2016.03.014.
- [185] E. Ten, L. Jiang, J. Zhang, et M. P. Wolcott, « 3 - Mechanical performance of polyhydroxyalkanoate (PHA)-based biocomposites », in *Biocomposites*, M. Misra, J. K. Pandey, et A. K. Mohanty, Éd. Woodhead Publishing, 2015, p. 39-52.
- [186] F. Touchaleaume, R. Auvergne, S. Caillol, S. Hoppe, et H. Angellier-Coussy, « Biocomposites From Polyhydroxyalkanoate and Hemp Fibers: Effects of Processing and Compatibilizer on Structure/Performance Relationships. », présenté à 33th International Conference of the Polymer Processing Society (PPS-33), déc. 2017, Consulté le: sept. 19, 2020. [En ligne]. Disponible sur: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-02518980>.
- [187] M. D. Tabone, J. J. Cregg, E. J. Beckman, et A. E. Landis, « Sustainability Metrics: Life Cycle Assessment and Green Design in Polymers », *Environ. Sci. Technol.*, vol. 44, n° 21, p. 8264-8269, nov. 2010, doi: 10.1021/es101640n.
- [188] C. Duval, « Polypropylènes (PP) », *Techniques de l'ingénieur*, Réf. AM3320 V1, 2004.
- [189] H. Chen *et al.*, « Thermal conductivity of polymer-based composites: Fundamentals and applications », *Prog. Polym. Sci.*, vol. 59, p. 41-85, août 2016, doi: 10.1016/j.progpolymsci.2016.03.001.
- [190] M. S. Islam, K. L. Pickering, et N. J. Foreman, « Influence of alkali fiber treatment and fiber processing on the mechanical properties of hemp/epoxy composites », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 119, n° 6, p. 3696-3707, mai 2018, doi: 10.1002/app.31335.
- [191] M. D. H. Beg et K. L. Pickering, « Mechanical performance of Kraft fibre reinforced polypropylene composites: Influence of fibre length, fibre beating and hygrothermal ageing », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, n° 11, p. 1748-1755, nov. 2008, doi: 10.1016/j.compositesa.2008.08.003.
- [192] X. Chen, Q. Guo, et Y. Mi, « Bamboo fiber-reinforced polypropylene composites: A study of the mechanical properties », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 69, n° 10, p. 1891-1899, 1998.
- [193] A. A. Pérez-Fonseca, J. R. Robledo-Ortíz, F. J. Moscoso-Sánchez, D. Rodrigue, et R. González-Núñez, « Injection molded self-hybrid composites based on polypropylene and natural fibers », *Polym. Compos.*, vol. 35, n° 9, p. 1798-1806, 2014, doi: 10.1002/pc.22834.
- [194] T.-T.-L. Doan, H. Brodowsky, et E. Mäder, « Jute fibre/polypropylene composites II. Thermal, hydrothermal and dynamic mechanical behaviour », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 67, n° 13, p. 2707-2714, oct. 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2007.02.011.

- [195] M. D. H. Beg et K. L. Pickering, « Reprocessing of wood fibre reinforced polypropylene composites. Part II: Hygrothermal ageing and its effects », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, n° 9, p. 1565-1571, sept. 2008, doi: 10.1016/j.compositesa.2008.06.002.
- [196] T. T. Law et Z. A. M. Ishak, « Water absorption and dimensional stability of short kenaf fiber-filled polypropylene composites treated with maleated polypropylene », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 120, n° 1, p. 563-572, 2011, doi: 10.1002/app.33184.
- [197] A. Arbelaiz, B. Fernández, J. A. Ramos, A. Retegi, R. Llano-Ponte, et I. Mondragon, « Mechanical properties of short flax fibre bundle/polypropylene composites: Influence of matrix/fibre modification, fibre content, water uptake and recycling », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 65, n° 10, p. 1582-1592, août 2005, doi: 10.1016/j.compscitech.2005.01.008.
- [198] S. Mishra et J. Verma, « Effect of compatibilizers on water absorption kinetics of polypropylene/wood flour foamed composites », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 101, n° 4, p. 2530-2537, 2006, doi: 10.1002/app.23916.
- [199] N. M. Stark, « Wood Fiber Derived From scrap Pallets Used In Polypropylene composites », *For. Prod. J.*, p. 8, 1999.
- [200] T. Mori et K. Tanaka, « Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions », *Acta Metall.*, vol. 21, n° 5, p. 571-574, mai 1973, doi: 10.1016/0001-6160(73)90064-3.
- [201] « Double-inclusion model and overall moduli of multi-phase composites », *Mech. Mater.*, vol. 14, n° 3, p. 189-206, janv. 1993, doi: 10.1016/0167-6636(93)90066-Z.
- [202] J. Eshelby, « The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems | Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences », *Proc. R. Soc. Lond.*, p. 376-396, 1957.
- [203] H. Liu, D. Zeng, Y. Li, et L. Jiang, « Development of RVE-embedded solid elements model for predicting effective elastic constants of discontinuous fiber reinforced composites », *Mech. Mater.*, vol. 93, p. 109-123, févr. 2016, doi: 10.1016/j.mechmat.2015.10.011.
- [204] A. I. Abd El-Rahman et C. L. Tucker, « Mechanics of Random Discontinuous Long-Fiber Thermoplastics—Part I: Generation and Characterization of Initial Geometry », *J. Appl. Mech.*, vol. 80, n° 5, sept. 2013, doi: 10.1115/1.4023537.
- [205] T. Kanit, S. Forest, I. Galliet, V. Mounoury, et D. Jeulin, « Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach », *Int. J. Solids Struct.*, vol. 40, n° 13, p. 3647-3679, juin 2003, doi: 10.1016/S0020-7683(03)00143-4.
- [206] M. Ostoja-Starzewski, « Material spatial randomness: From statistical to representative volume element », *Probabilistic Eng. Mech.*, vol. 21, n° 2, p. 112-132, avr. 2006, doi: 10.1016/j.probangmech.2005.07.007.
- [207] V.-D. Nguyen, E. Béchet, C. Geuzaine, et L. Noels, « Imposing periodic boundary condition on arbitrary meshes by polynomial interpolation », *Comput. Mater. Sci.*, vol. 55, p. 390-406, avr. 2012, doi: 10.1016/j.commatsci.2011.10.017.

- [208] S. Goudar, R. K. Jain, et D. Das, « Physico-mechanical properties of tamarind pod shell-based composite », *Polym. Compos.*, vol. 41, n° 2, p. 505-521, 2020, doi: 10.1002/pc.25383.
- [209] S. Guessasma, D. Bassir, et L. Hedjazi, « Influence of interphase properties on the effective behaviour of a starch-hemp composite », *Mater. Des.*, vol. 65, p. 1053-1063, janv. 2015, doi: 10.1016/j.matdes.2014.10.031.
- [210] S. Guessasma, N. Benseddig, et D. Lourdin, « Effective Young's modulus of biopolymer composites with imperfect interface », *Int. J. Solids Struct.*, vol. 47, n° 18, p. 2436-2444, sept. 2010, doi: 10.1016/j.ijsolstr.2010.05.002.
- [211] S. Rjafiallah, N. Benseddig, et S. Guessasma, « Effect of interface properties on the effective properties of biopolymer composite materials », *Mater. Werkst.*, vol. 41, n° 5, p. 265-269, 2010, doi: 10.1002/mawe.201000595.
- [212] S. Rjafiallah et S. Guessasma, « Effect of Silicone Carbide on the Elastic Properties of Starch-Based Composites: A Three-Phase Model », *Macromol. Mater. Eng.*, vol. 295, n° 12, p. 1116-1124, 2010, doi: 10.1002/mame.201000254.
- [213] L. Hedjazi, S. Guessasma, G. Della Valle, et N. Benseddig, « Finite element modelling of crack propagation in carbohydrate extruded starch with open void structure », *Carbohydr. Polym.*, vol. 83, n° 4, p. 1696-1706, févr. 2011, doi: 10.1016/j.carbpol.2010.10.031.
- [214] W. Wang, X. Guo, D. Zhao, L. Liu, R. Zhang, et J. Yu, « Water Absorption and Hygrothermal Aging Behavior of Wood-Polypropylene Composites », *Polymers*, vol. 12, n° 4, p. 782, avr. 2020, doi: 10.3390/polym12040782.
- [215] H. Chandekar, V. Chaudhari, S. Waigaonkar, et A. Mascarenhas, « Effect of chemical treatment on mechanical properties and water diffusion characteristics of jute-polypropylene composites », *Polym. Compos.*, vol. n/a, n° n/a, doi: 10.1002/pc.25468.
- [216] M. H. Ameer, Y. Nawab, Z. Ali, A. Imad, et S. Ahmad, « Development and characterization of jute/polypropylene composite by using comingled nonwoven structures », *J. Text. Inst.*, vol. 110, n° 11, p. 1652-1659, nov. 2019, doi: 10.1080/00405000.2019.1612502.
- [217] S. Boukettaya, A. Alawar, F. Almaskari, H. Ben Daly, A. Abdala, et S. Chatti, « Modeling of water diffusion mechanism in polypropylene/date palm fiber composite materials », *J. Compos. Mater.*, vol. 52, n° 19, p. 2651-2659, août 2018, doi: 10.1177/0021998317752228.
- [218] B. Kord, S. K. Hosseinihashemi, et M. Modirzare, « Influence of fungal infection on the long-term water absorption and morphological behavior of bagasse fiber/polypropylene composites at different exposure times », *Sci. Eng. Compos. Mater.*, vol. 20, n° 4, p. 351-357, nov. 2013, doi: 10.1515/secm-2013-0005.
- [219] J. M. Lee, Z. A. Mohd Ishak, R. Mat Taib, T. T. Law, et M. Z. Ahmad Thirmizir, « Mechanical, Thermal and Water Absorption Properties of Kenaf-Fiber-Based Polypropylene and Poly(Butylene Succinate) Composites », *J. Polym. Environ.*, vol. 21, n° 1, p. 293-302, mars 2013, doi: 10.1007/s10924-012-0516-4.
- [220] C.-H. Shen et G. S. Springer, « Moisture Absorption and Desorption of Composite Materials », *J. Compos. Mater.*, vol. 10, n° 1, p. 2-20, janv. 1976, doi: 10.1177/002199837601000101.

- [221] S. V. Rangaraj et L. V. Smith, « Effects of Moisture on the Durability of a Wood/Thermoplastic Composite », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 13, n° 2, p. 140-161, mars 2000, doi: 10.1177/089270570001300204.
- [222] K. Cheour, M. Assarar, D. Scida, R. Ayad, et X.-L. Gong, « Effect of water ageing on the mechanical and damping properties of flax-fibre reinforced composite materials », *Compos. Struct.*, vol. 152, p. 259-266, sept. 2016, doi: 10.1016/j.compstruct.2016.05.045.
- [223] P. Sahu et M. K. Gupta, « Lowering in water absorption capacity and mechanical degradation of sisal/epoxy composite by sodium bicarbonate treatment and PLA coating », *Polym. Compos.*, vol. 41, n° 2, p. 668-681, 2020, doi: 10.1002/pc.25397.
- [224] P. V. Joseph, M. S. Rabello, L. H. C. Mattoso, K. Joseph, et S. Thomas, « Environmental effects on the degradation behaviour of sisal fibre reinforced polypropylene composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 62, n° 10, p. 1357-1372, août 2002, doi: 10.1016/S0266-3538(02)00080-5.
- [225] M. Kannan, S. S. Bhagawan, S. Thomas, et K. Joseph, « Nanoclay effect on transport properties of thermoplastic polyurethane/polypropylene (TPU/PP) blends », *J. Polym. Res.*, vol. 20, n° 8, p. 201, août 2013, doi: 10.1007/s10965-013-0201-x.
- [226] M. Tajvidi, S. K. Najafi, et N. Moteei, « Long-term water uptake behavior of natural fiber/polypropylene composites », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 99, n° 5, p. 2199-2203, 2006, doi: 10.1002/app.21892.
- [227] L. Kumosa, B. Benedikt, D. Armentrout, et M. Kumosa, « Moisture absorption properties of unidirectional glass/polymer composites used in composite (non-ceramic) insulators », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 35, n° 9, p. 1049-1063, sept. 2004, doi: 10.1016/j.compositesa.2004.03.008.
- [228] X. Jiang, H. Kolstein, et F. S. K. Bijlaard, « Moisture diffusion in glass–fiber-reinforced polymer composite bridge under hot/wet environment », *Compos. Part B Eng.*, vol. 45, n° 1, p. 407-416, févr. 2013, doi: 10.1016/j.compositesb.2012.04.067.
- [229] I. S. Bhatti et Z. Yan, « Comparative hygrothermal ageing analysis of glass and carbon fiber polymer composites: Numerical and experimental study », in *2015 12th International Bhurban Conference on Applied Sciences and Technology (IBCAST)*, janv. 2015, p. 28-33, doi: 10.1109/IBCAST.2015.7058474.
- [230] Y. Joliff, L. Belec, et J. F. Chailan, « Modified water diffusion kinetics in an unidirectional glass/fibre composite due to the interphase area: Experimental, analytical and numerical approach », *Compos. Struct.*, vol. 97, p. 296-303, mars 2013, doi: 10.1016/j.compstruct.2012.09.044.
- [231] N. Jiang *et al.*, « 3D finite element modeling of water diffusion behavior of jute/PLA composite based on X-ray computed tomography », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 199, p. 108313, oct. 2020, doi: 10.1016/j.compscitech.2020.108313.
- [232] Y. Joliff, L. Belec, M. B. Heman, et J. F. Chailan, « Experimental, analytical and numerical study of water diffusion in unidirectional composite materials – Interphase impact », *Comput. Mater. Sci.*, vol. 64, p. 141-145, nov. 2012, doi: 10.1016/j.commatsci.2012.05.029.
- [233] D. Jain et A. Mukherjee, « Three-dimensional hygromechanical analysis of fibre polymer composites: Effect of boundary conditions », *Compos. Part B Eng.*, vol. 90, p. 203-211, avr. 2016, doi: 10.1016/j.compositesb.2015.12.011.

- [234] T. Peret, A. Clement, S. Freour, et F. Jacquemin, « Numerical transient hygro-elastic analyses of reinforced Fickian and non-Fickian polymers », *Compos. Struct.*, vol. 116, p. 395-403, sept. 2014, doi: 10.1016/j.compstruct.2014.05.026.
- [235] D. A. Bond, « Moisture Diffusion in a Fiber-reinforced Composite: Part I – Non-Fickian Transport and the Effect of Fiber Spatial Distribution », *J. Compos. Mater.*, vol. 39, n° 23, p. 2113-2141, déc. 2005, doi: 10.1177/0021998305052030.
- [236] M. Berges, « Mécanismes de dégradation sous sollicitations hydrothermomécaniques de biocomposites et renforts en fibres végétales : application au développement de mobiliers urbains ultralégers et mobiles », thesis, Bourgogne Franche-Comté, 2018.
- [237] A. BERGERET et P. KRAWCZAK, « Liaison renfort/matrice - Définition et caractérisation », *Ref: TIP100WEB - « Plastiques et composites »*, janv. 10, 2006. <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/materiaux-th11/caracterisation-et-proprietes-d-usage-des-composites-42144210/liaison-renfort-matrice-am5305/> (consulté le juill. 19, 2020).
- [238] L. Freund, « Étude du vieillissement hygrothermique des composites renforcés de fibres naturelles: approche expérimentale et modélisation », Université de Lorraine, 2018.
- [239] X. Wang et M. Petru, « Degradation of bending properties of flax fiber reinforced polymer after natural aging and accelerated aging », *Constr. Build. Mater.*, vol. 240, p. 117909, avr. 2020, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2019.117909.
- [240] ISO 14040:2006, « Management environnemental — Analyse du cycle de vie — Principes et cadre ». Consulté le: août 15, 2020. [En ligne].
- [241] ISO 14044:2006 « Management environnemental — Analyse du cycle de vie — Exigences et lignes directrices ». Consulté le: août 15, 2020. [En ligne].
- [242] « Ademe ». <https://www.ademe.fr/expertises/consommer-autrement/passer-a-laction/dossier/lanalyse-cycle-vie/quest-lacv> (consulté le août 15, 2020).
- [243] A. Andrianandraina, « Eco-design approach combining life cycle assessment and sensitivity analysis. », Theses, Ecole Centrale de Nantes (ECN), 2014.
- [244] G. Rebitzer *et al.*, « Life cycle assessment: Part 1: Framework, goal and scope definition, inventory analysis, and applications », *Environ. Int.*, vol. 30, n° 5, p. 701-720, juill. 2004, doi: 10.1016/j.envint.2003.11.005.
- [245] NF EN 15804+A1, « Contribution des ouvrages de construction au développement durable - Déclarations environnementales sur les produits - Règles régissant les catégories de produits de construction », avr. 2014, Consulté le: août 16, 2020. [En ligne].
- [246] Quantis, FRD, EcoTechnilin, « Analyse du cycle de vie comparative de panneaux de porte automobiles biosourcé (PP/fibres de lin et de chanvre) et petrosourcé (ABS) », ADEME, 2016.
- [247] C. Alves *et al.*, « Ecodesign of automotive components making use of natural jute fiber composites », *J. Clean. Prod.*, vol. 18, n° 4, p. 313-327, mars 2010, doi: 10.1016/j.jclepro.2009.10.022.
- [248] V. Aymard et V. Botta-Genoulaz, « Normalisation in life-cycle assessment: consequences of new European factors on decision-making », *Supply Chain Forum Int. J.*, vol. 18, n° 2, p. 76-83, 2017, doi: 10.1080/16258312.2017.1333385.

- [249] V. Prado, B. A. Wender, et T. P. Seager, « Interpretation of comparative LCAs: external normalization and a method of mutual differences », *Int. J. Life Cycle Assess.*, vol. 22, n° 12, p. 2018-2029, déc. 2017, doi: 10.1007/s11367-017-1281-3.
- [250] F. Ardente, M. Beccali, M. Cellura, et M. Mistretta, « Building energy performance: A LCA case study of kenaf-fibres insulation board », *Energy Build.*, vol. 40, n° 1, p. 1-10, janv. 2008, doi: 10.1016/j.enbuild.2006.12.009.
- [251] M. Boutin, C. Flamin, S. Quinton, et G. Gosse, « Etude des caractéristiques environnementales du chanvre par l'analyse de son cycle de vie », Ministère de l'agriculture et de la pêche, 2006. Consulté le: août 06, 2020. [En ligne]. Disponible sur: <http://www.chanvre-info.ch/info/fr/Etude-des-caracteristiques.html>.
- [252] T. S. Kiessé, A. Ventura, H. M. G. van der Werf, B. Cazacliu, R. Idir, et A. Andrianandraina, « A systematic methodology for sensitivity analysis in life cycle thinking context applied to hemp-based insulation products for buildings », *Acad. J. Civ. Eng.*, vol. 33, n° 2, Art. n° 2, juin 2015, doi: 10.26168/icbbm2015.90.
- [253] Andrianandraina, A. Ventura, T. S. Kiessé, B. Cazacliu, R. Idir, et H. M. G. van der Werf, « Sensitivity Analysis of Environmental Process Modeling in a Life Cycle Context: A Case Study of Hemp Crop Production », *J. Ind. Ecol.*, vol. 19, n° 6, p. 978-993, 2015, doi: 10.1111/jiec.12228.
- [254] M. Schmehl, J. Müssig, U. Schönfeld, et H.-B. Von Buttlar, « Life Cycle Assessment on a Bus Body Component Based on Hemp Fiber and PTP® », *J. Polym. Environ.*, vol. 16, n° 1, p. 51-60, janv. 2008, doi: 10.1007/s10924-008-0103-x.
- [255] NF EN ISO 527-4, « Plastiques - Détermination des propriétés en traction - Partie 4 : conditions d'essai pour les composites plastiques renforcés de fibres isotropes et orthotropes », juin 1997, Consulté le: févr. 04, 2020. [En ligne].
- [256] NF EN ISO 14125, « Composites plastiques renforcés de fibres - Détermination des propriétés de flexion », juin 1998.
- [257] NFT 51 035-1, « PLASTIQUES DETERMINATION DES CARACTERISTIQUES AU CHOC CHARPY - ESSAI DE CHOC NON INSTRUMENTE | SAI Global », Consulté le: févr. 10, 2020. [En ligne].
- [258] A. Le Duigou et M. Castro, « Moisture-induced self-shaping flax-reinforced polypropylene biocomposite actuator », *Ind. Crops Prod.*, vol. 71, p. 1-6, sept. 2015, doi: 10.1016/j.indcrop.2015.03.077.
- [259] D. Thi et V. Vi, « Matériaux composites à fibres naturelles / polymère biodégradables ou non », Grenoble, 2011.
- [260] M. A. Lahmar, « Caractérisation d'un composite boispolymère pour utilisation en plaques de bardage par l'extérieur », phdthesis, Université de Lyon, 2016.
- [261] Q. T. H. Shubhra, A. K. M. M. Alam, et M. Quaiyyum, « Mechanical properties of polypropylene composites A review », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 26, p. 362-391, avr. 2013, doi: 10.1177/0892705711428659.
- [262] L. E. Asp, B. A. Sjögren, et L. A. Berglund, « Prediction of failure initiation in polypropylene with glass beads », *Polym. Compos.*, vol. 18, n° 1, p. 9-15, 1997, doi: 10.1002/pc.10256.
- [263] Z. A. M. Ishak, B. N. Yow, B. L. Ng, H. P. S. A. Khalil, et H. D. Rozman, « Hygrothermal aging and tensile behavior of injection-molded rice husk-filled

- polypropylene composites », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 81, n° 3, p. 742-753, 2001, doi: 10.1002/app.1491.
- [264] M. S. Islam, K. L. Pickering, et N. J. Foreman, « Influence of accelerated ageing on the physico-mechanical properties of alkali-treated industrial hemp fibre reinforced poly(lactic acid) (PLA) composites », *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 95, n° 1, p. 59-65, janv. 2010, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2009.10.010.
- [265] B. Singh, M. Gupta, et A. Verma, « The durability of jute fibre-reinforced phenolic composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 60, n° 4, p. 581-589, mars 2000, doi: 10.1016/S0266-3538(99)00172-4.
- [266] A. le Duigou, A. Bourmaud, E. Balnois, P. Davies, et C. Baley, « Improving the interfacial properties between flax fibres and PLLA by a water fibre treatment and drying cycle », *Ind. Crops Prod.*, vol. 39, p. 31-39, sept. 2012, doi: 10.1016/j.indcrop.2012.02.001.
- [267] M. M. Thwe et K. Liao, « Durability of bamboo-glass fiber reinforced polymer matrix hybrid composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 63, n° 3, p. 375-387, févr. 2003, doi: 10.1016/S0266-3538(02)00225-7.
- [268] « ecoinvent Version 3 ». <https://www.ecoinvent.org/database/database.html> (consulté le oct. 12, 2020).
- [269] Règle de l'Art Grennelle Environnement, « recommandation professionnelles mise en oeuvre des procédés de bardages rapporté à lame d'air ventilée », mai 2015.
- [270] NF EN 1991-1-4/NA, « Eurocode 1 : Actions sur les structures - Partie 1-4 : actions générales - Actions du vent - Annexe nationale à la NF EN 1991-1-4:2005 - Actions générales - Actions du vent », Mars 2008. Consulté le: août 22, 2020. [En ligne].
- [271] « DTU Règles NV 65 ». CSTB.
- [272] A. Le Duigou, P. Davies, et C. Baley, « Environmental Impact Analysis of the Production of Flax Fibres to be Used as Composite Material Reinforcement », *J. Biobased Mater. Bioenergy*, vol. 5, p. 1-13, 2011, doi: 10.1166/jbmb.2011.1116.
- [273] « CML-IA Characterisation Factors », *Leiden University*. <https://www.universiteitleiden.nl/en/research/research-output/science/cml-ia-characterisation-factors> (consulté le août 29, 2020).
- [274] R. Frischknecht, N. Jungbluth, et al, « Implementation of Life Cycle Impact Assessment Methods », Swiss Centre for LCI, 2003.
- [275] *Arrêté du 23 décembre 2013 relatif à la déclaration environnementale des produits de construction et de décoration destinés à un usage dans les ouvrages de bâtiment.* .
- [276] L. Turunen et H. V. D. Werf, « Life cycle analysis of hemp textile yarn : Comparison of three hemp fibre processing scenarios and a flax scenario », INRA, Rennes, 2006.
- [277] L. Bleuze, B. Chabbert, G. Lashermes, et S. Recous, « Hemp harvest time impacts on the dynamics of microbial colonization and hemp stems degradation during dew retting », *Ind. Crops Prod.*, vol. 145, p. 112122, mars 2020, doi: 10.1016/j.indcrop.2020.112122.
- [278] E. Labouze, Y. Le Guern, et C. Petiot, « Analyse de cycle de vie comparée d'une chemise en lin et d'une chemise en coton », Rapport Bio Intelligence Service, 2007.

- [279] F. C. Luz *et al.*, « Ampelodesmos mauritanicus pyrolysis biochar in anaerobic digestion process: Evaluation of the biogas yield », *Energy*, vol. 161, p. 663-669, oct. 2018, doi: 10.1016/j.energy.2018.07.196.
- [280] « INPN ». <https://inpn.mnhn.fr/viewer-carto/especes/82173> (consulté le août 23, 2020).
- [281] A. Mingo et S. Mazzoleni, « Ecophysiology of five Mediterranean perennial grasses: I) Effects of shade, water stress and defoliation on growth and allocation », *Plant Biosyst. - Int. J. Deal. Asp. Plant Biol.*, vol. 131, n° 3, p. 207-215, janv. 1997, doi: 10.1080/11263504.1997.10654183.
- [282] « Base Impacts® ». <http://www.base-impacts.ademe.fr/> (consulté le août 23, 2020).
- [283] J. Ruste, « Microscopie électronique à balayage - Principe et équipement », Techniques d'ingénieur, Réf. P865 V3, 2013.
- [284] C. J. G. Plummer, « Caractérisation des polymères par microscopie électronique », Techniques d'ingénieur, Réf. AM3282 V1, 2001.
- [285] M. Dalibart et L. Servant, « Spectroscopie dans l'infrarouge », Techniques d'ingénieur, Réf. P2845 V3, 2000.
- [286] E. Wirth, F. Guitteny, et C. Mathonat, « Thermogravimétrie », Techniques d'ingénieur, Réf. P1260 V3, 2014.

Annexe A : Méthodes de caractérisation conventionnelles, description de leur principe.

1. Microscope électronique à balayage

La microscopie électronique à balayage (MEB) est une technique robuste capable de produire des images en haute résolution de la surface de l'échantillon, ceci avec une grande profondeur de champ et un grandissement de 10 000 à 40 000 [283].

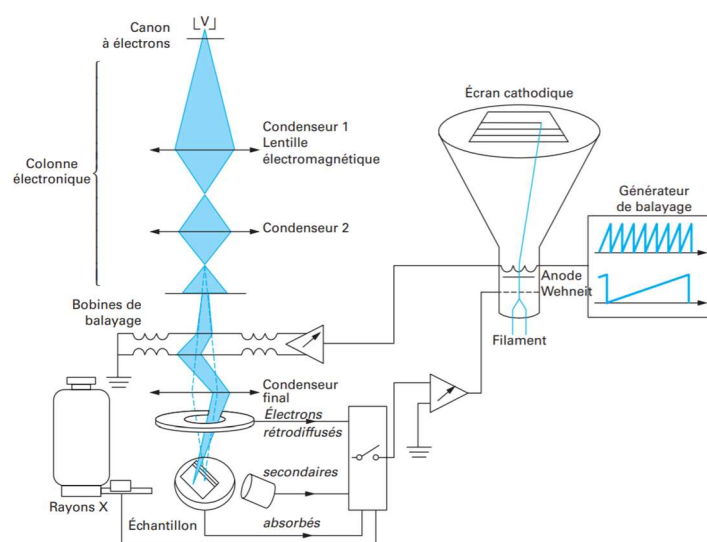


Figure 1 : Principe d'un microscope électronique à balayage [283].

Cette technique est basée sur le principe d'interaction électron-matière. En effet, un faisceau très fin des électrons est produit à partir d'un canon à électron : à émission thermoélectronique ou à émission de champs [283]. Dans un premier temps, ce faisceau franchit un système de lentilles électroniques, appelées condensateurs, maintenues dans une colonne sous un vide suffisant [283]. Ces lentilles ont pour but de réduire le diamètre de faisceau incident et de contrôler sa densité [283]. Dans un second temps, il traverse un condensateur objectif et un diaphragme de petit diamètre afin de le focaliser sur la zone observée [283], voir la Figure 1.

L'interaction des électrons primaires (faisceau incident) avec la cible (échantillon) résulte de différentes émissions notamment, comme le schématise la Figure 2, des électrons secondaires

(ES) à faible énergie, des électrons rétrodiffusés (ER) avec moins de perte d'énergie, des électrons d'Auger et des photons (rayons X) [284]. Par conséquent, le MEB est équipé principalement d'un détecteur des électrons secondaires, et d'un détecteur des électrons rétrodiffusés. L'imagerie présentée par le MEB fournit des informations sur le contraste topographique de la surface de l'échantillon, grâce aux ESs et ERs, ainsi que sur le contraste chimique à l'aide de ERs qui sont sensibles au numéro atomique des atomes constituant l'échantillon [284].

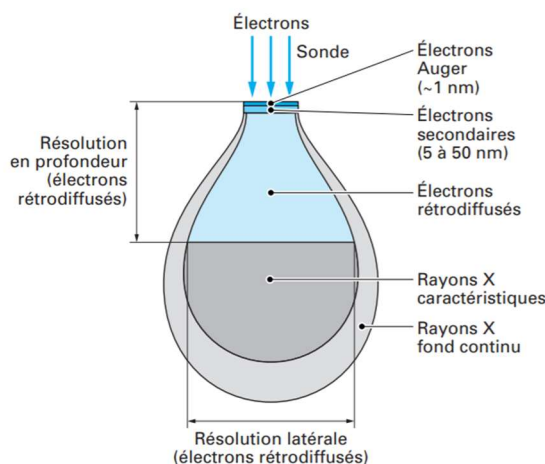


Figure 2: Signaux principaux dans le MEB [284].

2. Spectroscopie infrarouge à transformée de fourrier (FTIR)

La spectroscopie infrarouge est une technique d'analyse chimique non destructive. Elle permet d'avoir des informations sur la structure moléculaire de la matière dans toutes ses états : solide, liquide et gazeuse. Cette technique est basée sur le principe d'interaction entre la matière et le rayonnement électromagnétique.

En effet, une onde électromagnétique peut être définie par son énergie, $h\nu$, qui dépend de sa longueur ν et une constante h , appelée la constante de Planck [285]. La spectroscopie infrarouge, comme son nom l'indique, s'intéresse au domaine infrarouge, plus précisément, infrarouge moyen à faible énergie dont la longueur d'onde varie entre $2,5\ \mu\text{m}$ à $25\ \mu\text{m}$ [285]. Ceci correspond à une gamme de nombre d'onde de $4000\ \text{cm}^{-1}$ à $400\ \text{cm}^{-1}$.

En réalité, une molécule possède une succession d'états qui sont énergétiquement très proches [285]. Dans des conditions normales, sans radiation, les molécules se trouvent dans un état énergétique stable E_0 , une fois l'interaction matière-onde se présente, une éventuelle absorption d'une certaine énergie électromagnétique, correspond à $h\nu$, pourrait se produire par les molécules en question. Cela est possible si cette énergie conduit à une transition à un niveau

d'énergie plus élevée E1, autrement dit, la fréquence du rayonnement incident est identique à la fréquence de la vibration des liaisons intra-molécule [285]. Cette fréquence de vibration dépend de la masse des atomes et des forces de liaisons chimiques de la molécule [285].

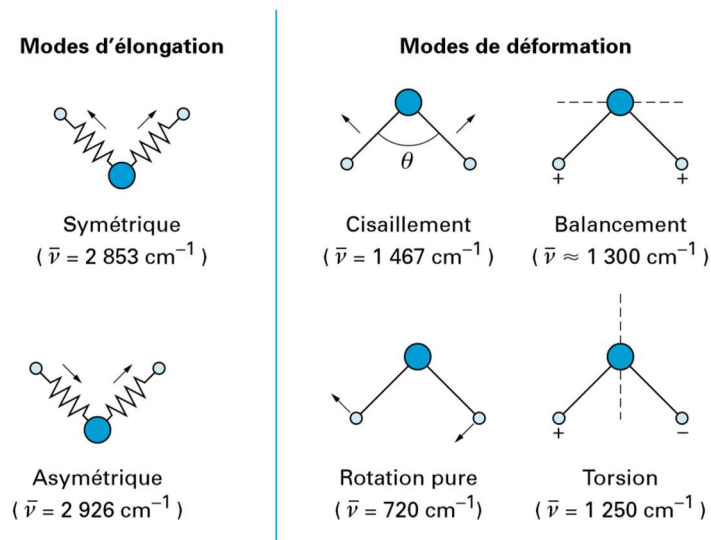


Figure 3: Différents modes de vibration : groupement CH_2 d'une molécule. $\bar{\nu}$: nombre d'onde [285].

Les modes de vibration des molécules pourraient être classés en deux types [285], comme illustre la Figure 3 :

- Un mode de vibration de valence ou d'élongation (symétriques ou antisymétriques), dont les angles formés entre les liaisons restent constants avec une variation(s) de(s) longueur(s) de ces liaison(s).
- Un mode de vibration de déformation, dans ce cas, seulement les angles entre les liaisons qui varient.

3. Analyse thermogravimétrique (ATG)

L'Analyse Thermogravimétrique (ATG) est une technique de caractérisation qui consiste à suivre la variation de masse de la matière, cela lorsque elle est exposée à un régime de température donnée dans un milieu contrôlé (inerte ou oxydant) [286]. Cette méthode permet d'enlever le voile sur des transformations chimiques, dépendantes de la variation de masse, produites durant l'analyse notamment l'évaporation, la décomposition, la pyrolyse et l'oxydation.

L'appareil d'ATG est composé, voir la Figure 4.a, d'un système de chauffage étanche doté d'un four qui assure la répartition homogène de la température [286]. Ce système est lié avec un module de pesage basé sur un mécanisme à fléau ou à parallélogrammes, cela fonctionne selon

une méthode de zéro [286]. La température du four est mesurée, en fonction du temps, par un thermocouple.

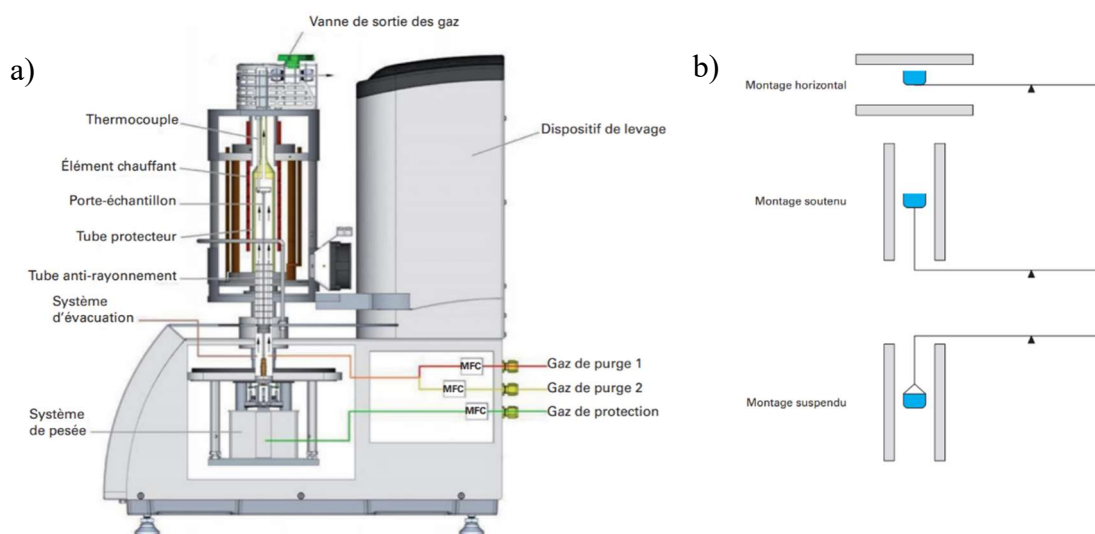


Figure 4: a) Balance commercialisée par Netzsch, b) Disposition de l'échantillon dans le four [286].

L'échantillon peut être, voir Figure 4.b : suspendu au fléau (vertical suspendu), porté sur un plateau supérieur solidaire du fléau (vertical soutenu) ou disposé directement en bout de fléau ou de parallélogramme (horizontal) [286].

Annexe B : Estimation de la porosité des Biocomposites UPP et la masse volumique des NTFD.

1. Estimation de la porosité des biocomposites UPP

La méthode conventionnelle pour l'estimation de la porosité dans les composites (voir l'Eq. 1), basée sur la masse des phases introduites et leurs masses volumiques ainsi que celle de biocomposite, a présenté des valeurs non réalistes, négatives, à cause de la faible porosité de ces biocomposites ainsi que l'incertitude des résultats. Dans l'optique d'estimer une valeur de la porosité observée sur l'interface fibres/matrice, voir la section B.III.2.1, une correction a été faite en prenant compte du domaine d'incertitude des résultats par l'application de l'incertitude-type élargie (U).

Par cette méthode nous considérons que la porosité dans le composite vaut la valeur maximale du domaine d'incertitudes de la porosité calculée dans le composite. Nous basons dans ces calculs sur les incertitudes-type élargie des masses volumiques des fibres $U_{\rho_{UTFD}}$, de la matrice PP $U_{\rho_{PP}}$ et des biocomposites $U_{\rho_{UPP}}$.

$$T_{Porosité} = 100 - \left(\frac{m_{UTFD}}{\left(\rho_{UTFD} \times \frac{m_{plaque}}{\rho_{UPP}} \right)} \times 100 \right) - \left(\frac{m_{PP}}{\left(\rho_{PP} \times \frac{m_{plaque}}{\rho_{UPP}} \right)} \times 100 \right) \quad Eq. 1$$

Où m_{UTFD} la masse des fibres introduites, m_{plaque} la masse de la matrice introduite, m_{plaque} la masse de la plaque composite, ρ_{UTFD} la masse volumique des UTFD, ρ_{PP} la masse volumique de la matrice PP et ρ_{UPP} la masse volumique de biocomposite UPP.

L'incertitude-type élargie (U) est déterminée par l'Eq. 2 dont le facteur d'élargissement (k) égale à 2, c'est-à-dire on considère que 95% des résultats rentrent dans le domaine d'incertitude calculé.

$$U = k \frac{s}{\sqrt{n}} \quad Eq. 2$$

Où n représente le nombre des essais, et s écart type des résultats.

L'incertitude des calculs du volume de la plaque ($U_{V.Plaque}$) est calculée par l'Eq. 3.

$$U_{V.Plaque} = \frac{m_{plaque}}{\rho_{UPP}} U_{\rho_{UPP}} \quad Eq. 3$$

L'incertitude des calculs du taux volumique des UTFD ($U_{V.Plaque}$) est calculée par l'Eq. 4.

$$U_{V.UTFD} = \left(\frac{U_{\rho_{UTFD}}}{\rho_{UTFD}} + \frac{U_{V.Plaque}}{V_{Plaque}} \right) \times T_{V_{UTFD}} \quad Eq. 4$$

L'incertitude des calculs du taux volumique de la matrice PP ($U_{V.PP}$) est calculée par l'Eq. 5.

$$U_{V.PP} = \left(\frac{U_{\rho_{PP}}}{\rho_{PP}} + \frac{U_{V.Plaque}}{V_{Plaque}} \right) \times T_{V_{PP}} \quad Eq. 5$$

L'incertitude des calculs du taux de porosité ($U_{Porosité.UPP}$) est calculée par l'Eq. 6.

$$U_{Porosité.UPP} = U_{V.PP} + U_{V.UTFD} \quad Eq. 6$$

Le Taux de porosité maximal ($T_{Porosité.max}$) est calculé par l'Eq. 7.

$$T_{Porosité.max} = T_{Porosité} + U_{Porosité.UPP} \quad Eq. 7$$

2. Estimation de la masse volumique des NTFD

Dans un premier temps, la masse volumique des NTFD a été déterminée en appliquant la loi de mélange de l'Eq. 8 dont la porosité est nulle.

$$\rho_{NPP}(T_{V.NPP}) = \frac{m_{PP} + m_{NTFD}}{V_{PP} + \frac{m_{NTFD}}{\rho_{NTFD}}} \quad Eq. 8$$

La valeur de ρ_{NTFD} a été déterminée pour une valeur de coefficients de corrélation (R^2), entre les résultats expérimentaux et la loi de mélange, la plus proche possible de 1, dans ce cas $R^2 = 0,995$.

Dans un deuxième temps, le taux de porosité a été estimé à 5,71% de volume des NTFD, voir la section B.III.2.2, et ρ_{NTFD} a été recalculée par la même méthode en considérant cette fois la porosité, voir l'Eq. 9.

$$\rho_{NPP}(T_{V.NPP}) = \frac{m_{PP} + m_{NTFD}}{V_{PP} + \frac{m_{NTFD}}{\rho_{NTFD}} + V_{Porosité}} \quad \text{Eq. 9}$$

Annexe C : Inventaires de l'étude d'ACV des panneau biosourcés.

Tableau 1: Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape de culture.

Flux	Quantité			Unité	Données d'arrière-plan	
	Lin	Chanvre	Diss			
Produit						
Paille rouie / feuilles	6650	6560	1000	kg	-	
Entrant						
Terre agricole	10000	10000	-	m²,années	Occupation, agriculture	
Séquestration biogénique du dioxyde de carbone	10972.5	11040,5	1666.5	kg		
Engrais	Apport de zinc	1,414	-	-	kg/ha	Zinc concentrate {GLO} market for Alloc Def, U
	Apport N	30	68	-	kg/ha	Ammonium nitrate, as N {RER} ammonium nitrate production Alloc Def, U
	Apport P	70	30	-	kg/ha	Phosphate fertiliser, as P2O5 {RER} triple superphosphate production Alloc Def, U
	Apport K	70	114	-	kg/ha	Potassium chloride, as K2O {RER} potassium chloride production Alloc Def, U
	CaO	-	666	-	kg/ha	Lime, hydrated, packed {CH} production Alloc Def, U
	Prochloraze	37,95	-	-	g/ha	Cyclic N-compound {RER} production Alloc Def, U
Traitements (fongicide)	Flusilazole	300	-	-	g/ha	Cyclic N-compound {RER} production Alloc Def, U
	Thirame	72,5	-	-	g/ha	Dithiocarbamate-compound {RER} production Alloc Def, U
	Carbendazime	150	-	-	g/ha	Benzimidazole-compound {RER} production Alloc Def, U
	Triallate	144	-	-	g/ha	[thio]carbamate-compound {RER} production Alloc Def, U
Traitements (herbicide)	Linuron	90	-	-	g/ha	Linuron, at regional storehouse
	Bentazone	1584	-	-	g/ha	Benzo[thia]diazole-compound {RER} production Alloc Def, U

Annexe C

Traitements (insecticides)	Deltamethrine (Pyrethrinoïde)	15	-	-	g/ha	Pyrethroid-compound {RER} production Alloc Def, U
	Déchaumage	1	1	-	ha	Tillage, ploughing {CH} processing Alloc Def, U
	Labourage	1	1	-	ha	Tillage, ploughing {CH} processing Alloc Def, U
	Passage de rotative,	1	1	-	ha	Tillage, rotary cultivator {CH} processing Alloc Def, U
	Passage à la herse,	1	1	-	ha	Tillage, harrowing, by rotary harrow {CH} processing Alloc Def, U
Machines agricoles	Semis	1	1	-	ha	Sowing {CH} processing Alloc Def, U
	Passage pour apport de zinc/CaO	1	0.33	-	ha	Fertilising, by broadcaster {CH} processing Alloc Def, U
	Passages d'engrais	2	2	-	ha	Fertilising, by broadcaster {CH} processing Alloc Def, U
	Passages de pesticides	5.5	-	-	ha	Application of plant protection product, by field sprayer {CH} processing Alloc Def, U
	Arrachage avec mise en andain	1	1	-	ha	Swath, by rotary windrower {CH} processing Alloc Def, U
	Retournements de paille durant le rouissage,	2	2	-	ha	Haying, by rotary tedder {CH} processing Alloc Def, U
	Ramassage de paille	42.2	41.6	-	m3	Fodder loading, by self-loading trailer {CH} processing Alloc Def, U
	Transport			20	t.km	Transport, freight, lorry 3.5-7.5 metric ton, EURO4 {RER} transport, freight, lorry 3.5-7.5 metric ton, EURO4 Alloc Def, U
Sortant						
Emissions dans l'air						
Engrais	Ammoniac NH ₃	0.73	1.66	-	kg/ha	Ammonia
	Protoxyde d'azote N ₂ O	0,50	1.12	-	kg/ha	Nitrous acid
	Oxydes d'azote NO _x	0,10	0.23	-	kg/ha	Nitrogen oxides
Pesticides	Carbendazime	7,50	-	-	g/ha	Carbendazim
	Triallate	136,8	-	-	g/ha	Triallate
	Linuron	45	-	-	g/ha	Linuron
	Bentazone	237,6	-	-	g/ha	Bentazone

Annexe C

	Pyréthroïde	0,15	-	-	g/ha	Pyrethrin
	Emissions dans l'eau					
Engrais	Nitrates NO ³⁻	25.83	58,56	-	Kg/ha	Nitrate
	Phosphate PO ₄ ⁻³	0,94	0,40	-	Kg/ha	Phosphate
Pesticides	Carbendazime	0,75	-	-	g/ha	Carbendazim
	Triallate (eau souterraines)	1,57	-	-	g/ha	Triallate
	Triallate (eau surface)	0,86	-	-	g/ha	Triallate
	Linuron	0,45	-	-	g/ha	Linuron
	Bentazone	7,90	-	-	g/ha	Bentazone
	Pyréthroïde	0,075	-	-	g/ha	Pyrethrin
	Emissions dans le sol					
Engrais	As (Arsenic)	0,56	0.39		g/ha	Arsenic
	Cd (Cadmium)	18.21	7.83		g/ha	Cadmium
	Co (Cobalt)	1,48	1.89		g/ha	Cobalt
	Cr (Chromium)	92.03	40.51		g/ha	Chromium
	Cu (Copper)	17.15	9.48		g/ha	Copper
	Fe (Iron)	5966	2582.42		g/ha	Iron
	Hg (Mercury)	0,011	0,01		g/ha	Mercury
	Mo (Molybdenum)	1,18	0,59		g/ha	Molybdenum
	Ni (Nickel)	17.00	10.03		g/ha	Nickel
	Pb (Lead)	2,19	2.21		g/ha	Lead
	Se (Selenium)	1.04	0,53		g/ha	Selenium
	Zn (Zinc)	116.1	66.67		g/ha	Zinc

Tableau 2: Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape d'humidification.

Flux	Quantité			Unité	Données d’arrière-plan
	Lin	Chanvre	Diss		
Produit					
Feuilles humidifiées	-	-	1	kg	
Entrant					
Feuilles	-	-	1.05	kg	
Eau	-	-	14.7	l	Tap water {Europe without Switzerland} market for Alloc Def, U
Sortant					
Liquide d’humidification	-	-	14.7	l	Station d’épuration (Tableau 9)

Tableau B.VI. 1 : Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape de teillage.

Flux	Quantité			Unité	Données d'arrière-plan
	Lin	Chanvre	Diss		
Produit					
Fibres courtes	1	1	1	kg	
Chènevottes /anas	4.86	1.30	-	kg	
Fibres longues	2.59	-	-	kg	
Poussière	-	0.59	-	kg	
Graines	0.28	-	-	kg	
Entrant					
Pailles rouies / feuilles humidifiées	8.31	2.94	1.89	kg	
Gazole non routier	-	0.0017**	-	kg	Diesel, low-sulfur {CH} market for Alloc Def, U
Fioul	0.004**	-	-	kg	Light fuel oil {CH} market for Alloc Def, U
Electricité *	0.740	0.26	0.62	kWh	Electricity, low voltage {FR} market for Alloc Def, U
Gaz naturel	0.020	-	-	kWh	Heat, central or small-scale, natural gas {Europe without Switzerland} market for heat, central or small-scale, natural gas Alloc Def, U

Annexe C

Transport	82	82	km	Transport, freight, lorry 16-32 metric ton, EURO4 {RER} transport, freight, lorry 16-32 metric ton, EURO4 Alloc Def, U
Sortant				
Déchet	1.23	0.06	0.89 kg	

* pour le Diss la consommation relative ou teillage et peignage est incluse. ** converti de litre en kg avec une masse volumique estimée à 0.855 et 0.820 respectivement pour le fioul et le gazole non routier.

Tableau 3: Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape de peignage.

Flux	Quantité			Unité	Données d’arrière-plan
	Lin	Chanvre	Diss		
Produit					
Fibres techniques	1	1	-	kg	
Chènevottes /anas	0.191	0.19	-	kg	
Entrant					
Fibres courtes	1.27	1.25	-	kg	
Electricité	0.21	0.09	-	kWh	Electricity, low voltage {FR} market for Alloc Def, U
Sortant					
Déchet	0.08	0.06	-	kg	

Tableau 4: Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape de traitement des fibres de Diss.

Flux	Quantité			Unité	Données d'arrière-plan
	Lin	Chanvre	Diss		
Produit					
Fibres techniques	-	-	1	kg	
Entrant					
Fibres courtes	-	-	1.54	kg	
Soude (NaOH)	-	-	1.08	kg	Sodium hydroxide, without water, in 50% solution state {RER} chlor-alkali electrolysis, mercury cell Alloc Def, U

Annexe C

Eau	76.93	l	Tap water {Europe without Switzerland} market for Alloc Def, U
Gaz naturel (séchage)	1.08	kWh	Heat, central or small-scale, natural gas {Europe without Switzerland} market for heat, central or small-scale, natural gas Alloc Def, U
Sortant			
Eau de traitement	-	-	76.93 l Station d'épuration (Tableau 10)

Tableau 5: Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape de Blanchiment [278].

Flux	Quantité			Unité	Données d’arrière-plan
	Lin	Chanvre	Diss		
Produit					
Fibres techniques	-	-	1	kg	
Entrant					
Fibres courtes	-	-	1.54	kg	
Electricité	-	-	0.76	MJ	Electricity, low voltage {FR} market for Alloc Def, U
Naturel gaz	-	-	44.9	MJ	Heat, central or small-scale, natural gas {Europe without Switzerland} market for heat, central or small-scale, natural gas Alloc Def, U
Eau	-	-	55.6	l	Tap water {Europe without Switzerland} market for Alloc Def, U
NaOH	-	-	145	g	Sodium hydroxide, without water, in 50% solution state {RoW} chlor-alkali electrolysis, diaphragm cell Alloc Def, U
Na ₄ O ₂ SiO ₂	-	-	85	g	Sodium percarbonate, powder {RER} production Alloc Def, U
H ₂ O ₂	-	-	90	g	Hydrogen peroxide, without water, in 50% solution state {RER} hydrogen peroxide production, product in 50% solution state Alloc Def, U
Agent complexant (EDTA)	-	-	5	g	EDTA, ethylenediaminetetraacetic acid {RER} EDTA production Alloc Def, U
Sortant					

Eau de traitement	-	-	76.9 3	I	Station d'épuration (Tableau 10)
-------------------	---	---	-----------	---	----------------------------------

Tableau 6: Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape de production de non-tissé.

Flux	Quantité	Unité	Données d'arrière-plan
Produit			
Non-tissé	1	kg	
Entrant			
Electricité	0.4234	kg	Electricity, low voltage {FR} market for Alloc Def, U

Tableau 7: Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape de production des film PP.

Flux	Quantité	Unité	Données d'arrière-plan
Produit			
Film PP	1	kg	
Entrant			
Polypropylène, granulat	1.02	kg	Polypropylene, granulate {GLO} market for Alloc Def, U
Extrusion, plastic film	1.02	kg	Extrusion, plastic film {RER} production Alloc Def, U

Tableau 8: Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape de confection des composites.

Flux	Quantité			Unité	Données d'arrière-plan
	Lin	Chanvre	Diss		
Produit					
Panneau	1	1	1	ml	
Entrant					
Fibres techniques	2.74	2,65	2.91	kg	

Annexe C

Film PP	6.48	6.27	6.88	kg	
Electricité	68.67	66.50	73.0	MJ	Electricity, low voltage {FR} market for Alloc Def, U
			1		

Tableau 9: Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape de traitement du liquide d'humidification.

Flux	Quantité	Unité	Données d'arrière-plan
Produit			
Eau traitée	1	M ³	
Entrant			
Liquide d'humidification	1	M ³	
Sulfate de fer	70,3	g	Iron sulfate {RER} production Alloc Def, U
Sulfate d'aluminium	19	g	Aluminium sulfate, powder {RER} production Alloc Def, U
Chlorure de fer (III)	96,1	g	Iron(III) chloride, without water, in a 12% iron solution state {GLO} market for Alloc Def, U
Electricité, faible voltage	1,97	MJ	Electricity, low voltage {FR} market for Alloc Def, U
Transport, Camion	0,135	tkm	Transport, freight, lorry, unspecified {RER} transport, freight, lorry, all sizes, EURO3 to generic market for Alloc Def, U
Transport, train	0,111	tkm	Transport, freight train {FR} processing Alloc Def, U
Sortant			
Emissions dans l'air			
COV*	0,0273	g	VOC, volatile organic compounds
CO	1,83	g	Carbon monoxide
CO ₂ , non-fossile	1,7	kg	Carbon dioxide
CH ₄	6,02	g	Methane
NH ₃	0,671	g	Ammonia
N ₂ O	0,158	g	Dinitrogen monoxide
NOx	0,547	g	Nitrogen oxides
Emissions dans l'eau			
DCO**	354	g	COD, Chemical Oxygen Demand

Annexe C

NH ₄ ⁺	13,4	g	Ammonium, ion
N	0,917	g	Nitrogen
Nitrate	60,6	g	Nitrate
Phosphate	16,6	g	Phosphate
Sulfate	60,4	g	Sulfate
Chlorures	16,6	g	Chlorides, unspecified

*Composé organique volatil. ** Demande chimique en oxygène.

Tableau 10: Inventaires de cycle de vie utilisés pour l'étape de traitement de l'eau de traitement.

Flux	Quantité	Unité	Données d'arrière-plan
Produit			
Eau traitée	1	M ³	
Entrant			
Eau de traitement	1	M ³	
Électricité	0.508	MJ	Electricity, low voltage {FR} market for Alloc Def, U
Sortant			
Emissions dans l'air			
COV	0,00969	g	VOC, volatile organic compounds
CO	0,649	g	Carbon monoxide
CO ₂ biogénique	0,603	kg	Carbon dioxide, biogenic
CH ₄	2,13	g	Methane
Emissions dans l'eau			
DCO	97	g	COD, Chemical Oxygen Demand
NH ₄ ⁺	1	g	Ammonium, ion
Nitrite NO ₂ ⁻	4,43	g	Nitrite
Nitrate NO ₃ ⁻	0,0885	g	Nitrate
SO ₄ ²⁻	710	g	Sulfate
CL ⁻	570	g	Chlorides, unspecified
Cr	0,05	g	Chromium

Annexe C

Fe	0,4	g	Iron
Ni	0,2	g	Nickel
Pb	0,05	g	Lead
Cu	0,05	g	Copper
Zn	0,15	g	Zinc

Titre : Développement d'éléments en biocomposite à base de fibre végétale pour la réhabilitation énergétique des bâtiments

Mots clés : Fibres végétales, biocomposites, *Ampelodesmos mauritanicus*, vieillissement accéléré, comportement mécanique, ACV.

Résumé : Dans l'optique de répondre à la demande du marché des matériaux biosourcés en France pour le secteur du bâtiment, les travaux présentés dans cette thèse avaient pour objectif de formuler un nouveau matériau biosourcé en exploitant des nouvelles ressources végétales, telle que la plante de Diss. Ce matériau sera destiné pour la production des panneaux de bardage pour la réhabilitation énergétique des bâtiments.

Dans un premier lieu, une étude sur l'extraction, le traitement et la caractérisation des fibres de Diss a été menée. Elle a été suivie dans un deuxième temps par une application de ces fibres comme renfort à une matrice thermoplastique, le polypropylène. La caractérisation mécanique et hydrothermique, l'étude de durabilité et l'évaluation environnementale de la phase de production de ces biocomposites ont été abordées.

Les résultats montrés sont prometteurs, notamment pour une telle application où les fibres de Diss ont présenté des propriétés mécaniques et hydro/hydrothermiques intéressantes. De plus, l'incorporation de ces fibres a amené à une amélioration des propriétés mécaniques de la matrice. D'autre part, l'étude de durabilité a mis en évidence l'effet du vieillissement hydrothermique sur leurs propriétés mécaniques. Il a été conclu également que l'utilisation des fibres de Diss avait un effet nettement positif sur la réduction des impacts relatifs au réchauffement climatique, grâce à la séquestration biogénique du CO₂. Ces résultats aident à mieux anticiper une future industrialisation de ces fibres et mettre en avant leur effet bénéfique sur l'environnement.

Title : Development of biocomposite elements based on plant fibres for buildings renovation

Keywords : Vegetable fibres, biocomposites, *Ampelodesmos mauritanicus*, accelerated ageing, mechanical behaviour, LCA.

Abstract : With a view to meet the market demand for biosourced materials in France for the building sector, the present work aimed to formulate a new biosourced material by exploiting new plant resources, such as the Diss plant. This material will be used to produce cladding panels for buildings renovation.

Firstly, a study on the extraction, treatment and characterisation of Diss fibres was carried out, followed secondly by an application of these fibres as a reinforcement to a thermoplastic matrix, polypropylene. The mechanical and hydrothermal characterisation, durability evaluation and environmental assessment of the production phase of these biocomposites were studied.

The results are promising especially for such an application where the Diss fibres showed interesting mechanical and hydro/hydrothermal properties. In addition, the incorporation of the fibres led to an improvement in the mechanical properties of the matrix. On the other hand, the durability study highlighted the hydrothermal ageing effect on their mechanical properties. It was also concluded that the use of Diss fibres had a clearly positive effect on the reduction of global warming impacts thanks to the biogenic sequestration of CO₂. These results help to better anticipate the future industrialisation of these fibres and highlight their beneficial effect on the environment.