

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À TROIS-RIVIÈRES

**ÉTUDE DU COMPORTEMENT THERMOMÉCANIQUE ET DE LA DURABILITÉ DES
COMPOSITES DE FIBRES D'EUCALYPTUS-POLYÉTHYLÈNE RECYCLÉ OU NON :
VALORISATION PAR LE DÉVELOPPEMENT D'ÉCOPRODUITS.**

**RAPPORT PRÉSENTÉ
COMME EXIGENCE PARTIELLE DU**

DOCTORAT EN SCIENCES ET GÉNIE DES MATÉRIAUX LIGNOCELLULOSIQUES

**PAR
Komlavi Henri-Séraphin N'TSULE**

Novembre 2025

Université du Québec à Trois-Rivières

Service de la bibliothèque

Avertissement

L'auteur de ce mémoire, de cette thèse ou de cet essai a autorisé l'Université du Québec à Trois-Rivières à diffuser, à des fins non lucratives, une copie de son mémoire, de sa thèse ou de son essai.

Cette diffusion n'entraîne pas une renonciation de la part de l'auteur à ses droits de propriété intellectuelle, incluant le droit d'auteur, sur ce mémoire, cette thèse ou cet essai. Notamment, la reproduction ou la publication de la totalité ou d'une partie importante de ce mémoire, de cette thèse et de son essai requiert son autorisation.

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À TROIS-RIVIÈRES

DOCTORAT EN SCIENCES ET GÉNIE DES MATÉRIAUX LIGNOCELLULOSIQUES (PH.D.)

Direction de recherche :

Prof. Demagna Koffi	Directeur de recherche
---------------------	------------------------

Prof. Kwamivi Ségbéaya	Codirecteur de recherche
------------------------	--------------------------

Jury d'évaluation

Prof. Éric Loranger, UQTR	Président du jury
---------------------------	-------------------

Prof. Demagna Koffi, UQTR	Directeur de recherche
---------------------------	------------------------

Prof. Kwamivi Ségbéaya, Université de Kara, Togo	Codirecteur de recherche
--	--------------------------

Prof. Ouro-Djobo Samah, CERFER, Togo	Évaluateur externe
--------------------------------------	--------------------

Prof. Bassaï Magnoudéwa BOBJONA, Université de Lomé, Togo	Évaluateur interne
---	--------------------

Prof. Younoussa Millogo, Université Nazi BONI, Burkina Faso	Évaluateur externe
---	--------------------

Avant-propos

Cette étude de thèse de doctorat en Sciences et Génie des Matériaux Lignocellulosiques est réalisée dans le cadre d'un accord de cotutelle entre l'Université de Québec à Trois-Rivières (Canada) et l'Université de Lomé (République du Togo).

Les questions abordées dans cette étude sont d'ordre physico-chimique, thermomécanique et environnementale. Cependant, l'étude a été portée sur la formulation d'un composite biosourcé à base des fibres d'*Eucalyptus cameldulensis* utilisées comme renfort et du polyéthylène basse densité (PEBD recyclé et vierge) utilisé comme la matrice. Préalablement, le traitement alcalin a été porté sur les fibres afin de réduire leur caractère hydrophile et aussi de diminuer leur rugosité. Puis, après formulation du composite selon le type de fibres (traité ou non) et en fonction du taux de fibres, des essais mécaniques dynamique, quasi-statiques, morphologique ainsi que la durabilité (vieillesse hydrique et thermohydrique, et thermique) ont été réalisés pour comprendre leurs comportements face aux contraintes extérieures. La comparaison entre les recyclés et les non recyclés a été effectuée.

Dédicace

Au nom de Dieu le tout puissant, l'Alpha et l'Oméga,

Je dédie cette thèse de doctorat à ma grande famille, à mon père N'TSULE Anani Jean, à ma mère EDOH Abra Lucia, à ma femme AHIAKOU Afi Christelle, à mes enfants et à mes frères et sœurs qui m'ont apporté un soutien indéfectible et sans relâche durant cette étude. Vous m'étiez cette source d'énergie vitale, et vous le serai toujours pour moi.

Paix-Joie- Amour

Remerciements

Avant tout, je souhaite exprimer ma profonde gratitude à Dieu pour la santé, la patience, le courage et la détermination qu'il m'a accordés tout au long de mes années d'étude.

Le présent travail s'inscrit dans le cadre d'une cotutelle entre l'Université de Québec à Trois-Rivières UQTR (Canada) et l'Université de Lomé UL (Togo). Les travaux ont été réalisés au sein du Laboratoire d'Analyse et de Modification de Surface au sein de l'Institut d'Innovation en Écomatériaux Écoproduits et Écoénergies à base de biomasse (I2E3) de l'UQTR, du Laboratoire Gestion, Traitement et Valorisation des Déchets (GTVD) de l'Université de Lomé et du Laboratoire Chimie Organique et Sciences de l'Environnement (LaCOSE) de l'Université de Kara. Je tiens donc à remercier les Directeurs de ces laboratoires respectifs : Professeur François BROUILLETTE, Professeur Gado TCHANGBEDJI et Docteur Kwamivi N. SEGBEAYA (Maitre de Conférences) qui ont facilité les travaux au sein de leurs laboratoires.

Cette thèse a été réalisée grâce au soutien financier de l'UQTR à travers la bourse d'Universalis Causa et l'exemption des frais majorés d'une part et du laboratoire LaCOSE pour son aide financier.

Je souhaite exprimer mes sincères et respectueuses reconnaissances au Professeure Demagna KOFFI, mon Directeur de thèse à l'UQTR. Pour moi, vous avez été un directeur exceptionnel. Vous m'avez accueilli à Trois-Rivières, pas comme un étudiant, mais comme un fils. Vous avez su me mettre à l'aise en m'offrant un environnement de vie et de travail agréable et stimulant. Vos compétences scientifiques, vos encouragements et votre rigueur m'ont permis de mener à bien ce travail. Votre influence positive m'a été très bénéfique. Je vous serai toujours reconnaissant.

A vous, Kwamivi N. SEGBEAYA (Maitre de Conférences), mon Directeur de thèse à l'université de Lomé, je vous adresse mes sincères remerciements pour les facilités administratives, votre encadrement exceptionnel, votre suivi et les multiples conseils et orientations tout au long de ce travail. J'ai appris énormément à travers vos remarques aussi bénéfiques que pertinentes, vos compétences et votre expérience pour accomplir cette thèse.

A vous, Professeur François BROUILLETTE, je me réjouis de l'occasion qui m'est offerte pour vous exprimer toute ma gratitude pour votre intérêt et votre disponibilité permanente surtout pour m'avoir assigné votre laboratoire d'analyse et de modification des surfaces pour la réalisation des travaux physico-chimique de grande portée dans le cadre de ce travail. Un grand merci pour tout l'investissement pour la bonne marche de ce travail. J'ai apprécié grandement la qualité de nos relations.

Je remercie chaleureusement les membres du jury, le Professeur Éric LORANGER, le Professeur Ouro-Djobo SAMAH qui m'ont fait l'honneur d'examiner ce travail ; les Professeurs Bassai Magnoudéwa BODJONA et Younoussa MILLOGO pour avoir accepté de rapporter ce travail. Je vous remercie pour votre lecture attentive de ce manuscrit et vos remarques constructives.

La majeure partie du travail expérimental a été réalisée au sein des locaux de l'I2E3 et du Génie Mécanique de l'Université de Québec à Trois-Rivières UQTR (Canada). Un sincère merci à vous chercheurs, enseignants, personnel administratif et technique qui m'avez conseillé, soutenu et aidé dans toutes mes démarches. Un merci particulier au Professeur Éric LORANGER, co-directeur de l'I2E3, à Isabelle BOULAN (Technicienne de laboratoires au sein de l'I2E3), Kézia MILETTE (technicienne du MEB-EDX), Céline LEDUC (technicienne de laboratoires) et l'agent de recherche, Daniel BÉGIN pour leur soutien précieux, orientation et leur disponibilité tout au long de ce travail. Au Professeur Jacques HUOT (directeur de l'Institut de Recherche sur l'Hydrogène) qui m'a initié à l'utilisation du diffractomètre aux rayons X, et au Professeur Jocelyn BOUCHARD pour sa disponibilité dans l'apprentissage et l'orientation dans l'usage du spectromètre infra-rouge à transformer de Fourier. Un sincère merci à cette belle précieuse équipe. A Jonathan ST-ARNAUD, technicien des laboratoires de Génie Mécanique, une reconnaissance pour sa disponibilité à me former sur l'ensemble des équipements des tests mécaniques.

J'adresse mes remerciements à tout le personnel enseignant (UL et UK) membre permanent et associé du laboratoire GTVD pour leur franche participation à la réalisation de ce travail. Merci au Professeur Gado TCHANGBEDJI en qualité de directeur pour ses divers conseils et directives pour la réalisation de ce tout premier travail dans ladite structure de recherche.

A GIP-Togo précisément à son Directeur général, M. Bemah GADO, et à tout le personnel technique et administratif, nous adressons nos remerciements pour nous avoir accepté de réaliser une majeure partie de nos travaux dans leur plateforme industrielle de recyclage des polymères plastiques et de conception des écomatériaux.

À mon grand frère professeur Edem Komi KOLEDZI pour son soutien, son encouragement et surtout son orientation dans la réalisation de ce projet d'étude. Au professeur Guy Dituba N'GOMA de l'Université de Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT), un merci pour ses remarques, conseils et orientation durant ce travail. Malgré la distance et son agenda chargé, il a été toujours à l'écoute de mes demandes. Vous étiez celui qui m'avait suggéré beaucoup de choses à travers nos échanges sur le projet.

À la famille BACH (Emma, Jacques, Ryan, Florance, Méloé), je dis un sincère merci pour son soutien sans cesse et indéfectible tant sur le plan financier, matériel que personnel. Vous étiez là à tout moment pour moi comme membre de votre précieuse famille.

Merci à Jonathan Lacombe, adjoint commercial du filial Walmart pour son implication d'une manière particulière dans cette étude. Et à l'administration de Walmart, un merci pour leur soutien.

Enfin, j'exprime ma reconnaissance et mon affection à ma famille N'TSULE, ZAMBLOU, EDOH, mes amis ainsi qu'à toutes les personnes qui m'ont soutenu durant ces années de labeur.

A vous toutes et tous, Merci !

Résumé

Le choix des matériaux plastiques et composites dans la conception et la fabrication mécanique repose sur leurs nombreuses propriétés spécifiques, leur conférant un avantage certain sur les matériaux conventionnels tels que les métaux, le verre, le carbone ou l'aramide. Toutefois, leur utilisation intensive soulève des enjeux de durabilité. L'adhésion interfaciale entre les fibres, l'agent compatibilisant polyéthylène greffé à l'anhydride maléique (PE-g-MA) et la matrice polymère constitue un défi majeur. Dans ce contexte, cette étude vise à traiter des fibres d'eucalyptus par des solutions d'hydroxyde de sodium (NaOH) à 2,5 %, 4 % et 6 % m/v afin d'optimiser les sites réactifs de surface, susceptibles d'établir des liaisons avec le PE-g-MA d'une part et celui-ci avec le polyéthylène d'autre part. Les fibres traitées à 6 % m/v de NaOH ont montré une amélioration significative de la résistance à la traction et à la flexion, des modules élastiques, des modules de stockage et de perte, du coefficient d'amortissement (DMA) et de la durabilité face aux facteurs environnementaux. Les analyses par MEB-EDX, DRX et FTIR-ATR ont révélé respectivement des modifications morphologiques et chimiques, une intensification des pics de cellulose et l'évolution des groupements fonctionnels. L'ATG a confirmé une meilleure stabilité massique des composites renforcés par fibres traitées. Enfin, une modélisation numérique du vieillissement thermique par la méthode des éléments finis a été réalisée en cohérence avec les résultats expérimentaux. Ces travaux ouvrent la voie au développement de composites biosourcés à hautes performances pour des applications dans le bâtiment (panneaux, revêtements), l'automobile (pièces intérieures légères), le mobilier écologique et l'emballage durable. Les perspectives portent sur l'optimisation des procédés de traitement d'autres fibres lignocellulosiques, l'étude du comportement à long terme sous diverses sollicitations et l'intégration de modèles prédictifs du vieillissement et de la recyclabilité pour favoriser leur adoption dans l'économie circulaire.

Mots clés : Composite, traitement chimique, fibres d'eucalyptus, polyéthylène, durabilité, vieillissement.

Table des matières

Avant-propos.....	i
Remerciements.....	iii
Résumé.....	v
Table des matières.....	vi
Liste des figures	xii
Liste des tableaux.....	xx
Liste des symboles	xxii
Liste des abréviations.....	xxiii
Chapitre 1 - Introduction.....	1
1.1 Contexte général de la thèse.....	1
1.2 Problématique.....	3
1.3 Objectif Général	5
1.4 Questions d'étude.....	6
1.5 Contenu de la thèse	7
Chapitre 2 - Cadre théorique et recension des écrits.....	9
2.1 Matériaux composites	9
2.1.1 Renforts fibreux	10
2.1.2 Matrices polymères.....	13
2.2 Polyéthylène basse densité.....	13
2.3 Dégradation thermique du PEBD.....	15
2.4 Analyse mécanique dynamique DMA	17

2.5	Analyse des travaux de la littérature sur DMA	19
2.6	Analyse par Diffractométrie aux R-X	20
2.7	Renforts dans les matériaux composites	22
2.8	Dégradation thermique du bois	23
2.9	Analyse des travaux sur les matériaux composites	24
2.10	Obtention des fibres et durabilité des composites	25
2.10.1	Structure du bois	26
2.10.2	Composition du bois	26
2.10.3	Propriétés liées aux fibres végétales	31
2.10.4	Mise en pâte des fibres de bois	32
2.10.4.1	Obtention de la pâte chimique	32
2.10.4.2	Obtention de la pâte mécanique.....	33
2.10.4.3	Aspect comparatif des procédés	34
2.11	Modification des fibres naturelles	34
2.11.1	Mercerisation des fibres naturelles	35
2.11.2	Traitement par les silanes.....	37
2.11.3	Acétylation des fibres	39
2.11.4	Traitement au permanganate de potassium.....	40
2.12	Analyse de la modification des fibres naturelles.....	42
2.13	Eucalyptus et leurs applications	43
2.13.1	Enjeux de l'utilisation des eucalyptus.....	44
2.13.2	Usage d'eucalyptus dans le monde	46
2.13.3	Eucalyptus dans les matériaux composites	47
2.14	Formulations, caractérisations des matériaux à fibre de bois.....	49
2.14.1	Formulation des composites	50
2.14.2	Caractérisation thermomécanique des composites biosourcés	50
2.15	Viellissement des composites biosourcés.....	51
2.15.1	Viellissement hydrothermique	51

2.15.1.1	Mécanisme de diffusion d'humidité	51
2.15.1.2	Effet de la température sur la prise d'humidité	56
2.15.1.3	Influence du taux et de la longueur des fibres sur l'absorption.....	57
2.15.2	Vieillessement thermique	57
2.15.3	Effet de l'humidité sur les propriétés mécaniques	58
2.16	Vers la simulation thermique.....	59
2.16.1	Aspect macroscopique et microscopique du phénomène	59
2.16.2	Homogénéisation micromécanique.....	60
2.16.3	Loi des mélanges.....	60
2.16.3.1	Fraction volumique.....	60
2.16.3.2	Fraction massique	61
2.16.3.3	Diagramme Cole-Cole.....	61
Chapitre 3 - Méthodologie		62
3.1	Production, caractérisation des fibres d'eucalyptus	63
3.1.1	Production des fibres.....	63
3.1.1.1	Échantillonnage.....	63
3.1.1.2	Production des fibres.....	64
3.2	Caractérisation des fibres	65
3.2.1	Caractérisation physique des fibres	65
3.2.2	Caractérisation chimique	66
3.3	Angle de contact par la méthode de Owens-Wendt	71
3.4	Formulation des composites PEBD-Eucalyptus	72
3.4.1	Plan expérimental de la formulation	72
3.4.2	Fabrication de la pâte de composite.....	73
3.4.2.1	Choix de la matrice	73
3.4.2.1	Fibres d'eucalyptus utilisées dans cette étude.....	74
3.4.2.2	Agent de couplage.....	75
3.4.2.3	Obtention de la pâte de composite	75
3.4.2.4	Granulation de la pâte des composites	78

3.5	Fabrication des éprouvettes	78
3.5.1	Fonctionnement de la presse à injection	78
3.5.2	Les conditions d'injection.....	80
3.5.3	Éprouvettes d'essais mécaniques	80
3.5.3.1	Éprouvettes de Traction.....	81
3.5.3.2	Éprouvettes de Flexion.....	82
3.5.3.3	Éprouvettes de résilience Charpy	83
3.6	Conductivité thermique et de densité de flux thermique.....	84
3.7	Analyse Mécanique Dynamique (DMA)	85
3.8	Analyse Thermogravimétrique (ATG)	87
3.9	Microscopie électronique à balayage (MEB-EDX)	88
3.10	Spectroscopie infrarouge FTIR-ATR	89
3.11	Diffractions aux rayons-X (DRX).....	90
3.12	Durabilité des composites PEBD-Eucalyptus	91
3.12.1	Conditions expérimentales de vieillissement.....	92
3.12.2	Essai mécanique sur les éprouvettes vieilles	95
3.13	Approche par éléments finis du comportement thermique des composites	95
3.13.1	Approche par éléments finis du problème thermique	95
3.13.1.1	Équations de chaleurs associées	95
3.13.1.2	Formulation variationnelle	96
3.13.1.3	Approche par éléments finis	97
3.13.1.4	Démarche méthodologique.....	98
Chapitre 4 - Résultats, Analyse et Discussion		101
4.1	Partie 1 : Caractérisation des fibres, essais mécaniques des composites	101
4.1.1	Caractérisation physique des fibres et des composites	101
4.1.2	Composition chimique des fibres.....	105
4.1.3	Caractérisation au microscope MEB des fibres	106
4.1.4	Tests mécaniques des composites PEBD-Eucalyptus.....	107

4.1.4.1	Traction des composites: PEBD vierge et recyclé	107
4.1.4.2	Détermination du coefficient de poisson.....	112
4.1.4.3	Flexion des composites PEBD-Eucalyptus.....	114
4.1.4.4	Résilience aux chocs Charpy.....	116
4.1.5	Analyse thermogravimétrique (ATG)	119
4.1.6	Analyse mécanique dynamique (DMA)	122
4.1.7	Topographie des composites au MEB-EDX.....	130
4.1.8	Analyse spectroscopique FTIR-ATR	132
4.1.9	Analyse aux diffractions des rayons X (DRX)	134
4.2	Partie 2. Vieillissement hydrique et hydrothermique	136
4.2.1	Cinétique d'absorption et de désorption d'eau des composites	136
4.2.1.1	Facteurs influençant les caractéristiques de la diffusion	136
4.2.1.2	Effet du traitement sur l'absorption d'eau des composites	140
4.2.1.3	Effet de la température sur la prise d'eau des composites	141
4.2.1.4	Facteurs influençant le coefficient de diffusion des composites	142
4.2.1.5	Influence du taux de fibre sur le coefficient de diffusion.....	143
4.2.1.6	Effet de la température d'immersion sur la dégradation du matériau ...	145
4.2.2	Énergie d'activation et du coefficient de diffusion des composites.....	146
4.2.3	Réversibilité de l'absorption des composites PEBD _v /Eucalyptus.....	150
4.2.3.1	Cycle d'absorption en immersion dans l'eau	150
4.2.3.2	Réabsorption des composites PEBD _v /Eucalyptus	153
4.2.3.3	Évolution dimensionnelle des composites	157
4.2.4	Microscopie électronique à balayage (MEB)	159
4.2.5	Analyse au FTIR-ATR	160
4.2.6	Essai mécanique des éprouvettes vieilles	163
4.2.6.1	Vieillissement hydro-thermique	163
4.2.6.2	Test d'impact de Charpy	170
4.2.6.3	Traction et flexion des composites vieillis thermiquement.....	172
4.2.6.4	Test de traction	172
4.2.6.5	Test de flexion trois-points.....	173
4.3	Partie 3. Approche par éléments finis du vieillissement thermique	175

4.3.1	Valeurs expérimentales de la conductivité thermique des matériaux	175
4.3.2	Température au sein de l'éprouvette de flexion	177
4.3.3	Direction et valeurs extrêmes du flux de chaleur.....	181
4.3.4	Déformation symétrique selon la température	183
4.3.5	Simulation du phénomène thermique sur le matériau pavé	184
4.3.6	Flux de chaleur totale en fonction de la température	185
4.3.7	Vitesse de propagation de flux de chaleur dans le matériau PEVDv25ET188	
Chapitre 5 - Conclusion et Perspectives		191
Chapitre 6 - Référence bibliographique		196
ANNEXE A- Articles publiés et Communications internationales		215
6.1	ANNEXE B: Code de modélisation en 3D dans ANSYS2024-R2	217
6.2	Résultats de la variation du flux et de la température dans ANSYS2024-R2 ..	220
6.3	ANNEXE C: Constante de dégradation du module élastique.....	224

Liste des figures

Figure 1.1 Pourcentage massique des fractions de déchets de la ville de Kara (Togo)	1
Figure 1.2 Polyéthylène et ses applications	3
Figure 1.3 Diagramme des questions d'études	6
Figure 2.1 Matériaux composites selon le type et la taille du renfort.....	9
Figure 2.2 Quelques fibres naturelles	12
Figure 2.3 A = Structure chimique du PEBD, B = aspect morphologique de PEBD	14
Figure 2.4 Décomposition du PEBD en fonction de la température.....	16
Figure 2.5 DMA: A- contraintes appliquées; B- module complexe	18
Figure 2.6 Diffraction de R-X de PEBD.....	21
Figure 2.7 Illustration schématique du principe de DRX	21
Figure 2.8 DRX des échantillons traités par: silane (bleue); NaOH suivi de silane (rouge) et sans traitement (noire).....	22
Figure 2.9 Classification des fibres dans les matériaux composites.....	23
Figure 2.10 Structure chimique de l'unité dimère de cellobiose.....	27
Figure 2.11 Structure chimique de l'unité de cellulose	28
Figure 2.12 Structure d'un type de xyloglucane.....	29
Figure 2.13 Structure des précurseurs de la lignine	30
Figure 2.14 Structure de la lignine montrant les différentes liaisons chimiques	30
Figure 2.15 Procédés de mise en pâte chimique à l'échelle des fibres	33
Figure 2.16 Réaction probable entre le substrat cellulosique et la solution alcalin	35
Figure 2.17 Équation assimilée de la conversion de la cellulose.....	36

Figure 2.18 Réaction chimique mise en jeu entre le silane et les groupements hydroxyle de la fibre cellulosique.....	38
Figure 2.19 Liaisons chimiques à l'interface du composite fibres de bois-polyéthylène. .	39
Figure 2.20 Réaction d'estérification des fibres par l'anhydride acétique	40
Figure 2.21 Surface cultivée (statistique de FAO et FRA 2010, STCP Estimates)	45
Figure 2.22 Zone de plantation de l'espèce d'eucalyptus dans le monde.....	46
Figure 2.23 Variation de la longueur des FE en fonction de la hauteur de l'arbre	47
Figure 2.24 Travaux de recherche dans le domaine des composites	48
Figure 2.25 Mécanisme de pénétration de l'eau dans les composites	53
Figure 2.26 Illustration des mécanismes de diffusion de l'eau dans les composites	53
Figure 2.27 Courbe normalisée de la diffusion de Fick.....	56
Figure 2.28 Effet de l'humidité sur le comportement en traction du composite PP/fibres de sisal	59
Figure 3.1 Démarche globale de formulation des composites au PEBD recycle	62
Figure 3.2 Démarche globale de formulation des composites au PEBD vierge.....	63
Figure 3.3 Photographie du rondin du bois d'eucalyptus à l'état d'échantillon	64
Figure 3.4 a- Broyeur lent Weima type WLK-4 ; b- Système de tamisage, c- Différentes fractions granulométrie	64
Figure 3.5 Répartition des fractions de fibres selon leurs granulométries.....	65
Figure 3.6 Détermination de la masse volumique des fibres et des composites.....	66
Figure 3.7 Montage expérimental de la détermination d'holocellulose	68
Figure 3.8 Résumé des étapes de déterminations des éléments lignocellulosiques.....	70
Figure 3.9 Organigramme de la quantification de la lignine	70
Figure 3.10 Éprouvettes et essai de détermination d'angle de contact.....	72
Figure 3.11 Déchets de plastique PEBD recyclé	74

Figure 3.12 Polyéthylène basse densité PEBD	74
Figure 3.13 Fibres d'eucalyptus.....	75
Figure 3.14 Polyéthylène greffé à l'anhydride maléique PE-g-MA	75
Figure 3.15 Diagramme de formulation de la pâte de composite	76
Figure 3.16 Pâtes de composite : A- fusion de PEBD, B- la pâte, C- mélange de pâte....	77
Figure 3.17 La granuleuse H. Drecher Maschinenbau et la maille.....	78
Figure 3.18 Presse à injection ZERES ZE900	78
Figure 3.19 Interface de l'écran de commande de ZERES ZE900 à l'I2E3 de l'UQTR..	79
Figure 3.20 Différents tests mécanique et thermiques avec des conditions d'essais	81
Figure 3.21 A = Modèle théorique ISO 527-2 :2012-type 1A, B = Éprouvettes de traction	81
Figure 3.22 Éprouvettes de flexion.....	83
Figure 3.23 Machine Intron pour les tests de traction et de flexion	83
Figure 3.24 A = matériel de mouton pendule; B = éprouvettes taillées en V	84
Figure 3.25 Analyse des paramètres de conductivité thermique.....	85
Figure 3.26 Analyse mécanique dynamique selon la norme ASTM D7028.....	87
Figure 3.27 Microscope électronique à balayage couplé au EDX.....	89
Figure 3.28 Spectroscopie Infrarouge à transformé de Fourier	89
Figure 3.29 Diffractomètre sur poudre	91
Figure 3.30 Éprouvette de traction en forme d'halter : norme 527-2 :2012-type 1BA	92
Figure 3.31 a- Schéma du système de vieillissement hydrique et hydro-thermique	93
Figure 3.32 b- Système de vieillissement à 23°C; et 50 et 75°C	94
Figure 3.33 Solide Δ soumis à des cotraitantes extérieures avec des conditions aux limites	96

Figure 3.34. Solide représenté en ses éléments finis (maillage).....	97
Figure 3.35 a- Éprouvette design en 3D	100
Figure 3.36 b- Modèle du pavé : a) Mesh design en 3D, b) design du pavé avec des dimensions	100
Figure 4.1 MEB: A- fibre brute, B, C respectivement fibre traitée avec 4 et 6% de NaOH	106
Figure 4.2 Contrainte-déformation des composites eucalyptus a) PEBD vierge; b) PEBD recyclé; c) Module élastique (V= vierge, R= recyclé).....	111
Figure 4.3 a) Modules de rigidité G et b) le coefficient de poisson du composite	113
Figure 4.4 Flexion: contrainte-déformation des composites eucalyptus a) PEBD vierge; b) PEBD recyclé; c) module de flexion	115
Figure 4.5. Potentielle interatomique, reproduction adaptée de la figure originale.....	118
Figure 4.6 a) Résilience aux chocs Charpy, b) limite élastique et énergie absorbée	119
Figure 4.7 Évolution de la masse résiduelle des fibres, du PEBD et des composites	120
Figure 4.8 A- Masse résiduaire de la cellulose; B- Perte en masse du PEBD	121
Figure 4.9 Analyse mécanique dynamique : Composantes E' , E'' et $\tan\delta$ à 1 Hz.....	125
Figure 4.10 Analyse mécanique dynamique : Composantes E' , E'' et $\tan\delta$ à 20 Hz.....	126
Figure 4.11 Facteur de proportionnalité du module de stockage a 1 Hz et 20 Hz.....	127
Figure 4.12 Diagramme de Cole-Cole à 1Hz et 20Hz.....	129
Figure 4.13 MEB: A- PEBDV15ENT; B- PEBDV25ENT; C- PEBDV15ET; D- PEBDV25ET.....	130
Figure 4.14 Analyse EDX des composites : A- PEBDV15ENT; B- PEBDV15ET.....	131
Figure 4.15 FTIR-ATR de quelques échantillons de fibres traitées et de composites	132
Figure 4.16 FTIR-ATR de PEBD vierge et recyclé	133
Figure 4.17 Diffractogramme aux rayons X des fibres traitées ou non	135

Figure 4.18 a- Évolution de la teneur en eau des composites PEBD _v /Eucalyptus.....	138
Figure 4.19 b- Évolution de la teneur en eau des composites PEBD _v /Eucalyptus.....	139
Figure 4.20. Évolution de la teneur en eau des composites PEBDR/Eucalyptus	140
Figure 4.21 a- Prise d'eau des composites.....	144
Figure 4.22 b- Prise d'eau des composites.....	145
Figure 4.23 Évolution du coefficient de diffusion des composites PEBDV/Eucalyptus	147
Figure 4.24 a- Détermination de l'énergie d'activation : absorption.....	147
Figure 4.25 b-Détermination de l'énergie d'activation : réabsorption.....	148
Figure 4.26 A- Énergie d'activation: absorption; B- la réabsorption.....	148
Figure 4.27 Énergie d'activation: réabsorption.....	149
Figure 4.28 Cycle de vieillissement des composites à 23, 50 et 75°C	151
Figure 4.29 Comparaison des deux types de d'absorption (1ere et 2nd) : 23°C	153
Figure 4.30 Comparaison des deux types de d'absorption (1ere et 2nd) : 50°C	154
Figure 4.31 Comparaison des deux types de d'absorption (1ere et 2nd) : 75°C	155
Figure 4.32 Réabsorption normalisée des composites à 23°C, 50°C et 75°C	156
Figure 4.33 Coefficient de diffusion en fonction de la température de vieillissement ...	157
Figure 4.34 Changement dimensionnel des composites	158
Figure 4.35 MEB des composites 25% : A- non vieilli ; B- vieillis 23°C ; C et E- vieillis 50°C ; D et F- vieillis 75°C.....	160
Figure 4.36 FTIR-ATR de composite vieillie: 25% fibres.....	162
Figure 4.37 a- Traction : contrainte-déformation des composites vieillis	164
Figure 4.38 b- Traction : contrainte-déformation des composites vieillis	165
Figure 4.39 A- Résistance à la traction et son module élastique	165
Figure 4.40 a- Essai de flexion : contrainte-déformation des vieillis à 23°C	169

Figure 4.41 Essai de flexion : contrainte-déformation des vieilliss à 50 et à 75°C.....	170
Figure 4.42 Test de résilience aux chocs Charpy des composites vieilliss.....	171
Figure 4.43 Traction: contrainte-déformation des : a) vieilliss à 50°C, b) vieilliss à 80°C	173
Figure 4.44 Traction : contrainte-déformation des vieilliss à 50°C et à 80°C.....	174
Figure 4.45 Évolution de la température au sein des composites a 50°C et a 80°C	179
Figure 4.46 Vitesse expérimentale de diffusion de la chaleur au sein du matériau	180
Figure 4.47 Vitesse de propagation de la chaleur le long du matériau	180
Figure 4.48 Propagation de de la chaleur au sein du matériau pavé en design 3D.....	181
Figure 4.49 Flux de chaleur selon la position à 50°C et 80°C.....	183
Figure 4.50 Déformation du composite: cas de 80°C en image ANSYS2024-R2	184
Figure 4.51 Simulation du gradient de température: A- gradient. B- amplitude à 37°C	185
Figure 4.52 a- Effet de la température sur la densité de flux de chaleur	186
Figure 4.53 b- Effet de la température sur la densité de flux de chaleur	187
Figure 4.54 Effet de la conductivité thermique sur la densité de flux de chaleur.....	187
Figure 4.55 a-Vitesse de propagation de la densité de flux de chaleur suivant les axes.	188
Figure 4.56 b-Vitesse de propagation de la densité de flux de chaleur suivant les axes	189
Figure 4.57 Itération de la vitesse de propagation de la densité de flux de chaleur	189
Figure 6.1 Variation suivant la direction et le sens d'évolution de la température	220
Figure 6.2 Variation suivant la direction perpendiculaire à celle d'évolution de la température	221
Figure 6.3 Densité de flux de chaleur total suivant la direction et le sens d'évolution de la température	221
Figure 6.4 Densité de flux de chaleur total suivant la direction perpendiculaire a celle d'évolution de la température	222

Figure 6.5 Densité de flux de chaleur suivant la direction et le sens d'évolution de la température	222
Figure 6.6 Densité de flux de chaleur suivant la direction et le sens d'évolution de la température	223
Figure 6.7 Constante de vitesse de dégradation de E à 23°C.....	224
Figure 6.8 Constante de vitesse de dégradation de E à 50°C.....	225
Figure 6.9 Constante de vitesse de dégradation de E à 50°C.....	225
Figure 6.10 Étapes entreprises lors de la formulation des composites	226

Liste des tableaux

Tableau 2.1 Propriété mécanique et FQA des fibres de bouleau et de tremble	11
Tableau 2.2 Propriétés mécaniques et physique de quelques fibres naturelles.....	12
Tableau 2.3 Avantages et inconvénients des fibres végétales	13
Tableau 2.4 Propriété physico-mécanique de PEBD.....	15
Tableau 2.5 Comparaison des biopolymères du bois avec eucalyptus	27
Tableau 2.6 Quelques propriétés de quelques fibres naturelles	31
Tableau 2.7 Propriété physiques et mécaniques de quelques fibres naturelles.....	32
Tableau 2.8 Propriétés mécaniques et traitement des fibres par les dérivés de silane	38
Tableau 2.10 Coût et énergie liée à la production des fibres	48
Tableau 2.11 Quelques caractéristiques des propriétés relatives aux fibres naturelles.....	49
Tableau 2.11 Différentes techniques d'analyse thermique et leur unité de mesure	51
Tableau 2.12 Modèles d'étude de vieillissement de quelques fibres	52
Tableau 3.1 Les normes utilisées pour la caractérisation des fibres	67
Tableau 3.2 Scénarios du traitement des fibres d'eucalyptus	71
Tableau 3.3 Récapitulation de la composition du mélange	73
Tableau 3.4 Paramètres d'injection utilisés pour le moulage des éprouvettes.....	80
Tableau 3.5 Nombre d'onde en fonction des groupements fonctionnels.....	90
Tableau 3.6 Protocole de vieillissement des composites	92
Tableau 3.7 Caractéristiques physiques et thermiques : Conditions aux limites	99

Tableau 3.8 Dimension des designs.....	100
Tableau 4.1 Caractéristiques physiques des fibres d'eucalyptus	102
Tableau 4.2 Masse volumique apparente des fibres de quelques espèces	102
Tableau 4.3 Angle de contact et énergie de surface.....	103
Tableau 4.4 Masse volumique des composites PEBD-Eucalyptus.....	104
Tableau 4.5 Composition des fibres selon la fraction granulométrique	105
Tableau 4.6 Comparaison des performances des résultats avec la littérature	108
Tableau 4.7 Récapitulatif de la résistance maximale à la traction des composites.....	110
Tableau 4.8 Module de Young de la traction des composites PEBD vierge et recyclé	110
Tableau 4.9 Récapitulatif du module de cisaillement et du coefficient de poisson	114
Tableau 4.10 Récapitulatif de la résistance maximale à la flexion des composites.....	116
Tableau 4.11 Module de Young a la traction des composites PEBD vierge et recyclé.....	116
Tableau 4.12 Énergie absorbée et résilience aux chocs des composites.....	119
Tableau 4.13 Humidité relative des bio-composites.....	136
Tableau 4.14 Masse à saturation des composites PEBD _V /fibre d'eucalyptus	137
Tableau 4.15 Masse à saturation des composites PEBD _R /fibre d'eucalyptus.....	138
Tableau 4.16 Coefficient de diffusion des différents composites PEBD _V /Eucalyptus	143
Tableau 4.17 Coefficient de diffusion des différents composites PEBD _R /Eucalyptus	143
Tableau 4.14 Coefficient de diffusion: 1ere absorption.....	146
Tableau 4.18 Énergie d'activation des composites à l'absorption.....	149
Tableau 4.19 Énergie d'activation des composites à la réabsorption	149

Tableau 4.20 Récapitulatif des phénomènes de réversibilité du vieillissement.....	152
Tableau 4.21 Coefficient de diffusion: 2eme absorption.....	155
Tableau 4.22 Bande d'absorption de quelques groupements fonctionnels	161
Tableau 4.23 Propriété de traction des composites vieillis de 23 à 75°C	166
Tableau 4.24 Influence du taux de fibre sur les propriétés en flexion des vieillis.....	168
Tableau 4.25 Résilience aux chocs Charpy des composites vieillis	172
Tableau 4.26 Conductivité thermique en fonction des paramètres.....	177

Liste des symboles

Symbole	Définition
G^*	Module de cisaillement complexe
E^*	Module d'élasticité complexe
E'	Module de conservation d'énergie
E''	Module de perte d'énergie
$\tan\delta$	Coefficient d'amortissement
2θ	Angle de déviation du faisceau
σ	Contrainte
ε	Déformation
M_t/M_m ou M_t/M_∞	Absorption normalisée selon Fick
β	Probabilité qu'une molécule liée soit libre
γ	Probabilité qu'une molécule libre soit liée
n	Mécanisme de diffusion entre les éléments
D	Coefficient de diffusion
V_f	Fraction volumique de fibre
V_m	Fraction volumique de matrice
W_f	Fraction massique de fibre
W_m	Fraction massique de matrice
$\gamma_S^p + \gamma_S^d$	Énergie de surface totale de fibre
$\gamma_L^p + \gamma_L^d$	Énergie de surface totale de liquide
$\frac{rL^2}{6d}$	Déflexion à mi-portée
q	Densité de flux de chaleur
k	Conductivité thermique
α	Effusivité thermique
T	Température
E_a	Énergie d'activation
R	Constante de gaz parfait
$[C]_e$	Matrice de capacité thermique élémentaire
$[K]_e$	Matrice de conductivité thermique élémentaire
$\{\varphi\}_e$	Vecteur élémentaire du flux aux nœuds
ω	Période de déformation du matériau

Liste des abréviations

Acronymes	Français
GES	Gaz à effet de serre
PE	Polyéthylène
PP	Polypropylène
PS	Polystyrène
PEBD _V	Polyéthylène basse densité vierge
PEBD _R	Polyéthylène basse densité recyclé
PEHD	Polyéthylène haute densité
PE-g-MA	Polyéthylène greffé à l'anhydride maléique
PDC	Peroxyde de Dicumyl
TEMPO	2,2,6,6-Tétraméthyl-1-pipéridinyloxy
TD	Thermodurcissable
TP	Thermoplastique
ATG	Analyse thermogravimétrique
DMA	Analyse mécanique dynamique
DRX	Diffraction aux rayons-X
FTIR-ATR	Spectroscopie infra-rouge à transformé de Fourier
MEB-EDX	Microscopie électronique à balayage couplé au spectroscopie X à dispersion d'énergie
ASTM	Société américaine pour les essais des matériaux
UQTR	Université de Québec à Trois-Rivières
UL	Université de Lomé
GIP-Togo	Industrie verte de plastique Togo
ENPRO-Togo	Écosystème Naturel Propre Togo
I2E3-UQTR	Institut d'innovation en écomatériaux écoproduits et éco énergies à base de biomasse-UQTR
EN	Norme européenne
FQA	Analyseur de la qualité de fibres (français)
3-APTES	3-Aminopropyltriéthoxysilane
3-MPTMS	3-Mercaptopropyltriméthoxysilane
MPS	Méthylpropylsilane
TVS	Triéthoxyvinylsilane
PEBD _V 15ENT	Composite PEBD vierge renforcé par 15% de fibres non traitées
PEBD _V 15ET	Composite PEBD vierge renforcé par 15% de fibres traitées

PEBD _V 25ENT	Composite PEBD vierge renforcé par 25% de fibres non traitées
PEBD _V 25ET	Composite PEBD vierge renforcé par 25% de fibres traitées
PEBD _R 15ENT	Composite PEBD recyclé renforcé par 15% de fibres non traitées
PEBD _R 15ET	Composite PEBD recyclé renforcé par 15% de fibres traitées
PEBD _R 25ENT	Composite PEBD recyclé renforcé par 25% de fibres non traitées
PEBD _R 25ET	Composite PEBD recyclé renforcé par 25% de fibres traitées

Chapitre 1 - Introduction

1.1 Contexte général de la thèse

Dans cette étude, deux contextes sont sélectionnés et présentés de manière concise. Dans un premier contexte, il s'agit de la valorisation des déchets de plastiques, source de pollution importante dans les pays du sud dont le Togo. Plusieurs voies traditionnelles existent telles que l'incinération, l'enfouissement pour se débarrasser des plastiques après usage. Selon les travaux d'Alaki-Issi et al. [1], 10 % des déchets plastiques, contenant 85,76 % de polyéthylène basse densité (PEBD), sont produits par les ménages de la capitale togolaise. En s'appuyant sur les données de Koledzi et al.[2], la production journalière de déchets plastiques dans la capitale, Lomé, est estimée à 95 tonnes/jour en saison sèche et à 119 tonnes/jour en saison humide. La gestion de ces déchets représente une charge importante pour la municipalité, en raison des coûts et de la logistique liée au stockage, à la collecte, au transport et à l'élimination. Malgré les efforts déployés dans la gestion des déchets plastiques, principalement de type thermoplastique, de nombreuses alternatives restent encore peu étudiées et non exploitées. Les résultats des campagnes de caractérisation des déchets réalisés dans la ville de Kara (Togo) en 2022 montrent que la fraction plastique y est particulièrement élevée. La [figure 1.1](#) présente les résultats de cette campagne de caractérisation.

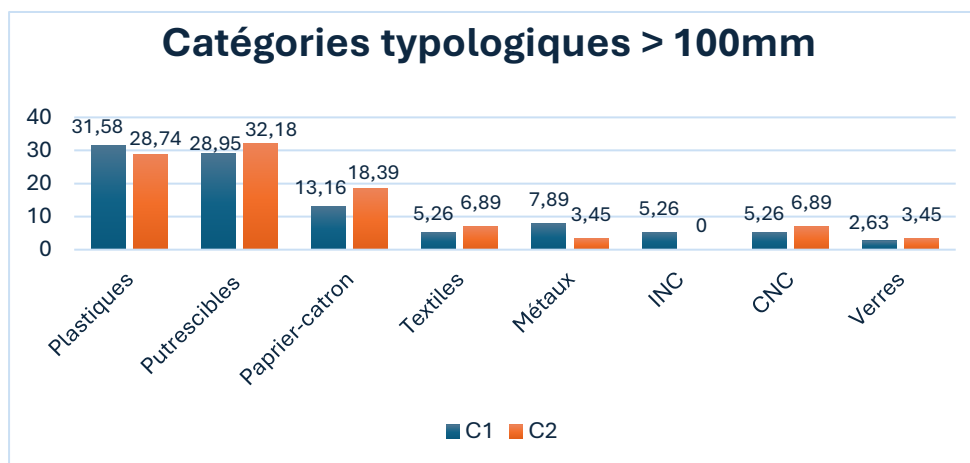


Figure 1.1 Pourcentage massique des fractions de déchets de la ville de Kara (Togo)

Face à une telle situation, il est nécessaire de rechercher des alternatives permettant une prise en charge plus rationnelle et durable des déchets thermoplastiques. Nous voulons explorer des voies de recyclage moins polluantes, plus attractives et s'inscrivant dans une démarche de préservation d'un environnement. Si la combustion des déchets plastiques constitue l'alternative la plus utilisée dans la plupart des projets, d'autres préfèrent s'en débarrasser par enfouissement, par déversement dans des décharges sauvages ou encore par simple abandon dans la nature. Il est donc important de rechercher des solutions susceptibles de retenir l'attention des acteurs en charge de la gestion de ces effluents solides, en privilégiant l'étude de cas de réduction du volume de ces déchets plastiques par des procédés :

- En granules pouvant servir comme matériau pur de fabrication des pièces,
- En matrice renforcée par des fibres naturelles afin de produire des matériaux composites destinés à la formulation des pièces biosourcées,
- En matériaux composites durables et écologiques.

Dans un deuxième contexte, la demande croissante en matériaux composites durables et surtout écologiques, ainsi que la promotion de l'économie verte respectueuse de l'environnement, poussent et les chercheurs industriels à s'intéresser à l'étude et à l'utilisation de matériaux biosourcés. Plusieurs approches ont été envisagées par les chercheurs, notamment en ce qui concerne la compatibilité de ces matériaux, leur durabilité face aux facteurs environnementaux, ainsi que leurs performances pour substituer les matériaux conventionnels tels que les fibres de carbone, d'aramide ou de verre, dont les coûts et l'impact environnemental demeurent préoccupants.

Avec l'essor des pièces purement en plastique fonctionnant sous de faibles sollicitations mécaniques, la dépendance aux gisements pétroliers n'a cessé de croître. Une solution envisagée pour réduire cette dépendance est le recyclage des résidus plastiques. Pour leur conférer de meilleures performances mécaniques et physiques, ces matériaux, autrefois constitués uniquement de plastique, sont aujourd'hui renforcés par des fibres naturelles telles que le chanvre, le sisal, le kénaf, le lin, etc. Ces fibres présentent en effet de nombreux atouts : légèreté, faible coût, recyclabilité, biodégradabilité avérée, caractère non abrasif,

faible consommation énergétique, innocuité pour la santé et surtout renouvelable [3-4]. À l'Université de Québec à Trois-Rivières, plusieurs chercheurs ont travaillé sur les fibres de diverses natures. Pour leur part, Koffi et al.[5-6-7-8] ont réalisé des travaux sur les fibres de deux espèces de feuillus que sont le Bouleau et le tremble toutes deux abondantes au Québec avec comme matrice PEHD (Polyéthylène haute densité) et PP (Polypropylène).



Figure 1.2 Polyéthylène et ses applications

Le polyéthylène (PE) est généralement utilisé dans la formulation des matériaux composites en raison de ses multiples avantages, notamment son faible coefficient de frottement, sa stabilité chimique et sa bonne ténacité. Il est largement employé dans la tuyauterie et dans la fabrication d'objets de protection, tels que les câbles électriques, grâce à sa rigidité diélectrique et à son caractère isolant [9-10] Par ailleurs, le PE est également utilisé dans divers secteurs d'activités, tels que la production d'emballages, le secteur de l'énergie thermique, l'automobile, le biomédical et même l'aérospatial [11-12].

1.2 Problématique

L'avènement de la science des matériaux composites renforcés par des fibres de bois ne s'est amplifié que récemment. Considérés comme des matériaux innovants et polyvalents, ils présentent un avantage notable dans la conception de pièces légères, dont les propriétés mécaniques, physiques et chimiques sont supérieures à celles des constituants pris individuellement.

L'incorporation de fibres de bois dans une matrice de résine synthétique ou dans un polymère organique, comme les thermoplastiques et les thermodurcissables, constitue une

voie prometteuse pour réduire l'utilisation des polymères issus du pétrole, contribuant ainsi à la diminution à la réduction des émissions des gaz à effet de serre (GES). L'utilisation des fibres naturelles du bois dans la fabrication des matériaux composites présente plusieurs avantages, tels que la légèreté, la résistance à la corrosion, la faible conductivité thermique et électrique. De plus, la recyclabilité de ces matériaux est facilitée, tout comme leur entretien. En particulier, lorsqu'il s'agit de pièces nécessitant habituellement une lubrification, comme les engrenages métalliques, les besoins deviennent importants.

Cependant, ces matériaux verts sont généralement utilisés dans la fabrication de revêtements de sol, de terrasses, de clôtures, ainsi que dans les industries automobile, aéronautique et aérospatiale, en raison de leurs propriétés de légèreté, de ductilité, de rigidité et de nombreuses autres caractéristiques exploitables selon les besoins. Selon le domaine d'application, la notion de matériau composite dépend fortement de l'usage final envisagé dans la conception du produit fini, ainsi que de la méthode de moulage adoptée. Toutefois, pour un matériau donné, les propriétés associées dans leur usage sont de deux origines [13] :

- ✓ La composition chimique de ses derniers, et qui est liée à la nature des espèces atomiques qui les constituent;
- ✓ La microstructure dépend de l'organisation des atomes les constituants.

Ces propriétés influencent directement l'adhésion du matériau composite. L'adhésion interfaciale entre la matrice et le renfort constitue en effet un facteur déterminant de la qualité et des performances globales du matériau. Elle représente l'un des enjeux majeurs dans la formulation des composites. La problématique de compatibilité résulte ainsi de l'affinité entre les constituants de nature différente.

La maîtrise de la chimie de surface et de la microstructure des constituants d'un composite permet d'anticiper et de contrôler les interactions susceptibles de se produire, lesquelles conditionnent en grande partie l'adhésion. L'intégration de fibres naturelles comme éléments de renfort dans les composites présente l'avantage de réduire la fraction massique de polymères vierges thermoplastiques (TP) ou thermodurcissables (TD) qui aurait été

nécessaire en l'absence de renforts. Leur emploi dans les matrices polymères recyclées contribue également à limiter la fraction volumique de ces effluents solides.

Néanmoins, la durabilité de ces matériaux face aux facteurs environnementaux (humidité, variations thermiques, attaques biologiques telles que champignons et moisissures, rayonnement UV, etc.) demeure un défi important auquel la recherche s'attache. Au Canada, la disponibilité des essences de bouleau et de tremblement justifie leur emploi privilégié dans la conception de composites. Au Togo, la présence abondante d'eucalyptus constitue un atout pour sa valorisation dans la fabrication de matériaux à base de TP et de TD, offrant ainsi la possibilité d'étudier et de comparer le comportement de cette essence.

Cependant, compte tenu des avantages offerts par le polyéthylène (PE), notre étude s'inscrit dans la perspective de développement des matériaux composites utilisant du polyéthylène basse densité (PEBD), à la fois vierge et recyclé (issu de déchets), comme matrice, et des fibres naturelles de l'essence *Eucalyptus* échantillonnée au Togo et produites à l'I2E3-UQTR. Le but est de caractériser le comportement de ces matériaux dans diverses conditions environnementales et d'évaluer leurs performances en termes de propriétés thermomécaniques et de durabilité. Cette thèse repose sur une méthodologie complète de caractérisation, appliquée aussi bien aux constituants qu'aux composites, ainsi que sur une analyse approfondie visant à fournir des résultats scientifiques fiables et à contribuer à la compréhension des mécanismes influençant la performance des composites.

1.3 Objectif Général

Modification chimique des fibres d'eucalyptus par traitement à la solution de NaOH, visant à optimiser les propriétés chimiques des fibres et à renforcer les performances mécaniques des composites qui en sont issus.

- **Objectifs spécifiques**

Spécifiquement, il découle de cet objectif général, les objectifs spécifiques énumérés en six points et présentés dans l'ordre suivant:



1.4 Questions d'étude

Afin de conduire cette étude de manière structurée, un ensemble de questions a été formulé (voir [figure 1.3](#)) afin d'orienter l'enquête et de guider chacune des étapes menant à la conclusion et à l'obtention des résultats attendus. À ce titre, le diagramme suivant illustre les questionnaires utilisés dans la présente étude.

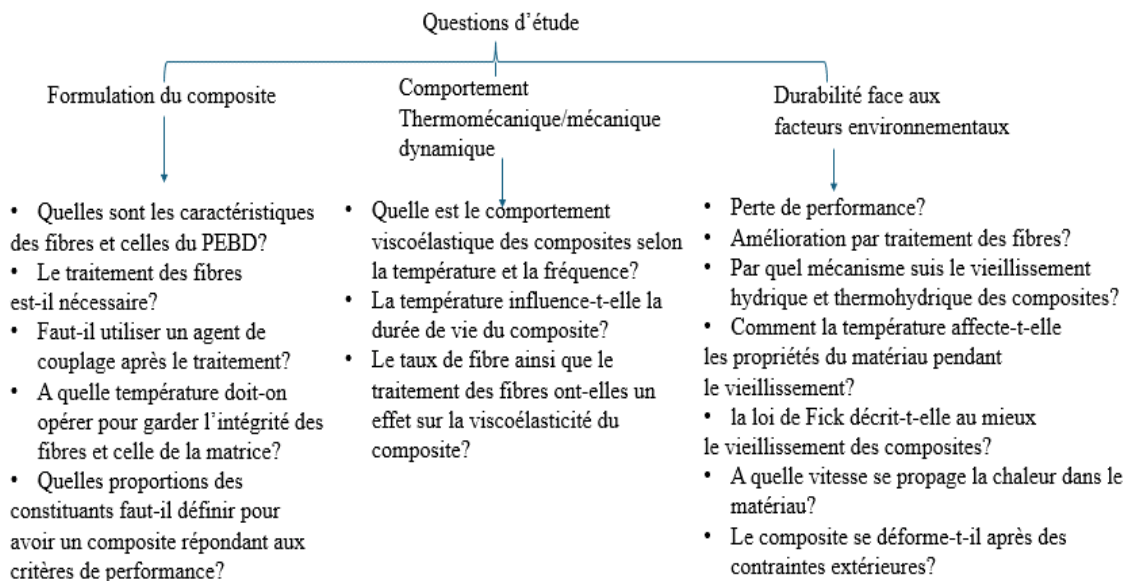


Figure 1.3 Diagramme des questions d'études

1.5 Contenu de la thèse

Cette étude est structurée en six (6) chapitres.

Le premier chapitre présente l'introduction générale et le contexte de l'étude, en mettant l'accent sur la problématique qui a motivé ce projet. Il aborde le recyclage du plastique, qu'il soit à l'état de résidu ou vierge, et explore les possibilités de valorisation de ces matériaux par l'élaboration de composites.

Le deuxième chapitre est consacré à la présentation des matériaux composites à base de fibres végétales et de thermoplastiques. Il décrit les différents constituants entrant dans la formulation des composites ainsi que leurs propriétés. Ce chapitre présente également les types d'analyses généralement réalisées pour comprendre le comportement des matériaux composites, ainsi que les thématiques en lien avec le sujet de l'étude. Les théories et les différentes approches méthodologiques développées dans le domaine des matériaux composites sont explorées, de même que les méthodes de traitement des fibres naturelles. Par ailleurs, ce chapitre fournit une vue d'ensemble sur le genre *Eucalyptus*.

La méthodologie de la thèse est détaillée dans le troisième chapitre. Il présente le procédé expérimental basé sur une approche comparative, incluant les méthodes de caractérisation physico-chimique des fibres, le traitement des fibres avec une solution alcaline de NaOH à différentes proportions massiques, ainsi que les différentes approches de formulation des composites et leurs caractérisations mécaniques dynamiques avant et après vieillissement hydrique des échantillons.

Le quatrième chapitre est consacré à la présentation de la :

- Première partie présente les résultats et discussions des essais mécaniques (traction, flexion trois points, résilience Charpy), de mécanique dynamique (DMA), ainsi que des analyses MEB-EDX, IR et DRX réalisées;
- Deuxième partie traite des résultats relatifs à la durabilité (vieillissements hydrothermique et thermique) ainsi qu'aux performances thermiques obtenues par la méthode des éléments finis. Les données expérimentales ont permis l'implémentation sur le modèle constitué;
- Troisième partie présente la procédure envisagée pour la production des éco pavés

Ce paragraphe n'est pas détaillé, car il se veut une piste pour la conception des moules et pour illustrer le potentiel débouché de l'étude. Il est précisé que les éco pavés n'ont pas été produits dans cette étude, en raison de l'endommagement du matériel de moulage.

Le cinquième chapitre présente la conclusion et les perspectives. Il propose un état récapitulatif de l'étude, suivi de la discussion et de la conclusion. Enfin, des recommandations et perspectives sont formulées dans le cadre de cette thèse.

Le sixième chapitre contient les références bibliographiques ainsi que les annexes.

Chapitre 2 - Cadre théorique et recension des écrits

2.1 Matériaux composites

Les matériaux composites sont constitués d'au moins de deux composants, dans le but d'obtenir un produit dont les propriétés dépassent celles des constituants individuels. Parmi ces propriétés, on peut citer la faible densité, la tenue en fatigue, la résistance aux contraintes mécaniques, environnementales et physiques, qui ne sont que quelques exemples des avantages offerts par ces composites. Composés d'une matrice servant de compartiment protecteur pour les renforts, les composites résultant de l'assemblage de composants présentant des caractéristiques spécifiques et de diverses origines. Selon la littérature, plusieurs types de matériaux composites existent et sont généralement classés en trois grandes catégories, selon le type de matrice utilisé [14-15]. Ainsi on distingue :

- Les composites à matrice organique (MCO)
- Les composites à matrice céramique (MCC)
- Les composites à matrice métallique (MCM)

Par ailleurs, étant donné que le type de composite dépend directement du type de matrice hôte, les propriétés des matériaux composites sont également influencées par la taille des matériaux employés comme renforts. La [figure 2.1](#) présente le diagramme des matériaux composite par rapport aux types et tailles du renfort [16].

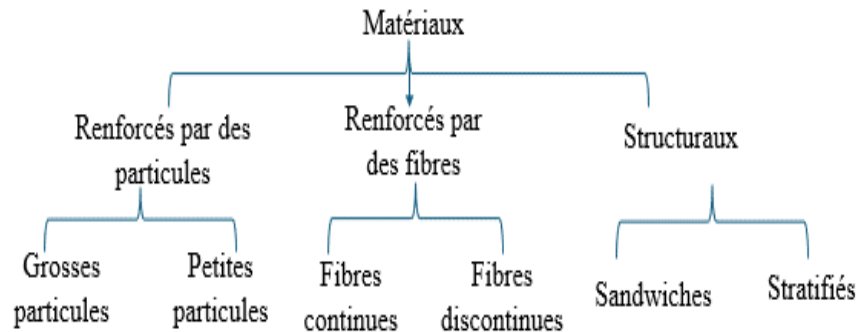


Figure 2.1 Matériaux composites selon le type et la taille du renfort

Les matériaux composites sont formulés en fonction des performances et de la durabilité recherchées pour la ou les pièces à mouler. Compte tenu de leur qualité et de leur résistance

sous diverses sollicitations, les fibres sont davantage utilisées que les particules dans la formulation des composites. Au cours des dernières décennies, les fibres les plus employées sont celles de carbone, de verre et d'aramide, en raison des avantages qu'elles offrent. Cependant, avec l'essor des technologies liées au bois et à ses dérivés, les fibres naturelles sont de plus en plus exploitées, tant dans le domaine de la recherche que dans le secteur industriel. La priorité semble être accordée aux fibres de bois, qu'il s'agit des résineux ou non.

2.1.1 Renforts fibreux

Les fibres végétales sont de plus en plus utilisées comme renfort dans les matériaux biosourcés. Les fibres de bois, sous forme de poudres (appelées fibres de xylème), sont également employées dans la formulation des composites [17]. Cette tendance s'explique par les nombreux avantages offerts par les fibres naturelles végétales, tels que leur caractère renouvelable, leur faible densité, un coût de production et de fourniture relativement bas, ainsi que leurs bonnes propriétés mécaniques.

Ces fibres sont généralement classées selon leur origine

- Fibres issues des tiges : lin, chanvre, jute, kénaf, bois résineux et feuillus ;
- Fibres issues des feuilles : sisal, abaca,
- Fibres issues des graines : coton, kapok,
- Fibres issues des fruits : coco

Par ailleurs, de nombreux travaux de recherche dans le domaine des matériaux composites biosourcés se sont majoritairement concentrés sur les fibres de lin, de sisal, de chanvre, de bouleau, de tremble et de jute [18-21-25-26-27-28].

Cependant, la performance des matériaux dépend essentiellement de la qualité des fibres naturelles (longueur, diamètre, facteur de forme, etc.), de leur chimie de surface (types de liaisons, composition, etc.), de leurs propriétés physiques (densité, énergie de surface dispersive et polaire, résistance à la chaleur, etc.), de leurs propriétés mécaniques (module

de traction, résistance à la traction, allongement à la rupture) ainsi que de leur durabilité face aux facteurs environnementaux tels que l'humidité, les champignons, les moisissures et le rayonnement UV.

Plusieurs auteurs de la littérature ont présenté certaines de ces propriétés et estiment que certaines fibres naturelles peuvent être comparables aux fibres synthétiques. En effet, les travaux de Koffi, et al. [23], Mijiyawa F., Koffi D. et al.[24] Présentent la qualité et le module d'élasticité des fibres de bouleau et de tremblement, comme indiqué dans le [tableau 2.1](#). D'après les auteurs [30-31-32-33] ayant travaillé sur les fibres de lin, de chanvre, de sisal et de coco, la déformation à la rupture, la résistance à la traction et le module d'élasticité varient respectivement entre 1 et 75 %, 15 et 2000 MPa, et 3 et 85 GPa. Les fibres de lin se distinguent particulièrement par une résistance élevée (2000 MPa) et un module élastique de 85 GPa [25]. Cette performance mécanique des fibres de lin est comparable à celle de l'acier (1000 -2500 MPa) et du verre (2000 - 3500 MPa), telles que présentées par [29] dans leurs travaux. Par ailleurs, le [tableau 2.2](#) présente les propriétés physico-mécaniques de quelques fibres naturelles [30]. L'ensemble de ces caractéristiques confère aux fibres naturelles leur rôle de renfort efficace dans les matériaux composites.

Tableau 2.1 Propriété mécanique et FQA des fibres de bouleau et de tremble

Dimension	Bouleau	Tremble
Longueur (mm)	0,49	0,42
Diamètre (µm)	24,7	24,6
Facteur forme (l/d)	19,79	17,11
Module élastique (GPa)	13,9	9,9

La **Figure 2.2** est une illustration de quelques fibres naturelles utilisées dans le domaine des matériaux biosourcés ainsi que dans les matériaux d'isolation thermique. Le [tableau 2.3](#) présente l'avantage ainsi que l'inconvénient des fibres d'origine végétale [36-37].



Figure 2.2 Quelques fibres naturelles

Tableau 2.2 Propriétés mécaniques et physique de quelques fibres naturelles

Fibre	Résistance à la traction (MPa)	Module de Young (GPa)	Élongation (%)	Densité (g/cc)
Abaca	400	12	3-10	1,5
Bagasse	290	17	-	1,25
Bambou	140-230	11-17	-	0,6-1,1
Lin	345-1035	27,6	2,7-3,2	1,5
Chanvre	690	70	1,6	1,48
Jute	393-773	26,5	1,5-1,8	1,3
Kénaf	930	53	1,6	-
Sisal	511-635	9,4-22	2,0-2,5	1,5
Ramie	560	24,5	2,5	1,5
Palmier à huile	248	3,2	25	0,7-1,55
Ananas	400-627	1,44	14,5	0,8-1,6
Coco	175	4-6	30	1,2
Curaua	500-1150	11,8	3,7-4,3	1,4

Tableau 2.3 Avantages et inconvénients des fibres végétales

Avantages	Inconvénients
<ul style="list-style-type: none"> -Faible coût -Biodégradable pour l'environnement -Ressources renouvelables -Propriété mécaniques spécifiques importantes (résistance et rigidité) -Demande peu d'énergie pour la production -Non abrasif pour les outillages -Bon isolant thermique et acoustique - Neutre pour l'émission de CO₂ - Pas de résidus après incinération -Pas d'irritation cutanée lors de la manipulation des fibres 	<ul style="list-style-type: none"> -Absorption d'eau -Biodégradabilité (pour le matériau) -Fibres anisotropes pour des applications industrielles -Nécessité de gestion d'un stock -Faible stabilité dimensionnelle -Faible tenue thermique (200 à 300°C) -Variation de qualité en fonction du lieu de croissance, des conditions météorologiques - Renfort discontinu

2.1.2 Matrices polymères

Dans le domaine des matériaux composites, les thermodurcissables (TD) et les thermoplastiques (TP) sont largement utilisés comme matrices de base dans les formulations de composites renforcés par des fibres. Dans cette section, nous nous concentrons uniquement sur les travaux et les avancées concernant les TP, et plus précisément sur la polyéthylène basse densité (PEBD). Les propriétés de ce thermoplastique répondent particulièrement aux objectifs de notre projet, notamment la formulation d'un composite offrant une forte adhérence entre la matrice et le renfort.

En effet, le polyéthylène basse densité est un polymère obtenu par polymérisation de l'éthylène à haute pression et présente une structure ramifiée, contrairement au polyéthylène haute densité (PEHD), qui possède une structure linéaire. Cette structure ramifiée du PEBD favorise la formation de liaisons efficaces avec les fibres végétales.

2.2 Polyéthylène basse densité

Le PEBD est un polymère semi-cristallin présentant une densité comprise entre 0,91 et 0,92 g/cm³. Il possède un taux de cristallinité évalué entre 43 et 50 %, avec une température

de fusion allant de 105 à 115 °C lorsqu'il est utilisé dans divers objets [43-44]. Il est résistant aux agents chimiques tels que les acides faibles, les acides forts non oxydants, ainsi que les bases faibles et fortes [38].

Ne possédant pas de groupements hydroxyle, le PEBD est pratiquement non mouillable par l'eau, ce qui lui confère un caractère hydrophobe et explique son utilité dans de nombreux domaines tels que l'emballage, le jouet, le sport, ou encore l'aéronautique etc. Selon [40], la **Figure 2.3** illustre la structure chimique et la morphologie du PEBD, mettant en évidence les ramifications ainsi que la présence de zones semi-cristallines et amorphes.

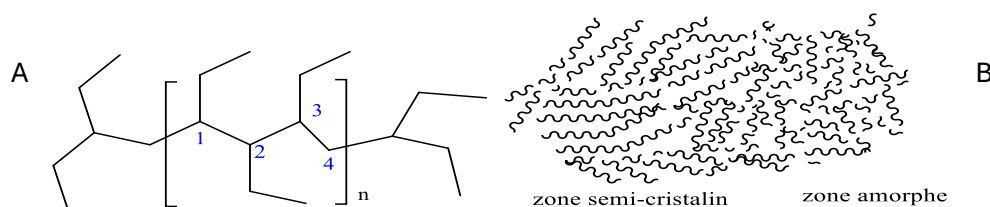


Figure 2.3 A = Structure chimique du PEBD, B = aspect morphologique de PEBD

La qualité du PEBD varie en fonction de la matière première utilisée pour sa synthèse (qualité du polyéthylène vierge ou recyclé) ainsi que des adjuvants tels que les colorants. Il est donc important de connaître les propriétés caractéristiques du PEBD afin d'envisager son utilisation dans la formulation des composites.

Parmi les propriétés inspirées du PEBD, déterminantes pour les formulations de composites, figurent:

- Le taux de cristallinité, qui permet de prédire la plage de température de fonctionnement en dessous de celle de la transition vitreuse;
- L'indice de fluidité pour estimer l'extrudabilité;
- La contrainte à l'écoulement en traction qui est un critère d'élasticité permettant de savoir sous des sollicitations données on aura une déformation plastique où on restera dans le domaine élastique;
- Le module d'élasticité en traction ou module de Young est la constante associée à un matériau qui donne relation entre sa contrainte de traction et sa déformation;

- L'allongement à la rupture qui donne la capacité du PEBD à l'allonger avant de rompre;
- La résistance à la rupture qui est caractéristique de la contrainte maximale avec laquelle un matériau peut être chargée;
- La dureté shore qui montre sur une échelle donnée la dureté des élastomères tels que les PEBD.

Le **Tableau 2.4** recense les gammes des valeurs de ces paramètres ou critères pour deux types de polyéthylène basse densité à savoir le PEBD-L et le PEBD-R [46-47-48].

Tableau 2.4 Propriété physico-mécanique de PEBD

Paramètres ou critères de qualité	PEBD-R	PEBD-L
Masse volumique (g/cm ³)	0,918-0,935	0,918-0,927; 0,915-0,940
Indice de fluidité -190°C (g/10min)	0,2-6	2-70; 0,9-4; 4-50
Contrainte à l'écoulement en traction (MPa)	8-15,5	7-10; 9-20
Résistance à la rupture (MPa)	9-23	8-10; 20-30
Module d'élasticité en traction (MPa)	150-1000	300-800; 600-1200
Allongement a la rupture (%)	200-500	190-230; 200- 600
Dureté shore	40-47	46-63

2.3 Dégradation thermique du PEBD

La **Figure 2.4** présente la décomposition du PEBD en fonction de la température. Ce graphique montre que la dégradation du PEBD commence à partir de 275 °C et atteint 90 % à 450 °C. Cela signifie qu'au-delà de 450 °C, l'ensemble du polymère est transformé en CO₂ et en eau, ou en d'autres éléments simples. Ehrenstein et al.[44], d'après l'ATG, ont obtenu les mêmes intervalles des température qui sont responsable de la perte du polyéthylène. Les auteurs ont montré que la dégradation évolue lorsque les vitesses élémentaires aussi augmentent de 2°/mn, 5°/ mn, 10°/mn et 20°/mn.

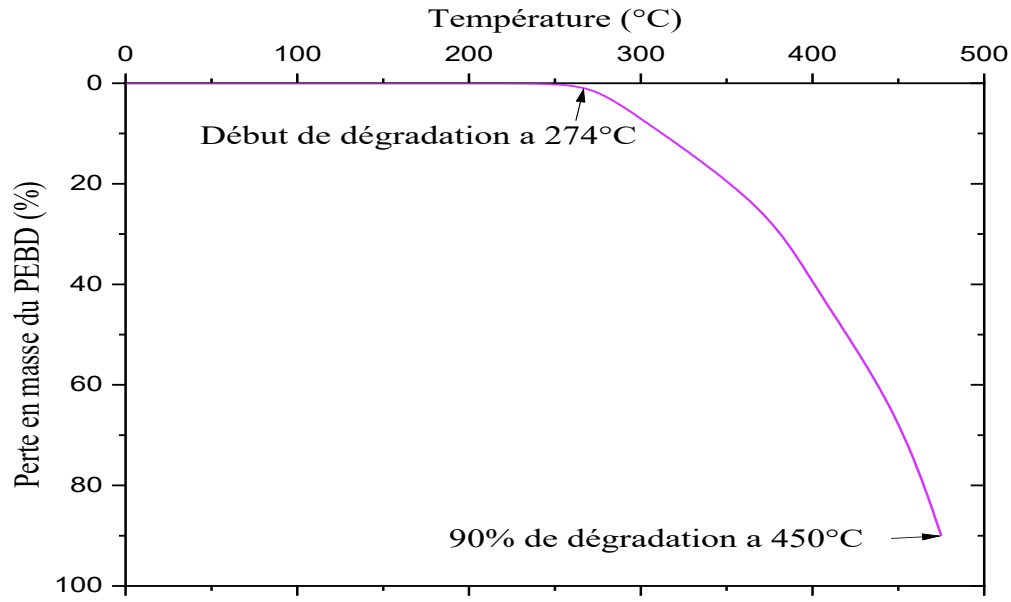


Figure 2.4 Décomposition du PEBD en fonction de la température

De ce fait, la connaissance du comportement thermique du polymère et de la cellulose permet de mieux contrôler le composite et de déterminer la plage de températures à laquelle il convient d'opérer. En effet, l'analyse comparative des deux graphiques montre que la dégradation des fibres cellulosiques commence plus tôt que celle du polymère PEBD. Cette différence impose certaines contraintes lors des opérations de moulage par injection :

- La nécessité de conserver la quasi-totalité du matériau composite face à la température d'injection, afin de garantir le maintien de ses propriétés intéressantes,
- La minimisation des effets indésirables (combustion, décohésion du matériau) susceptibles d'altérer les propriétés mécaniques.

Au regard de ce qui précède, il est nécessaire de minimiser le problème en contrôlant les plages thermiques depuis la formulation du composite jusqu'à la production des éprouvettes destinées aux essais mécaniques, dynamiques et physiques. Cependant, ces contrôles doivent être réalisés en opérant à des températures exclusivement inférieures aux seuils de dégradation, tout en garantissant une malléabilité suffisante du matériau dans les conditions requises.

Malgré l'ensemble des dispositions entreprises, une difficulté subsiste au niveau de la presse à injection, lorsque celle-ci fonctionne autour de 300 °C. En effet, la presse utilisée dans notre étude est conçue pour les polymères et non pour les composites, ce qui a rendu le contrôle plus délicat. Toutefois, un point positif réside dans la durée relativement courte du passage du composite dans la presse à injection (22 secondes). Ce constat a conduit à formuler l'hypothèse selon laquelle la dégradation du composite au cours de cette étape est insignifiante, en raison à la fois de la brièveté du temps de séjour et du maintien de la température en deçà des seuils de dégradation des fibres et du polymère.

2.4 Analyse mécanique dynamique DMA

Considérant la nature viscoélastique des polymères et des élastomères, l'analyse mécanique dynamique (DMA) s'appuie sur ces principes pour étudier leurs caractéristiques mécaniques. Elle permet notamment de déterminer le module de cisaillement complexe G^* qui est une résultante du module de conservation G' caractérisant la rigidité du matériau et du module de perte G'' qui caractérise le comportement visqueux de ces matériaux. La nature complexe de G^* permet de déterminer le facteur d'amortissement qui est en fait le déphasage $\tan(\delta)$ entre les parties réelle et imaginaire. Par analogie, le même principe s'applique au module d'élasticité complexe E^* . Les relations littéraires des modules complexe G^* et E^* peuvent s'écrire selon les équations [2.1](#) et [2.2](#).

$$G^* = G' + iG'' \quad ; \quad \tan \delta = \frac{G''}{G'} \quad 2.1$$

$$E^* = E' + iE'' \quad ; \quad \tan \delta = \frac{E''}{E'} \quad 2.2$$

L'analyse DMA est réalisée par l'application d'une force excitatrice induisant une déflexion du matériau, selon le mode expérimental adopté (multifréquence, multicontrainte/multidéformation, fluage/relaxation, contrainte/déformation à force contrôlée). La [figure 2.5](#) illustre de manière schématique le principe de l'analyse DMA [45].

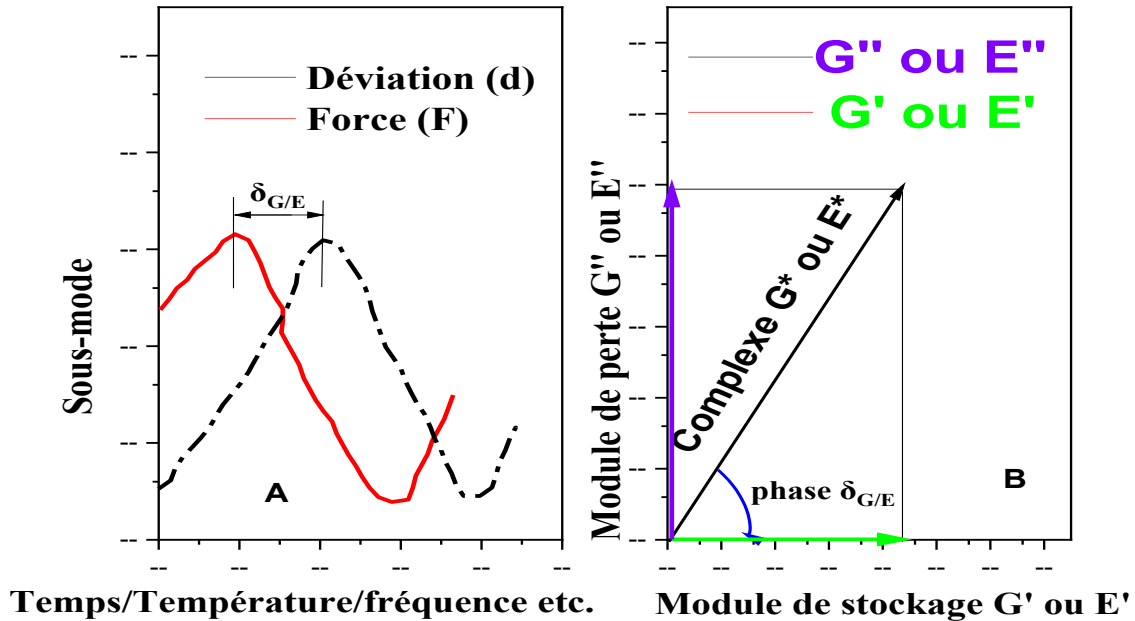


Figure 2.5 DMA: A- contraintes appliquées; B- module complexe

La nature viscoélastique des polymères leur confère un état vitreux à basse température, caractérisé par un module élevé, et un état caoutchouteux à haute température, associé à un module faible [46]. Dans les matériaux élastiques, la contrainte et la déformation sont en phase, c'est-à-dire que les deux phénomènes se produisent simultanément, à l'image du principe d'action et de réaction. En revanche, ce comportement diffère dans les matériaux visqueux, où l'on observe un déphasage temporel entre la contrainte et la déformation, correspondant à un angle de 90° ($\pi/2$ radian).

En revanche, dans les matériaux viscoélastiques, à l'instar des polymères thermoplastiques, il existe un décalage de phase entre la contrainte et la déformation des composantes élastiques et visqueuses, compris entre 0 et 90° . Ce déphasage caractérise le phénomène de relaxation du matériau. Par ailleurs, dans les solides élastiques, l'amortissement est nul en raison de l'absence de composante déphasée. Le taux d'amortissement, également désigné sous le terme de facteur de perte, correspond au rapport entre l'énergie dissipée par cycle et l'énergie maximale potentielle stockée au cours du même cycle. Enfin, pour la courbe dynamique module-température, le module élastique de conservation E' présente une inflexion maximale, point auquel la transition vitreuse est obtenue [52-53-54].

Par ailleurs, les composantes réelles et imaginaires, ainsi que le coefficient d'amortissement, ne peuvent être déterminés qu'à partir de l'analyse DMA, grâce à l'application de forces oscillantes en fonction de la fréquence, de la température et du temps définis.

2.5 Analyse des travaux de la littérature sur DMA

Il ressort de notre analyse, d'après les travaux recensés sur la caractérisation des matériaux composites par DMA, que, dans la plupart de ces études, l'objectif était de comprendre le comportement viscoélastique des matériaux étudiés. La majeure partie de ces travaux à analyser le caractère ductile, rigide ou caoutchoutique des matériaux, parfois en mettant l'accent sur les changements de phase, sans toutefois établir le lien inhérent qui pourrait exister entre la structure chimique du matériau et cette propriété de viscoélasticité. Selon ASTM D7028-07, la procédure consiste à déterminer la température de transition vitreuse sèche ou humide des composites à matrice polymère contenant des fibres à module élevé, 20 GPa ($> 3.10^6$ psi) et fonctionne selon les types d'appareils.

Il est nécessaire de rappeler ici que, théoriquement, le comportement mécanique, thermomécanique ou dynamique des matériaux, quelle que soit leur nature et celle de leurs constituants, dépend de leur composition chimique, c'est-à-dire de l'organisation moléculaire et atomique ainsi que des types de liaisons inter- et intra-atomiques et moléculaires. Sur la base de cette approche, il devient possible d'avoir une idée de la cristallinité du matériau. À cet effet, des hypothèses peuvent être formulées à partir des résultats obtenus afin de favoriser une compréhension à l'échelle microscopique, même si les analyses complémentaires restent limitées.

Par ailleurs, les plages de température généralement utilisées par les auteurs se situent, pour la plupart, dans une gamme raisonnable permettant de simuler le fonctionnement réel des matériaux. Ces choix sont généralement justifiés sur la base des normes ou de la nature des polymères. En général, les températures expérimentales restent en dessous de la température de fusion du matériau. Pour certains auteurs, la température est choisie de manière à permettre la détection de la température de transition vitreuse. Il convient de rappeler que la connaissance de la température de transition vitreuse est essentielle pour

déterminer le domaine d'application du matériau, et que la température de fonctionnement réelle doit toujours rester inférieure à cette transition afin de garantir la durabilité et d'éviter tout endommagement du matériau.

La fréquence constitue un paramètre clé dans la caractérisation mécanique des matériaux viscoélastiques, car elle permet de comprendre la perte d'énergie du matériau lors de sa réorganisation à la suite de la déformation. Ainsi, pour une faible fréquence, généralement ≤ 1 Hz selon les normes utilisées, l'énergie dissipée par le matériau au cours d'une réponse dynamique est élevée, car celui-ci dispose de plus de temps pour se réorganiser et libérer donc davantage d'énergie. Pour des fréquences ≥ 20 Hz, le phénomène inverse se produit : le matériau n'a pas le temps de se réorganiser, il dissipe donc moins d'énergie tout en en stockant davantage. Les fréquences supérieures à 20 Hz nécessitent un dispositif d'analyse sophistiqué et performant. Selon ces deux plages de fréquences, le matériau est respectivement qualifié de visqueux ou d'élastique, ce qui explique le comportement viscoélastique des matériaux, en particulier des polymères thermoplastiques.

Les procédures expérimentales adoptées sont décrites dans le chapitre de la méthodologie.

Au vu des informations prometteuses fournies par le DMA sur les caractéristiques viscoélastiques des matériaux composites, cette étude se propose d'utiliser cette analyse pour caractériser le comportement mécanique dynamique des composites de polyéthylène basse densité renforcés par des fibres d'eucalyptus. Un accent est également porté sur des paramètres connexes, tels que la viscosité dynamique en fonction de la température et du temps, ainsi que sur la rigidité etc.

2.6 Analyse par Diffractométrie aux R-X

L'étude de la durabilité des composites et de leurs constituants s'avère importante pour définir les charges qui seront appliquées aux matériaux résultants. Elle permet également de déterminer le domaine d'application de ces derniers. La connaissance de l'état de cristallinité des constituants du matériau composite permet de prédire la plage de température de fonctionnement, en dessous de celle de la transition vitreuse du matériau.

La [figure 2.6](#) constitue une représentation adaptée de celles présentées par les auteurs [56-57-58-59] du DRX, du PEBD. Le DRX du PEBD révèle deux types de photos clairement

distinguable par leur intensité. Les photos présentant une forte intensité correspondant aux zones cristallines, tandis que celles présentant une faible intensité indiquant les zones amorphes du polymère.

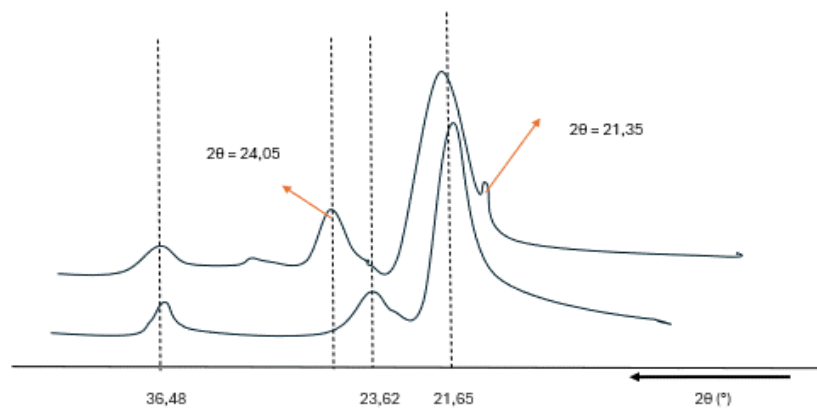


Figure 2.6 Diffraction de R-X de PEBD

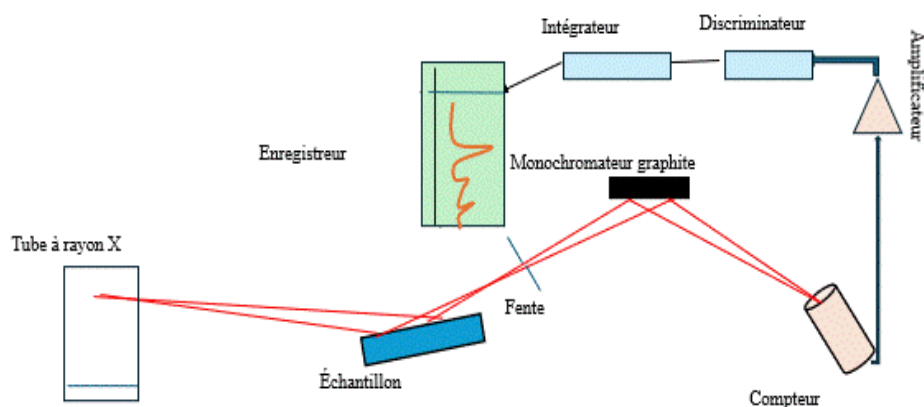


Figure 2.7 Illustration schématique du principe de DRX

La [figure 2.7](#) présente une vue d'ensemble du fonctionnement et du principe d'analyse du diffractomètre aux rayons X. Selon le principe général appliqué aux échantillons en poudre, un faisceau de rayons X est dirigé sur l'échantillon, et l'intensité des rayons X diffusés selon différentes orientations dans l'espace est ensuite analysée. Ces rayons X diffusés interfèrent entre eux, et l'intensité maximale enregistrée dans certaines directions correspond au phénomène de diffraction. L'enregistrement de l'intensité détectée en fonction de l'angle de déviation 2θ du faisceau est réalisé.

Yufeng Ma et al. [54] ont étudié les changements de surface et l'influence du prétraitement à la solution de NaOH et au N- β (aminoéthyl)- γ -aminopropyl triméthoxysilane des fibres

d'eucalyptus sur les propriétés mécaniques des composites fibres d'eucalyptus/mousse phénolique. Ils ont constaté que le DRX des échantillons ne présentait pas de modification structurale majeure, mais que l'intensité des pics révélait le relargage de pectine, d'huiles, d'impuretés et de composés de faible poids moléculaire lors du prétraitement avec NaOH (voir la [figure 2.8](#)).

ASEF = fibres d'eucalyptus prétraitées avec NaOH suivi du traitement au silane

SEF = fibres d'eucalyptus traitées avec silane

UEF = fibres d'eucalyptus non traitées

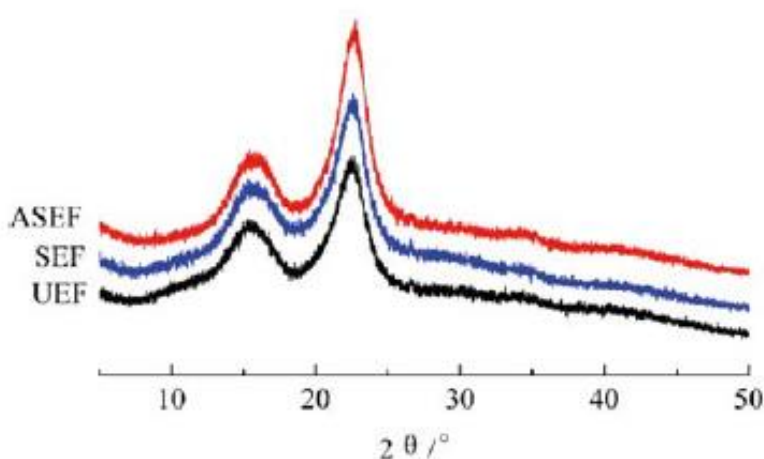


Figure 2.8 DRX des échantillons traités par: silane (bleue); NaOH suivi de silane (rouge) et sans traitement (noire)

La démarche expérimentale de DRX des échantillons analysés dans cette étude est décrite dans le chapitre de la méthodologie.

2.7 Renforts dans les matériaux composites

Comme son nom l'indique, les renforts sont des matériaux utilisés dans le domaine des composites pour renforcer la matrice d'un composite, en lui conférant la capacité d'assurer la transmission des efforts dans des gammes de contraintes mécaniques limitées. Plusieurs types de renforts sont employés selon les besoins spécifiques du composite. Ainsi, la [figure 2.9](#) présente la classification des fibres utilisées pour renforcer les matériaux composites [5-17].

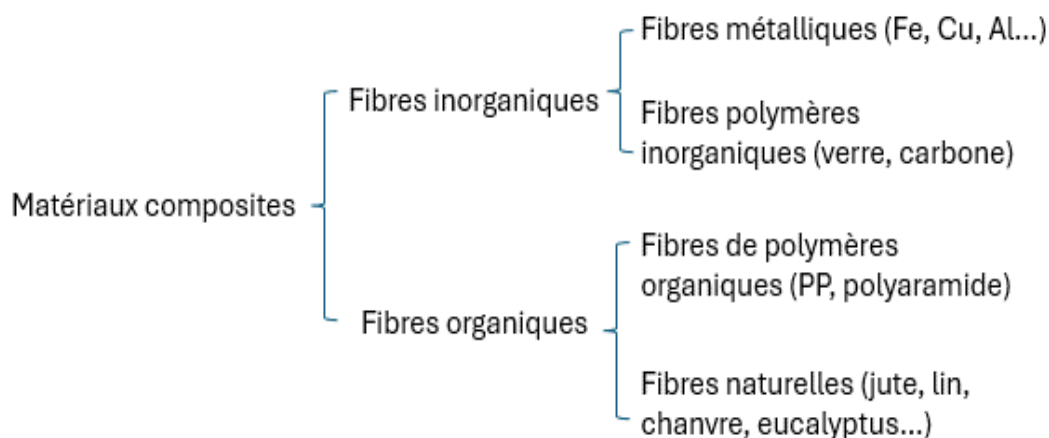


Figure 2.9 Classification des fibres dans les matériaux composites

2.8 Dégradation thermique du bois

La décomposition du bois peut être considérée comme résultant de la dégradation de ses principaux constituants, à savoir la cellulose, l'hémicellulose et la lignine [61-62]. Cependant, lorsqu'on opère à une vitesse de chauffage de $10\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$ sur une plage de températures supérieures à 500 °C , les zones affectées sont la cellulose, la lignine et l'hémicellulose. Entre 225 °C et 325 °C , l'hémicellulose se dégrade ; selon d'autres auteurs, cette décomposition s'étend sur une plage de 180 °C à 330 °C [63-64] tandis qu'une fraction résiduelle peut se dégrader jusqu'à 700 °C . La cellulose, quant à elle, se dégrade généralement entre 325 °C et 375 °C , bien que les travaux de Yang et al. [59] attribuent cette dégradation à une plage spécifique comprenant entre 315 °C et 400 °C , avec un pic maximal de vitesse de perte de masse à 355 °C . La lignine subit une dégradation graduelle entre 250 °C [60] et 500 °C [67-68]. La plage de températures de dégradation des constituants majeurs de la biomasse n'étant pas très étendue, il est difficile de distinguer les portions de variation de masse sur la courbe de perte de masse en fonction de la température lorsque la vitesse de chauffage est augmentée. Cette information est néanmoins essentielle pour la formulation des composites et lors du moulage par injection.

Dans cette étude, sont utilisées des fibres organiques naturelles courtes, à l'instar des fibres d'eucalyptus. La composition de ces fibres révèle principalement la présence de cellulose, d'hémicellulose et de lignine. Parmi ces constituants, la cellulose est le polymère

prédominant dans la biomasse, ce qui rend la connaissance de son comportement thermique indispensable pour son utilisation dans les matériaux composites à matrice thermoplastique par exemple.

2.9 Analyse des travaux sur les matériaux composites

Les travaux de recherche sur les matériaux composites biosourcés ne cessent de croître en raison de la forte demande dans des secteurs tels que l'automobile, l'aéronautique et la construction. L'intérêt pour ces matériaux biosourcés est généralement lié à leur faible coût de production, leur légèreté, leur disponibilité et leur faible impact environnemental, contrairement aux composites dits conventionnels tels que le verre, l'aramide, le carbone ou certains métaux. Dans la littérature, plus de 95 % des travaux portent sur la formulation et la caractérisation des propriétés mécaniques des composites biosourcés à matrice de PEBD, PEHD, PP ou PLA, renforcés par des fibres longues ou courtes de bouleau, de tremble, de sisal, de coton, de chanvre, de bambou ou encore par de la sciure de bois [63] [73-74-75-76]. Les théories et mécanismes développés ont permis d'expliquer les phénomènes d'adhésion entre les différentes [68].

Il s'avère que les renforts fibreux subissent diverses formes de contraintes au sein des matériaux à matrice polymère, et l'étude de la viscoélasticité de ces matériaux apparaît donc comme essentielle [69]. De nombreux travaux se sont intéressés à cette propriété viscoélastique des composites à fibres et particules [73-76-79]. Pour certains auteurs, la performance des matériaux peut être déterminée à partir de l'analyse mécanique dynamique, en considérant le sens unidirectionnel des fibres à différentes fractions volumiques dans le composite [63], puisque les propriétés mécaniques dynamiques des matériaux dépendent de l'orientation unidirectionnelle des fibres [80-81]. Par ailleurs, Carvalho et Bretas [72] ont étudié la corrélation entre les propriétés viscoélastiques et la morphologie de l'interphase des composites à matrice thermoplastique renforcée de fibres de carbone. Ainsi, la détermination expérimentale des paramètres des matériaux est vivement souhaitée afin de concevoir des composants structurels et de valider les modèles prédictifs des matériaux [73].

Sachant que le comportement mécanique des composites à base de polymères est majoritairement dominé par les propriétés thermomécaniques, dépendantes de la vitesse et du temps, l'analyse mécanique dynamique (DMA) [74] constitue la technique la mieux adaptée pour étudier le comportement de ces composites [73]. Pour certains auteurs [75] [45], les études ont porté sur l'endommagement des composites époxy renforcés par des fibres de carbone. Selon les travaux de Thomason [76], réalisés sur des composites époxy renforcés par des fibres de verre, les propriétés thermomécaniques et viscoélastiques, tenant compte de la rigidité et de l'amortissement, ont été élucidées. Mijiyawa, Koffi et al. [77] ont également étudié cette propriété de viscoélasticité sur des composites à base de fibres courtes de bouleau et de tremble, utilisant comme matrice le PEHD.

Le caractère hydrophile des fibres naturelles constitue un inconvénient pour la durabilité des matériaux composites. Il apparaît donc indispensable, avant toute utilisation d'une fibre naturelle dans les composites biosourcés, d'étudier au minimum la chimie de surface à partir de la détermination de l'énergie de surface (angle de contact). Cette approche expérimentale est généralement réalisée en complément de traitements chimiques (mercerisation, silanisation, permanganate, anhydride acétique, etc.), enzymatique ou mécanique des fibres. Contrairement à ce qui a été observé et évoqué dans les travaux présentés précédemment, l'usage de traitements des fibres avant formulation n'a pas été systématiquement mentionné par les auteurs. Néanmoins, Mijiyawa, Koffi et al. [77] ont déterminé l'énergie de surface sur des composites déjà formulés, ce qui ne permettait pas d'exprimer le comportement hydrique des fibres vis-à-vis de l'eau, en raison de la présence de la matrice PEHD ou PP qui les enveloppe. La meilleure approche serait d'analyser les fibres seule. Ces constats ont orienté notre travail, qui a d'abord porté sur la caractérisation des fibres d'eucalyptus avant leur utilisation dans la formulation des composites. Cette caractérisation a pris en compte les éléments lignocellulosiques, la détermination de l'angle de contact (énergie de surface polaire et dispersive), ainsi de l'IR, du MEB-EDX et du DRX.

2.10 Obtention des fibres et durabilité des composites

Ce paragraphe est consacré à la présentation des procédés d'obtention, de traitement et de caractérisation des fibres naturelles, plus précisément des fibres végétales. Dans un premier

temps, le bois (résineux et feuillus) est présenté à travers ses constituants majeurs et la manière dont ces derniers sont liés entre eux, formant les microfibrilles. Ensuite, les procédés d'obtention des fibres (généralement à partir de la pâte de fibre) sont exposés et comparés selon l'usage envisagé. Enfin, les différentes approches de modification des fibres sont présentées, et une synthèse globale est faite.

Dans un second temps, la durabilité des composites est abordée, plus particulièrement celle dépendant de l'humidité et de la température, ainsi que les théories qui la régissent et qui sont généralement adoptées dans les études antérieures. L'étude du vieillissement hydrothermique et thermique est présentée en mettant l'accent sur les paramètres majeurs (température, teneur en fibres, qualité et nature des fibres, c'est-à-dire traitement ou non).

2.10.1 Structure du bois

La structure et l'organisation moléculaire formant les macromolécules permettent de décrire, à l'échelle microscopique et macroscopique, la composition et la qualité du bois. En effet, grâce aux liaisons hydrogène, les molécules de cellulose se lient entre elles pour former des plans de feuillets qui s'empilent, en orientant les extrémités réductrices du même côté afin de constituer les fibrilles élémentaires de la cellulose I. Cependant, l'organisation de ces microfibrilles de cellulose I selon une échelle ordonnée ou désordonnée crée respectivement des zones cristallines et amorphes. Cette propriété de cristallinité est essentielle pour préserver la cellulose lors de son extraction du bois par des procédés chimiques.

2.10.2 Composition du bois

Le bois est principalement constitué de polymères naturels tels que la cellulose, l'hémicellulose et la lignine. Outre ces éléments représentatifs de l'ensemble des constituants du bois, on retrouve des composés plus élémentaires, appelés extractibles. La composition du bois varie significativement selon sa nature et son type.

Contrairement à la cellulose, qui est conservatrice, les bois feuillus présentent une composition en lignine et en hémicellulose différente de celle des bois résineux. Ces compositions sont comparées avec celles du bois d'eucalyptus (**Tableau 2.5**) [85-166]. De plus, pour une même espèce et le long d'un même arbre, la composition peut varier de

manière significative. Cette variation a également été étudiée par Quilho et al. [80] portant sur la longueur et le diamètre de l'écorce de l'arbre d'eucalyptus. Comme toute autre espèce végétale, les eucalyptus sont essentiellement composés d'holocellulose et de lignine, mais contiennent également des éléments tels que les lipides, l'eau, les tanins et les sucres. La composition de ces constituants varie selon le type d'espèce, la région de production, ainsi que le point de prélèvement de l'échantillon le long de l'arbre.

Tableau 2.5 Comparaison des biopolymères du bois avec eucalyptus

Eucalyptus (E.)	Cellulose (%)	Lignine (%)	Pentosanes (%)	Éléments inorganiques (%)	Extractibles (%)
E. saligna	42,3	33,3	17,3	-	5-15
E. citriodora	50,3	24	19,2		
E. cloezina	48	30	14,2		
E. deglupia	44,5	32,9	16,5		
E. robusta	47,3	33,2	15,6		
Résineux	40-44	25-32	30-32	0,3-1,5	1-5
Bois dur	40-44	18-25	15-35		

▪ La cellulose

La cellulose constitue la principale composante du bois, représentant généralement entre 40 et 50 % de sa composition totale [78]. Elle est formée par la polymérisation de l'unité de cellobiose, laquelle est obtenue par déshydratation enzymatique du β -D-glucose. La **Figure 2.10** et la **Figure 2.11** illustrent respectivement l'unité cellobiose et la structure de la cellulose [23][24].

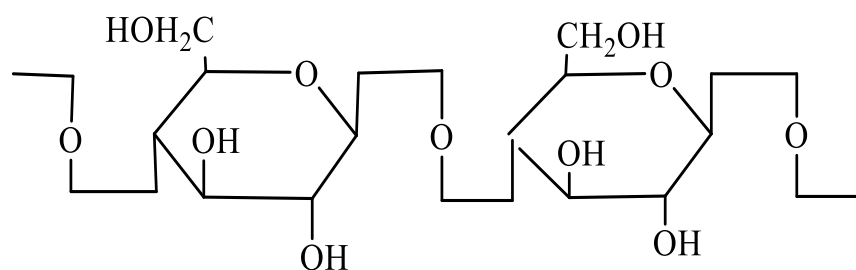


Figure 2.10 Structure chimique de l'unité dimère de cellobiose

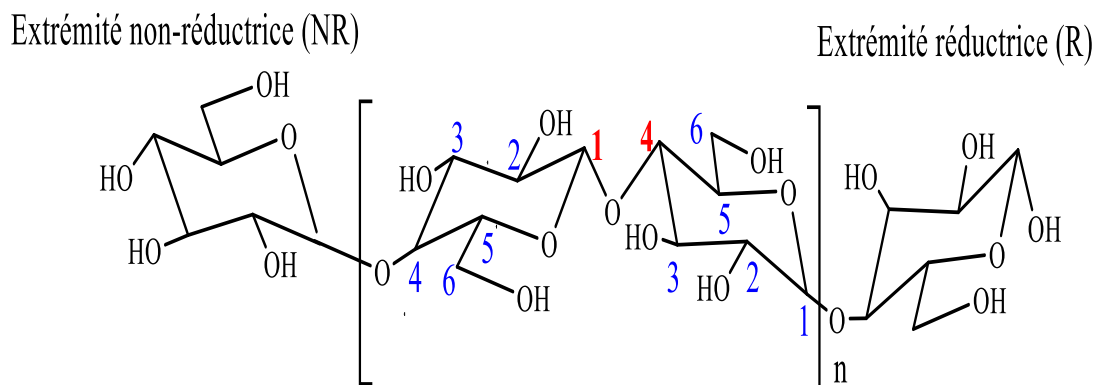


Figure 2.11 Structure chimique de l'unité de cellulose

- **Les hémicelluloses**

Les hémicelluloses sont des polysaccharides constitués principalement de pentoses (arabinose, xylose) et/ou d'hexoses (glucose, galactose, mannose), dont la proportion dans le bois varie généralement entre 20 et 35 % [78]. Selon l'espèce, différentes hémicelluloses peuvent être identifiées. Leur degré de polymérisation est beaucoup plus faible (50 à 200 fois inférieur) que celui de la cellulose (environ 10^4). Ces polymères peuvent être composés d'un seul monomère ou d'une combinaison de différents monomères. Dans les résineux, l'unité monomère est constituée davantage d'hexoses que de pentoses.

Les hémicelluloses présentent une grande diversité structurale en raison de la variabilité des motifs monomériques constituant leur chaîne principale (xylose, glucose, galactose, mannose, fructose, etc.). Elles sont amorphes, possédant des chaînes courtes, sont fortement hydrophiles et sont souvent utilisées comme agents épaississants, stabilisants ou émulsifiants[81]. En raison de leurs nombreux groupements hydroxyles, les hémicelluloses sont très hydrophiles, solubles en milieu alcalin et facilement hydrolysables dans les acides [87-88]. La [figure 3.13](#) illustre un exemple de xyloglucane [28].

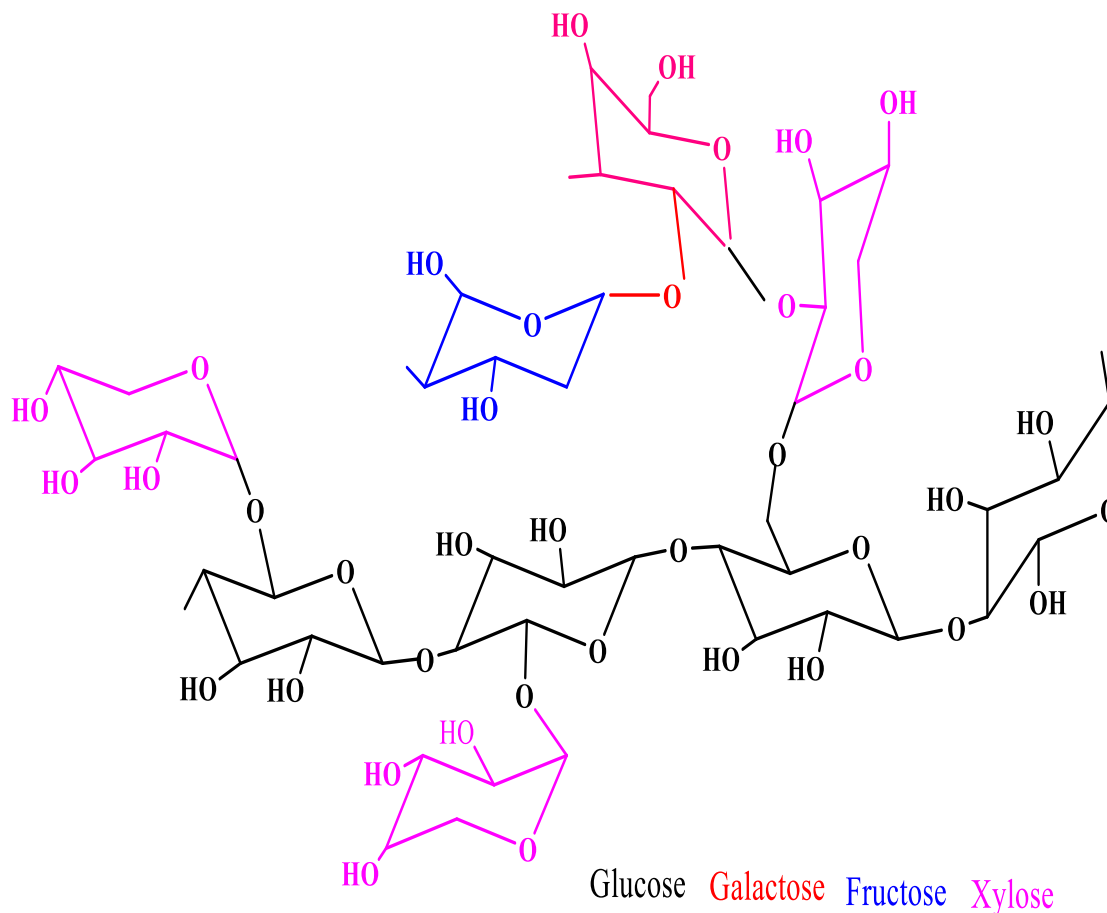


Figure 2.12 Structure d'un type de xyloglucane

- **Les lignines**

La structure moléculaire de la lignine varie fortement, non seulement au sein d'une même espèce, mais également le long d'un arbre et selon les différents organes ou tissus, de sorte que la lignine peut présenter des structures distinctes selon les zones. Troisième constituant majeur du bois, représentant entre 20 et 30 % de sa composition, la lignine est une macromolécule principalement formée de composés phénoliques [89-90]. La structure des précurseurs est illustrée par la **Figure 2.13**, tandis que la [figure 2.14](#) [86] présente la structure de la lignine et les principales liaisons chimiques qui la composent.

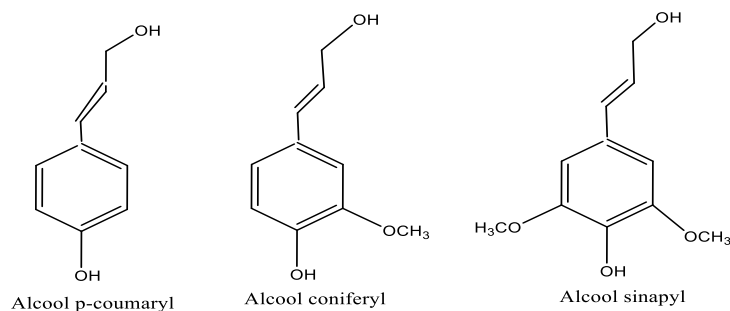


Figure 2.13 Structure des précurseurs de la lignine

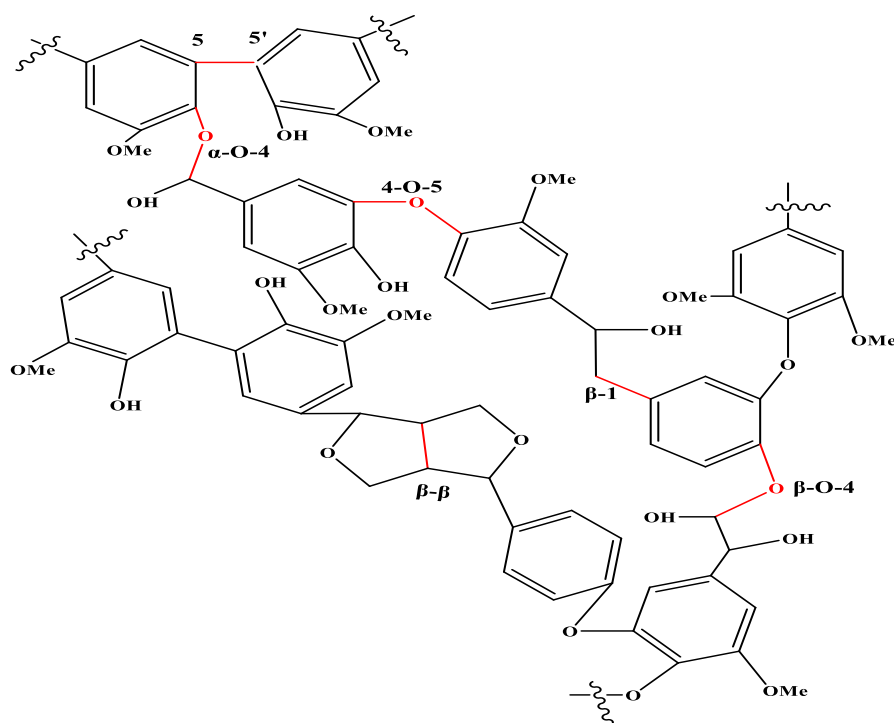


Figure 2.14 Structure de la lignine montrant les différentes liaisons chimiques

▪ Les extractibles

Les extractibles représentent entre 1 et 5 % de la masse du bois. Ils sont généralement extraits à l'aide de solvants organiques ou d'eau à portée de chaud. Ils jouent un rôle essentiel dans la protection de l'arbre contre les ravageurs et les agressions environnementales, telles que les insectes, les bactéries et les champignons. Selon la zone de culture, l'altitude et la nature du sol, la quantité, le type et la distribution des extractibles varient selon l'espèce. Quatre grandes familles d'extractibles peuvent être distinguées : les tanins, les terpènes, les acides gras et les composés phénoliques [92-93].

▪ Les éléments inorganiques

En dehors des constituants organiques, des éléments minéraux sont également présents dans le bois. Parmi ceux-ci, on peut citer le calcium, le chlore, le sodium, le magnésium, le fer et le manganèse. Ces éléments se trouvent en traces dans le bois, représentant environ 0,3 à 1,5 % de la masse totale. Leur concentration varie cependant en fonction de la nature du sol et du climat. Bien qu'ils contribuent à la croissance de l'arbre, dans certaines conditions, ces éléments peuvent perturber le processus de fractionnement [85-93].

2.10.3 Propriétés liées aux fibres végétales

Qu'elles soient physiques, chimiques ou mécaniques, les propriétés des fibres dépendent de leur composition en éléments lignocellulosiques ainsi que de leur organisation au sein du bois. Cette organisation confère au bois son caractère cristallin ou semi-cristallin.

La cellulose, dotée d'une résistance mécanique très élevée, et l'angle microfibrillaire, qui caractérise l'orientation des fibrilles de cellulose dans la paroi principale par rapport à l'axe de sollicitation, constituant des atouts majeurs pour les propriétés des fibres naturelles [89]. La littérature indique qu'une faible inclinaison microfibrillaire entraîne une résistance à la traction élevée. Le **Tableau 2.6** et le **Tableau 2.7** récapitulent les propriétés physico-mécaniques de certaines fibres naturelles, leur composition en éléments lignocellulosiques ainsi que leur angle microfibrillaire [94-95].

Tableau 2.6 Quelques propriétés de quelques fibres naturelles

Fibres	Cellulose (%)	AM (°)	E (GPa)	A (%)	σ (MPa)	ρ (g/cm ³)
Lin	64-71	10	27-91	1,6-5,9	531-3282	1,5-3
Ramie	83	7,5	61,4-128	1,2-3,8	400-938	1,5-6
Chanvre	78	6,2	35	1,6	389	1,07
Jute	61-71	8	26,5	1,5-1,8	393-773	1,4-4
Sisal	67-78	20	9-21	3-7	350-700	1,45
Coco	43	45	4-6	15-40	131-175	1,15
Coton	85-90	5,5-12,6	-	7,8	287-597	1,5-1,6
Verre	-	-	72-73	3	2000-2400	2,54
Eucalyptus	42-50	12,6	16-19	7-8	26,54	1,5

AM = angle microfibrillaire; A = Allongement; E = module d'élasticité; σ = contrainte et ρ = densité

Tableau 2.7 Propriété physiques et mécaniques de quelques fibres naturelles

Fibres	E (GPa)	σ (MPa)	ρ (g/cm ³)	Ratio σ / ρ	Références
Abaca	72	850-1400	1,4	803,6	[96-97]
Bagasse	31,96	729,48	1,91	381,9	[91]
Banane	27-32	529-914	0,31-1,02	1136,4	[93]
Coton	5,5-12,6	264-800	1,5-1,6	285,2	[93]
Lin	27-32	300-1500	1,54	1688,3	[93]
Chanvre	30-70	310-900	1,07	363,6	[93]
Jute	10-55	200-800	1,44	404,9	[93]
Coco	04-6	131-175	1,15	133,0	[91]
Palme	3,58	130-248	0,27	351,9	[93]
Ramie	44-128	348-938	1,56	428,8	[93]
Sisal	9-38	80-840	1,45	362,1	[93]
Feuille d'ananas	34,5-82,51	413-1627	1,52	1070,39	[93]
Eucalyptus	16-19	26,54	1,5	17,63	[94]

2.10.4 Mise en pâte des fibres de bois

Dans l'industrie papetière, le bois, précurseur pour la fabrication du papier, subit plusieurs étapes de transformation. Qu'il s'agisse de bois résineux ou feuillus, le tronc d'arbre constitue généralement la partie utilisée pour produire la pâte servant à la fabrication du papier. Par ailleurs, ces pâtes sont également employées pour la production de matériaux biosourcés et de leurs dérivés. Deux procédés permettent d'aboutir à la pâte tels que le :

- Procédé chimique;
- Procédé mécanique.

L'objectif demeure le même : assurer la défibrillation des fibres du bois. Généralement, ces procédés chimiques et mécaniques sont précédés d'une étape de réduction du bois en copeaux de dimensions régulières souhaitées.

2.10.4.1 Obtention de la pâte chimique

À cette étape, des produits chimiques sont utilisés afin de dissoudre la lignine pour faciliter la séparation des fibres en microfibrilles. La lignine, qui sert de liant pour l'holocellulose, doit être éliminée afin de permettre l'obtention des microfibrilles. Dans ce procédé chimique, la solution employée dépend du pH [133]. Par exemple, le procédé Kraft, de pH

alcalin, est le plus répandu et repose sur le même principe que le procédé au sulfite en milieu neutre, qui constitue le second procédé chimique. Cependant, des différences sont liées en termes de qualité et de rendement. Au cours du traitement, Biermann et al.[133] rapportant que seule la cellulose cristalline n'est pas endommagée, tandis que la lignine et l'hémicellulose sont dégradées et facilement relarguées pour favoriser la libération des microfibrilles. La **Figure 2.15** est une illustration adaptée de la mise en pâte chimique selon Biermann et al.[99-100].

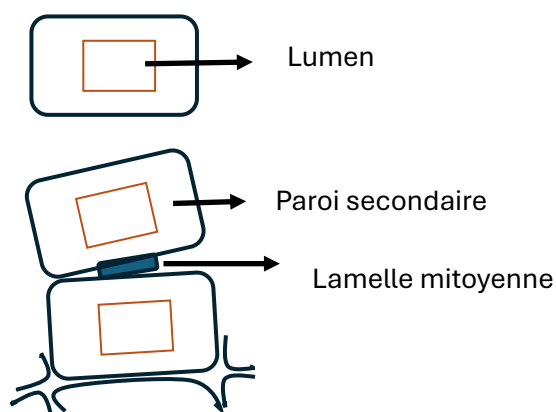


Figure 2.15 Procédés de mise en pâte chimique à l'échelle des fibres

Par ailleurs, ce procédé, selon Biermann et al. [133], présente à la fois des avantages et des inconvénients. Étant donné qu'il utilise des produits chimiques capables de dégrader la lignine et l'hémicellulose, le rendement final est relativement faible. Pour pallier cette limitation, il est nécessaire de réduire la quantité de produits chimiques afin d'améliorer le rendement. De plus, Biermann et al. [99] soulignant que ce procédé nécessite l'utilisation de produits soufrés à haute température. Cependant, la liqueur noire produite, riche en lignine, peut être recyclée pour maintenir la température du système de fonctionnement, assurant ainsi la durabilité et l'efficacité de ce procédé dans la production de pâtes de fibres.

2.10.4.2 Obtention de la pâte mécanique

Dans ce procédé, l'usage de produits chimiques n'est pas nécessaire. Cependant, lorsque les deux procédés sont combinés, les produits chimiques sont très peu sollicités. Le principe consiste à transformer le bois en copeaux, qui sont ensuite introduits dans le raffineur afin que l'action mécanique favorise la séparation des fibres, sans que la lignine et l'hémicellulose ne soient dégradées [133].

Avant l'introduction des copeaux dans le raffineur, ceux-ci sont soumis à une vapeur d'eau pour faciliter leur ramollissement. Ce procédé utilise donc une approche thermomécanique, rendant le raffineur moins énergivore tout en préservant l'intégrité des fibres [134]. Compte tenu de la qualité relativement faible de la pâte mécanique, ce procédé est moins privilégié que la pâte chimique. Selon les travaux de Myja et al. [134], trois types de pâte mécanique existants : la pâte mécanique de raffineur (PMR), susceptible de dégrader les fibres par cassure de leur paroi secondaire S2 ; la pâte thermomécanique (PTM) et la pâte chimico-thermomécanique (PCTM), pour lesquelles l'action mécanique fragilise moins les fibres que dans le cas de la PMR. La défibrillation se fait donc principalement au niveau de la lamelle mitoyenne, de la paroi primaire ou secondaire S1.

2.10.4.3 Aspect comparatif des procédés

Qu'il s'agisse de l'échelle industrielle, de l'usine ou du laboratoire, certains paramètres tels que la qualité, le rendement massif et le coût associé à la production des pâtes selon le procédé choisi doivent guider les objectifs. Étant donné que la qualité des pâtes détermine leur domaine d'utilisation, les pâtes mécaniques, moins qualifiées, sont destinées à la fabrication de papiers moins durables, comme les journaux, mais elles sont également utilisées dans les matériaux composites. En revanche, les pâtes thermomécaniques (PTM) et chimico-thermomécaniques (PCTM) présentent une qualité supérieure à celle de PMR.

2.11 Modification des fibres naturelles

Contraintes par le phénomène d'incompatibilité des fibres naturelles à adhérer aux polymères de synthèse, il convient idéalement de résoudre cette problématique par le traitement des fibres naturelles. Plusieurs traitements des fibres existants, que l'on peut classer en traitements chimiques, physiques et mécaniques. Dans notre étude, nous avons recours au traitement chimique. Selon la littérature, plusieurs de ces traitements chimiques sont utilisés seuls ou en combinaison. Le traitement alcalin, l'acétylation, le traitement au silane et le traitement au permanganate sont largement utilisés dans les travaux scientifiques. Plus spécifiquement, le traitement permet de nettoyer la surface des fibres, de relarguer ses zones amorphes afin de rendre la fibre plus rugueuse. Il favorise la meilleure réaction chimique de la fibre avec le site actif de l'anhydride maléique de l'agent PE-g-MA grâce à la disponibilité des groupes hydroxyles, carbonyles et carboxyliques des

éléments chimiques de la fibre. Ce qui, par conséquent, améliore les propriétés physiques (densité, par exemple), les propriétés chimiques (hydrophobicité, réactivité entre les fibres et le polymère), la morphologie (rugosité) ainsi que les propriétés mécaniques (résistance aux contraintes) des composites.

2.11.1 Mercerisation des fibres naturelles

L'alcalinisation (voir **Figure 2.16**) [135], également appelée mercerisation des fibres naturelles, est un traitement chimique généralement utilisé pour sa simplicité de mise en œuvre, son faible coût et son impact environnemental négligeable. La quantité de réactif employé dans ce traitement n'est cependant pas standardisée. Cette variation peut s'expliquer par la nature structurale et la composition chimique de la biomasse utilisée. Lors de la mercerisation, la réaction implique l'ionisation des groupes hydroxyles des fibres par la NaOH [135].

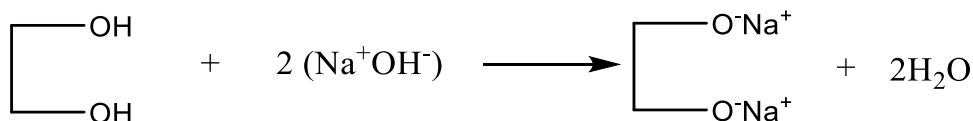


Figure 2.16 Réaction probable entre le substrat cellulosique et la solution alcalin

En effet, la concentration en NaOH requise pour le traitement des fibres doit être choisie avec prudence afin d'éviter leur dégradation. Par exemple, les fibres de coco traitées avec 3 % m/v de NaOH pendant 5 heures ont perdu leur résistance à la traction, leur module de traction ainsi que leur allongement à la rupture [136]. Par ailleurs, le traitement des fibres de lin avec 2,5, 5, 7,5, 10 et 15 % m/v de NaOH a permis à Abral et al. [137] de constater une meilleure résistance à la traction et à la flexion des composites lin-polyester renforcés par des fibres traitées à 5 et 7,5 %. Huda et al., ont traité les fibres d'ananas pendant 2 heures à température ambiante avec 5 % m/v de NaOH et ont observé une de la résistance au choc du composite de 79 % par rapport par rapport aux fibres non traitées.

De même, Hashim et al. [138], ont traité les fibres de kénaf à différentes concentrations (2, 6 et 10 % m/v) pendant 30, 240 et 480 minutes à 27, 60 et 100 °C. Ils ont constaté une légère augmentation de la densité des fibres traitées par rapport aux fibres non traitées, ainsi qu'une diminution du diamètre des fibres sous les mêmes conditions. Une étude

comparative des propriétés mécaniques des composites à base d'argile et de fibres de palmier préalablement traitées a permis à Zainate Koadri et al. [139] de montrer une de la résistance à la flexion et à la compression de 57 et 60 % respectivement pour un traitement de 4 % m/v pendant 7 heures, parmi les durées de traitement étudiées (3, 7, 24 et 48 h) pour la même concentration de NaOH. Eu égard à ces recensements, il n'est pas possible de standardiser de manière universelle la concentration de NaOH, la durée ou la température de traitement des fibres issues de la biomasse. Cette variabilité peut s'expliquer par plusieurs facteurs, notamment la nature des fibres, leur composition chimique des fibres ainsi qu'à leur structures et morphologie.

Considérant que la réaction entre les groupes hydroxyles du substrat cellulosique et la solution de NaOH, dont l'équation bilan est présentée à la **Figure 2.16** correspond à ce que plusieurs auteurs de la littérature, certains chercheurs remettent en cause ce type de réaction. Ils soutiennent que le Na^+ n'est pas en mesure de substituer l'hydrogène du groupe -OH de la cellulose et proposent plutôt une réaction inter- et intramoléculaire, favorisée après que les zones amorphes de la cellulose ont été dégradées par la solution de NaOH. Cependant, ils soulignent que ce sont les liaisons hydrogène qui se mettent en place, permettant à la cellulose de s'organiser dans un réseau ordonné, améliorant ainsi sa cristallinité (transition de la cellulose native vers la cellulose II). Cette transformation peut donc être représentée par l'équation de la réaction illustrée à la **Figure 2.17**.

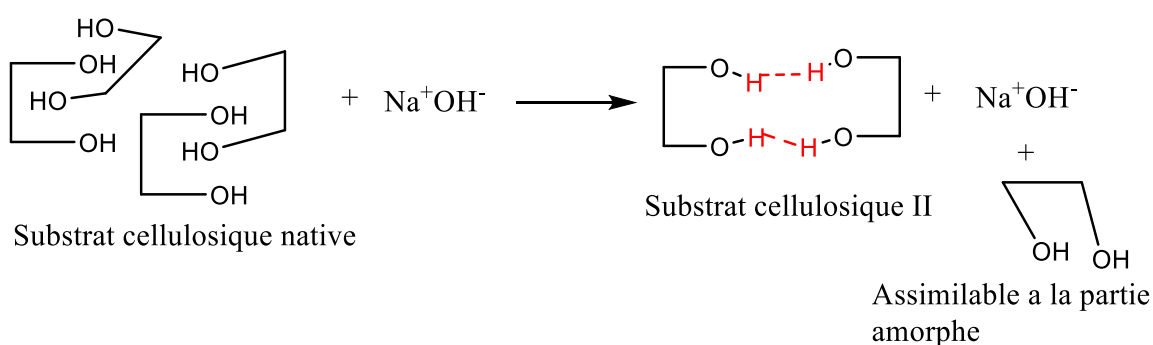


Figure 2.17 Équation assimilée de la conversion de la cellulose

En se basant sur ce constat de la littérature, que nous avons cherché à vérifier, nous formulons l'hypothèse selon laquelle la mercerisation des fibres naturelles s'effectue par le nettoyage du matériau fibres. Par ailleurs, il est à noter que l'ajout de la solution de soude

est fait pour dissoudre la lignine, ce qui, par conséquent va libérer la cellulose de l'hémicellulose.

2.11.2 Traitement par les silanes

Les différents dérivés du silane ont été largement utilisés pour la modification des fibres. Les silanes agissent comme agents de liaison entre les fibres et le polymère. Leur particularité réside dans la formation de ponts chimiques avec la fibre, ce qui libère des zones hydrophobes richement constituées d'hydrocarbures, capables d'établir des liaisons carbone-carbone avec le polymère. Cependant, cette spécificité c'est-à-dire l'absorption des alcoxydes de silicium fonctionnalisés ($R'-Si(OR)_3$) par les fibres dépend de plusieurs facteurs tels que le temps d'hydrolyse, la caractéristique, la température et le pH [140]. Le **Figure 2.18** illustre la réaction du silane avec le substrat cellulosique. Divers phénomènes peuvent être observés dans les composites lorsque les fibres sont traitées au silane. Par exemple, les travaux de Khamtree et al. [141] ont montré que le traitement des fibres de bois avec 3-Aminopropyltriéthoxysilane (3-APTES) et 3-Mercaptopropyltriméthoxysilane (3-MPTMS) entraîne une augmentation de la température ainsi que de l'enthalpie de cristallisation, tandis que la cristallinité diminue.

De plus, les réactions de couplage des fibres avec les dérivés du silane se révèlent parfois inefficaces pour prédire une des propriétés mécaniques des composites. Wang et al.[142] ont traité de la farine de bois avec quatre dérivés de silane à une concentration de 3 % m/v (PTS, APS, MPS, VTS), utilisés séparément dans un milieu acide à pH = 3. Les auteurs ont constaté qu'aucune des propriétés mécaniques n'est améliorées.

En revanche, lorsque le Peroxyde de Dicumyl (agent de réticulation du polymère) est utilisé, les auteurs ont constaté que le méthylpropylsilane (MPS) et le triéthoxyvinylsilane (TVS) ont permis une amélioration de 9, 60 et 50 % de la résistance à la flexion, à la traction et à l'impact, respectivement. Par ailleurs, ils ont montré que l'efficacité du couplage ne dépend pas uniquement de la liaison établie entre le silane et le polymère, mais également de la nature de ce dernier, ce qui apparaît plus évident avec une des composites à base de PE et PP. Farsi et al.[143] ont, quant à eux, utilisé 1 % de TVS dans un mélange éthanol-eau (60:40 v/v), en ajustant le pH entre 3,5 et 4, et ont conclu à une amélioration des propriétés mécaniques en traction et en flexion des composites. Le **Tableau 2.8** présente une synthèse des dérivés de silane utilisés dans le traitement des fibres ainsi que des

propriétés mécaniques améliorées. Également, le [tableau 2.9](#) expose les avantages et les inconvénients de ce traitement.

Tableau 2.8 Propriétés mécaniques et traitement des fibres par les dérivés de silane

Silane	Conditions de traitement				Traction (MPa)	Flexion (MPa)	Réf.
	Température(°C)	Temps(h)	pH	% v/v			
3-APTES	Ambiante	2	4	6	↑ 40	↑ 110	[144]
3-MPTMS	Ambiante	2	4-5	5	↑ 20	↑ 38	[141]
APS	Ambiante	2	-	3	↑ 90	-	[145]
TEVS	Ambiante	2	3-4	1	↑ 28	↑ 55	[143]
γ- APTMS	Ambiante	6	-	1	↑ 72	-	[146]
3-MPTMS	Ambiante	3	4-5	1,5	↑ 15	-	[147]

La [figure 2.19](#) illustre le mécanisme réactionnel mis en jeu entre le silane et les groupements hydroxyles de la fibre cellulosique [47].

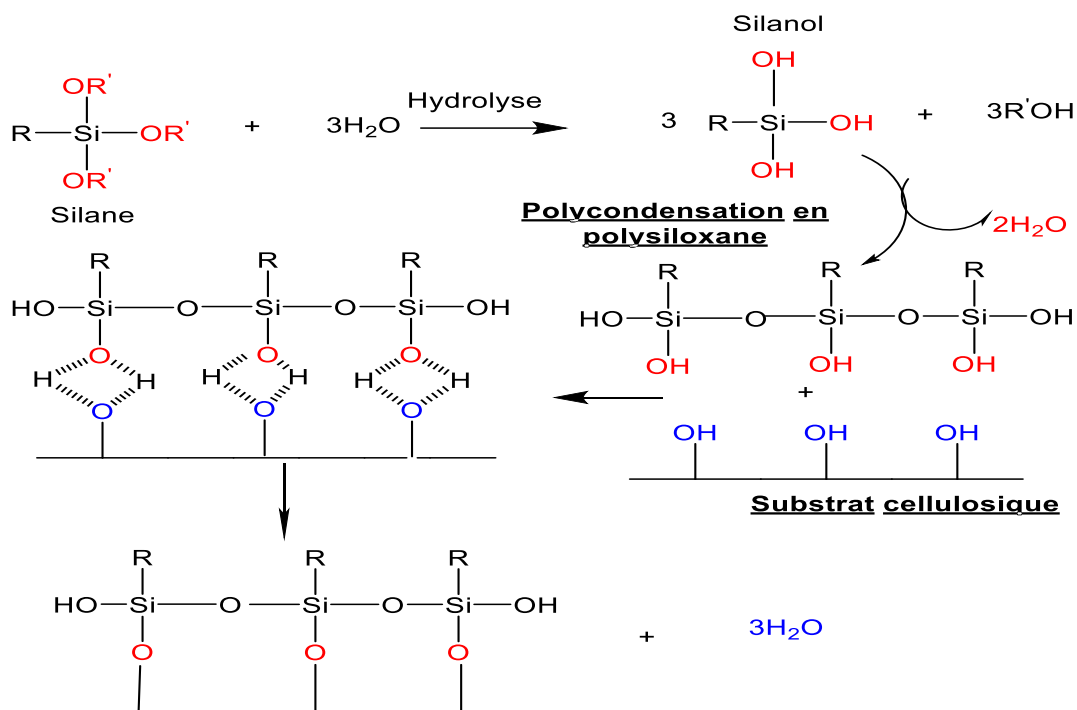
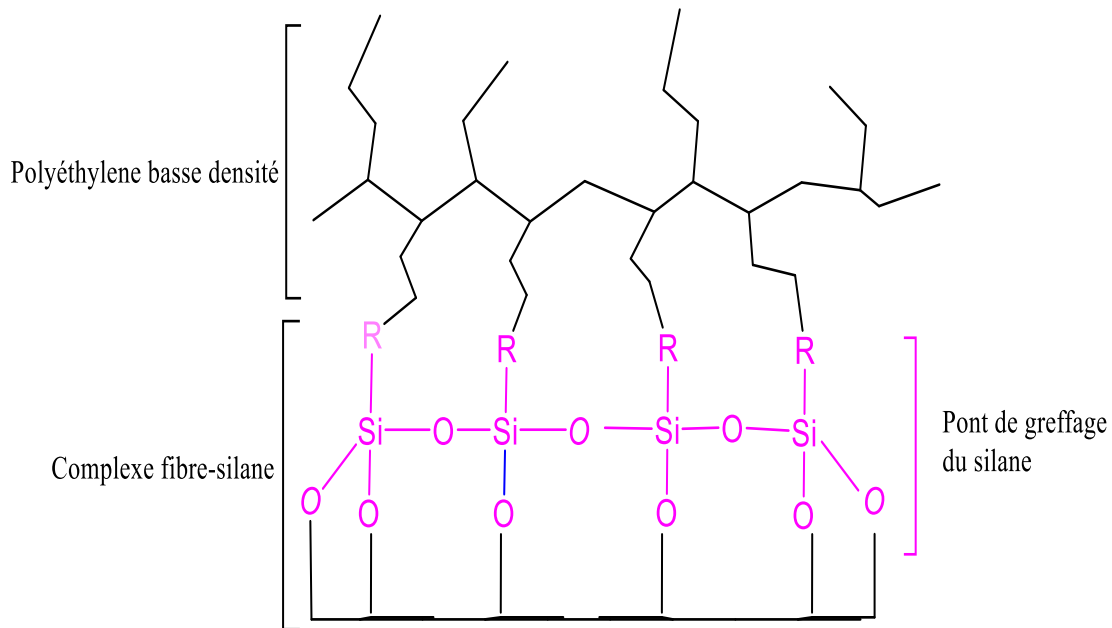


Figure 2.18 Réaction chimique mise en jeu entre le silane et les groupements hydroxyle de la fibre cellulosique

Cependant, l'interface du composite fibre de bois-polyéthylène basse densité peut être illustrer par la **Figure 2.19**.



Structure des liaisons chimiques à l'interface du composite fibres-polyéthylène basse densité

Figure 2.19 Liaisons chimiques à l'interface du composite fibres de bois-polyéthylène

2.11.3 Acétylation des fibres

Souvent, la combinaison d'agents de traitement chimique des fibres s'avère nécessaire pour améliorer la qualité et les performances du composite ainsi obtenu. Le pouvoir nettoyant de la solution de soudure, qui convertit la cellulose I en cellulose II plus ordonnée, explique que de nombreuses études recourent à un prétraitement alcalin suivi d'un traitement approprié.

Dans leurs travaux, Kord et al. [148] ont traité la poudre de bois en la soumettant d'abord à une solution de 5 % m/v de NaOH pendant 30 minutes à température ambiante, puis à 55 % d'acide acétique glaciale pendant 1 heure à 30 °C. L'anhydride acétique contenant 1 % de H₂SO₄ a ensuite été utilisé pour terminer le traitement pendant 5 heures à 120 °C. Les auteurs ont observé une des résistances à la traction et à l'impact des composites de 38,46 et 44,44 %, respectivement, par rapport aux poudres non traitées. La réaction est représentée par l'équation chimique de la [figure 2.20](#).

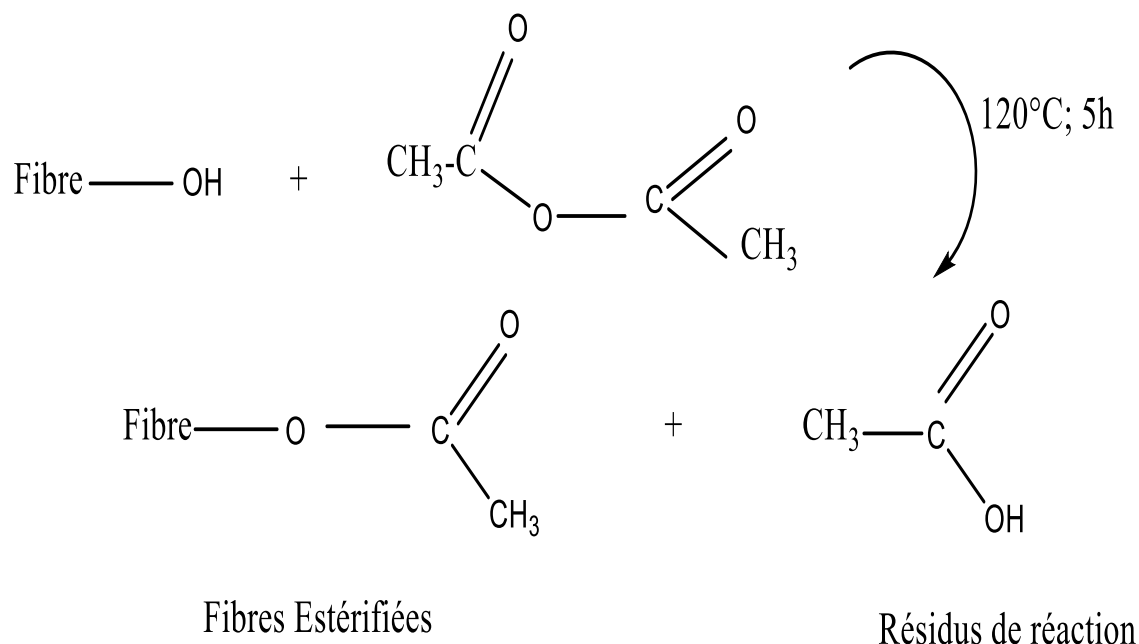


Figure 2.20 Réaction d'estérification des fibres par l'anhydride acétique

2.11.4 Traitement au permanganate de potassium

Après un prétraitement des fibres par une solution alcaline, celles-ci sont souvent traitées au permanganate de potassium, avec des durées variantes généralement entre 1 et 3 minutes [115-116-117-118]. Joseph et al.[152] ont traité des fibres de sisal avec différentes concentrations de KMnO_4 , comprend entre 0,005 et 0,205 % m/v dans l'acétone pendant 1 minute, et ont constaté une des propriétés mécaniques du composite sisal-PE pour la plus faible concentration de KMnO_4 . Par ailleurs, Pradeep et al. [153] ont successivement traité les fibres de bambou avec 5 % m/v de NaOH pendant 30 minutes, puis avec 1 % m/v de KMnO_4 dans l'acétone pendant 20 minutes. Ils ont observé une augmentation de la résistance à la traction et du module du composite bambou-polyester de 58 % et 118 %, respectivement.

Le [tableau2.9](#) présente une liste non exhaustive des avantages et des inconvénients des différentes modifications chimiques couramment utilisées pour le traitement des fibres végétale.

Tableau 2.9 Avantages et inconvénients des traitements chimiques

Traitement	Avantages	Inconvénients
Soude (Cette étude)	Élimination de la pectine, lignine et de l'hémicellulose, augmentation des propriétés d'adhésion, amélioration de la rugosité des fibres, solution non dangereux, facile à manipuler, augmente la cristallinité des fibres, amélioration de la mouillabilité, réduction du diamètre des fibres dû à la fibrillation, stabilité dimensionnelle	Dégradation possible des fibres, perte de masse et de résistance intrinsèque, augmentation de l'hygroscopicité, non-uniformité du traitement, faible rendement dû à la perte de certains constituants
Plasma	Usage sans solvant, améliore l'adhésion, méthode propre et rapide	Effets temporaires, nécessite un équipement spécialisé, peu efficace sur géométrie complexes
UV sous vide	Augmente la polarité, l'adhésion, la mouillabilité, réduit la porosité	Risque de dégradation dans les conditions non contrôlées, atmosphère contrôlée
Silane	Améliore l'adhésion interfaciale, augmente l'énergie de surface dispersive, et améliore les propriétés mécaniques	Couteux, nécessite des conditions précises, difficile à recycler, efficacité variable selon la matrice
Permanganate de potassium	Réduction du diamètre, améliore la densité et résistance, bonne activation de surface	Réaction oxydante agressive, manipulation avec importante précaution
Acétylation	Réduit l'hydrophilie, excellente compatibilité avec la matrice hydrophobe, résistance accrue	Temps de traitement long, efficacité dépend du dosage et du solvant utilisé
Rayonnement gamma	Augmentation de la réticulation. Durabilité, résistance mécanique, réduction du caractère hydrophile	Dégradation des polymères à cause de la dose élevée. Traitement couteux

2.12 Analyse de la modification des fibres naturelles

Dans cette section, nous présentons les développements scientifiques ayant contribué à l'amélioration des propriétés mécaniques, physiques et chimiques des composites à base de fibres de bois et de dérivés d'oléfinés. Il convient de rappeler que plusieurs facteurs influencent la performance et la durabilité de ces composites, comme cela est largement décrit dans la littérature. L'élément déterminant demeure la qualité de l'interface entre les différentes composantes du composite. Le caractère hydrophile des fibres naturelles constitue une problématique que de nombreux chercheurs ont tenté de résoudre en ayant recours à divers types de traitements appliqués aux fibres. Ainsi, la littérature rapporte que plusieurs approches méthodologiques de traitement des fibres ou des poudres de bois ont été développées, soit par voie chimique, soit par voie mécanique, soit encore par voie enzymatique. Pour chacun de ces types de traitement, l'objectif est de préserver l'intégrité des fibres (éviter leur détérioration par cassure ou la création de zones de discontinuité le long de la fibre, etc.) tout en modifiant la structure de leurs principales composantes (lignine, cellulose et hémicellulose). Les approches diffèrent essentiellement par les techniques et les réactifs employés. Par exemple, dans le cas du traitement chimique, la littérature souligne une diversité d'applications des réactifs, dont la finalité demeure cependant la même : accroître la rugosité de la surface des fibres, créer des ponts chimiques favorisant l'adhésion entre fibres et polymères, ou encore transformer les zones amorphes présentes dans certaines molécules, comme la cellulose, en structures plus ordonnées et donc cristalline. Le comportement des composites dépend de la concentration du réactif utilisé sur les fibres qui les renforcent. Parfois, la combinaison de plusieurs réactifs semble plus efficace que l'utilisation de réactifs seuls, comme le montre par exemple les travaux de Kord et al. [148] et Pradeep et al. [153]. On peut donc formuler l'hypothèse selon laquelle l'efficacité du traitement des fibres naturelles dépend de la combinaison des réactifs ou du procédé employé. Si l'on prend en compte les propriétés propres à chaque composante du composite, la durabilité des composites est indirectement liée au domaine d'application du matériau. Par exemple, pour des composites obtenus dans des conditions identiques, leur durabilité dans le secteur aéronautique sera différente de celle dans l'industrie automobile. En effet, même si les propriétés mécaniques des composites sont améliorées après traitement des renforts fibreux, il ne s'agit pas uniquement d'attribuer cette à un ou deux

facteurs. La non-stabilité dimensionnelle des fibres étant toujours un paramètre critique, les facteurs conditionnant une bonne performance mécanique des composites renforcés par des fibres naturelles demeurent inhérents.

Parmi ces facteurs figurent la rugosité de la surface des fibres, l'adhésion dépendante de la nature chimique de leur surface, la taille des fibres, ainsi que la structure cristalline et la morphologie des fibres. Bien que plusieurs autres facteurs puissent influencer l'adhésion interfaciale, plusieurs études et travaux de recherches de la littérature se sont intéressées à la variation de ces paramètres et à leur combinaison lors de la modification.

En dehors de la variation des quantités de réactives utilisées, il est également nécessaire de considérer la température et le temps de traitement des fibres, qui constituent des paramètres cruciaux dans l'étude des composites à fibres naturelles. C'est ce premier aspect qui constitue le point de départ de la présente thèse.

Dans cette étude, la mercerisation suivie de l'emploi de l'agent de couplage PE-g-MA a été examinée. L'analyse a pris en compte la variation de la concentration massive du réactif, ainsi que le temps et la température de traitement des fibres.

2.13 Eucalyptus et leurs applications

L'eucalyptus est une plante souvent présentée comme une espèce présente invasive [95]. Toutefois, le recours à des espèces du genre *Eucalyptus* a été considéré par certains pays compte tenu de sa capacité à s'acclimater et à résoudre des problématiques qui leurs sont spécifiques.

À Madagascar, l'introduction de l'eucalyptus avait pour objectif d'assécher les zones humides, ce qui, par conséquent, contribuait à assainir les régions touchées par le paludisme [96]. Par ailleurs, ces arbres ont été exploités à d'autres fins, par exemple le long des routes et sur certains terrains, en tant qu'espèces de délimitation foncière ou encore pour stabiliser les talus. De plus, cette essence est utilisée dans l'industrie pour la fabrication de composites et de pâtes à papier, mais également dans le cadre de la recherche académique.

2.13.1 Enjeux de l'utilisation des eucalyptus

Le besoin mondial en produits ligneux illustre le recours continu à l'espèce d'eucalyptus. Il en découle la nécessité de réduire l'exploitation abusive des forêts naturelles, ainsi que l'importance des multiples applications industrielles de l'eucalyptus (cellulose, énergie, panneaux). Utilisée comme source d'énergie pour le chauffage (bois de chauffe, charbon de bois) et également dans la construction et l'ameublement, la production mondiale d'eucalyptus dépasse 20 millions d'hectares, représentant ainsi un tiers des plantations.

En 2010, on estime la superficie des plantations au Brésil à 4,5 millions ha [97]. Le genre eucalyptus est connu pour sa capacité de croissance rapide et son acclimatation, ce qui reste un atout pour le monde des utilisateurs des sources végétales.

Plusieurs études ont été réalisées sur les eucalyptus, de la plantation jusqu'à leur utilisation. L'intérêt majeur porté au genre Eucalyptus concernait ses propriétés médicinales et fongiques, obtenues à partir de diverses extractions. Généralement, ce sont des huiles essentielles qui sont extraites pour les applications potentielles. Contenant des composés aromatiques et compte tenu des vertus de ces derniers, l'utilisation des eucalyptus est une pratique ancienne. Dans leurs travaux, Delwiche et al.[98] ont démontré l'efficacité fongique de 30 μ L des extraits d'Eucalyptus camaldulensis, contenant majoritairement du 1,8-cinéole (42,30 %) et de l' α -pinène (28,30 %), sur les moisissures (*Alternaria alternata* et de *Penicillium expansum*). Les Camaldules sont des espèces d'origines Australienne mais qui sont très rependue dans le monde depuis qu'il est introduit dans les plantes de reboisement [99]. Les Camaldules sont des espèces d'origine australienne, mais elles sont très répandues dans le monde depuis leur introduction dans les programmes de reboisement.

L'utilisation des matériaux composites remonte à plusieurs siècles. Chez certains peuples, comme dans la civilisation égyptienne, les maisons étaient bâties avec de l'argile renforcée par de la paille. Cette pratique se poursuit encore aujourd'hui chez les populations Kabyè du nord du Togo. L'avènement de l'industrialisation a entraîné des changements dans les habitudes et les réalisations sur le plan technologique. Cependant, des études ont été menées sur la formulation des composites et l'évaluation de leurs performances, de leur durabilité face aux facteurs environnementaux et de l'utilisation de ces matériaux dans des

conditions réelles. Depuis longtemps, plusieurs fibres naturelles végétales font l'objet d'études pour la formulation de composites destinés à diverses applications industrielles. Cependant, peu de travaux ont utilisé des fibres d'eucalyptus pour la fabrication des composites. Malgré les effets indésirables provoqués par les plantations d'eucalyptus, tels que le dessèchement des sols et ses répercussions sur les cultures avoisinantes dans un contexte de vigilance face au changement climatique, cette essence est en pleine expansion dans des pays comme le Brésil, l'Australie, l'Afrique du Sud et l'Inde. La [figure 2.21](#) présente l'évolution des aires de plantation d'eucalyptus dans le monde, en fonction des continents, sur une période de 20 ans.

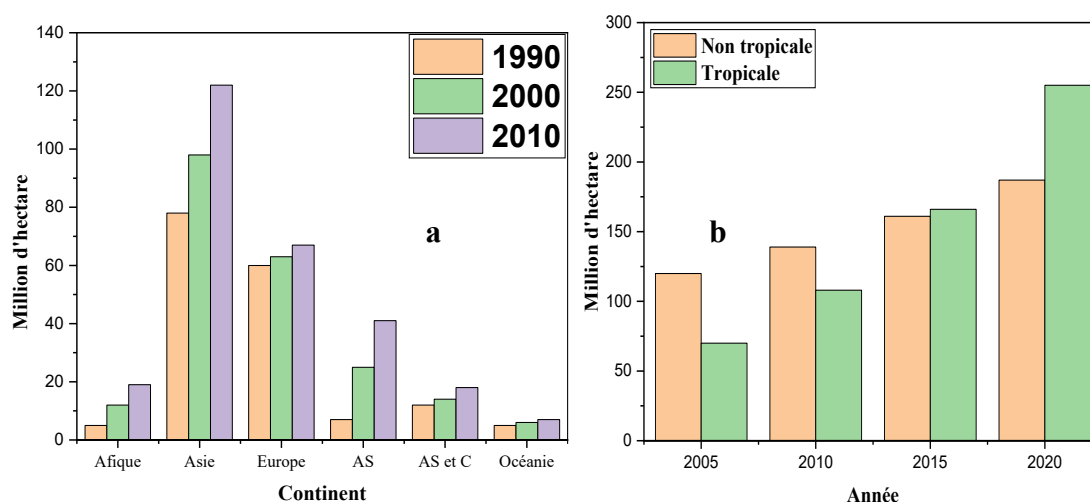


Figure 2.21 Surface cultivée (statistique de FAO et FRA 2010, STCP Estimates)

En effet, la **Figure 2.21 b-** a permet de comprendre l'évolution de la culture de l'eucalyptus dans le monde. Sur une période de 20 ans, les continents asiatique, européen, nord et centre-américain, sud-américain, océanien et africain ont enregistré respectivement des augmentations de plantation de 56,41; 16,66; 290; 80; 17,65 et 111,11 %. Si l'on considère une répartition par pays, on constate que certains pays influencent fortement le taux de production, c'est-à-dire que la contribution des nations comme le Brésil, l'Afrique du Sud, l'Australie et l'Inde suffit à faire considérer leur continent comme un grand producteur. Selon le rapport du gouvernement canadien sur la production de pâte Kraft, le Canada est depuis plusieurs décennies le premier producteur mondial et exportateur de pâtes de fibres de bois.

Cependant, il a été supplanté par le Brésil, qui approvisionnait le reste du monde en pâte grâce à une plantation d'eucalyptus de 1,8 million d'hectares, déclarant le pays au premier rang mondial [100]. D'après la même source, le Brésil a accumulé sa production de pâte Kraft blanchie d'eucalyptus à la fin des années 1990. Avec une telle aire de plantation, la production de pâte Kraft blanchie d'eucalyptus est estimée à 12,8 millions de tonnes de pâte chimique commerciale par an, contre 9,3 millions pour le Canada. Cette évolution permet de réaliser des projections pour les années suivantes.

Malgré les avantages apportés par les eucalyptus dans un contexte de développement pour le Brésil, le Canada demeure le principal producteur mondial de pâte Kraft blanchie [101].

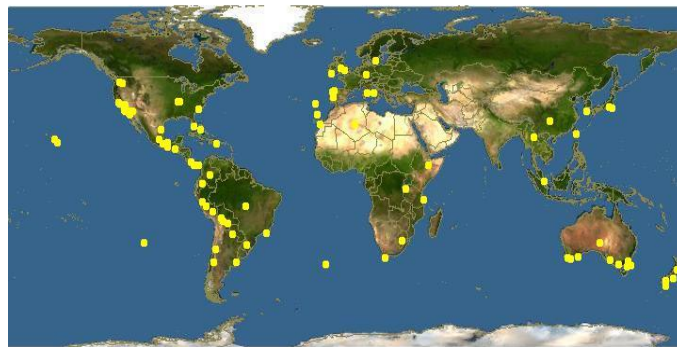


Figure 2.22 Zone de plantation de l'espèce d'eucalyptus dans le monde

La demande en bois d'eucalyptus sera forte et les investisseurs s'intéresseront au genre d'eucalyptus. Selon cette projection, l'approvisionnement sera assuré par les grands producteurs tels que le Brésil, l'Afrique du Sud, l'Australie, et l'Asie.

2.13.2 Usage d'eucalyptus dans le monde

Le bois d'eucalyptus présente de bonnes qualités pour la production de pâte : fibres courtes, proportion importante de cellulose par rapport à la lignine, et taux d'extractibles relativement faible. La demande en pâte d'eucalyptus a fortement augmenté, passant de 2 millions de tonnes en 1980 à 11 millions de tonnes en 2005, et elle devrait avoir atteint 18 millions de tonnes en 2010 [102]. À titre d'exemple, la plus grande usine de pâte au monde est aujourd'hui située au Brésil et utilise exclusivement de l'eucalyptus. Conçue pour une capacité annuelle de 1,5 million de tonnes, l'usine d'Eldorado Brasil a démarré en 2012 et a établi un record de production en 2018, atteignant 1,89 million de tonnes de pâte d'eucalyptus sur une seule ligne de production [103].

En 2020, 60 % de la demande en pâte était assurée par l'eucalyptus [104]. Pour un matériau composite à renfort fibreux, le facteur de forme des fibres détermine sa performance. Pour cela, il est nécessaire de connaître l'évolution de la ressource afin de prédire le comportement de l'éprouvette ou de la pièce. Une étude menée par Quilho et al. [80] a permis de confirmer la qualité des fibres d'eucalyptus, notamment en ce qui concerne le facteur de forme de ces fibres, par rapport à celles issues du bouleau ou du tremble (voir [figure 2.23](#)).

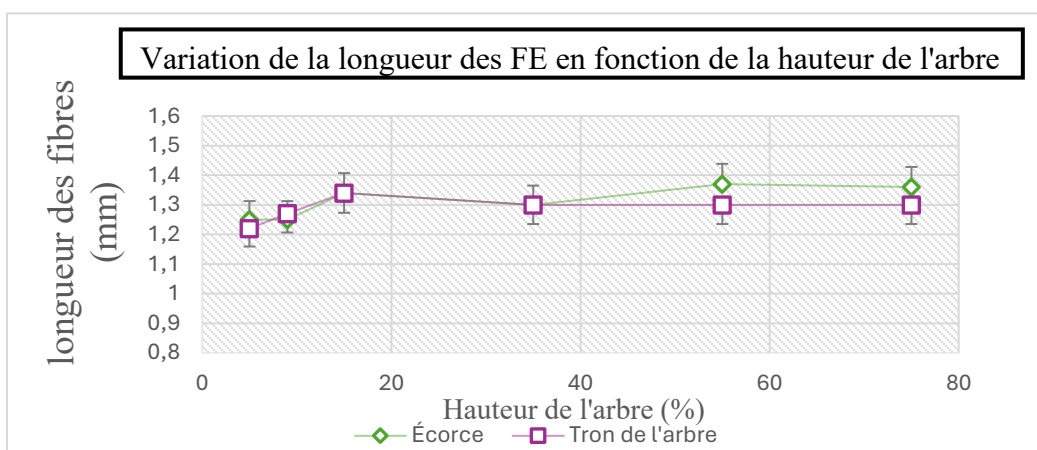


Figure 2.23 Variation de la longueur des FE en fonction de la hauteur de l'arbre

2.13.3 Eucalyptus dans les matériaux composites

Les fibres d'eucalyptus font l'objet de nombreux travaux de recherche. Cependant, les objectifs n'étant souvent pas les mêmes, certaines études se sont concentrées sur la caractérisation mécanique des composites à renfort de fibres d'eucalyptus [162-163], d'autres sur l'influence des traitements sur la durabilité des composites [171], ou encore sur les propriétés physico-mécaniques des composites [169-170-171]. Dans tous les cas, l'usage des fibres d'eucalyptus, tout comme celui de toutes les autres fibres naturelles, fait l'objet des mêmes considérations en tant que renfort [172-173-174]. En dehors des fibres, les feuilles et l'écorce des plantes d'eucalyptus sont également utilisées dans la conception des ouvrages comme [176-177]. Des travaux de recherches menés sur les différentes fibres sont présentés par la [figure 2.24](#) [116]. Ainsi que le [tableau 2.10](#) présente le coût et l'énergie liées à la production des fibres [179-180-181-182].

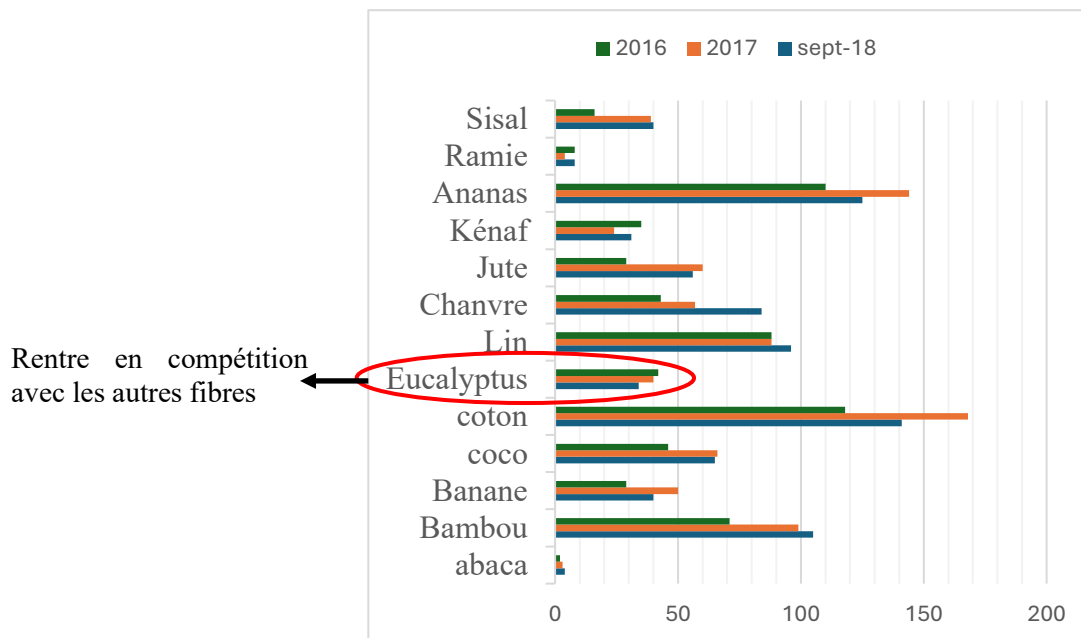


Figure 2.24 Travaux de recherche dans le domaine des composites

Tableau 2.9 Coût et énergie liée à la production des fibres

Fibres	Coût (\$US/tonne)	Énergie (GJ/tonne)
Fibre naturelle	200-1000	4
Fibre de verre	1200-1800	30
Fibre de carbone	12500	130
Fibres	Prix (\$US/tonne)	
Abaca	345	
Bambou	500	
Banane	890	
Fibre de noix de coco	200-500 (350)	
Coton	1500-4200 (2850)	
Lin	2100-4200 (3150)	
Chanvre	1000-2100 (1550)	
Jute	400-1500 (950)	
Kenaf	300-500 (400)	
Ananas	360-550 (455)	
Ramie	2000	
Sisal	600-700 (650)	

Tableau 2.10 Quelques caractéristiques des propriétés relatives aux fibres naturelles

Fibres	Description
Bambou	l/d très élevée, légère, plus rigide et plus résistant que la fibre de verre [121]; moins énergivore (17%) lors de la production de tapis que celle utilisée pour la production du verre[122]
Eucalyptus	Très disponible, peu résistant aux moisissures et au feu, ces fibres d'écorce sont bon pour l'isolation [123]
Abaca/Banane	L'abaca ne fournit que des fibres, ses fruits son non consommable. [124]
Coco	Très attractive par rapport aux autres fibres à cause de sa résistance à l'eau salée, sa disponibilité [187-188]
Coton	Un excellent pouvoir d'absorption [127] 46% dès la production mondiale de fibre naturelle ou chimique vient du coton [128]
Lin	Bonne résistance à la traction que le verre, faible densité et rigidité élevée [129]
Chanvre	Bonne résistance mécanique et bon module de élastique[130] très bonne propriété d'isolation[131]
Jute	l/d élevée, très bonne résistance, très bon isolant[129]
KénaF	Faible densité, résistance mécanique élevée[129]
Ananas	Excellente propriété mécanique, physique et thermique [122]
Ramie	Possède une meilleure résistance spécifique et de module élastique spécifique que celle du verre[132]
Sisal	Facile à cultiver, court temps de production. Tenace, résistant, résistance à l'abrasion, résistant à l'eau salée, a l'acide et aux solutions alcaline[129]

2.14 Formulations, caractérisations des matériaux à fibre de bois

Le comportement d'un matériau correspond à sa capacité à réagir lorsqu'une contrainte lui est appliquée. Cela implique la prise en compte des lois de la physique, de la mécanique et de la chimie, notamment du point de vue de la composition et de l'organisation moléculaire, qui confèrent au matériau une structure particulière. Dans cette partie, nous abordons le comportement élastique des matériaux composites.

2.14.1 Formulation des composites

La formulation des composites suit des étapes auxquels les paramètres tels que la température, le temps et la pression sont contrôlés minutieusement. Dans tous les cas, les constituants sont pris dans une certaine proportion selon l'objectif de l'étude.

La formulation des composites suit des étapes comprenant des paramètres tels que la température, le temps et la pression sont minutieusement contrôlés. Dans tous les cas, les constituants sont dosés selon des proportions précises en fonction de l'objectif de l'étude. Dans certains travaux de recherches de la littérature (pour la plupart), la formulation des composites à matrice de polymères plastiques (PEBD, PEHD, PP et autres) renforcés par des fibres naturelles courtes ou longues (non traitées chimiquement ou mécaniquement) se fait sans agent compatibilisant. D'autres formulations se font avec ajout d'agent liant entre la matrice et le renfort fibreux (chimiquement traités ou non). Et les agents compatibilisant utilisés dans le cas des composites à matrice thermoplastique sont généralement le polyéthylène greffé à l'anhydride maléique (PE-g-MA) ou le polypropylène greffé à l'anhydride maléique (PP-g-MA). L'agents de réticulation, tel que le peroxyde de dicumyle (PDC) est parfois utilisé pour favoriser la réticulation de la matrice polymère créant ainsi des radicaux libres favorables à la bonne réactivité entre les constituants du matériaux [154]. Plusieurs travaux ont décrit les procédures de formulation selon les techniques et les types de matériel fabricants existants. En effet, la formulation commence par la fusion du polymère suivi de l'ajout de l'agent de couplage et ou du réticulant avant l'ajout des fibres.

2.14.2 Caractérisation thermomécanique des composites biosourcés

Cette section présente les différentes approches techniques qui sont généralement utilisées pour la compréhension du comportement thermomécanique des composites biosourcés (voir tableau 2.12) [155]. L'étude du comportement élastique des matériaux composites s'avère complexe, car la manière dont ces matériaux se déforment sous une sollicitation extérieure n'est pas toujours facile à appréhender. Selon l'orientation des fibres au sein de la matrice, le composite peut présenter des comportements différents selon la direction d'application de la charge.

Ainsi, théoriquement, les matériaux composites peuvent présenter des propriétés élastiques anisotropes ou isotropes en fonction de l'orientation des fibres. L'analyse thermique a pour objectif d'évaluer la perte de poids, le flux thermique et le changement dimensionnel des matériaux en fonction de la température [122-123-124]. Dans la plupart des études, elle permet de comprendre la stabilité thermique des matériaux composites par détermination de la température de transition vitreuse T_g , la cristallinité, le comportement viscoélastique, le module de traction ainsi que l'oxydation.

Tableau 2.11 Différentes techniques d'analyse thermique et leur unité de mesure

Type d'analyse thermique	Abréviation	Propriétés	Unités de mesures
Analyse thermique différentielle	ATD	Différence de température	°C ou μV
Analyse thermogravimétrique	ATG, DTG	Masse	Gramme
Analyse thermomécanique	TMA	Déformation	Mètre
Analyse mécanique dynamique	DMA	Élasticité	$P = N/m^2$
Calorimétrie différentielle à balayage	DSC	Enthalpie	$W = J/s$

2.15 Vieillessement des composites biosourcés

L'étude du vieillissement des matériaux biosourcés constitue un enjeu majeur pour évaluer la durabilité du matériau face aux facteurs environnementaux tels que l'humidité, les moisissures, les champignons, les termites ou encore la température. Ces évaluations sont généralement réalisées en considérant la combinaison de plusieurs paramètres ou chacun séparément. L'intérêt de cette approche réside dans la compréhension de l'influence mutuelle, ou non, de ces paramètres sur la durabilité des matériaux. Cette partie présentera cependant le vieillissement hydrothermique et thermique, ainsi que les modèles permettant de les décrire de manière optimale.

2.15.1 Vieillessement hydrothermique

2.15.1.1 Mécanisme de diffusion d'humidité

La diffusion de l'humidité dans les composites renforcés par des fibres naturelles est possible dans le cas d'une immersion dans de l'eau déminéralisée ou en présence d'humidité

relative (HR) ou « degré hygrométrique ». Les travaux de Rouison et al.[158] ont montré que, pour une immersion dans l'eau distillée des composites à base de polyester/fibres de chanvre, la saturation à l'équilibre est atteinte au 100^e jour, alors qu'elle n'est pas enregistrée en humidité relative, même au-delà de 200 jours. Cette observation montre que la diffusion de l'humidité au sein d'un composite dépend de la présence effective des molécules d'eau, notamment en quantité suffisante pour interagir avec les constituants du matériau et augmenter ainsi la vitesse de diffusion de l'eau au sein du composite. Le [tableau 2.12](#) présente quelques données issues des modèles de Fick et de Langmuir appliqués à trois types de fibres. Le comportement des composites vis-à-vis de l'humidité dépend de celui de leurs constituants pris isolément, mais également des caractéristiques des interfaces (diffusion de l'eau par capillarité à l'interface fibre/matrice, gonflement différentiel, fissuration, etc.) [159]. Selon le modèle de Langmuir [160], l'eau absorbée peut se présenter sous deux formes : liée et libre [161]. Dans ce cadre, le mécanisme d'absorption de l'eau implique à la fois la fixation de l'eau et la migration de l'eau libre à travers les porosités et les défauts.

Tableau 2.12 Modèles d'étude de vieillissement de quelques fibres

Type de fibre	Modèle de diffusion	Condition expérimentale	Paramètres		Référence
			D (mm ² .s ⁻¹)	M _{sat} (%)	
Jute	Fick	Immersion à 23°C	1,12.10 ⁻⁶	67,8	[162]
	Langmuir		5,9.10 ⁻⁶		
	Fick	80% HR à 23°C	4,0.10 ⁻⁵	12,3	
Sisal	Fick	Immersion à 23°C	2,14.10 ⁻⁶	60,6	
	Langmuir		9,1.10 ⁻⁶		
	Fick	80% HR à 23°C	1,2.10 ⁻⁵	11,2	
Lin	Fick	Immersion à 23°C	1,2.10 ⁻⁶	62,5	
	Langmuir		6,8.10 ⁻⁶		
	Fick	80% HR à 23°C	2,0.10 ⁻⁵	12	
Lin	Fick	75% HR à 23°C	3,7.10 ⁻⁵	-	[163]
Lin	Fick	66% HR à 23°C	4,0.10 ⁻⁵	15	[164]

L'eau liée réagit chimiquement avec les groupements hydroxyles des constituants chimiques de la fibre tout en formant des liaisons hydrogène [132-133]. Ce mécanisme d'absorption de type Langmuir attribue à chaque molécule d'eau la probabilité β qu'une

molécule liée devienne libre et la probabilité γ qu'une molécule libre devienne liée. Les paramètres D , M_t , M_m , t et h représentent respectivement le coefficient de diffusion, les masses à l'instant de l'absorption et à la saturation, le temps d'immersion et l'épaisseur de l'éprouvette. Ainsi, pour des durées courtes et longues, on utilise les équations 2.3 et 2.4 [127-134] :

$$\checkmark \text{ Si, } \frac{M_t}{M_m} < 0,05, \text{ alors } M_t = \frac{4}{\pi^2} \left[\frac{\beta}{\gamma+\beta} M_m \right] \sqrt{\frac{\pi^2 D}{h^2}} t \quad 2.3$$

$$\checkmark \text{ Si, } \frac{M_t}{M_m} > 0,05, \text{ alors } M_t = M_m \left[1 - \frac{\gamma}{\gamma+\beta} e^{-\beta t} - \frac{\beta}{\gamma+\beta} \frac{8}{\pi^2} e^{-\frac{D t}{h^2} \pi^2} \right] \quad 2.4$$

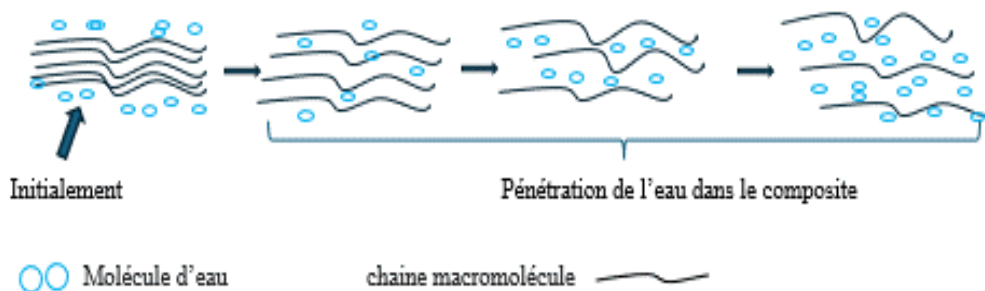


Figure 2.25 Mécanisme de pénétration de l'eau dans les composites

Après la pénétration de l'eau dans le composite, et en tenant compte des mécanismes décrits précédemment selon la nature de l'eau (liée ou libre) dans le matériau, figure 2.25 [64], la **Figure 2.26** est proposée pour illustrer les deux mécanismes qui se produisent lors du vieillissement hydrique par l'eau liquide.

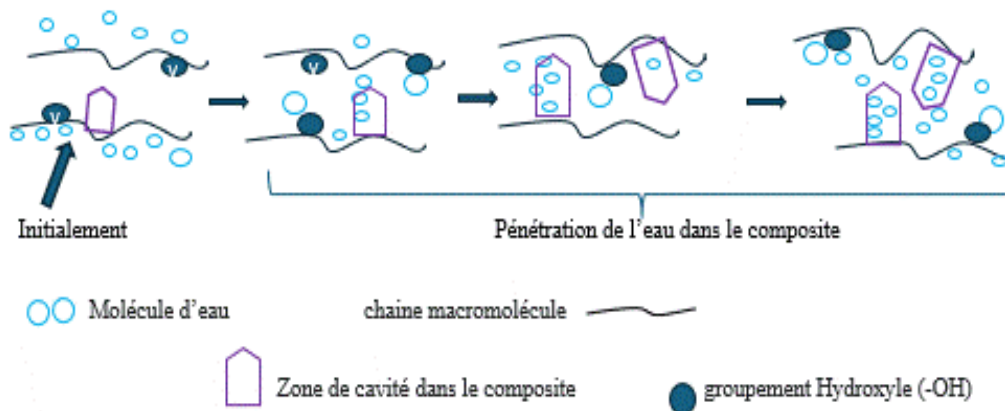


Figure 2.26 Illustration des mécanismes de diffusion de l'eau dans les composites

Le milieu environnant auquel est soumis le matériau pour l'étude du phénomène de vieillissement hydrique prend en compte plusieurs facteurs. Ainsi, l'absorption de l'eau par le matériau dépend de la température, de la nature et de l'orientation des fibres, de la fraction volumique, de la nature de la matrice, ainsi que du procédé de fabrication [135-136].

Plusieurs modèles ont été développés pour l'étude du vieillissement hydrique des matériaux composites. Les modèles de Fick et de Langmuir sont les plus utilisés en raison de leur mise en œuvre relativement simple et de la prise en compte, dans ces modèles, de paramètres reflétant la réalité. Cependant, plusieurs auteurs de la littérature ont étudié la diffusion Fickienne dans les composites en considérant la température comme paramètre variable, sans toutefois négliger le paramètre temps, qui reste le moins étudié. Ils concluent que, lorsque la température augmente, le coefficient de diffusion augmente également, phénomène qui ne corrobore pas entièrement avec le modèle de Fick [170]. Freund et al.[171] précisent que ce modèle prend en compte deux paramètres : la diffusivité, qui traduit la vitesse d'absorption d'humidité, et le taux d'humidité à saturation, représentatif de la quantité maximale d'eau que peut absorber le matériau. Dans cette approche méthodologique, pour que la théorie soit applicable, il est nécessaire de considérer [171] l'hypothèse selon laquelle la variation de la masse des éprouvettes est due uniquement aux phénomènes d'absorption et de désorption d'eau dans le composite, sans qu'aucun autre phénomène gazeux ou réaction chimique n'intervienne.

La nature physicochimique du matériau, la température et le taux d'humidité relatif de l'environnement sont des paramètres qui ne dépendent pas de l'absorption du matériau composite [172]. Selon la première loi de Fick, applicable aux matériaux polymères, le flux de masse $\vec{\varphi}$ est défini en fonction de la diffusivité D et du gradient de concentration C du milieu humide, afin de décrire la diffusion et l'équilibre de concentration de l'espèce diffusante au sein du matériau [173].

$$\vec{\varphi} = -D\overrightarrow{\text{grad}(C)} \quad 2.5$$

Il faut signaler que la géométrie du matériau exerce une influence sur la diffusion de l'espèce diffusante. Comme la diffusion dépend à la fois de l'espace et du temps, la seconde loi de Fick est généralement utilisée :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \text{div}(-D \overrightarrow{\text{grad}}(C)) \quad 2.6$$

En formant que le matériau est isotrope et homogène, la diffusivité devient indépendante de la direction de diffusion. Par ailleurs, le coefficient de diffusion devient également indépendant du temps et de la concentration en tout point du matériau. En admettant que ces hypothèses sont universellement valables, la masse de la matière diffusante est obtenue à partir de l'[équation 2.7](#) en résolvant les [équations 2.5](#) et [2.6](#).

$$\frac{M_t}{M_m} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \left[\frac{1}{(2n+1)^2} \exp\left(-\frac{(2n+1)^2 \pi^2 D t}{h^2}\right) \right] \quad 2.7$$

Avec :

M_t = teneur en eau à l'instant t , M_m = teneur en eau à l'équilibre, t = temps, h = épaisseur de l'échantillon et n = la constante qui caractérise le mécanisme de diffusion.

Cependant, la courbe d'évolution de l'absorption $\frac{M_t}{M_m} = f(\sqrt{t}/h)$ (**Figure 2.27**) matérialisée par les données expérimentales, cette analyse permet de distinguer deux grandes catégories si la diffusion suit le modèle de Fick. La diffusion Fickienne correspond à une diffusion du matériau avec un exposant $n=0,5$ pour signifier qu'elle se fait de façon lente, de façon rapide, elle se fait à $n = 1$ ou $n >$, Une situation de diffusion anormale peut survenir lorsque $0,5 < n < 1$. Si la prise de l'humidité par l'éprouvette au temps t est inférieur à 60% de la valeur à saturation alors le coefficient de diffusion D est déterminé [110-111]. C'est alors que :

✓ Pour une valeur du rapport $\frac{M_t}{M_m} < 0,5$, l'[équation 2.7](#) peut être résumé a :

$$\frac{M_t}{M_m} = \frac{4}{h} \sqrt{\frac{Dt}{\pi}} \quad 2.8$$

Cette [équation 2.8](#) permet de déterminer le coefficient de diffusion qui correspond à la partie linéaire de la courbe d'absorption. Ainsi, à partir de l'[équation 2.8](#), on peut écrire la relation directe du coefficient de diffusion telle que l'exprime l'[équation 2.9](#).

$$D = \pi \left(\frac{k}{4M_m} \right)^2 \quad 2.9$$

Où k est le coefficient directeur de la pente à la courbe de $M_t = f(\sqrt{t}/h)$

✓ Pour une valeur du rapport $\frac{M_t}{M_m} > 0,5$, l'[équation 2.7](#) peut être résumé à :

$$\frac{M_t}{M_m} = 1 - \exp\left[-7,3 \left(\frac{Dt}{h^2}\right)^{0,75}\right] \quad 2.10$$

Le suivi gravimétrique de l'absorption d'eau avec comme masse initiale m_0 et masse à l'instant m_t par les composites est coordonné par l'expression de l'[équation 2.11](#) [176].

$$M(\%) = \frac{m_t - m_0}{m_0} \quad 2.11$$

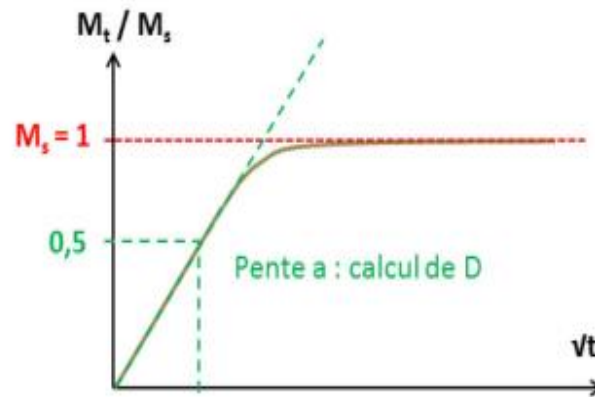


Figure 2.27 Courbe normalisée de la diffusion de Fick

2.15.1.2 Effet de la température sur la prise d'humidité

Plusieurs études ont été réalisées concernant l'effet de la température sur l'absorption d'eau des composites. Les travaux de Kazémi et al.[177] ont montré que la température d'immersion a un effet significatif sur l'absorption d'eau des composites HDPE et PP, vierges ou recyclés, contenant de la sciure de bois. Pour leur part, Shen et al.[178] ont observé une dégradation des fibres de lin au sein des composites ainsi qu'une altération de la composition chimique des fibres pour des températures allant de 23 à 140 °C lors de l'absorption. Bensalem et al.[179] ont étudié l'influence des températures de 20, 40, 60 et 80 °C sur l'absorption d'eau et ont constaté que l'équilibre d'absorption est atteint plus rapidement à des températures élevées. Au regard de ces différentes informations, il est admis que la vitesse d'absorption de l'eau par les matériaux composites à fibres naturelles

est fortement influencée par la température du milieu. Les fibres naturelles, riches en cellulose et en lignine, sources de groupements hydroxyles, présentent une grande affinité pour les molécules d'eau. Cette affinité peut toutefois être atténuée si les fibres ont subi une modification préalable visant à réduire la quantité de -OH. Par ailleurs, les polymères, en particulier les thermoplastiques, sont sensibles à la chaleur, ce qui favorise la mobilité des molécules et des liaisons chimiques, entraînant ainsi l'endommagement de leur structure. Cela a pour conséquence d'altérer l'interface du composite, de provoquer une perte de masse des fibres et de créer des micropores et des fissures susceptibles de se propager au sein du matériau composite.

2.15.1.3 Influence du taux et de la longueur des fibres sur l'absorption

Les travaux d'Abessolo et al. [180] ont permis d'observer que, pour un composite de bloc de terre comprimé renforcé par des fibres de bambou, l'absorption d'eau augmente avec la fraction de fibres la plus élevée et pour les plus grands volumes de fibres. La prise de masse d'eau augmente également dans les composites polyester/fibres de chanvre lorsque la fraction volumique des fibres de chanvre passe de 0 à 35 % [181]. Il apparaît donc clairement que l'absorption d'eau dans les matériaux composites renforcés par des fibres naturelles est plus prononcée en fonction du volume des fibres, en raison des groupements polaires qu'elles contiennent. Par ailleurs, plus un matériau composite renforcé par des fibres naturelles contient un volume élevé de fibres, plus sa densité diminue. En effet, les fibres ont alors tendance à se lier entre elles et à occuper des zones non désirées, au lieu de créer des interfaces efficaces avec le polymère qu'elle renforce.

2.15.2 Vieillessement thermique

L'étude du vieillissement des composites se réalise par l'application de chaleur sur l'édifice, ce qui affecte les constituants du composite. Cependant, en connaissant le comportement thermique des constituants du matériau, la dégradation structurelle du matériau commence à la température la plus basse correspondant à la température sensible. À cette température, le vieillissement peut également être observé au cours de la vie du matériau. Plusieurs phénomènes expliquent cette détérioration, soit par la présence de défauts lors du

vieillissement, soit par la rupture des liaisons des chaînes macromoléculaires, ou encore par la présence d'impuretés.

Les travaux de Joseph et al. [182] sur le vieillissement thermique à 80 °C du PEBD renforcé de fibres de sisal, durant 7 jours, ont montré une stabilité dimensionnelle moins performante que celle du composite PEBD-fibres de sisal et de verre. Cette différence peut être attribuée à la nature de l'interface entre les fibres et la matrice.

Par ailleurs, le vieillissement des matériaux a également été décrit par le modèle d'Arrhenius, largement utilisé pour analyser le vieillissement thermique des matériaux.

2.15.3 Effet de l'humidité sur les propriétés mécaniques

L'incorporation de fibres pour renforcer les composites à matrice polymère a pour objectif, d'une part, d'améliorer les propriétés mécaniques du composite et, d'autre part, de contribuer à la protection de l'environnement en limitant la pollution liée à l'utilisation des polymères dans la fabrication de pièces ou de matériaux. Cependant, le caractère hydrophile des fibres naturelles pose un problème de durabilité et de performance des composites biosourcés face à l'humidité. Plusieurs études ont été exercées sur l'influence de l'humidité sur les propriétés mécaniques quasi-statiques avant et après vieillissement en immersion ou en cycles immersion-séchage.

A l'instar de Bensalem et al.[179] , Dhakal et al. [183], Chow et al.[184], Hu et al.[183] et Scida et al.[185], la détermination de la résistance à la traction, du module d'élasticité de Young ainsi que de la déformation à la rupture a été effectuée sur les composites avant et après vieillissement afin d'évaluer l'effet de l'humidité. D'après la **Figure 2.28** [184], une diminution de la résistance à la traction, du module d'élasticité de Young et de la déformation à la rupture a été respectée pour de longues durées d'immersion. Cette diminution s'accroît avec l'augmentation du volume de fibres [184]. On peut attribuer cette baisse de performance à l'endommagement des fibres au sein du matériau, soit par perte de masse des fibres due à un phénomène d'hydrolyse, soit par l'emprisonnement de molécules d'eau dans les cavités du composite, fragilisant ainsi le matériau et entraînant une perte de ses propriétés mécaniques. Les travaux de Hu et al.[183] sur les composites

polyacides/fibres de jute ont montré le même comportement que ceux rapportés par Chow et al.[184]. Des études similaires réalisées par Scida et al.[185], Bensalem et al.[179] et Dhakal et al.[186] confirme également ce phénomène de diminution des propriétés mécaniques.

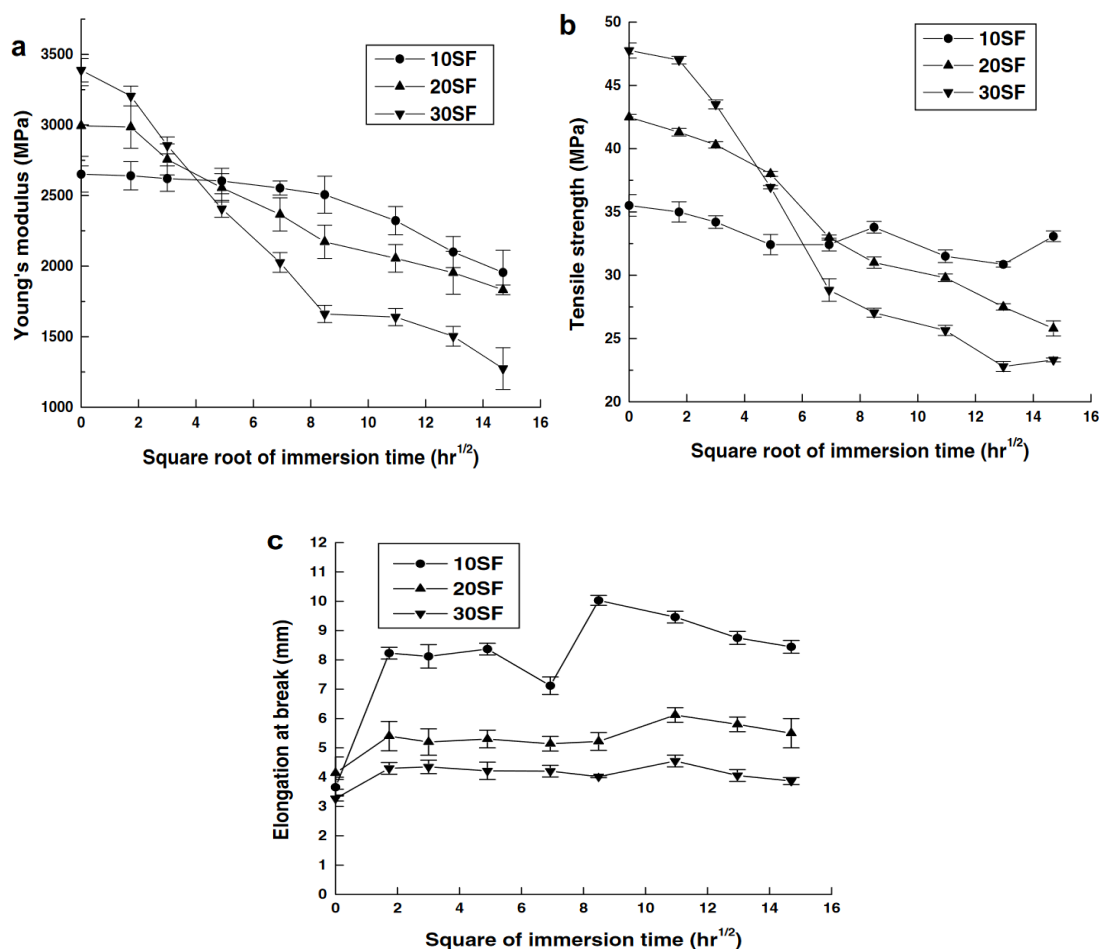


Figure 2.28 Effet de l'humidité sur le comportement en traction du composite PP/fibres de sisal

2.16 Vers la simulation thermique

2.16.1 Aspect macroscopique et microscopique du phénomène

Cette section donne des renseignements pour la simulation du phénomène thermique des composites. Plusieurs approches empiriques permettent d'évaluer le caractère homogène des composites considérés comme hétérogène à l'état macroscopique. Parmi ces approches figurent les modèles d'homogénéisation de Halpin-Tsai; de Tsai-Pagano; et de Lavengoo-Goettler auxquels

s'ajoute le diagramme cole-cole et les lois des mélanges. Pour la suite des travaux, le diagramme cole-cole est adopté pour des raisons de sa fiabilité car découlant des modules de stockage et de perte de la DMA.

2.16.2 Homogénéisation micromécanique

L'étude des propriétés mécaniques des matériaux composites prend en compte leur état homogène. Dans un matériau composite renforcé par des fibres, la tenue mécanique est principalement assurée par ces dernières. Afin d'analyser plus rigoureusement ces propriétés, il convient dans un premier temps de considérer le matériau comme homogène. Par ailleurs, la proportion du renfort influence directement les propriétés des composites. Ainsi, la formulation des composites se base sur la fraction massique (formulation pratique) ou volumique (étude théorique) du renfort et de la matrice utilisée. Les lois de mélange en découlent afin de satisfaire les conditions d'homogénéisation.

2.16.3 Loi des mélanges

2.16.3.1 Fraction volumique

Théoriquement, les volumes d'un matériau composite, d'un renfort et d'une matrice permettent d'évaluer la fraction volumique des constituants.

$$V_f = \frac{v_f}{v_c} \quad 2.12$$

$$V_m = \frac{v_m}{v_c} \quad 2.13$$

$$v_c = v_f + v_m \quad 2.14$$

$$V_f + V_m = \frac{v_f}{v_c} + \frac{v_m}{v_c} = 1 \quad 2.15$$

Par conséquent :

$$V_f = 1 - V_m \quad 2.16$$

$$V_m = 1 - V_f \quad 2.17$$

Avec : v_f , v_c , v_m , V_f , V_m les volumes de fibres, de composites et de matrice respectivement, et fractions de fibres et de matrice respectivement.

2.16.3.2 Fraction massique

Par analogie, la fraction massique est déterminée comme celle volumique.

$$W_f = \frac{w_f}{w_c} \quad 2.18$$

$$W_m = \frac{w_m}{w_c} \quad 2.19$$

$$w_c = w_f + w_m \quad 2.20$$

$$W_f + W_m = \frac{w_f}{w_c} + \frac{w_m}{w_c} = 1 \quad 2.21$$

Par conséquent :

$$W_f = 1 - W_m \quad 2.22$$

$$W_m = 1 - W_f \quad 2.23$$

Avec : w_f , w_c , w_m , W_f , W_m les volumes de fibres, de composites et de matrice respectivement, et fractions de fibres et de matrice respectivement.

2.16.3.3 Diagramme Cole-Cole

Il est obtenu à partir des propriétés de DMA. Il est basé sur le tracé de la courbe de $E'' = f(E')$ ou sur les viscosités du matériau. Le diagramme représente la partie imaginaire du module de perte. On obtient un arc de cercle ou une courbe semi-circulaire dont la forme renseigne sur les mécanismes de polarisation ou de conduction du matériau. Ainsi pour les composites, il donne renseignement sur son caractère homogène. Si le diagramme est un arc unique ou circulaire, alors, le composite est considéré comme homogène sinon, il est hétérogène [228-229].

Chapitre 3 - Méthodologie

Ce chapitre présente les matériels et méthodes adoptées pour atteindre les objectifs fixés par cette thèse, qui vise à tester la résistance thermomécanique du matériau composite formulé à l'état d'échantillon, ainsi qu'à produire des éco-pavés à usages divers. Les constituants sont : les fibres obtenues à partir de la partie centrale (le tronc) de l'arbre d'eucalyptus, le polymère plastique recyclé et vierge (PEBD), ainsi que l'agent couplage qu'est le polyéthylène greffé à l'anhydride maléique (PE-g-MA). La [figure 3.1](#) (à GIP-Togo-GTVD-ENPRO-UL) et la [figure 3.2](#) (à l'I2E3-UQTR) sont les résumés de la démarche globale de la formulation des composites.

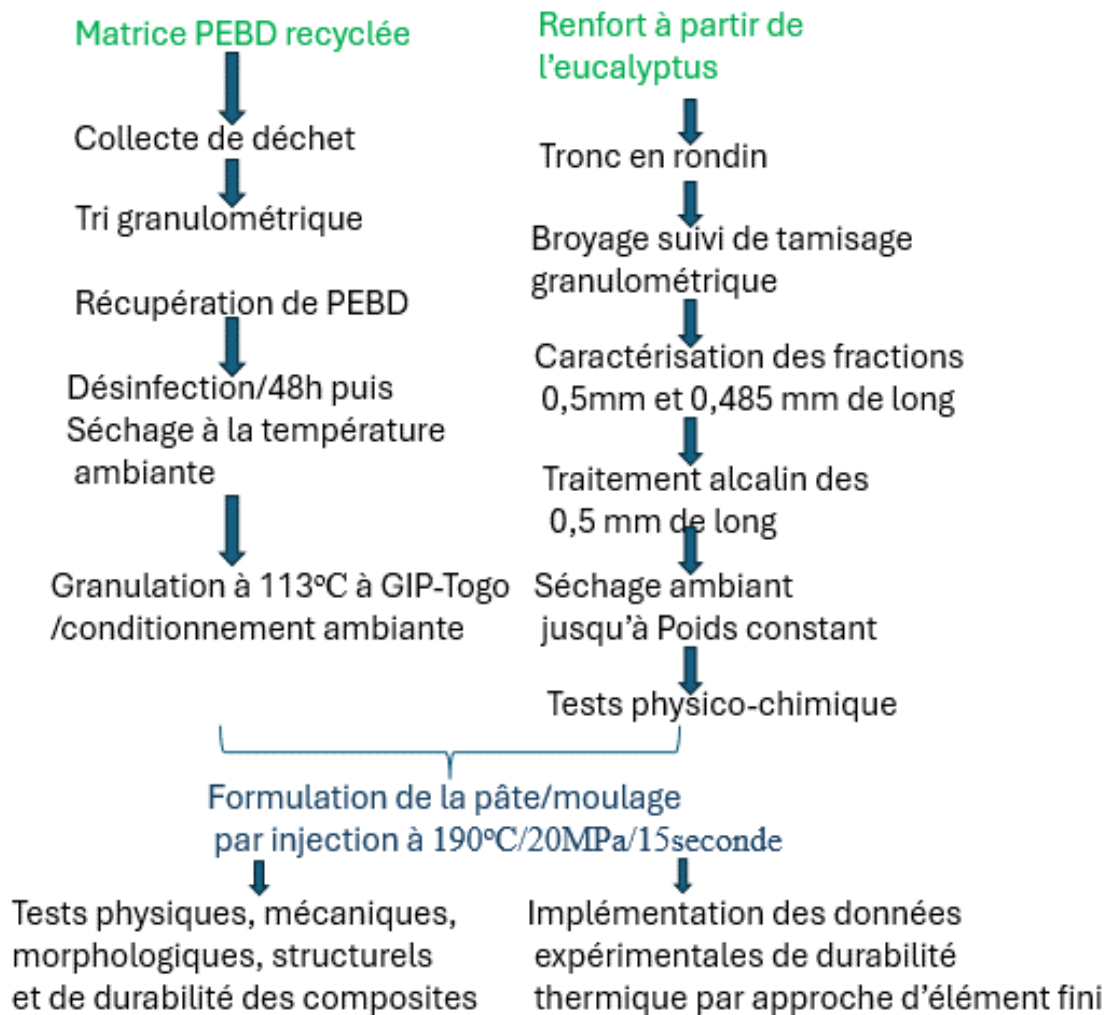


Figure 3.1 Démarche globale de formulation des composites au PEBD recycle

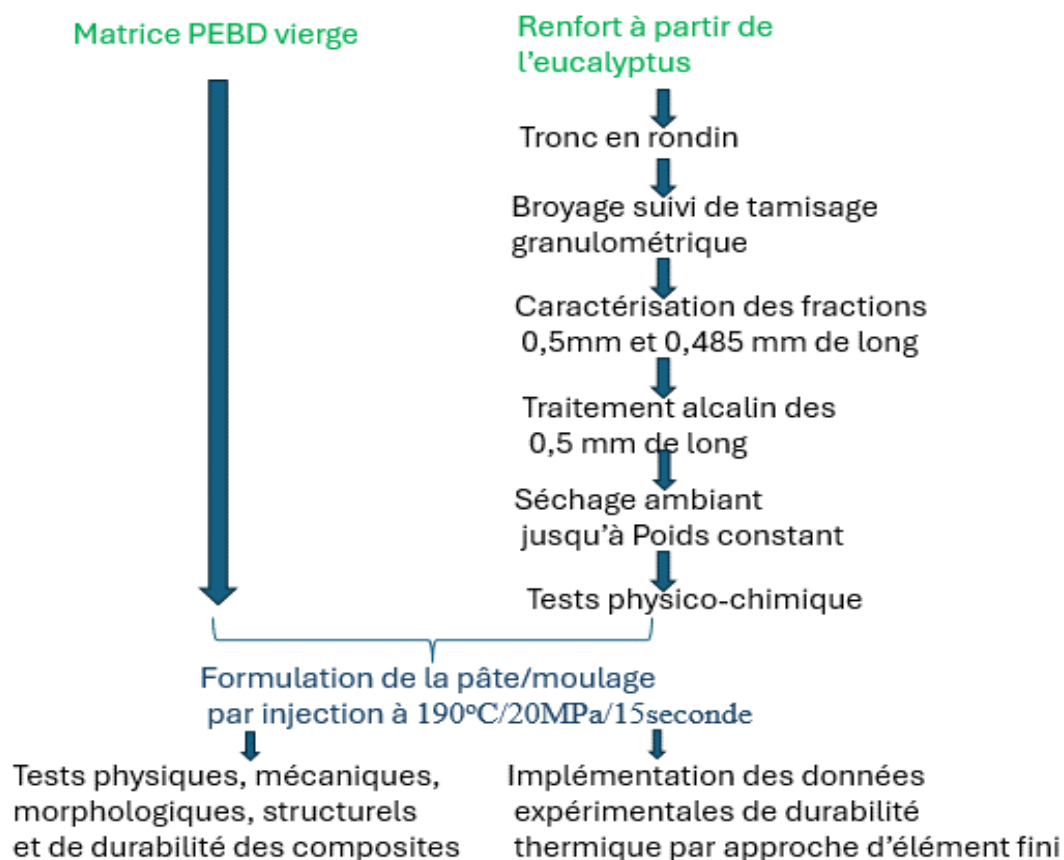


Figure 3.2 Démarche globale de formulation des composites au PEHD vierge

3.1 Production, caractérisation des fibres d'eucalyptus

Comme c'était décrit dans la section du chapitre 2, cette étude a été portée sur les fibres issues de l'espèce d'Eucalyptus *camaldulensis*. En effet, des échantillons de l'espèce mis sous la forme de rondin de bois ont été conditionnés depuis la république du Togo pour être traité à l'I2E3 à l'université de Québec à Trois-Rivières.

3.1.1 Production des fibres

3.1.1.1 Échantillonnage

L'arbre d'eucalyptus a été identifié dans la région maritime du Togo au cours du mois de septembre 2021. Conditionnés sous la surveillance du ministère en charge des eaux et forêts de la République togolaise, les échantillons, confectionnés sous la forme de rondins de bois pour un total de 95 kilogrammes de bois sec, ont été utilisés pour la préparation des fibres.

La **Figure 3.3** présente une illustration photographique de l'échantillon sous forme de rondin du tronc de l'eucalyptus sec.



Figure 3.3 Photographie du rondin du bois d'eucalyptus à l'état d'échantillon

3.1.1.2 Production des fibres

Les fibres ont été fabriquées à l'Innofibre, associée à l'I2E3 de l'UQTR. À l'aide de l'équipement de broyage lent Weima, type WLK-4, de l'Innofibre, les rondins ont été transformés en éclisses de bois de différentes granulométries, en fonction de la vitesse de rotation de 100 tr/min. La particularité de ce broyeur réside dans sa capacité à uniformiser la taille des résidus afin d'optimiser leur séparation, réalisée ici par tamisage. La **Figure 3.4a** présente l'équipement installé sur une plateforme mobile. Les produits obtenus par broyage ont été séparés selon leur granulométrie à l'aide de la méthode de tamisage, sur un tamiseur portable Sieve Shaker, modèle RX-24, fonctionnant à 30 rpm au maximum.



Figure 3.4 a- Broyeur lent Weima type WLK-4 ; b- Système de tamisage, c- Différentes fractions granulométriques

Les fractions récapitulées sur la Figure 3.4c ont été reconstituées après pesage suivi de la détermination de la siccité et de la composition en éléments lignocellulosiques. La [figure 3_5](#) illustre la répartition des fractions de fibres selon leurs granulométries.

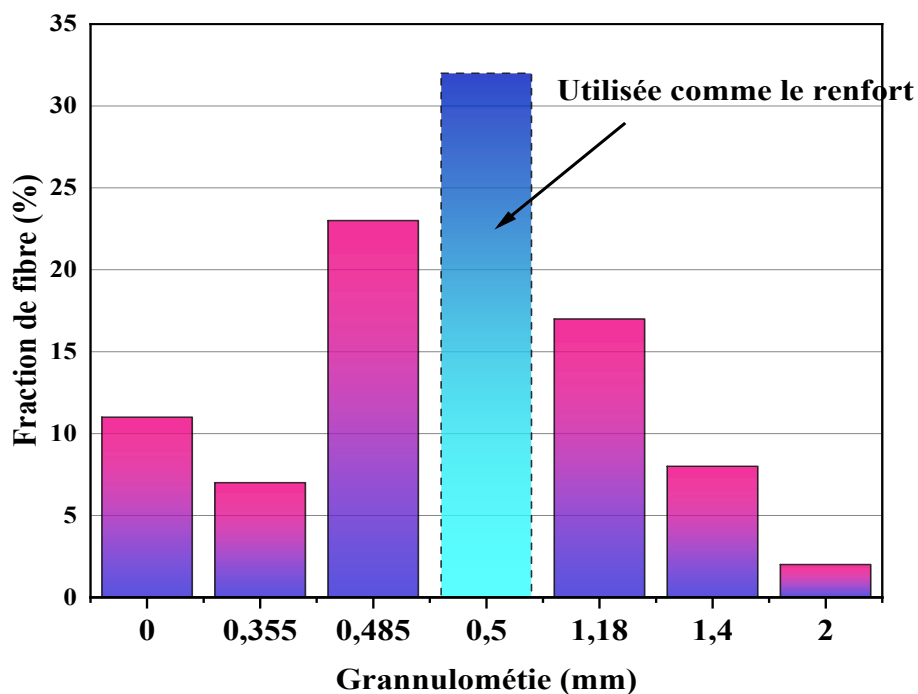


Figure 3.5 Répartition des fractions de fibres selon leurs granulométries

3.2 Caractérisation des fibres

3.2.1 Caractérisation physique des fibres

i. Détermination de la siccité

Pour la détermination de la siccité et de la composition lignocellulosique, deux approches ont été adoptées. Tout d'abord, les fractions notées FE_{0.5} et FE_{0.485}, correspondantes aux granulométries $d > 0,5$ mm et 0,485 mm, ont été échantillonnées pour une masse de 8,5 g chacune, puis mises à l'étuve à 105 °C. La prise de masse a été effectuée à intervalles réguliers de 24 h, jusqu'à l'obtention d'une masse constante en 72 h, après quoi la siccité a été déterminée selon la formule de l'équation 3_1:

$$M = \frac{m_1}{m_0} * 100 \quad 3.1$$

Avec m_0 et m_1 respectivement masse initiale et masse anhydre. La caractérisation lignocellulosique est également portée sur ces deux fractions.

ii. Longueur des fibres

Les fibres fournies présentent différentes granulométries. Après tamisage, les fractions les plus homogènes qui ont fait l'objet de caractérisation sont : 0,5 mm et 0,458 mm.

iii. Masse volumique apparente des fibres

Nous avons utilisé une approche expérimentale basée sur l'évaluation de la masse volumique apparente des fibres à l'aide d'un pycnomètre de laboratoire. Le pycnomètre est constitué d'une fiole jaugée de $50 \pm 0,05$ ml. Cinq séries de mesures de la masse volumique ont été réalisées de manière successive dans les mêmes conditions. La même méthode a été appliquée pour la détermination de la masse volumique apparente des composés. La **Figure 3.6** présente la prise de la masse volumique apparente.



Figure 3.6 Détermination de la masse volumique des fibres et des composites

3.2.2 Caractérisation chimique

La caractérisation des fibres a été portée sur leur composition en holocellulose, lignine et extractibles. Deux types d'échantillons de fibres ont été analysés : les fractions de fibres de longueur supérieure à 0,5 mm et 0,458 mm. L'objectif de cette caractérisation est de comparer leurs compositions en éléments lignocellulosiques afin de sélectionner la fraction la plus appropriée pour le renfort dans la formulation des composites. Les normes adoptées sont présentées dans le **Tableau 3.1** Les protocoles sont décrits dans cette section et toutes les concentrations des réactifs sont exprimées en pourcentage massique. Tous les essais sont répétés cinq fois et les valeurs moyennes sont déterminées.

Tableau 3.1 Les normes utilisées pour la caractérisation des fibres

Éléments	Norme
Solubilité dans l'eau chaude	ASTM D1110-21
Lignine	ASTM D1106-96
Holocellulose	ASTM D1104-56
Alpha-cellulose	ASTM D1103-60
Solubilité Éthanol-Toluène	ASTM D1107-96

i. Solubilité dans l'eau chaude [189]

Les fibres contiennent des composés facilement extractibles dans l'eau chaude. Selon la norme ASTM D1110-21 [196-197], la solubilité à l'eau chaude permet d'évaluer les tanins, les gommés, les sucres, les matières colorantes et les amidons présents dans le bois. Cependant, 2 g de fibres sèches sont traités avec 200 ml d'eau distillée opérée à ébullition pendant 3 heures. Après filtration et lavage, le rétentat est séché à 105 °C jusqu'à obtention. L'équation 3.2 permet de calculer la part soluble dans l'eau chaude.

$$\% \text{ matieres solubles} = \frac{W_1 - W_2}{W_1} \times 100 \quad 3.2$$

Avec: W_1 = masse initiale sèche, W_2 = masse anhydre après extraction à chaud

ii. Solubilité dans le mélange Éthanol-Toluène

Selon la norme ASTM D1107-96, deux échantillons de 2 g de fibres ont été préparés. L'un a été séché jusqu'à poids constant, et la proportion de matière sèche a été déterminée. L'autre a été traité avec 150 mL d'un mélange éthanol-toluène (en proportion 1:2). La durée de l'opération était de 8 heures, avec environ six siphonages par heure. Le mélange filtré et lavé a ensuite été séché à l'étuve à 105 °C jusqu'à poids constant. Les composants solubles sont les graisses et les cires. La relation 3.3 suivante a permis de quantifier ces fractions ainsi solubilisées [192].

$$\% \text{ matiere soluble dans Eth - Tol} = \frac{W_2}{PW_1} \times 100 \quad 3.3$$

Avec: W_2 = poids anhydre du reste après extraction

W_1 = poids de l'échantillon non séché et P = la proportion de la matière sèche

iii. Composition en Holocellulose

L'holocellulose regroupe la cellulose et l'hémicellulose. La détermination de la teneur de ces composés dans le bois est basée sur la norme ASTM D 1104-56.

Dans une fiole contenant un mélange de 150 mL d'eau distillée, 0,2 mL d'acide acétique glacial et 1 g d'hypochlorite de sodium (NaClO_2), 3 g de fibres préalablement traitées avec le mélange éthanol–toluène ont été introduites. Le système est chauffé dans un bain d'eau maintenu à 80 °C pendant 5 heures. Afin de maintenir la composition en éléments réactifs dans le système, 0,2 mL d'acide acétique glacial et 1 g de NaClO_2 ont été ajoutés chaque heure. Après cette période de réaction, la fiole est retirée et placée dans un bain d'eau glacée pour ramener la température du système à 10 °C. Le résidu de la filtration est ensuite rincé progressivement avec 500 mL d'eau distillée, puis séché à 105 °C jusqu'à poids constant. La **Figure 3.7** est la réalisation expérimentale.

$$\%Hémicellulose = \%Holocellulose - \%Cellulose \quad 3.4$$

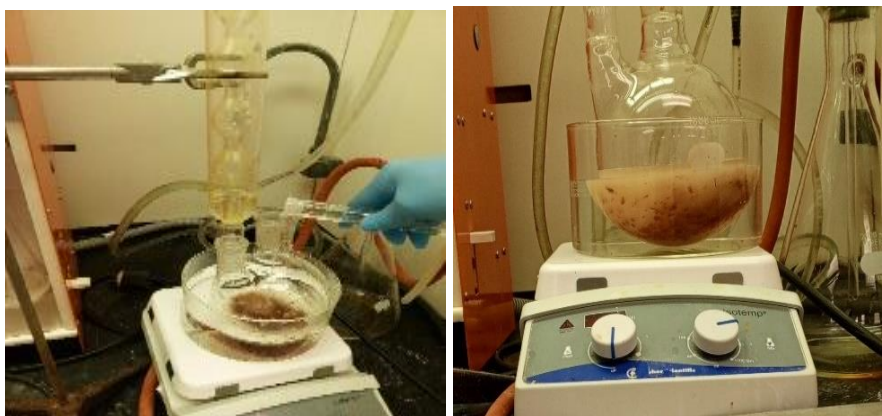


Figure 3.7 Montage expérimental de la détermination d'holocellulose

iv. Composition en cellulose

La cellulose est quantifiée sur la base de la fraction d'holocellulose préalablement séchée. Le protocole expérimental utilisé repose sur la norme ASTM D1103-60. Pour ce faire, 2 g de fibres d'holocellulose sont prélevées et traitées avec 17,5 % en masse d'hydroxyde de sodium pendant 30 minutes.

Ensuite, 50 mL d'eau distillée sont ajoutés pour une agitation durant 5 minutes. Par la suite, l'ensemble est filtré et lavé avec une solution de 8,3 % de NaOH, puis avec 40 mL d'acide acétique à 10 %, suivi d'un rinçage à l'eau distillée, avant d'être séché à 100°C.

v. Teneur en lignine insoluble dans l'acide sulfurique H₂SO₄

Afin de connaître la teneur en lignine insoluble dans l'acide sulfurique contenue dans les fibres ainsi étudiées, la procédure d'hydrolyse acide de la norme ASTM D1106-96 a été adoptée, conformément aux [figures 3.8](#) et [3.9](#).

Selon le protocole décrit par la norme ASTM D1106-96, cette étude a procédé ainsi : Deux échantillons d'essai de 1 g sont pesés et séchés dans un four à 105 °C pendant 2 heures, puis refroidis dans un dessiccateur avant d'être pesés à nouveau. Le séchage est effectué jusqu'à l'obtention d'un poids puis la siccité est déterminée. Après extraction à l'eau chaude, le rétentat est de nouveau placé dans un appareil d'extraction Soxhlet contenant 95 % d'éthanol dans le mélange éthanol-toluène pendant 4 heures. Le produit est ensuite retiré et lavé avec de l'eau distillée contenant 50 mL d'éthanol afin d'éliminer le toluène. L'excès d'éthanol est éliminé à l'aide de 400 mL d'eau chaude à 100 °C pendant 3 heures.

Le retrait est facilité par un lavage supplémentaire de 100 ml d'eau chaude suivi de 50ml d'éthanol. Après lavage, le produit est transvasé dans une fiole contenant 15 mL de H₂SO₄ (72 %), tout en remuant le système pendant environ une minute. L'ensemble est ensuite laissé au repos pendant 2 heures. Dans un erlenmeyer contenant 3 % de H₂SO₄, on ajoute 560 mL d'eau distillée, puis le mélange est porté à ébullition pendant 4 heures, tout en maintenant constante la température et le milieu réactionnel.

Le système est ensuite laissé à refroidir et à reposer, puis filtré dans un creuset préalablement séché et pesé. Le résidu est lavé avec 500 mL d'eau chaude avant d'être séché jusqu'à obtention d'un poids constant. Le contenu est ensuite refroidi dans un dessiccateur avant d'être pesé, et la différence entre creuset seul et le creuset contenant du produit correspond à la lignidine insoluble dans l'acide sulfutrique.

Cinq essais ont été réalisés, et la moyenne des résultats a été réalisée.

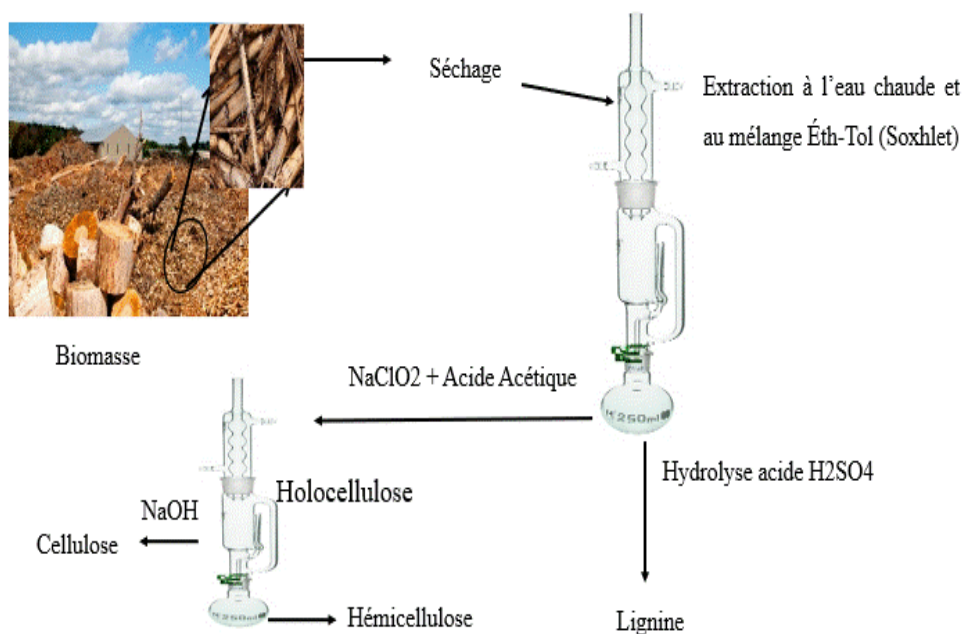


Figure 3.8 Résumé des étapes de déterminations des éléments lignocellulosiques

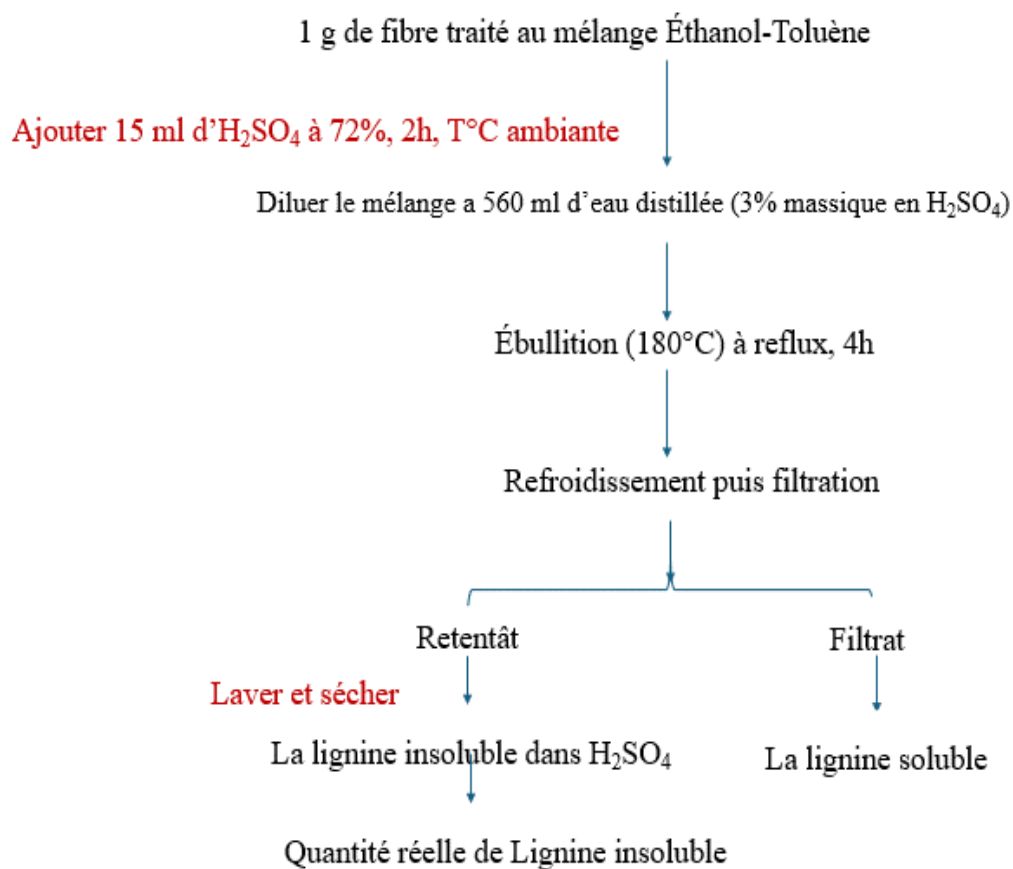


Figure 3.9 Organigramme de la quantification de la lignine

vi. Mercerisation des fibres d'eucalyptus

Les fibres d'eucalyptus ainsi préparées ont subi des modifications chimiques afin de réduire leur rugosité. Le traitement alcalin au NaOH a été réalisé à cet effet. Le **Tableau 3.2** présente le scénario du traitement des fibres codé $FE_{X-\Delta t-T}$, où FE désigne la fibre d'eucalyptus, et X, Δt , T représentent respectivement la concentration en NaOH, le temps de traitement et la température de traitement. La variation de ces paramètres a pour objectif d'optimiser le traitement afin d'obtenir des fibres dont la surface et les propriétés sont améliorées.

Tableau 3.2 Scénarios du traitement des fibres d'eucalyptus

Série	X (% w/v)	Δt (min)	T (°C)
FE _{2.5-60-25}	2,5	60	25
FE _{2.5-120-50}	2.5	120	50
FE _{2.5-180-75}	2,5	180	75
FE _{2.5-240-100}	2,5	240	100
FE ₄₋₆₀₋₂₅	4	60	25
FE ₄₋₁₂₀₋₅₀	4	120	50
FE ₄₋₁₈₀₋₇₅	4	180	75
FE ₄₋₂₄₀₋₁₀₀	4	240	100
FE ₆₋₆₀₋₂₅	6	60	25
FE ₆₋₁₂₀₋₅₀	6	120	50
FE ₆₋₁₈₀₋₇₅	6	180	75
FE ₆₋₂₄₀₋₁₀₀	6	240	100

3.3 Angle de contact par la méthode de Owens-Wendt

Nous avons adopté la méthode de Owens-Wendt [199-200] pour la détermination de l'angle de contact des fibres traitées (voir [figure 3.10](#)). Cette mesure a pour objectif de caractériser l'hydrophobicité des fibres. L'approche par régressions linéaires nous a permis de déterminer les composantes polaires et dispersives, à partir desquelles nous avons calculé

l'énergie. On obtient une droite affine d'équation $y = \mathbf{a}x + \mathbf{b}$, où le coefficient directeur \mathbf{a} représente la composante polaire exprimé par $\gamma_S^p = \mathbf{a}^2$ et \mathbf{b} la composante dispersive exprimé par $\gamma_S^d = \mathbf{b}^2$. Les expressions x et y sont les coordonnées du repère en fonction des énergies polaires et dispersives du liquide ainsi que de l'angle de raccordement.

$$x = \sqrt{\frac{\gamma_L^p}{\gamma_L^d}} \quad 3.5$$

$$y = \frac{\gamma_L(1+\cos(\theta))}{2\sqrt{\gamma_L^d}} \quad 3.6$$

$$\text{Avec énergie de surface totale des fibres : } \gamma_S = \gamma_S^p + \gamma_S^d, \quad 3.7$$

$$\text{Avec énergie de surface totale des liquides : } \gamma_L = \gamma_L^p + \gamma_L^d \quad 3.8$$



Figure 3.10 Épreuves et essai de détermination d'angle de contact

3.4 Formulation des composites PEBD-Eucalyptus

Pour la formulation des composites, les fibres traitées sont notées ET et les fibres non traitées sont notées ENT, elles ont été utilisées pour la formulation des composites avec la matrice de polyéthylène basse densité.

3.4.1 Plan expérimental de la formulation

Pour ce faire, deux proportions de fibres ont été retenues pour la formulation des pâtes de composite. Plusieurs travaux, à l'instar de ceux de Koffi et al., Bravo et al., Fayçal et Mijiyawa et al. [201-202-203] ont largement étudié la quantité de l'agent de couplage, dont la valeur maximale est de 3 %. Pour des valeurs supérieures à celle-ci, Fayçal et al. [195]

ont observé qu'un auto-enchevêtrement survient dans le composite. Étant donné que le bouleau, le tremble et l'eucalyptus sont tous des feuillus et que leurs compositions en éléments lignocellulosiques sont similaires, la même quantité (3 %) de l'agent de couplage PE-g-MA est utilisée dans cette étude, et ce, afin d'éviter le phénomène d'auto-enchevêtrement décrit par Fayçal *et al.*[195].

Tableau 3.3 Récapitulation de la composition du mélange

Eucalyptus traités (notée ET)			
Série	%fibres	%PEBD	%MAPE
PEBD _V 15ET	15	82	3
PEBD _V 25ET	25	72	3
PEBD _R 15ET	15	82	3
PEBD _R 25ET	25	72	3
Eucalyptus non traitées (notée ENT)			
PEBD _V 15ENT	15	82	3
PEBD _V 25ENT	25	72	3
PEBD _R 15ENT	15	82	3
PEBD _R 25ENT	25	72	3
Polymère vierge et recyclé			
PEBD _V	0	100	0
PEBD _R	0	100	0

3.4.2 Fabrication de la pâte de composite

3.4.2.1 Choix de la matrice

Dans l'optique de proposer une voie de valorisation des déchets plastiques, une problématique particulièrement difficile à résoudre dans les pays africains, et notamment en République togolaise, et compte tenu du manque de technologies ainsi que du transfert et de l'adaptation de celles-ci dans la gestion durable des effluents solides, notamment les polymères plastiques, cette étude vise à orienter la réflexion vers le développement de matériaux composites à base de fibres d'eucalyptus.

Le choix s'est porté sur le polyéthylène basse densité recyclé provenant de la plateforme ENPRO (Lomé, Togo), puis convoyé au centre industriel vert de plastique (GIP-Togo) pour la production des composites en PEBD recyclé.

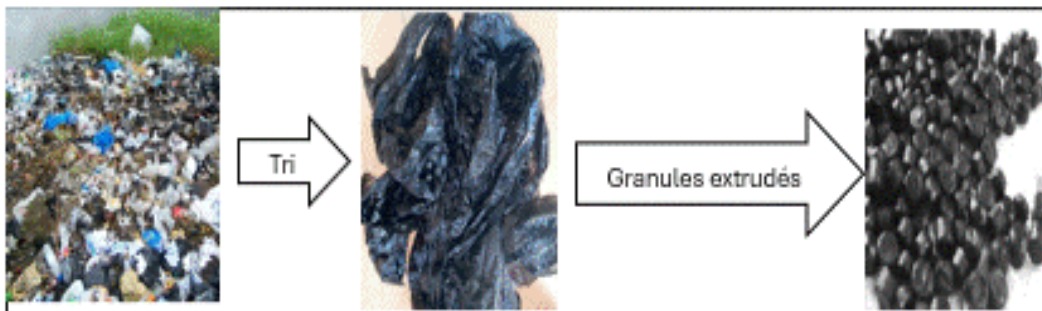


Figure 3.11 Déchets de plastique PEBD recyclé

Le polymère vierge utilisé dans cette phase expérimentale est fourni par Nova Chemical et se présente sous la forme de granules avec un diamètre compris entre 2 et 3 mm. La formulation des composites a été effectuée à l'I2E3 de l'UQTR.



Figure 3.12 Polyéthylène basse densité PEBD

3.4.2.1 Fibres d'eucalyptus utilisées dans cette étude

Les fibres utilisées dans cette étude sont celles obtenues du bois de l'*Eucalyptus cameldulensis*. Deux catégories ont été utilisées c'est-à-dire les fibres traitées (FT) et les fibres non traitées (FNT) et donc les caractéristiques sont :

- Longueur : 0,5 mm
- Masse volumique apparente des FT (g/cc) : $0,68 \pm 0,011$
- Masse volumique apparente des FNT (g/cc) : $0,71 \pm 0,010$



Figure 3.13 Fibres d'eucalyptus

3.4.2.2 Agent de couplage

L'agent de couplage utilisé est le polyéthylène basse densité greffé à l'anhydride maléique (PE-g-MA). Fournie par COACE Chemical, cette substance contient 1,5 % d'anhydride maléique. Elle est employée dans la majorité des travaux sur les composites de fibres naturelles et de polymères. Présenté sous forme de granulés, le PE-g-MA possède une température de fusion de 113 °C à l'état d'utilisation.



Figure 3.14 Polyéthylène greffé à l'anhydride maléique PE-g-MA

3.4.2.3 Obtention de la pâte de composite

La formulation de la pâte du composite a été réalisée selon le schéma présenté à la **Figure 3.15** [121-120]. Le mélange PEBD/fibres d'eucalyptus a été réalisé sur deux rouleaux préchauffés à 113 °C, à l'aide du mélangeur Thermon CW, Brabender, modèle T-303 (voir figure 3.16). Afin de garantir l'intégrité des fibres et de la pâte composite, certains paramètres de mélange, notamment la durée à chaque étape, ont été réduites (au lieu de 7 minutes à l'étape 4 et 5 minutes à l'étape 5, nous avons fixé respectivement 4 minutes et 2 minutes). La vitesse de rotation a été réglée à 50 tr/min au lieu de 60 rpm. La procédure, ainsi illustrée, peut être décrite clairement en mettant l'accent sur des facteurs tels que le temps et la température de formulation.

Le système d'instrumentation conçu pour le mélange du composite, connu sous le nom de mélangeur Brabender, possède trois compartiments spécifiques : le réglage de la température, le réglage des rouleaux mobiles et le système de refroidissement par air continu pour protéger les sondes de température interne, des débris et d'excès de chaleur etc. Le réglage de la température est basé sur la connaissance du point de fusion du polymère utilisé. Selon la fiche technique du PEBD, ce point de fusion est compris entre 105 et 115 °C. Dans notre cas, la température des rouleaux a été réglée à 107 °C, mais nous avons rapidement constaté un ramollissement du polymère, indiquant que celui-ci n'avait pas encore atteint son point de fusion.

Cette étape n'est pas figée, car la température de fusion des polymères est fonction de leur nature, et, comme plusieurs types de polymères font l'objet des formulations, les conditions d'opération sont donc définies relativement à ces matériaux polymères. Aussi, en fonction du type de moulage (par compression, par injection) adopté, les paramètres d'opération connaissent une différence.

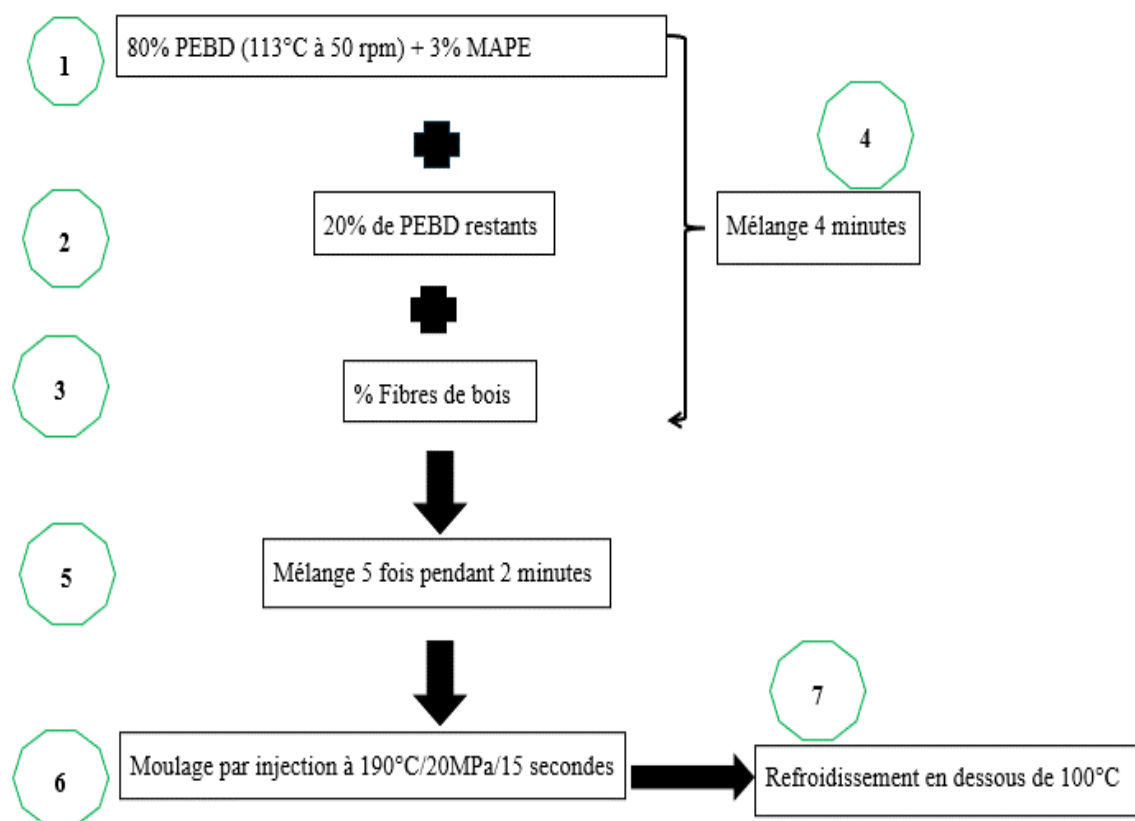


Figure 3.15 Diagramme de formulation de la pâte de composite

Ainsi, à 111 °C, le polymère a commencé à se fondre pour atteindre une fusion complète à 113 °C. Le contrôle de la température est nécessaire afin d'éviter :

- La combustion du PEBD en CO ou CO₂ selon la disponibilité de l'oxygène de l'air;
- La combustion, ou parfois la carbonisation, des fibres ainsi mélangées.

Au total, 150 g de mélange sont nécessaires pour chaque tour ; par conséquent, plusieurs tours de formulation sont nécessaires pour obtenir la quantité suffisante pour le moulage des expériences d'essai. Quatre types d'échantillons ont été produits et regroupés selon la charge de renfort. Pour chaque type, 15 et 25 % de fibres traitées ou non traitées ont été mélangées de sorte que 80 % de PEBD par rapport à 150 g soient versés minutieusement le long des rouleaux afin de favoriser leur fusion, sans colmatage ni ramollissement.

Ensuite, 3 % de PE-g-MA ont été ajoutés et le mélange a été homogénéisé pendant 4 minutes avant l'incorporation des 20 % restants de PEBD, afin que l'ensemble soit mélangé pendant environ 2 minutes. Par la suite, selon la proportion (15 ou 25 %) et la nature des fibres (traitées ou non traitées), celles-ci ont été ajoutées progressivement mais de manière uniforme le long des rouleaux, pour éviter une distribution inégale. Grâce au système de manivelles, le réglage des rouleaux a permis d'homogénéiser la pâte pendant 2 minutes sur 5 rotations, tout en s'assurant qu'elle ne colmate pas l'inducteur.

Aussitôt retirée des rouleaux, la pâte a été découpée en petits morceaux à l'aide d'un couteau, afin qu'elle soit assimilable par les dents de la granuleuse. Les pâtes ont ensuite été entreposées dans le laboratoire à 23 °C, dans des chaudières à l'abri de l'humidité résiduelle, pour être refroidies pendant 7 jours avant d'être mise en granules.



Figure 3.16 Pâtes de composite : A- fusion de PEBD, B- la pâte, C- mélange de pâte

3.4.2.4 Granulation de la pâte des composites

La mise en granules des pâtes a pour objectif de rendre le matériau compatible avec les orifices de la presse à injection. À cet effet, la pâte, préalablement découpée en lamelles plus petites, est préparée de manière à être assimilable par les dents de la granuleuse. La presse à injection utilisée est spécialement conçue pour les polymères. Pour assurer son bon fonctionnement, nous avons pris soin d'uniformiser les granules à une dimension comprise entre 0,5 à 1 mm équivalents celle des polymères afin que l'alimentation puisse être en continu et uniforme. La figure 3.17 présente le matériel dégranulation.



Figure 3.17 La granuleuse H. Drecher Maschinenbau et la maille

3.5 Fabrication des éprouvettes

3.5.1 Fonctionnement de la presse à injection

Toutes les éprouvettes ont été moulées par injection dans les mêmes conditions de température et de pression. La procédure de moulage par injection a été choisie en raison de sa rapidité de fabrication, de sa fiabilité quant à l'homogénéisation des éprouvettes et, surtout, la facilité de contrôler les paramètres. Le type ZERES ZE900 de l'I2E3 utilisé dans cette étude est présenté dans la **Figure 3.18** et dans la **Figure 3.18**.



Figure 3.18 Presse à injection ZERES ZE900

Le principe consiste à injecter des pâtes de composite préalablement mises en granulés. Ces granules, d'un diamètre moyen compris entre 0,5 et 1 mm, alimentent la presse à travers la trémie. La matière est ensuite transportée en continu vers l'entrée du bus d'injection grâce à une vis sans fin de forme spirale. Une fois que la matière traverse le vérin d'injection, elle est fondue grâce au collier de chauffe. Avec l'écran de commande, le vérin est commandé pour se coller à la buse d'injection, de la même, une autre commande pour assurer le déplacement du plateau mobile qui vient se coller au plateau fixe contenant les différents moules.

À l'aide de l'écran de commande, le vérin est positionné pour se coller à la buse d'injection, et une autre commande permet d'assurer le déplacement du plateau mobile, qui vient se juxtaposer au plateau fixe contenant les différents moules. En fonction de l'éprouvettes à produire, les vis tournantes situées à l'interface des plateaux mobiles et fixes permettent d'ouvrir le passage de la matière fondue vers le moule souhaité tout en fermant les passages vers les autres moules. Une fois l'éprouvette moulée et refroidie en une fraction de seconde, le plateau mobile se détache automatiquement du plateau fixe, et l'éprouvette est éjectée automatiquement du moule. Par la suite, le plateau mobile est commandé pour se repositionner sur le plateau fixe afin de fermer les moules pour le moule. La presse peut atteindre plusieurs barres de pression selon les exigences et les conditions du moulage. Dans le cadre de notre étude, la presse à injection utilisée est du type ZERES ZE900, installée à l'I2E3 de l'Université du Québec à Trois-Rivières, avec une pression d'injection maximale de 15 000 PSI. Le principe de fonctionnement est le même, et, grâce à un logiciel installé sur l'ordinateur de commande relié à la presse, nous avons pu programmer la température, la pression et la vitesse d'injection.



Figure 3.19 Interface de l'écran de commande de ZERES ZE900 à l'I2E3 de l'UQTR

3.5.2 Les conditions d'injection

Nous avons constaté que, lorsque la température est trop élevée (environ 300 °C), une décomposition des fibres, voire du polymère, peut survivre. Cela se manifeste généralement par un noircissement de la couleur de l'éprouvette, ainsi que par des odeurs et des fumées dégagées. À l'inverse, si la température est trop basse (<190 °C), l'injection est retardée, ce qui peut être attribué à une fusion incomplète des granules à l'intérieur des vis sans fin et à une faible viscosité du polymère, qui devrait normalement être plus élevée pour s'écouler facilement et entraîner les fibres avec lui.

De même, si la pression est trop élevée (environ 15 000 PSI) et que les fibres ne sont pas réparties uniformément dans les granules, elles ont tendance à se concentrer à certains endroits dans l'éprouvette ou à se casser, subissant ainsi d'autres types d'altérations. À l'inverse, si la pression est trop faible (environ 10 000 PSI), l'éjection de l'expérience n'est pas effectuée de manière automatique. Ces observations nous ont permis, dans le cadre de cette étude, de fixer les conditions appropriées pour le moulage de toutes les éprouvettes. Le [tableau 3.4](#) récapitule les paramètres ainsi fixés.

Tableau 3.4 Paramètres d'injection utilisés pour le moulage des éprouvettes

Paramètres	Valeur fixée
Pression d'injection (PSI)	14820
Vitesse d'injection (inch/s)	2
Position d'injection (inch)	0,500
Température d'injection (°C)	190°C
Temps de moulage (s)	15

3.5.3 Éprouvettes d'essais mécaniques

Compte tenu des propriétés des différents constituants, les conditions des essais mécaniques et thermiques sont résumées dans le schéma présenté par le digramme de la **Figure 3.20**.

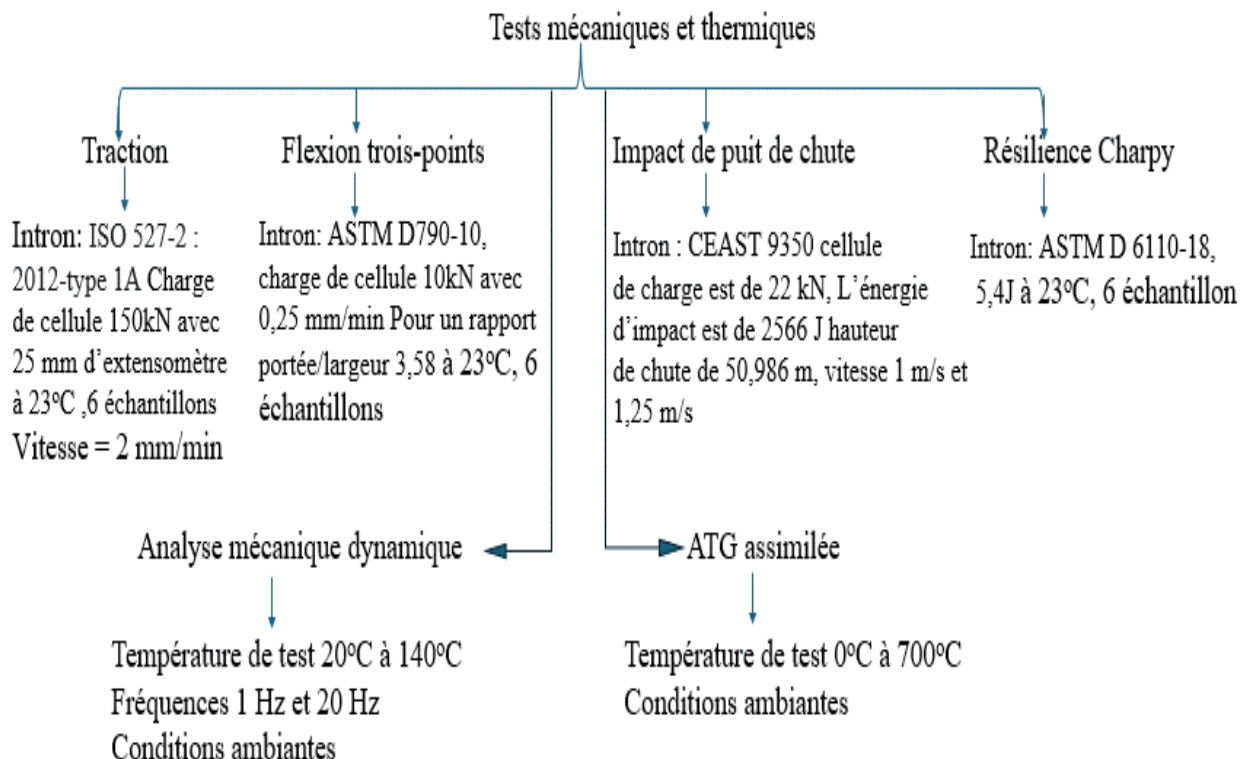


Figure 3.20 Différents tests mécanique et thermiques avec des conditions d'essais

3.5.3.1 Éprouvettes de Traction

Les éprouvettes de traction sont moulées selon la norme ISO 527-2 : 2012-type 1A et se présentent sous la forme d'haltère. La **Figure 3.21** est un exemple réel de l'éprouvette de traction obtenue par l'injection de la pâte du composite.

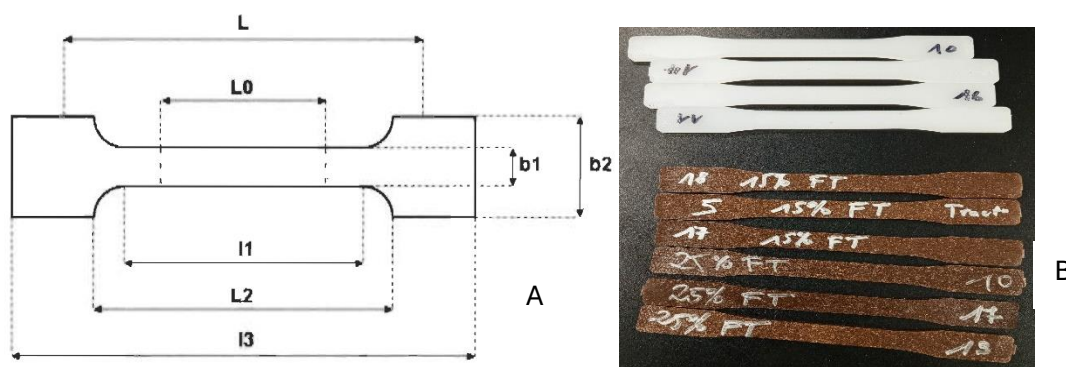


Figure 3.21 A = Modèle théorique ISO 527-2 :2012-type 1A, B = Éprouvettes de traction

Avec : $i_3 = 150$ mm, $b_1 = 10$ mm, épaisseur = 6 mm et $i_1 = 20$ mm [85]

Les essais de traction ont été réalisés sur six expérimentations pour chaque type d'échantillon afin de déterminer la résistance, le module élastique et la déformation à la rupture. Les tests ont été effectués à température ambiante à l'aide de la machine Instron (modèle LM-150). Pour ce faire, la machine a été équipée d'une cellule de 150 kN et d'un extensomètre de 25 mm, connectée au système d'acquisition de données et visualisée via un écran d'ordinateur. Les conditions de test sont fixées pour chaque échantillon des six essais. La vitesse du test était fixée à 2 mm/min afin de favoriser une bonne représentativité du résultat.

3.5.3.2 Éprouvettes de Flexion

Toutes les éprouvettes sont moulées sous la forme rectangulaire suivant la norme ASTM D790-10. Elles ont été utilisées pour les tests de flexion trois points. Pour les essais de flexion trois points, une cellule de charge de 10kN a été utilisée compte tenu de la flexibilité des échantillons. La portée des supports est de 45 mm donnant un rapport portée/largeur de $3,58 \pm 0,02$, la vitesse était fixée à 0,27 mm/min et peut être calculée par la formule suivante :

$$V = \frac{ZL^2}{6d} \quad 3.9$$

Avec : Z = vitesse de déformation de la fibre externe (mm/mm/min), L = portées des supports (mm) et d = largeur de l'éprouvette (mm). La procédure A de la norme ASTM D790 propose $Z = 0,01$ mm/mm/min. Aussi, la déflexion correspondante à cette déformation peut être calculée en prenant $r = 0,05$ mm/mm selon la formule suivante.

$$D = \frac{rL^2}{6d} \quad 3.10$$

Avec : D = la déflexion à mi-portée (mm), r = déformation (mm/mm), L = portées des supports (mm) et d = largeur de l'éprouvette (mm).



Figure 3.22 Éprouvettes de flexion



Figure 3.23 Machine Instron pour les tests de traction et de flexion

3.5.3.3 Éprouvettes de résilience Charpy

Ce test a été réalisé sur la machine pendulaire Instron CEAST 9050, équipée d'un marteau de 5,4 J, conçu pour déterminer la ductilité ou la fragilité des matériaux pour des énergies de rupture ne dépasse pas 85 % de la capacité du matériau utilisé, selon ASTM D 6110-18 [199]. Ce test consiste à produire un choc soudain à l'aide du marteau placé à une hauteur bien définie par l'Instron, sur l'éprouvette taillée en V comme le montre les représentations A et B de la [figure 2.24](#).



Figure 3.24 A = matériel de mouton pendule; B = éprouvettes taillées en V

3.6 Conductivité thermique et de densité de flux thermique

La conductivité thermique k représente la capacité d'un matériau de laisser diffuser de la chaleur. Théoriquement, cette propriété physique peut être évaluée pour un matériau à l'aide de l'équation 3.11. Elle est réalisée à l'aide d'un conductimètre de type WL 372 gunt Hamburg Heat conduction Unit/PC de la figure 3.25.

Une série de six thermocouples permet de mesurer les températures le long de la tige métallique, lesquelles varient en fonction de la puissance de chauffage appliquée au système et du débit d'eau. À l'aide de serres, les éprouvettes de chute de puits sont insérées entre la partie chauffante et la partie réfrigérante de la tige. L'alimentation en eau est assurée avec un débit d'environ 3 L/min, et la puissance est comprise entre 20 et 25 W. Une fois l'état stationnaire atteint, l'acquisition des données est réalisée à l'aide du tableau de lecture.

$$k = q \frac{L}{T} \quad 3.11$$

Où

L = épaisseur de l'échantillon (m); T = température (K) obtenue par différence de température; q = densité de flux thermique (W/m^2).

Cette analyse a été réalisée avec l'éprouvette de chute du puit d'épaisseur 3,5 mm selon la norme EN 12667 par la méthode des fluxmètres avec l'instrument conductimètre CTMF, sous une puissance de 20W. La vitesse de chauffage était de 0,06°C/mm. Les valeurs de l'effusivité ont de même été obtenues.

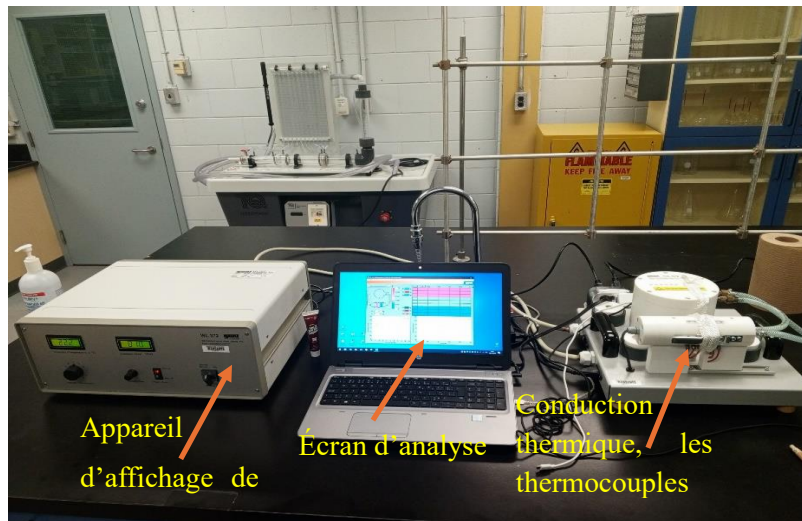


Figure 3.25 Analyse des paramètres de conductivité thermique

3.7 Analyse Mécanique Dynamique (DMA)

La réalisation DMA sur les composites a été réalisée sur des échantillons en flexion trois points, selon la norme ASTM D7028. Les fréquences utilisées étaient de 1 Hz et 20 Hz, avec une température comprise entre 20 °C et 120 °C, et un taux de chauffage de 5°C/min. Les échantillons de flexion trois-points ont été selon les dimensions de la norme. La [figure 3.26](#) est le dispositif d'analyseur DMA. La technique consiste à appliquer une force oscillante aux échantillons, la déformation résultante étant mesurée en termes de module de rigidité. La [figure 2.5](#) A illustre la différence de phase, ou le décalage temporel, entre la force appliquée et la déformation induite. Ce décalage est utilisé pour évaluer les propriétés d'amortissement, le frottement interne ou encore la dissipation d'énergie dans un échantillon soumis à une contrainte périodique. Autrement dit, le décalage temporel est mesuré comme la tangente de l'angle de phase [200]. Les expressions de la contrainte et de la déformation sinusoïdales sont données par les [équations 2.3](#) et [2.4](#) respectivement.

$$\sigma = \sigma_0 \sin(\omega t + \delta) \quad 3.12$$

$$\varepsilon = \varepsilon_0 \sin(\omega t) \quad 3.13$$

Avec :

ω = période de déformation, t = temps correspondant et δ = la différence de phase entre la contrainte et déformation.

La contrainte se décompose ainsi en deux composantes: l'une en phase, avec une amplitude $\sigma_0 \cos \delta$ et l'autre en déphasage, également avec une amplitude $\sigma_0 \sin \delta$. Cette décomposition conduit à une composante réelle (phase) et à une composante imaginaire (déphasage), dont les valeurs sont équivalentes à celle des [relations 2.1](#) et [2.2](#).

Les plages de températures décrivant le comportement du polymère peuvent être présentées comme suit :

- À $T < T_g$: Le matériau est à l'état vitreux et la valeur du module est très importante. En augmentant la température tout en restant en dessous de la transition vitreuse, les relaxations secondaires (transitions β et γ) se manifestent par des mouvements locaux des unités constitutives des chaînes principales du matériau, traduites par une légère diminution du module G' ou E' .
- À $T > T_g$: La déformation du matériau est d'origine entropique. C'est l'état Caoutchoutique et le module dépend de la température. Dans cette gamme de température, il est possible de différencier les familles de polymères (thermoplastiques amorphes ou semi-cristallins et thermodurcissables).
- À $T \gg T_g$: Deux phénomènes peuvent se manifester selon la présence ou l'absence de nœuds de réticulation chimique :
 - Sans nœuds de réticulation chimique, le matériau passe à l'état fluide, les chaînes se glissent les unes sur les autres (écoulement) : c'est le cas des thermoplastiques ;
 - Avec des nœuds de réticulation, le matériau ne s'écoule pas et le module reste à peu près stable jusqu'à la dégradation du matériau.

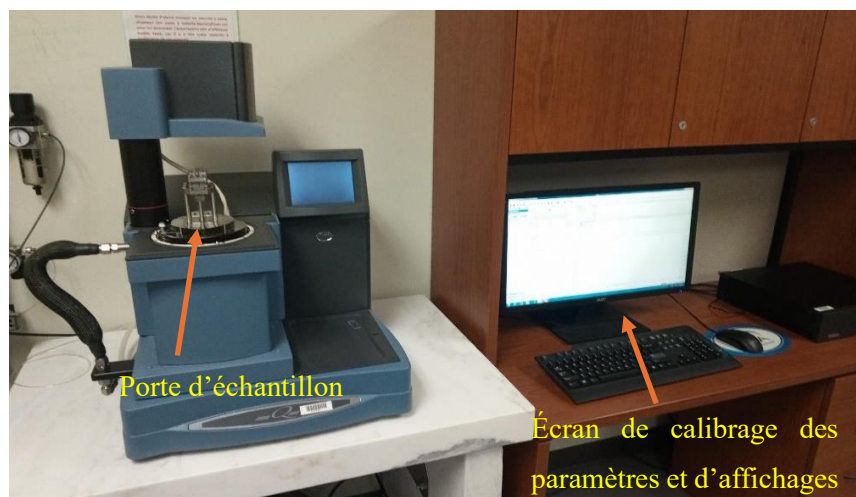


Figure 3.26 Analyse mécanique dynamique selon la norme ASTM D7028

3.8 Analyse Thermogravimétrique (ATG)

Ce test permet de suivre la stabilité du composite. Selon la norme ASTM D2584, les échantillons de 5 mg sont généralement analysés dans un intervalle de température compris entre 50 et 500 °C, avec une vitesse de chauffage de 5 °C/min, en présence ou non d'oxygène, afin d'évaluer une éventuelle combustion. Cela permet d'enregistrer la perte de masse différentielle en fonction de la température.

La variabilité dimensionnelle et l'équilibre thermique des échantillons restent cependant des points préoccupants. En définissant les étapes allant de la formulation du matériau à une température évitant 115 °C dans le mélangeur Brabender, en passant par la granulation de la pâte jusqu'au moulage par injection des éprouvettes, le matériau est logiquement susceptible de subir des dégradations. Or, cette dégradation n'a pas été quantifiée afin de la corréler aux résultats de l'ATG.

Avant de décider d'adopter cette méthode, nous avons soumis le LDPE à une augmentation de température allant jusqu'à 900 °C pour observer son comportement. Nous avons constaté que l'ensemble de la masse de LDPE était consommé, ce qui pourrait endommager l'appareil de l'ATG et nous a conduits à envisager un La fiabilité de ce test reste cependant un point préoccupant. En définissant les étapes allant de la formulation du matériau à une

température évitant 115 °C dans le mélangeur Brabender, en passant par la granulation de la pâte jusqu'au moulage par injection des éprouvettes, le matériau est logiquement susceptible de subir des dégradations. Or, cette dégradation n'a pas été quantifiée afin de la corrélérer aux résultats de l'ATG. Bien que cette méthode adaptée ne soit pas normalisée, elle nous a permis de suivre la variation de la masse, la densité et la morphologie du composite, et, sur la base de la littérature, d'évaluer le comportement de chacun des constituants.

En formant que le matériau est homogène dans toutes les directions et que tous les effets parasites, tels que l'humidité, la pression et la température ambiante, sont négligeables pendant l'essai, les échantillons ont été découpés en carrés d'une masse de 20 ± 1 mg et stockés dans un dessiccateur avant d'être utilisés. Sept échantillons de même masse ont été prélevés pour chaque test et soumis à des températures fixes de 0–100 °C, 0–200 °C, 0–300 °C, 0–400 °C, 0–500 °C, 0–600 °C et 0–700 °C dans un four à cendres Fisher Scientific. Après exposition, les échantillons ont été retirés puis refroidis avant la prise de masse.

3.9 Microscopie électronique à balayage (MEB-EDX)

La morphologie et l'analyse chimique semi-quantitative des fibres ainsi que celle des éprouvettes ont été analysées sous le microscope électronique à balayage (MEB) de type Hitachi 87 SU1510 ([figure 3.27](#)) fonctionnant en mode électron avec un courant de faisceau de 100 mA et avec une tension d'accélération de 15 kV, couplé au spectroscope à rayons X à dispersive d'énergie (EDX, Oxford instrument X-Max 20 mm²) du laboratoire de microscope électronique de l'I2E3 de l'UQTR. Les échantillons de fibres ont été broyés de manière à obtenir une composition homogène. Des échantillons sont placés dans des ports d'échantillon. Afin d'éviter l'accumulation de charges électrostatiques à leur surface lors de l'analyse, ces derniers ont été rendus conducteurs par une métallisation à l'or (Au), réalisée sous atmosphère d'azote inerte.

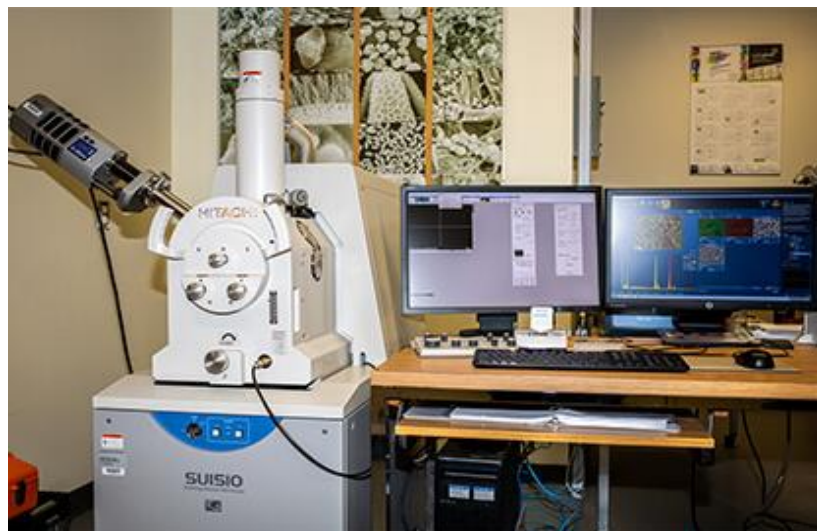


Figure 3.27 Microscope électronique à balayage couplé au EDX

3.10 Spectroscopie infrarouge FTIR-ATR

Afin d'identifier les groupements fonctionnels des différents composés dans les fibres traitées et non traitées, l'analyse au FTIR-ATR de type Nicolet IS10 FT-IR a été réalisée avec 32 acquisitions à température ambiante pour une résolution de $\pm 4 \text{ cm}^{-1}$. Le [tableau 3.5](#) [201] présente les différents groupements chimiques selon leur longueur d'onde.

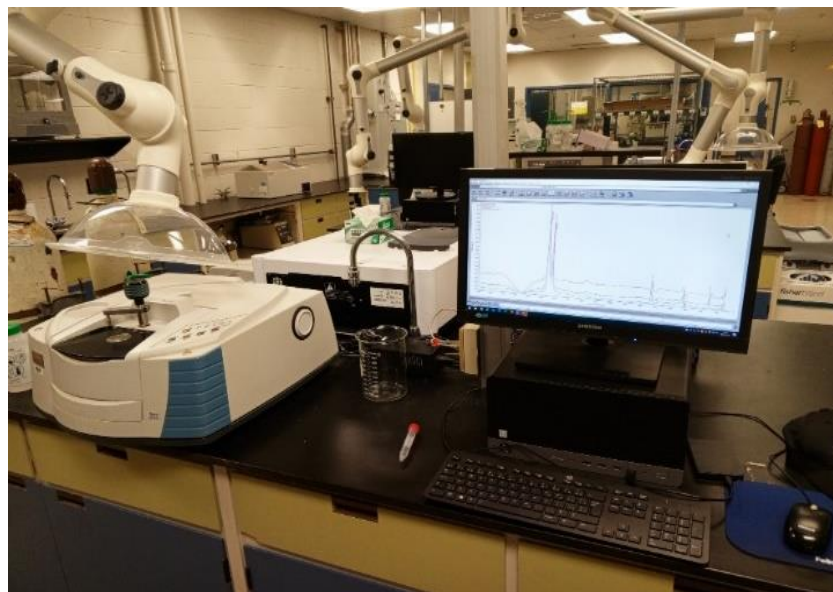


Figure 3.28 Spectroscopie Infrarouge à transformée de Fourier

Tableau 3.5 Nombre d'onde en fonction des groupements fonctionnels

Nombre d'onde (cm ⁻¹)	Type de vibration
3200-3600	Vibration d'élongation des hydroxyles O-H
2935	Vibration d'élongation asymétrique des liaisons C-H du groupe CH ₂
2854	Vibration d'élongation symétrique des liaisons C-H du groupe CH ₂
1746	Vibration des groupements carboxyles C=O
1644	Vibration d'élongation des hydroxyles O-H de l'eau
1460	Vibration de déformation asymétrique des liaison C-H du cycle aromatique
1381	Vibration de déformation symétrique des liaison C-H du cycle aromatique
1238	Vibration d'élongation des groupement C-O
1163	Vibration d'élongation antisymétrique des liaison C-O-C de la cellulose et de l'hémicellulose
1034	Vibration de déformation des liaison C-O-C de la cellulose et de l'hémicellulose du cycle aromatique
609	Vibration de déformation des hydroxyles O-H des polysaccharides

3.11 Diffractométries aux rayons-X (DRX)

Les fibres traitées et non traitées, ainsi que les composites, ont été analysés afin de déterminer leur degré de cristallinité à partir de la diffractométrie de rayons X de type Bruker D8 Focus ([figure 3.29](#)) avec un tube de rayons X à anticathode de cuivre $\lambda_{\alpha 1} = 1,5406 \text{ \AA}$ et $\lambda_{\alpha 2} = 1,5445 \text{ \AA}$, dans une gamme de longueurs d'onde $\lambda \in [10-45^\circ]$. Le principe consiste à envoyer des faisceaux de photons X susceptibles d'interagir avec les parties cristallines de l'échantillon, une partie du rayonnement étant diffractée en fonction de l'angle défini, avec des valeurs dépendant de la distance la distance entre les plans atomiques ou moléculaires. Ce principe est régi par la formule de Bragg dont l'expression est :

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad 3.14$$

Avec n le nombre entier exprimant l'ordre de la diffraction; λ (m) la longueur d'onde du rayonnement utilisé; d (m) la distance qui sépare les plans réticulaires des même éléments

conventionnellement désignés par les indices de Miller (h, k, l) et θ ($^\circ$) l'angle de diffraction. Quelques milligrammes d'échantillon ont été préparés sur des ports d'échantillons qui sont soumis au rayonnement IR, matériel de l'Institut de Recherche sur l'Hydrogène (IRH) de l'UQTR. L'angle θ est fixé entre 10° et 45° pour l'ensemble des essais, car cet intervalle d'angle permet de détecter la partie amorphe et la partie cristalline de la cellulose.



Figure 3.29 Diffractomètre sur poudre

3.12 Durabilité des composites PEBD-Eucalyptus

La durabilité des matériaux étudiés dans cette étude a été réalisée de deux manières :

- Le premier test de durabilité concerne le vieillissement hydrothermique, suivant un cycle d'absorption, de désorption et de réabsorption en fonction de la nature du milieu hydrique. L'objectif est d'évaluer si ces phénomènes sont réversibles ou non, ainsi que leur impact sur la cinétique d'absorption;
- Le deuxième test tient compte du vieillissement en milieu isothermique, en fonction de la durée d'exposition. L'objectif est d'analyser le comportement des différents constituants du composite pris individuellement par rapport à l'isotherme, ainsi que celui du composite.

Les essais mécaniques ont été réalisés sur ces composites vieillis dans les deux cas pour déterminer leur performance parallèlement aux éprouvettes non vieilles.

3.12.1 Conditions expérimentales de vieillissement

Les échantillons de traction, de flexion et de Charpy ont été utilisés dans cette partie de l'étude pour étudier l'influence des vieillissements sur les propriétés mécaniques des composites. Le [tableau 3.6](#) présente les conditions des deux formes de vieillissement appliqués aux éprouvettes de traction ISO 527-2 :2012-type 1A et de flexion trois points.

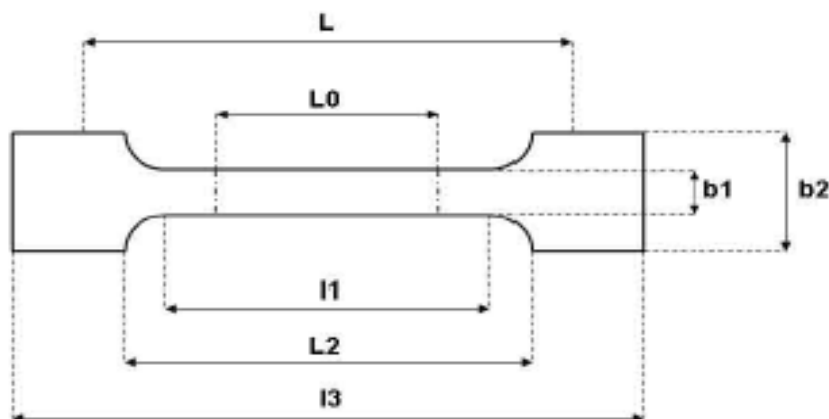


Figure 3.30 Éprouvette de traction en forme d'halter : norme 527-2 :2012-type 1BA

Épaisseur >2; $L = L_2 + 2$; $L_2 = 58 \pm 2$; $L_0 = 25 \pm 0,5$; $I_1 = 30 \pm 0,5$; $I_3 > 75$; $b_1 = 5 \pm 0,5$; $b_2 = 10 \pm 0,5$

Tableau 3.6 Protocole de vieillissement des composites

Type de cycle	Immersion totale dans l'eau distillée			Vieillissement thermique		
	23°C	50°C	75°C	37°C	50°C	80°C
Absorption	21jours	21jours	21jours	72h		
Désorption	21jours	21jours	21jours			
Réabsorption	21jours	21jours	21jours			

Afin de mener avec précision cette étude de vieillissement, les éprouvettes ont été séchées à 25 °C jusqu'à atteindre un poids constant. Six éprouvettes par échantillon ont été testées. La méthode utilisée est largement adoptée dans la littérature en raison de la fiabilité des résultats obtenus et, surtout, de sa simplicité d'exécution. Il s'agit du suivi gravimétrique à intervalle de temps régulier pendant 21 jours.

Le principe consiste à peser les éprouvettes préalablement conservées à l'abri de l'humidité jusqu'à refroidissement, puis à les immerger individuellement dans de l'eau distillée à la date $t = 0$. À la fin de chaque intervalle de temps, les éprouvettes sont retirées, et l'eau présente à leur surface est soigneusement éliminée afin de mesurer la masse de l'éprouvette vieillie. Après la pesée, l'éprouvette est de nouveau introduite dans la même eau distillée pour la détermination suivante de la masse, et ce, jusqu'à la fin des 21 jours. La teneur en eau du composite est déterminée à partir de l'[équation 3.15](#).

$$M = \frac{m_t - m_0}{m_0} \times 100 \quad 3.15$$

Avec m_t et m_0 , respectivement les masses de l'éprouvette au temps t et au temps $t = 0$. Deux conditions ont été imposées aux échantillons. Il s'agit de la température et le temps. Les températures ainsi définies étaient 23°C et 50°C et 75°C en les maintenant invariables pendant toute la durée du vieillissement. Voir la **Figure 3.32** et la **Figure 3.32**.

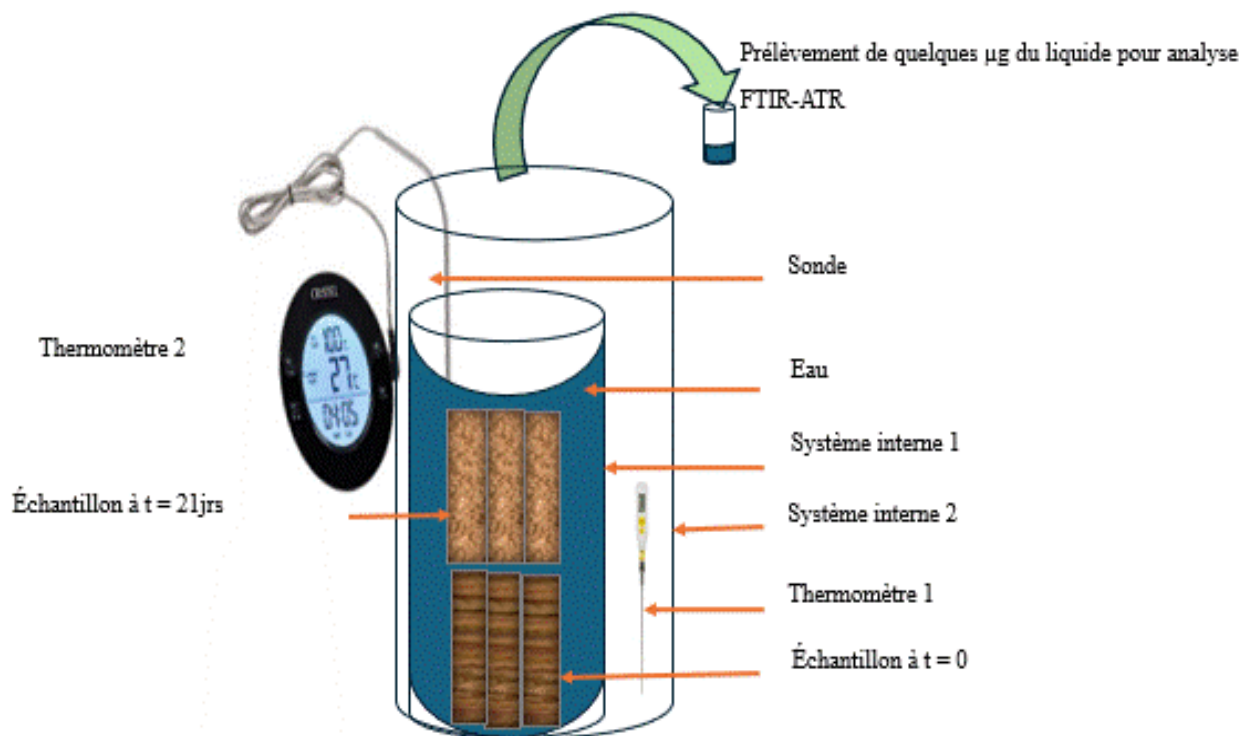


Figure 3.31 a- Schéma du système de vieillissement hydrique et hydro-thermique



Figure 3.32 b- Système de vieillissement à 23°C; et 50 et 75°C

Le mécanisme d'absorption selon la seconde loi de Fick suit l'équation suivante :

$$\frac{M_t}{M_s} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{(2n-1)^2} \exp \left[-(2n-1)^2 \pi^2 \frac{Dt}{h^2} \right] \quad 3.16$$

Le matériau devant avoir une perméabilité donnée est estimée par la relation suivante :

$$P = D \times S \quad 3.17$$

$$S = \frac{M_{\infty}}{M_p} \quad 3.18$$

Avec S le coefficient de sorption du composite, M_t , M_{∞} , n, t, k, D, M_p sont respectivement les masses de l'échantillon à l'instant t, et à l'équilibre, le coefficient d'interaction entre l'eau et le polymère, le coefficient de diffusion et la masse du matériau [202].

3.12.2 Essai mécanique sur les éprouvettes vieilles

Les essais mécaniques ont été réalisés sur les éprouvettes vieilles. Les conditions expérimentales étaient identiques à celles appliquées aux éprouvettes non vieilles, décrites précédemment.

3.13 Approche par éléments finis du comportement thermique des composites

La simulation du comportement thermique par la méthode des éléments finis a été réalisée en 3D par ANSYS-R2024. Dans les composites renforcés par des particules, les différentes méthodes de simulation numérique sont souvent utilisées.

Une alternative, meilleure que l'expérimentation pour évaluer les performances des composites et de fournir de meilleures approches pour la conception des matériaux et le recours à la méthode des éléments finis [203] [204] [205].

3.13.1 Approche par éléments finis du problème thermique

3.13.1.1 Équations de chaleurs associées

L'équation de la chaleur est une expression décrivant l'évolution de la température au cours du temps. Pour l'appliquer à un matériau considéré comme isotrope, et dont l'élément représentatif est supposé suffisamment petit par rapport au domaine, certaines hypothèses doivent être posées. Ainsi, en considérant une première approximation que le matériau est isotrope et homogène, et, en confirmant celle-ci par le diagramme de cole-cole qui renseigne sur l'homogénéité des composite, et, en se basant sur la théorie de la mécanique des milieux continus, l'équation de la chaleur qui régit le comportement thermique des composites dans ses conditions [206] [207] peut être définie:

$$\rho C \dot{T} - k \operatorname{div}(\operatorname{grad}(T)) = q \quad 3.19$$

Avec :

ρ = masse volumique; T = température; C = capacité thermique massique; q = source de chaleur; k = conductivité thermique

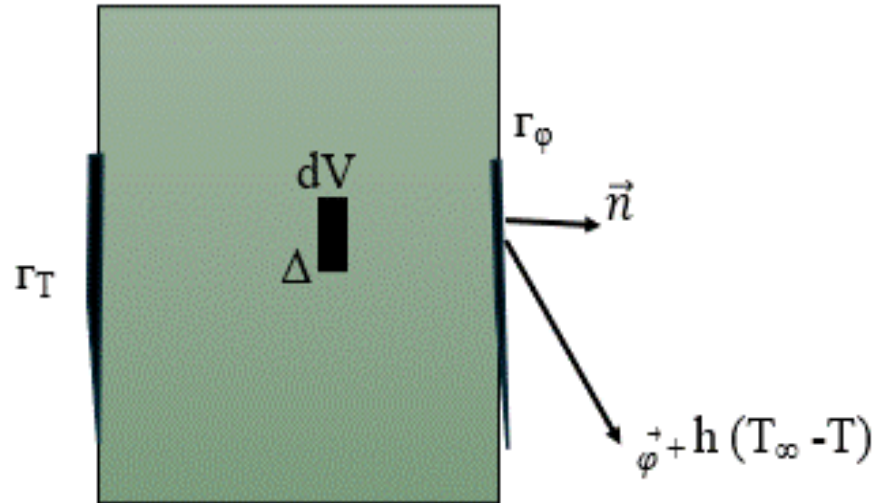


Figure 3.33 Solide Δ soumis à des cotraitantes extérieures avec des conditions aux limites

Γ_T et Γ_φ représentent respectivement les champs de température et de flux de chaleur imposés aux frontières du domaine. Dans les matériaux, trois types de phénomènes liés à la diffusion thermique peuvent être distingués : la conduction, la convection et le rayonnement. Toutefois, dans les matériaux tels que les composites polymères renforcés par des fibres naturelles, la diffusion de la chaleur par rayonnement, bien que non exclue, demeure négligeable. Ainsi, les conditions aux limites associées au solide peuvent s'exprimer comme l'indique l'équation 3.18 [208] [209]:

$$T|_{\Gamma_T} = \bar{T}, \quad n(k \text{grad}(T))|_{\Gamma_\varphi} = \bar{\varphi} + h(T_\infty - T) \quad 3.20$$

Avec : h = coefficient de chaleur par convection; T_∞ = température du fluide à une position lointaine du solide.

3.13.1.2 Formulation variationnelle

En introduisant une température virtuelle T^* nulle sur la frontière de type température imposée, puis la multiplication de T^* à l'équation de la chaleur du solide les auteurs [203] [204][205][208][209] trouvent que l'application des conditions aux limites permet d'obtenir l'expression de l'équation 3.19 par intégration par parties. Cette formulation constitue la solution variationnelle.

$$\left(\int \rho C T^* \dot{T} dV + \int k \text{grad}(T) dV \right)_\Delta = \left(\int T^* (\bar{\varphi} + h(T_\infty - T)) dS \right)_{\Gamma_\varphi} + \left(\int T^* q dV \right)_\Delta \quad 3.21$$

L'approche par éléments finis permet de trouver l'évolution des phénomènes qui sont liés au comportement thermique des composites à l'échelle microscopique.

3.13.1.3 Approche par éléments finis

La [figure 3.34](#) est un solide du domaine Δ subdivisé en nombre finis N_e d'éléments $(\Delta e)_i$ dont :

$$\Delta = \cup_i^{N_e} (\Delta e)_i \quad 3.22$$

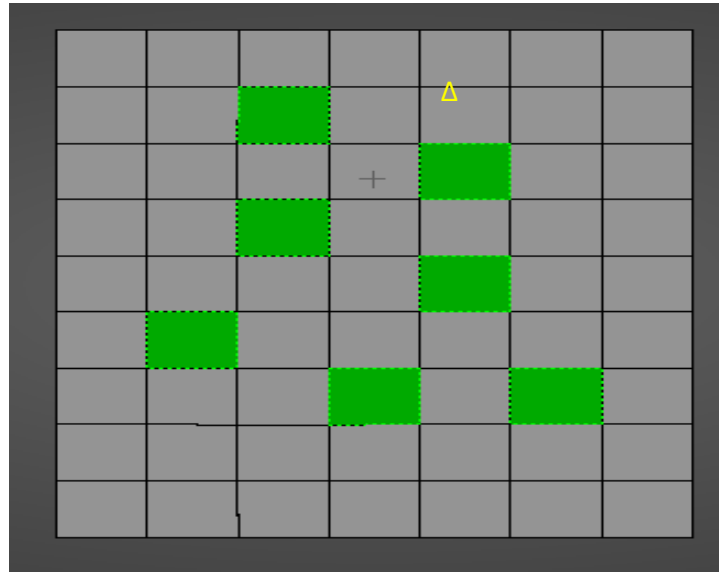


Figure 3.34. Solide représenté en ses éléments finis (maillage)

Le nombre d'éléments obtenus après le maillage permet d'intégrer, dans le même domaine, une sommation de la formulation variationnelle telle qu'elle se présente en [3.21](#) :

$$\sum_{i=1}^{N_e} \left(\int \rho C T^* \dot{T} dV + \int k \nabla T^* \nabla T dV \right)_{(\Delta e)_i} = \sum_{i=1}^{N_e} \left(\int T^* (\bar{\varphi} + h (T^\infty - T)) dS \right)_{(\Gamma_\varphi)_i} + \sum_{i=1}^{N_e} \left(\int T^* q dV \right)_{(\Delta e)_i} \quad 3.23$$

En affectant un degré de liberté (température nodale noté $\{T\}_e$) aux nœuds de chaque élément, et en interpolant la température de chaque élément, il convient que le champ de température appliquée peut être déterminé par :

$$T = \{T\} = [N]_e \{T\}_e \quad 3.24$$

Par analogie, on peut interpoler en déterminant le champ de température virtuelle :

$$T^* = \{T^*\} = [N]_e \{T^*\}_e \quad 3.25$$

Par analogie, il est possible d'interpoler le champ de température virtuelle :

$$\left(\int \rho C \{T^*\}_e^t [\dot{N}]_e^t [N]_e \dot{T} dV + \int k \{T^*\}_e^t \text{grad}[N]_e (\text{grad}(T))_e^t dV \right)_{\Delta} = \left(\int \{T^*\}_e^t [N]_e^t (\bar{\varphi} + h (T^{\infty} - [N]_e \{T\})) dS \right)_{\Gamma_{\varphi}} + \left(\int \{T^*\}_e^t [N]_e^t q dV \right)_{\Delta} \quad 3.26$$

L'intégration numérique de l'équation 1 permet d'écrire:

$$[C]_e \{T\}_e + [K]_e \{T\}_e = \{\varphi\}_e \quad 3.27$$

Avec :

$$[C]_e = \int \left(\rho C \{T^*\}_e^t [\dot{N}]_e^t [N]_e \dot{T} dV \right)_{\Delta_e} \quad 3.28$$

$$[K]_e = \left(\int k dV + \int (\text{grad}(T))_e^t dV + \int h [N]_e^t [N]_e dS \right)_{(\Gamma_{\varphi})_e} \quad 3.29$$

$$\{\varphi\}_e = \left(\int [N]_e^t (\bar{\varphi} + h (T^{\infty})) dS \right)_{(\Gamma_{\varphi})_e} + \left(\int [N]_e^t q dV \right)_{\Delta_e} \quad 3.30$$

Ainsi, $[C]_e$, $[K]_e$, $\{\varphi\}_e$ correspondent respectivement à la matrice de la capacité thermique élémentaire, la matrice de la conductivité thermique élémentaire et le vecteur élémentaire du flux aux nœuds. Plusieurs études ont été menées en considérant l'état stationnaire où le champ de température $\{\dot{T}\}$ est indépendante du temps.

3.13.1.4 Démarche méthodologique

La méthode adoptée dans cette section est basée sur l'approche par éléments finis du comportement thermique des composites PEBD_V, PEBD_R, PEBD_V15ET, PEBD_V15ENT, PEBD_V25ET et PEBD_V25ENT. En effet, les matériaux sont privilégiés comme des solides homogènes et isotropes, car, par le diagramme de cole-cole (obtenu au niveau de la DMA) qui renseigne sur l'homogénéité des composites, et, en se basant sur la théorie de la mécanique des milieux continus, cette approximation peut être considérée comme valable. Le maillage est réalisé sous ANSYS, à partir de l'outil Workbench, puis intégré dans steady thermal ensuite dans flux fluent CFD de ANSYS2024-R2 student afin de définir les conditions aux limites (voir [tableau 3.7](#)) selon les caractéristiques physiques et thermiques des composites.

Tableau 3.7 Caractéristiques physiques et thermiques : Conditions aux limites

Paramètres	Matériaux composites					
	PEBD _V	PEBD _R	PEBD _{V15ET}	PEBD _{V15ENT}	PEBD _{V25ET}	PEBD _{V25ENT}
	Conditions aux limites					
Masse volumique (kg/m ³)	0,91	0,92	1,11	1,16	1,19	1,21
Conductivité thermique (W.m ⁻¹ . K ⁻¹)	0,34	0,35	0,45	0,43	1,25	0,78
Convection thermique (w.m ⁻² . k)	7	8	10	11	21	26
Température environnante (K)	20					
Température du matériaux (K)	23					
Température d'essai (K)	37-50-80	37-50-80	37-50-80	37-50-80	37-50-80	37-50-80
Flux de chaleur (w.)	25					

Deux modèles ont été utilisés ([figure 3.35.a](#)) avec des dimensions définies (voir [tableau 3.8](#)). Le premier correspond à l'éprouvette de flexion trois points, et le second au pavé, dont les résultats ont été exploités afin d'évaluer son comportement vis-à-vis des températures et des coefficients thermiques. Dans cette partie, seule la vitesse de vieillissement en fonction de la position dans le matériau, la direction du flux, le flux total ainsi que la déformation longitudinale due aux phénomènes de gonflement et de décohésion.

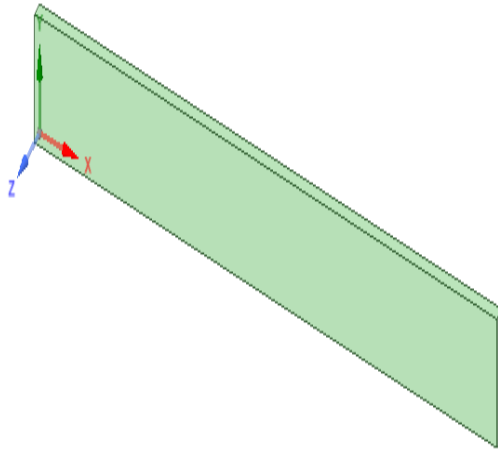


Tableau 3.8 Dimension des designs

Dimension (m)	
Longueur	1
Largeur	0,13
Épaisseur	0,03

Figure 3.35 a- Éprouvette design en 3D

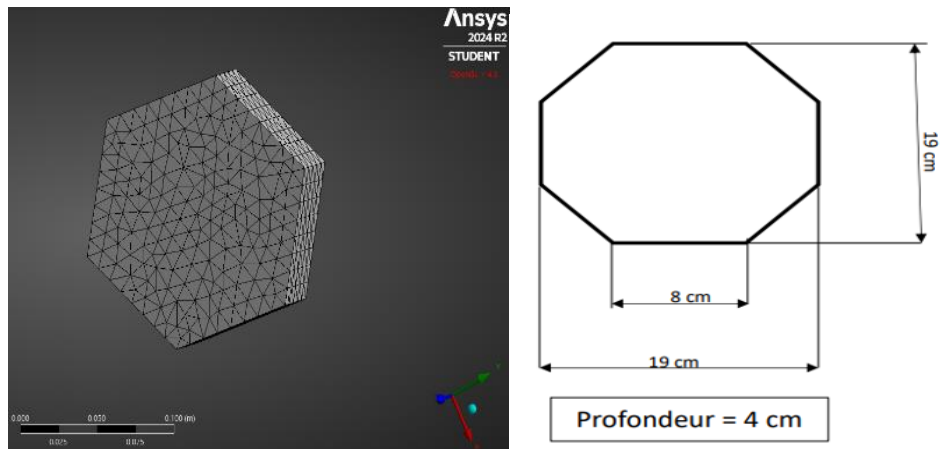


Figure 3.36 b- Modèle du pavé : a) Mesh design en 3D, b) design du pavé avec des dimensions

Chapitre 4 - Résultats, Analyse et Discussion

Les résultats présentés dans ce chapitre sont issus des phases expérimentales et de simulation. Ce chapitre se compose de trois grandes parties : les résultats de la caractérisation physico-chimique et mécanique (essai quasi-statique) ; les résultats de l'étude de la durabilité des composites soumis à un vieillissement hygrothermique accéléré et thermique ; et, enfin, les résultats de la simulation du vieillissement thermique en 3D.

4.1 Partie 1 : Caractérisation des fibres, essais mécaniques des composites

4.1.1 Caractérisation physique des fibres et des composites

i. Masse volumique apparente et reprise d'humidité

Les caractéristiques physiques des fibres ainsi obtenues sont présentées dans le [tableau 4.1](#). Le tableau montre qu'après le traitement alcalin, des modifications sont apparues au sein des fibres. En particulier, on observe une diminution non significative de la masse volumique apparente des fibres traitées par rapport à celles non traitées. Cette diminution peut être attribuée à la perte des impuretés à la surface des fibres, de certaines composantes comme les sucres, les cires, et les cendres.

De plus, la reprise d'humidité est plus faible pour les fibres traitées ($0,32 \% \pm 0,01$) que pour les fibres non traitées ($0,47 \% \pm 0,02$), ce qui correspond à une amélioration de 31,91 %. En effet, cette réduction de l'absorption d'humidité par les fibres traitées, qui se manifeste par une diminution de leur affinité avec les molécules d'eau, est cohérente avec la faible valeur de l'énergie de surface polaire ($1,21 \text{ mJ/m}^2$) des fibres traitées, comparée à celle des fibres non traitées ($4,10 \text{ mJ/m}^2$).

De ces observations, il ressort logiquement que la surface des fibres est majoritairement modifiée par le traitement. Si la lignine était effectivement dissoute lors du traitement des fibres par la soude à 6 %, on obtiendrait des fibres de cellulose riches en groupements hydroxyle, responsables de l'absorption d'humidité. Ces résultats sont également en accord avec les observations en microscopie électronique à balayage (MEB), qui mettent en

évidence une surface améliorée des fibres traitées par rapport à celle des fibres brutes, ainsi qu'une absence de défibrillation. Cette dernière observation confirme que les composants majeurs de la fibre ne se sont pas disloqués.

Tableau 4.1 Caractéristiques physiques des fibres d'eucalyptus

Type de fibres		
Caractéristiques physiques des fibres	Fibres traitées	Fibres non traitées
Longueur moyenne (mm)	0,5	0,5
Masse volumique apparente (g/cc)	0,68 ± 0,011	0,71 ± 0,010
Reprise d'humidité (%)	0,32 ± 0,01	0,47 ± 0,02

Le [tableau 4.2](#) constitue un résumé de quelques études antérieures, prenant en compte la masse volumique des fibres brutes utilisées dans les matériaux composites. Pour les fibres d'eucalyptus employées dans cette étude, leur masse volumique se situe dans l'intervalle de celle obtenue par G. Petroff [210].

Tableau 4.2 Masse volumique apparente des fibres de quelques espèces

Essences	Masse volumique apparente (g/cc)	Références
Pin maritime	0,550	[211]
Epicea commun	0,450; 0,37-0,50	[210]
Pin sylvestre	0,525	
Bouleau	0,660; 0,65	[211] [212] [210]
Tremble	0,720	[212]
Eucalyptus	0,49-0,80 0,71 (FNT) 0,68 (FT)	[210] Cette étude

ii. Angle de contact des fibres traitées

Comme indiqué précédemment, le caractère hydrophile des fibres naturelles constitue l'une des préoccupations majeures pour leur utilisation comme renfort dans les composites à matrice polymère. Il est donc nécessaire, après traitement des fibres, de déterminer l'angle de contact, qui n'est qu'un paramètre indicatif de l'énergie de surface des fibres. Pour un matériau dont l'énergie de surface polaire est faible, c'est-à-dire pauvre en molécules

polaires et présentant un angle de contact supérieur ou égal à 90°, ce matériau est qualifié d'hydrophobe.

Cependant, le [tableau 4.3](#) montre que, malgré les conditions de traitement, les fibres restent hydrophiles, l'angle de contact avec l'eau étant inférieur à 90°. Autrement dit, ces fibres possèdent encore un nombre significatif de molécules polaires, plus spécifiquement des groupes hydroxyles. La meilleure valeur de l'angle de contact ($84 \pm 1,33^\circ$), obtenue pour les fibres FE₆₋₂₄₀₋₁₀₀, constitue l'une des raisons ayant motivé le choix de ces conditions de traitement pour la formulation des composites.

Tableau 4.3 Angle de contact et énergie de surface

Fibres traitées	Moyenne (\pm Écart type)				
	Angle mesuré ($^\circ$)			Energie de Surface (mJ.m^{-2})	
	Eau	Iodure de Méthylène	α -Bromonaphta-lene	Dispersive	Polaire
FE _{2,5-60-25}	45 \pm 0,41	33 \pm 0,16	35 \pm 1,01	34,93	3,93
FE _{2,5-120-50}	48 \pm 0,34	33 \pm 0,21	34 \pm 0,84	39,51	3,81
FE _{2,5-180-75}	49 \pm 0,29	37 \pm 0,17	36 \pm 0,56	35,96	3,78
FE _{2,5-240-100}	57 \pm 1,23	34 \pm 1,54	35 \pm 1,11	38,16	3,29
FE ₄₋₆₀₋₂₅	61 \pm 1,13	38 \pm 1,12	40 \pm 0,69	36,62	2,77
FE ₄₋₁₂₀₋₅₀	63 \pm 1,22	36 \pm 0,84	36 \pm 1,10	35,71	2,35
FE ₄₋₁₈₀₋₇₅	67 \pm 1,16	39 \pm 0,19	41 \pm 1,34	39,43	2,19
FE ₄₋₂₄₀₋₁₀₀	71 \pm 1,12	40 \pm 1,28	37 \pm 1,17	38,28	1,97
FE ₆₋₆₀₋₂₅	75 \pm 0,49	41 \pm 1,74	39 \pm 1,25	35,16	1,86
FE ₆₋₁₂₀₋₅₀	77 \pm 1,36	43 \pm 1,33	39 \pm 1,65	39,52	1,81
FE ₆₋₁₈₀₋₇₅	78 \pm 0,89	51 \pm 1,06	42 \pm 1,44	37,29	1,78
FE ₆₋₂₄₀₋₁₀₀	84 \pm 1,33	53 \pm 0,96	38 \pm 1,66	38,21	1,21

iii. Masse volumique apparente des composites

La masse volumique apparente (g/cm^3) constitue l'un des paramètres physiques essentiels dans le choix des composites pour des secteurs spécialisés tels que l'aéronautique, l'automobile, la construction, ou encore l'industrie des appareils comportant des composants soumis à de faibles contraintes mécaniques, comme les engrenages.

Les résultats relatifs à la densité apparente des différents échantillons sont résumés dans le [tableau 4.4](#). On note une augmentation de la densité apparente des composites à fibres non traitées par rapport à ceux à fibres traitées.

D'après la littérature [213] [214], la valeur moyenne de densité apparente des fibres de bois est comprise entre 0,15 et 1,20 g/cm^3 . Par ailleurs, selon le type de PEBD utilisé, il est observé que les composites à matrice PEBDR présentent une densité légèrement plus élevée que ceux à matrice PEBDV. La proportion de fibres joue également un rôle déterminant dans les caractéristiques physiques. Il est également observé que les composites intégrant 15 % de fibres présentent une densité apparente inférieure à celle des composites contenant 25 % de fibres. Cette élévation de la densité apparente est liée à la densité individuelle des composants, illustrant un effet de combinaison des densités apparentes dans tous les types de composites analysés. Cette tendance est corroborée par les travaux de Ramezani et al.[215].

Tableau 4.4 Masse volumique des composites PEBD-Eucalyptus

Matrice	Masse volumique (g/cm^3)
PEBD _V	0,91
PEBD _R	0,92
Type de composite	Composite de fibre traitée
PEBD _V 15ET	1,11 ± 0.012
PEBD _V 25ET	1,19 ± 0.013
PEBD _R 15ET	1,17 ± 0.010
PEBD _R 25ET	1,23 ± 0.011
Type de composite	Composite de fibre non traitée
PEBD _V 15ENT	1,16 ± 0.012
PEBD _V 25ENT	1,21 ± 0.010
PEBD _R 15ENT	1,20 ± 0.011
PEBD _R 25ENT	1,24 ± 0.014

4.1.2 Composition chimique des fibres

Le **Tableau 4.5** présente la composition chimique des deux fractions granulométriques des fibres d'eucalyptus. La connaissance de cette composition est nécessaire pour comprendre l'état chimique des fibres, afin de déterminer le type de traitement à adopter. À travers ce tableau, on constate que la cellulose est le constituant le plus abondant, quelle que soit la fraction granulométrique des fibres. Elle est plus présente dans les FE > 0,5 mm (40,28 % \pm 1,59) que dans les FE \approx 0,485 mm (34,17 % \pm 1,71), soit une différence de 6,11 %. Cette différence peut s'expliquer par le fait que, lors de la mise en différentes granulométries, la cellulose se retrouve davantage concentrée dans les fractions à forte granulométrie. Ce comportement est également observé dans le cas de l'hémicellulose. En revanche, la lignine insoluble dans H₂SO₄ ainsi que les composés solubles dans l'éthanol-toluène et dans l'eau chaude se révèlent plus abondants dans la fraction à plus faible granulométrie. Étant donné que la proportion de la lignine dans les fibres FE > 0,5 mm est inférieure à celle de FE \approx 0,485 mm, il est plus aisé d'éliminer une plus grande quantité de lignine dans les fractions à forte granulométrie.

L'objectif n'est pas d'éliminer cependant totalement la lignine des fibres, car elle assure la rigidité structurale de celles-ci, mais plutôt d'optimiser la libération des groupements hydroxyles ainsi que d'autres composants susceptibles d'affecter la durabilité des fibres, et donc des composites, face aux facteurs environnementaux tels que l'humidité, la température, les moisissures, les termites et les rayonnements UV.

Tableau 4.5 Composition des fibres selon la fraction granulométrique

Composés	FE > 0,5 mm	FE > 0,485 mm
	%	
Holo cellulose	69,88 \pm 1,43	50,89 \pm 1,39
Cellulose	40,28 \pm 1,59	34,17 \pm 1,71
Hémicellulose	29,60 \pm 1,22	16,72 \pm 0,35
Lignine insoluble dans H ₂ SO ₄	18,87 \pm 0,66	23,21 \pm 0,21
Solubilité Éthanol-Toluène	03,45 \pm 0,32	04,16 \pm 0,02
Soluble à l'eau chaude	02,87 \pm 0,47	03,01 \pm 0,01

4.1.3 Caractérisation au microscope MEB des fibres

La caractérisation topographique des fibres, réalisée à l'aide du microscope électronique à balayage (MEB), a permis de déterminer la concentration optimale en NaOH pour le traitement des fibres d'eucalyptus dans cette étude.

La **Figure 4.1 A** correspond à la topographie de la fibre traitée avec une solution de NaOH à 4 % m/v. L'observation révèle la présence de pores ainsi qu'une surface très rugueuse pour les fibres brutes. En revanche, La **Figure 4.1B** montre que les fibres traitées à 4 % m/v de NaOH présentent à la fois des zones rugueuses et des zones lisses. Cela suggère que cette concentration n'est pas optimale pour obtenir une surface moins rugueuse, mais cela ne constitue pas un désavantage car la liaison physique aussi peut être mise en jeu. Quant à la **Figure 4.1C**, on observe une surface lisse des fibres traitées avec 6% m/v NaOH. Elle illustre une surface lisse des fibres traitées avec une solution de NaOH à 6 % m/v. Ces résultats permettent de donner une première approximation sur l'amélioration de la performance des composites. Pour le traitement des fibres d'eucalyptus, dans notre cas d'étude, 6% m/v de NaOH, pendant 4h à 100°C restent les meilleures. Toutefois, l'angle de contact et l'énergie de surface polaire des fibres traitées dans ces conditions opératoires doivent être optimisées en envisageant des concentrations supérieures à 6%, du temps et de la température raisonnable.

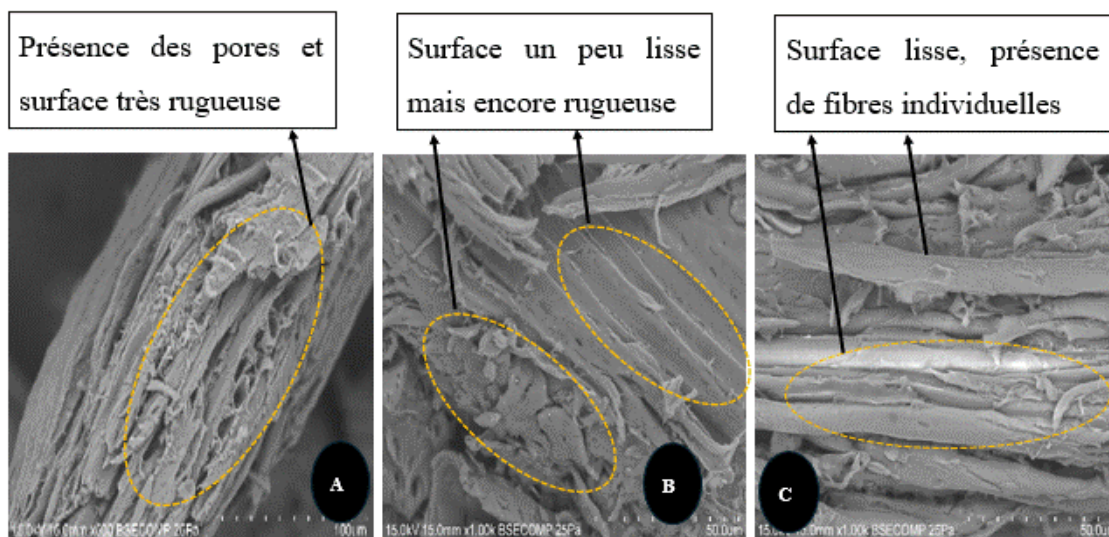


Figure 4.1 MEB: A- fibre brute, B, C respectivement fibre traitée avec 4 et 6% de NaOH

4.1.4 Tests mécaniques des composites PEBD-Eucalyptus

4.1.4.1 Traction des composites: PEBD vierge et recyclé

La **Figure 4.2a** et **b.** illustrent l'effet de la mercerisation, de la proportion massique (%m) des fibres d'eucalyptus ainsi que de la nature du PEBD (vierge ou recyclé) sur les propriétés de traction longitudinale des composites. Pour chaque essai, six éprouvettes ont été analysés. Du point de vue de la nature du PEBD, la résistance à la traction des composites reste similaire pour toutes les teneurs en fibres, qu'elles soient traitées ou non. Avec ou sans traitement, la résistance à la traction augmente de façon quasi linéaire en fonction de la charge massive en fibres et du traitement, et ce, pour les deux types.

Dans le cas du PEBD vierge (PEBD_V), on observe une augmentation de la résistance à la traction de l'ordre de 16,58, 33,22, 41,87 et 81,78 % pour les composites PEBD_V15ENT (23,16 MPa), PEBD_V15ET (26,47 MPa), PEBD_V25ENT (28,19 MPa) et PEBD_V25ET (36,12 MPa) par rapport au PEBD_V (19,87MPa). Étant donné que, les fibres sont plus rigides et résistantes que la matrice polymère et qui absorbent une partie de la charge appliquée, celles-ci agissent comme des renforts en empêchant la propagation des fissures et reportant les contraintes. Les fibres ET confèrent systématiquement un renforcement supérieur aux fibres ENT. Cela indique que les fibres ET ont une meilleure adhérence à la matrice PEBD, une résistance intrinsèque plus élevée ou encore un facteur de forme (longueur/diamètre) favorable, ce qui optimise le transfert de charge. Par ailleurs, pour un même type de fibre, l'augmentation de la charge (15% à 25%) améliore la résistance, ce qui indique qu'à cette plage les fibres contribuent efficacement au renforcement. Une amélioration spectaculaire pour les fibres (+ 33% à 81%), indiquant un effet synergique.

Pour le PEBD recyclé (PEBD_R), cette augmentation est de 10,69, 34,93, 21,74 et 80,51 % pour les composites PEBD_R15ENT (22,15 MPa), PEBD_R15ET (27 MPa), PEBD_R25ENT (24,36 MPa) et PEBD_R25ET (34 MPa), respectivement, par rapport au PEBD_R (20,01 MPa). De manière générale, les composites à matrice PEBD_V présentent une résistance à la traction supérieure à celle des composites à matrice PEBD_R. Bien que le PEBD_R et le PEBD_V tous sans charge aient une résistance quasi identique, la capacité de PEBD_R à être renforcée est entièrement inférieure (excepté PEBD_R25ET). Cela indique la dégradation

du polymère lors des cycles de vie et de recyclage. Ainsi, la dégradation du PEBD_R peut occasionner une réduction de sa masse molaire, une altération de sa distribution moléculaire et une diminution de la concentration des groupes fonctionnels à sa surface. Les fibres se décolle de la matrice sous contrainte à cause de la mauvaise adhérence limitant ainsi l'augmentation de la résistance et donc faible performance. Concernant le taux de charge, on retrouve la même tendance que pour le PEBD_V. Le tableau 4.6 présente une comparaison avec la littérature sur les tendances de la performance des composites biosourcés.

Tableau 4.6 Comparaison des performances des résultats avec la littérature

Aspect	Comparaison PEBD _V /PEBD _R	Explication basée sur la littérature
Propriété de la matrice	Vierge > recyclé	Le recyclage (mécanique ou thermique) entraîne une dégradation des chaînes polymères par coupure ou oxydation. Résistance mécanique plus faible, faible capacité de liaison interfaciale avec les fibres [216] [217].
Adhérence interfaciale	Meilleure pour les vierges/fibres	Interface forte pour le transfert de la charge de la matrice vierge (ductile) aux fibres (rigide). Faible énergie de surface et une moindre réactivité chimique pour les recyclés favorisant une décollation plus facile [218] [219] [220]
PEBD _V 25ET	Performance quasi équivalente au PEBD _R 25ET	Le résultat suggère qu'avec une fibre performante (et) et un taux élevé (25%), il est possible de compenser les faiblesses du PEBD _R et cela corrobore avec la littérature qui affirme qu'un taux de charge optimal et une excellente dispersion peuvent masquer les défauts d'interface. Alors, la fibre devient le principal élément porteur de charge [221] [222].
Performance des fibres	ET > ENT dans les deux matrices	Cette hiérarchie est indépendante de la nature de la matrice. Elle met en évidence l'importance des propriétés intrinsèques de la fibre telles que la composition chimique (teneur en cellulose, cristallinité), résistance propre et morphologie (facteur forme) [223] [224]. Et, les fibres ET ont des caractéristiques supérieures à celles ENT

En considérant que le PEBD_R (20,01 MPa) possède, à l'état vierge, une résistance à la traction légèrement supérieure à celle du PEBD_V (19,87 MPa), on pourrait s'attendre à ce

que les composites PEBD_R/Eucalyptus présentent de meilleures performances mécaniques que les composites PEBD_V/Eucalyptus.

En conclusion, la charge massique en fibres exerce une influence notable sur le comportement en traction des composites : plus le taux de fibres augmente, plus la résistance à la traction s'améliore [5-6]. La diminution relative des performances mécaniques des composites PEBD_R/PE-g-MA/Eucalyptus, bien que non significative, pourrait être attribuée à une adhésion interfaciale moins résistante que les composites PEBD_V/PE-g-MA/Eucalyptus. Comparativement à l'effet significatif de la charge en fibres sur la résistance à la traction des composites, le traitement alcalin des fibres exerce également une influence notable sur cette propriété mécanique. En effet, le traitement chimique des fibres améliore leurs caractéristiques chimiques et morphologiques, favorisant une meilleure adhésion interfaciale et conduisant ainsi à une augmentation des propriétés en traction des composites [211-212]. Par ailleurs, tout comme la charge en fibres, le traitement alcalin exerce également une influence significative sur la résistance à la traction des composites. En effet, le traitement chimique des fibres améliore leurs propriétés chimiques et morphologiques, favorisant une meilleure adhésion interfaciale et conduisant ainsi à une augmentation des performances mécaniques en traction.

De plus, un effet similaire a été observé au niveau du module élastique en traction (**Figure 4.2c**). Contrairement à la résistance en traction, le module de traction est plus élevé pour les composites à matrice de PEBD recyclé. En effet, on note en moyenne 38,77; 387,76; 385,71 et 630,61% de module de traction respectivement des PEBD_R15ENT (0,68 GPa), PEBD_R15ET (2,39 GPa), PEBD_R25ENT (2,38 GPa) et PEBD_R25ET (3,58 GPa) par rapport au PEBD_R (0,49 GPa) d'une part, et d'autre part, 128,95; 142,11; 281,58 et 415,79% respectivement des composites PEBD_V15ENT (0,87 GPa), PEBD_V15ET (0,92 GPa), PEBD_V25ENT (1,45 GPa) et PEBD_V25ET (1,96 GPa) par rapport au PEBD_V (0,38 GPa). Cette augmentation du module pour les composites PEBD_R/PE-g-MA/Eucalyptus traduit leur rigidité. Si on se réfère à la littérature, la rigidité d'un matériau dépend de la nature de l'interface entre les constituants, et, si nous pouvons ajouter qu'elle est également liée aux types d'interphases (amorphe ou cristalline), nous admettons que les composites PEBD_R/PE-g-MA/Eucalyptus sont plus rigide et donc sont plus résistants à un changement

de longueur sous l'impulsion de la force appliquée. Par ailleurs, ils présentent une interphase beaucoup plus cristalline, ce qui défavorise le déplacement des liaisons interatomiques, par conséquent, la baisse de la déformation à la rupture. La zone plastique est davantage respectée du côté des composites PEBD_v/PE-g-MA/Eucalyptus caractérisant leur limite d'élasticité et transitant dans la zone plastique avant de se romps. La faible déformation des composites de matrice PEBD recyclé (voir la [figure 4.2](#)) est une indication de la rigidité de ces derniers du point de vue structurelle.

Afin de mieux comprendre les facteurs de cette rigidité, il conviendrait de caractériser l'interface et la cristallinité des composites. Toutefois, ce travail de thèse ne prend pas en compte cette caractérisation. Le [tableau 4.7](#) récapitule les valeurs maximales de la contrainte et de la déformation pour les deux types de composites, tandis que le [tableau 4.8](#), celui du module élastique en traction.

Tableau 4.7 Récapitulatif de la résistance maximale à la traction des composites

Composite		PEBD	PEBD15ENT	PEBD15ET	PEBD25ENT	PEBD25ET
V*	σ (MPa)	19,87	23,16	26,47	28,79	36,12
	<i>Écart-type</i>	0,17	0,11	0,17	0,19	0,21
	ε (%)	9,23	3,25	4,13	1,89	3,16
	<i>Écart-type</i>	0,03	0,01	0,02	0,01	0,01
R*	σ (MPa)	20,01	22,15	27	25,36	34
	<i>Écart-type</i>	0,26	0,16	0,31	0,14	0,16
	ε (%)	9,23	2,28	2,02	1,89	2,04
	<i>Écart-type</i>	0,04	0,03	0,05	0,03	0,04

Tableau 4.8 Module de Young de la traction des composites PEBD vierge et recyclé

Composite		PEBD	PEBD15ENT	PEBD15ET	PEBD25ENT	PEBD25ET
V*	E (GPa)	0,38	0,87	0,92	1,45	1,96
	<i>Écart-type</i>	0,04	0,03	0,03	0,05	0,02
R*	E (GPa)	0,48	0,68	2,39	2,38	3,58
	<i>Écart-type</i>	0,06	0,02	0,08	0,09	0,13

V* = Vierge; R* = Recyclé

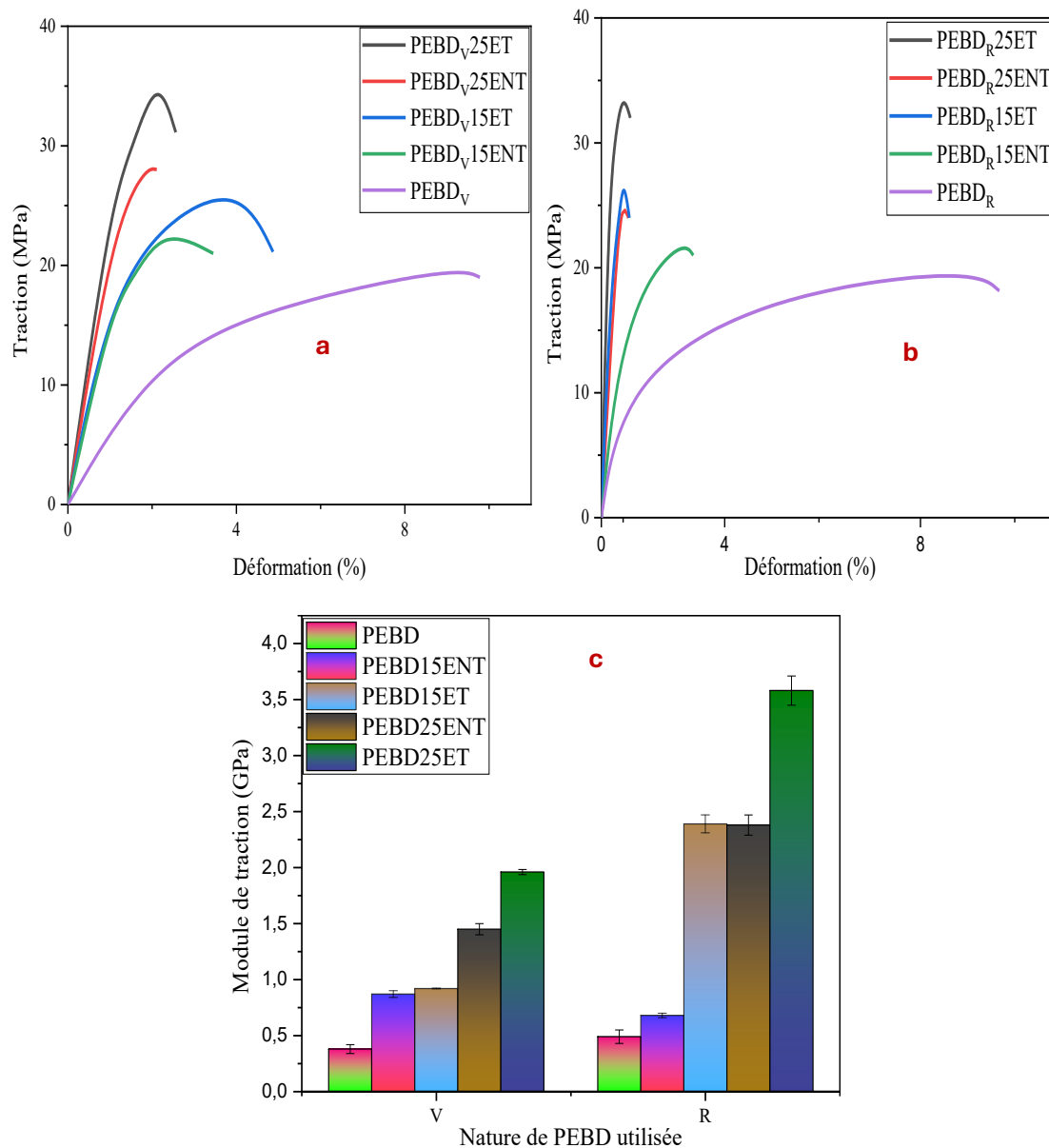


Figure 4.2 Contrainte-déformation des composites eucalyptus a) PEBD vierge; b) PEBD recyclé; c) Module élastique (V= vierge, R= recyclé)

La différence des déformations observées entre PEBD_V et PEBD_R (10,21, 9,87% respectivement) n'est pas significative. On constate également qu'aucune rupture n'est survenue malgré le passage de la zone plastique. Plus la charge appliquée augmente, plus l'éprouvette sans charge s'étire, provoquant ainsi une forte striction sur l'ensemble de sa surface. En revanche, les composites renforcés par des fibres, qu'elles soient traitées ou

non, ont subi une rupture à des déformations maximales de 5 et 3,45 %, respectivement pour les échantillons PEBD_V/MAPE/Eucalyptus et PEBD_R/MAPE/Eucalyptus.

Il revient donc de préciser d'après ces résultats, que le matériau PEBD_R/MAPE/Eucalyptus constitue un choix pertinent pour la conception d'éco matériaux, tels que les planchers dans la construction et l'ameublement, les pavés écologiques, ainsi que d'autres articles nécessitant une rigidité élevée. L'augmentation du taux de fibres, éventuellement traitées, améliore la performance des composites. Par ailleurs, le coefficient de poisson mesuré permet de mieux comprendre le caractère compressible de ces matériaux et aussi le module de cisaillement obtenu, donnant raison à la rigidité du matériau.

4.1.4.2 Détermination du coefficient de poisson

Afin d'obtenir des informations sur le matériau formulé par rapport à son état de déformation transversale et à sa déformation axiale sous une sollicitation en traction inférieure à la limite d'élasticité, deux paramètres, théoriquement liés au module de Young, sont déterminés : le coefficient de Poisson et le module de cisaillement. Les expressions mathématiques [4.1](#); [4.2](#) et [4.3](#) peuvent s'écrire :

$$\frac{E}{2G} = (1 + \nu) \quad 4.1$$

$$\frac{E}{2(1+\nu)} = G \quad 4.2$$

$$\nu = -\frac{\varepsilon_R}{\varepsilon_L} \quad 4.3$$

Où ν représente le coefficient de poisson en traction, G le module de cisaillement en traction et E le module élastique en traction. Ces propriétés peuvent être déterminées à partir du rapport de la déformation unitaire transversale et axiale à la limite élastique de la formule [4.3](#) avec ε_R la déformation unitaire radiale, ε_L la déformation unitaire longitudinale. Ces propriétés permettent de comprendre, de prédire et de modéliser le comportement à long terme des matériaux. Selon la littérature, un matériau est compressible si son coefficient de Poisson est inférieur à 0,5, et s'il est égal à 0,5, le matériau est considéré comme incompressible. Comme le montre la [figure 4.3.a](#), le module de cisaillement augmente en fonction du traitement et de la teneur en fibres dans les deux

cas de PEBD, tandis que le coefficient de Poisson varie faiblement et prend une valeur moyenne d'environ 0,24 ([figure 4.3.b](#)).

Entre 0 et 25 % de fibres traitées, on observe une augmentation du module de traction (cisaillement) de 409 % (maximum 0,790 GPa) et de 629 % (maximum 1,438 GPa) respectivement pour PEBD_V/Eucalyptus et PEBD_R/Eucalyptus. L'évolution de ces comportements élastiques est similaire à celle rapportée par Fayçal et al.[66], à savoir 157 % et 143 % respectivement pour HDPE/Bouleau et HDPE/Tremble. Ce module de rigidité élevé dans le cas des composites à matrice de PEBD recyclé confirme la faible déformation en traction de ces mêmes types de composites, comme précédemment souligné.

Par ailleurs, à partir de la fourchette typique du coefficient de Poisson, comprise entre 0,30 et 0,40, et qui varie faiblement (0,25 et 0,35) pour les composites chargés de fibres de bois [227][228][229], caractérisant leur caractère compressible, alors, l'ensemble des matériaux reste moyennement compressible. Donc, plus la charge en fibres est élevée, faible est le coefficient de poisson. Le tableau ci-après récapitule les valeurs maximales du coefficient de poisson et du module de cisaillement.

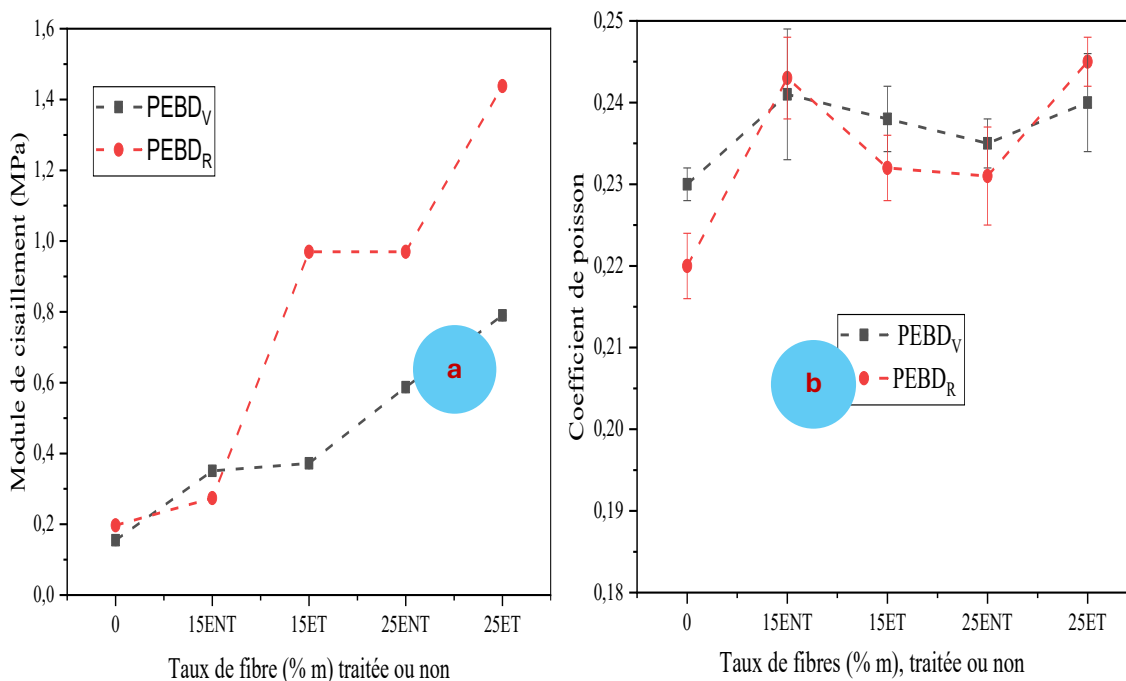


Figure 4.3 a) Modules de rigidité G et b) le coefficient de poisson du composite

Tableau 4.9 Récapitulatif du module de cisaillement et du coefficient de poisson

Composite		PEBD	PEBD15ENT	PEBD15ET	PEBD25ENT	PEBD25ET
V*	ν	0,230	0,241	0,238	0,235	0,240
	<i>Écart-type</i>	0,001	0,004	0,002	0,002	0,003
	G (GPa)	0,155	0,351	0,372	0,587	0,790
	<i>Écart-type</i>	0,003	0,001	0,002	0,003	0,003
R*	ν	0,22	0,243	0,232	0,231	0,245
	<i>Écart-type</i>	0,001	0,001	0,002	0,001	0,003
	G (GPa)	0,197	0,274	0,970	0,970	1,438
	<i>Écart-type</i>	0,002	0,001	0,001	0,003	0,001

$V^* = \text{Vierge}$; $R^* = \text{Recyclé}$

4.1.4.3 Flexion des composites PEBD-Eucalyptus

Les paramètres de la flexion, tels que la contrainte, le module d'élasticité et la déformation à la rupture, sont présentés dans la **Figure 4.4** A noter les mêmes évolutions que celles observées lors des tests de traction. Il apparaît que la contrainte à la flexion des composites PEBD/Eucalyptus varie de manière linéaire en fonction du taux et du traitement des fibres, et ce, quelle que soit la nature du PEBD.

Cependant, l'amélioration constatée est de 25; 46; 72 et 114% respectivement pour PEBD_V15ENT (max 29,89 MPa), PEBD_V15ET (34,76 MPa), PEBD_V25ENT (41,13 MPa) et PEBD_V25ET (51,16 MPa) par rapport à PEBD_V (23,87 MPa); c'est-à-dire que le traitement alcalin des fibres améliore la résistance et la rigidité à la flexion ainsi que de son module de Young et cela également lorsque la charge des fibres augmente, car le traitement nettoie et rugosifie les fibres, permettant un encrage mécanique et chimique bien plus fort avec le plastique, ce qui force les fibres à porter la charge efficacement, surtout lorsqu'elles sont en proportion élevée. Cette amélioration de la résistance à la flexion en fonction du taux et du traitement corrobore avec la littérature [213 -214]. En revanche, on note une diminution de la déformation à la rupture, qui décroît linéairement en fonction du taux et du traitement des fibres. Les composites PEBD_V15ENT et PEBD (vierge et recyclé) sont plus ductiles que les autres composites. Si certains composites sont fragilisés et subissent la rupture, c'est qu'il y a eu création de nouvelles surfaces se propageant dans toutes les directions, ce qui les fragilise et entraîne, par conséquent se brise. La concentration ainsi que le temps de traitement exercent une influence significative sur la nature de la fibre

obtenue. Étant donné que la rigidité des fibres dépend en grande partie de la présence de la lignine, si celle-ci est complètement éliminée à la suite des traitements alcalins, alors la fibre devient plus fragile et son apport mécanique dans le composite est réduit. Cette constatation est également rapportée dans la littérature [232]. Par ailleurs, les mêmes effets ont été observés au niveau des composites de PEBD_R. Le module de flexion obtenu augmente avec l'augmentation du taux de fibres et également en fonction du traitement des fibres. Aucune variation significative n'a été notée entre les deux types de composites (PEBD_V/PE-g-MA-/Eucalyptus et PEBD_R/PE-g-MA-/Eucalyptus). Le [tableau 4.10](#) et le [tableau 4.11](#) présentent un récapitulatif des valeurs maximales de la flexion, ainsi que du module de Young pour tous les composites des deux types de polyéthylène basse densité.

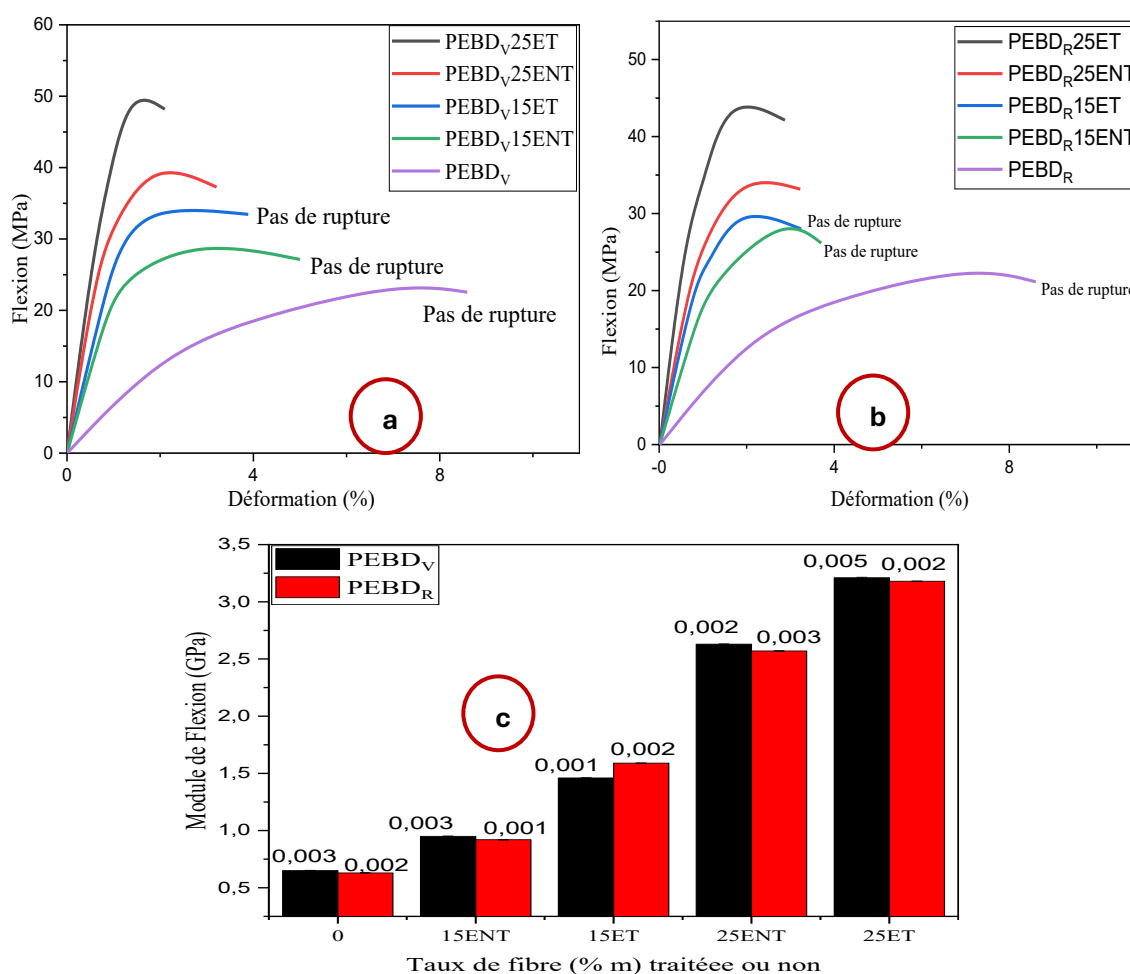


Figure 4.4 Flexion: contrainte-déformation des composites eucalyptus a) PEBD vierge; b) PEBD recyclé; c) module de flexion

Tableau 4.10 Récapitulatif de la résistance maximale à la flexion des composites

Composite		PEBD	PEBD15ENT	PEBD15ET	PEBD25ENT	PEBD25ET
V*	σ (MPa)	23,87	29,89	34,76	41,13	51,16
	<i>Écart-type</i>	0,32	0,21	0,17	0,16	0,41
	ε (%)	7,16	5,84	5,39	3,47	2,11
	<i>Écart-type</i>	0,03	0,04	0,01	0,02	0,04
R*	σ (MPa)	23,17	29,78	31,18	35,19	45,78
	<i>Écart-type</i>	0,51	0,36	0,18	0,12	0,32
	ε (%)	7,16	2,76	1,69	1,83	1,55
	<i>Écart-type</i>	0,02	0,03	0,03	0,01	0,01

Tableau 4.11 Module de Young a la traction des composites PEBD vierge et recyclé

Composite		PEBD	PEBD15ENT	PEBD15ET	PEBD25ENT	PEBD25ET
V*	E (GPa)	0,65	0,95	1,46	2,63	3,21
	<i>Écart-type</i>	0,003	0,003	0,001	0,002	0,005
R*	E (GPa)	0,63	0,92	1,59	2,57	3,18
	<i>Écart-type</i>	0,002	0,001	0,002	0,003	0,002

4.1.4.4 Résilience aux chocs Charpy

La **Figure 4.6 a-** présente les résultats des essais de résilience aux chocs Charpy. Ces résultats ont été obtenus en faisant la moyenne des 10 essais réalisés pour chaque échantillon testé. La résilience est beaucoup plus élevée pour les éprouvettes des deux types de PEBD à 0 % de fibres, traitées ou non, ce qui caractérisait leur ductilité, déjà constatée lors des essais de traction et de flexion. En revanche, les bio-composites renforcés par les fibres, traités ou non, présentent une résilience faible face aux chocs. Cette résilience diminue linéairement en fonction de la quantité et du traitement des fibres, mais reste similaire entre les composites à matrice recyclé et les composites à matrice vierge. En effet, par rapport aux composites à matrice PEBD_V ($98,32 \pm 1,87$ kJ/m²), on note une diminution de cette résilience de 32% ($67,13 \pm 1,33$ kJ/m²); 23% ($75,87 \pm 2,38$ kJ/m²); 45% ($54,12 \pm 1,26$ kJ/m²) et 41% ($58,23 \pm 0,89$ kJ/m²) respectivement pour les composites PEBD_V15ENT, PEBD_V15ET, PEBD_V25ENT, PEBD_V25ET. De même, par rapport au PEBD_R ($98,13 \pm 1,23$ kJ/m²), le même constat est fait, soit 32% ($66,59 \pm 2,16$ kJ/m²); 19%

($79,13 \pm 1,87 \text{ kJ/m}^2$); 43% ($56,13 \pm 1,08 \text{ kJ/m}^2$); 39% ($60,15 \pm 1,12 \text{ kJ/m}^2$) respectivement pour les composites PEBD_R15ENT, PEBD_R15ET, PEBD_R25ENT, PEBD_R25ET.

En comparant les deux types de composites, on remarque que les composites à matrice de PEBD_R, bien qu'elle ne soit pas significative, présentent une meilleure résilience aux chocs de Charpy que celle des composites à matrice de PEBD_V. Puisque la matrice PEBD_R est plus ductile et entrée dans sa phase de dégradation, elle absorbe l'énergie par une déformation plastique accrue. Combinée à une interface fibre/matrice qui dissipe de l'énergie par frottement et délaminage, cela confère au composite recyclé une meilleure capacité à absorber un choc soudain, celui-ci se traduit par une meilleure résilience Charpy. Ce caractère résilient des composites à matrice de polyéthylène recyclé dépendrait de certains facteurs, tels que la limite d'élasticité des composites. Il peut également être influencé par la présence de pores, de zones de discontinuités, par l'inégalité des phases ainsi que par la ductilité du matériau. Ce phénomène a été rapporté par Morreale et al.[233], qui ont étudiés la même propriété sur des composites de fibres de farine de bois à matrice biopolymère d'amidon.

Théoriquement, l'élasticité d'un matériau affecte sa résilience aux chocs, c'est-à-dire que plus la limite élastique d'un matériau augmente, plus son énergie d'impact diminue. Cette limite élastique fait donc référence à l'énergie potentielle interatomique (voir **Figure 4.5**) [234], dont le module de Young dépend du minimum du puits de potentiel (énergie de liaison) [217-218]. La **Figure 4.6b** présente la relation entre la limite d'élasticité et l'énergie consommée lors du choc Charpy. En effet, la résilience aux chocs Charpy des composites diminue lorsque la contrainte à la limite élastique augmente, en fonction du taux et du traitement ou non des fibres.

Tous les échantillons testés, à l'exception de PEBD (vierge comme recyclé), PEBD_V15ET et PEBD_R15ET, ont été cassés sous le choc. Si ces matériaux (PEBD vierge et recyclé, PEBD_V15ET et PEBD_R15ET) n'ont pas subi de rupture, cela signifie que les polymères à 0 % de fibres sont plus homogènes et que les défauts de fabrication (par exemple, la présence de pores), susceptibles d'amorcer la propagation des fissures et, par conséquent, de contraindre le matériau à une rupture fragile, sont absents, soit négligeables. De la même

manière, et en complément de la bonne adhésion PEBD/PE-g-MA/Eucalyptus, intuitivement admise, cette approche peut être appliquée aux composites PEBD_V15ET et PEBD_R15ET. En revanche, la rupture des autres composites peut être attribuée à l'état de leur interface, au type de liaison établie entre les différents éléments, ainsi qu'à la présence de défauts de fabrication.

La résilience aux chocs Charpy dépend essentiellement de la nature des interphases et interfaces, de l'homogénéité des composites, de la morphologie (notamment la présence ou non de défauts de fabrication), de la nature chimique et des types de liaisons (influençant sur l'amorphisme ou la cristallinité du composite, donc sur sa ductilité ou sa rigidité) ainsi que de la nature physique, telle que la densité ou la capacité thermique. Cependant, l'absorption de l'énergie du choc dépend également de l'ensemble de ces paramètres. Moins le matériau absorbe d'énergie de choc, plus il est rigide et cassant, et moins il est résilient (**Figure 4.6b**). Le [tableau 4.8](#) présente les énergies absorbées lors du choc de même que la résilience enregistrée.

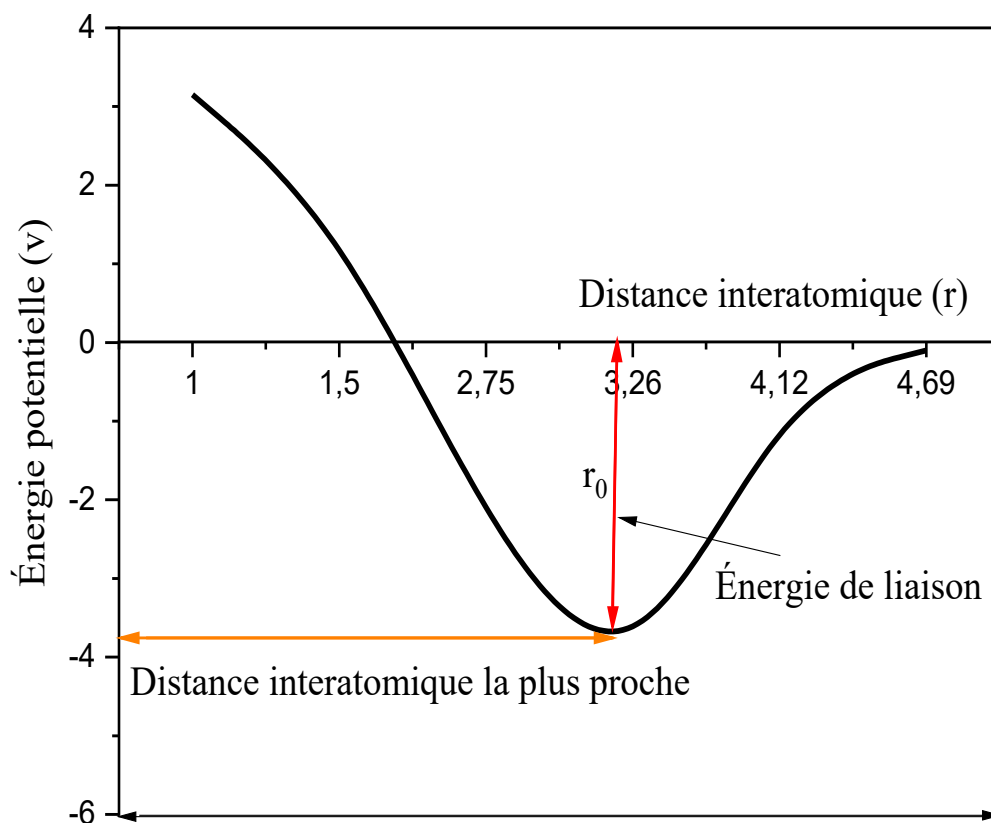
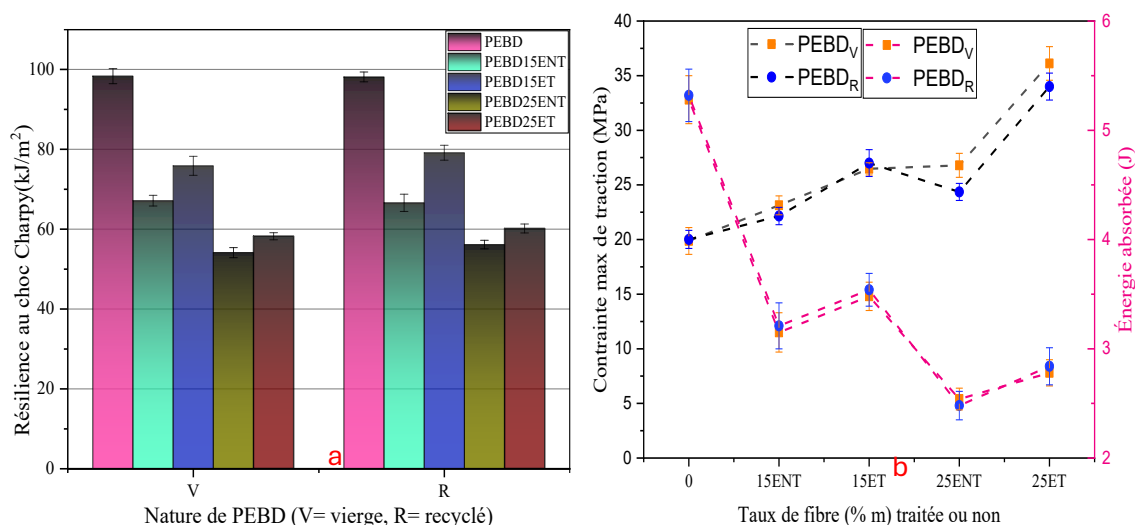


Figure 4.5. Potentielle interatomique, reproduction adaptée de la figure originale

Tableau 4.12 Énergie absorbée et résilience aux chocs des composites

Composite	Énergie absorbée (J)		Chocs de Charpy (kJ/m ²)	
	Vierge	Recyclé	Vierge	Recyclé
0%	5,28 ± 0,22	5,32 ± 0,24	98,32 ± 1,87	98,13 ± 1,23
15% ENT	3,15 ± 0,18	3,21 ± 0,21	67,13 ± 1,33	66,59 ± 2,16
15% ET	3,48 ± 0,13	3,54 ± 0,15	75,87 ± 2,38	79,13 ± 1,87
25% ENT	2,54 ± 0,10	2,48 ± 0,13	54,12 ± 1,26	56,13 ± 1,08
25% ET	2,78 ± 0,12	2,84 ± 0,17	58,23 ± 0,89	60,15 ± 1,12

**Figure 4.6 a) Résilience aux chocs Charpy, b) limite élastique et énergie absorbée**

4.1.5 Analyse thermogravimétrique (ATG)

Le suivi de la masse résiduelle des échantillons de composites et de fibres (**Figure 4.7**) a permis d'identifier des zones spécifiques et sensibles à la température. Les courbes de variation de la masse résiduelle peuvent être présentées en quatre parties, fournissant chacune des informations sur la dégradation des fibres et du polymère PEBD. Pour simplifier la présentation, seuls les résultats des composites à matrice de PEBD vierge sont exposés dans cette section. Les résultats des composites de PEBD recyclé et des composites de PEBD vierge corroborent.

En effet, entre 0 et 100 °C, on observe une perte d'environ 5 %, liée à la perte d'humidité et des extractibles, et ce pour tous les échantillons à l'exception du PEBD, compte tenu de sa nature chimique. Les travaux de Groenli et al.[236] confirmant cette observation, situant cette perte en dessous de 200 °C.

Par ailleurs, le premier constituant biopolymère à se dégrader majoritairement est l'hémicellulose, dans une plage de 180 à 330 °C [63-64] tandis qu'une partie résiduelle se dégrade jusqu'à 700 °C, comme le montre la figure 4.8 qui suit la même évolution. Selon Chen et al. [57] qui ont travaillé sur la dégradation thermique des eucalyptus, une corrélation entre leurs résultats et ceux de cette étude est obtenue.

La dégradation quasi totale de la cellulose est observée au-delà de 300°C [220-221-222]. Les travaux de Yang et al.[60] attribuent cette dégradation à une plage spécifique comprise entre 315 et 400°C, avec un pic maximal de la vitesse de perte de masse à 355°C.

La lignine se dégrade à partir de 250°C [60], et cette dégradation s'étend sur une large gamme de température différente de celle de l'holocellulose. Elle est quasiment consommée vers 500°C [62].

Par ailleurs, la structure chimique des biopolymères du bois ainsi que la nature du bois exercent une influence sur le mécanisme de thermo-dégradabilité de ces constituants [240]. L'hémicellulose, riche en polysaccharides, présente un caractère amorphe, ce qui la contraint à se détacher de la chaîne principale à une basse température. Quant à la lignine, elle est majoritairement constituée de groupements aromatiques, dont la réactivité des liaisons chimiques s'étend sur une grande plage de températures, ce qui explique sa dégradation progressive jusqu' à 500°C.

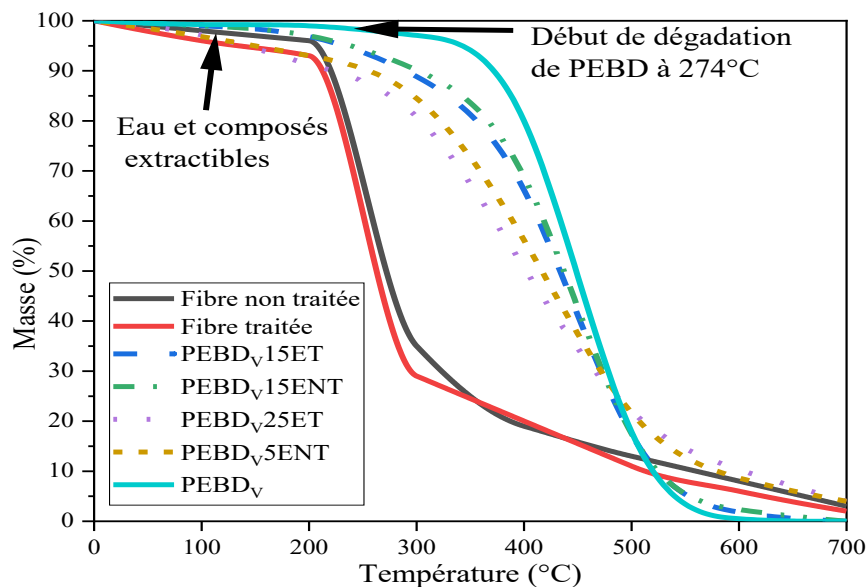


Figure 4.7 Évolution de la masse résiduelle des fibres, du PEBD et des composites

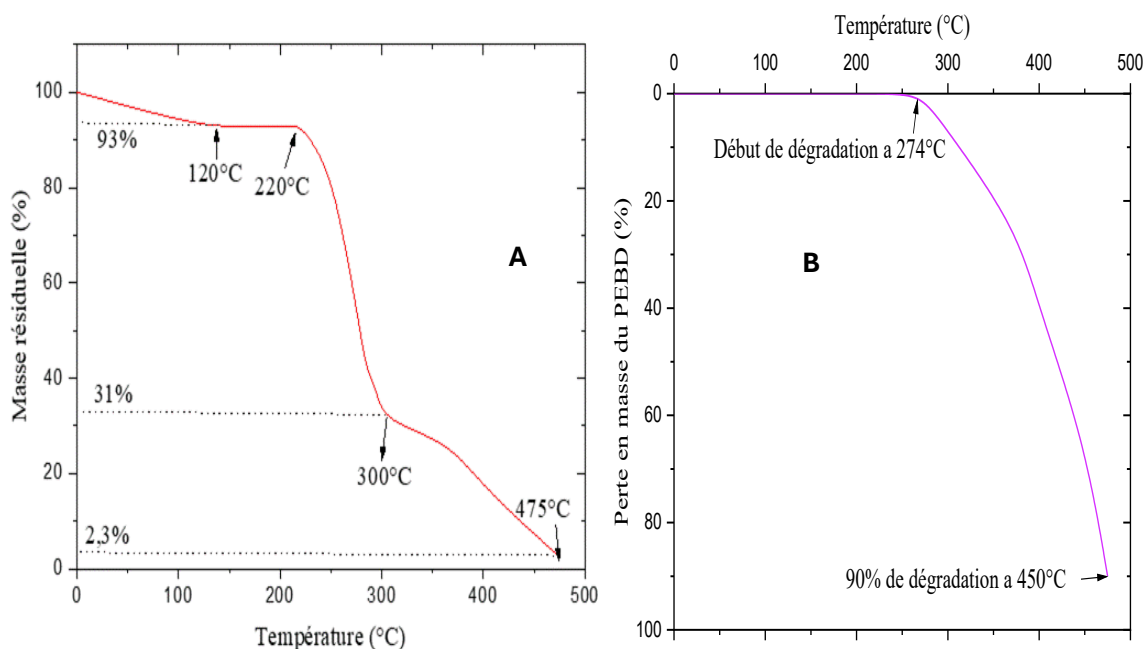


Figure 4.8 A- Masse résiduaire de la cellulose; B- Perte en masse du PEBD

Cependant, la dégradation des échantillons est plus sévère entre 200 et 500 °C, avec une perte de masse dépendante des échantillons. Aucune variation significative de la perte de masse n'est observée entre les fibres traitées et non traitées. La même observation est faite entre les composites PEBD_v15ENT et PEBD_v15ET, ainsi qu'entre PEBD_v25ENT et PEBD_v25ET. En revanche, une variation significative est constatée entre les fibres traitées ou non et les composites. L'évolution de la perte de masse des composites se rapproche de celle du PEBD vierge, c'est-à-dire de l'interaction entre les fibres et le PEBD. Cette situation montre qu'il existe une combinaison des propriétés des constituants (fibres et PEBD) qui améliorent les performances thermiques des composites.

De plus, on remarque que le taux de fibres influence la perte de masse des composites. Par exemple, dans l'intervalle de 300 à 400 °C, les composites PEBD_v25ET présentent une perte de masse de 36 %, contrairement aux composites PEBD_v15ET dont la perte est de 15 %. Cet écart d'environ 42% pour PEBD_v25ET est significatif et montre que plus la fraction massique des fibres dans la matrice est élevée, plus la perte de masse du composite augmentée. Cela s'explique par le fait que les biopolymères ne sont pas présents en proportion égale dans les différents taux de fibres.

Quant à l'influence du traitement des fibres, la variation de la perte de masse entre les composites à fibres traitées et non traitées reste faible. Toujours dans l'intervalle de 300 à 400 °C, par exemple, PEBD_v25ENT présente une perte de masse de 31 %, alors que PEBD_v25ET présente 36 %. Cet écart de 5 %, soit 0,86 % de la perte de masse de PEBD_v25ET, reste négligeable et permet de conclure que le traitement des fibres n'a pratiquement pas d'influence sur la perte en masse des composites.

On peut déduire de ce faible écart, d'une partie, et de l'ensemble des résultats de ce test ATG, que le traitement chimique appliqué aux fibres n'a pas affecté significativement les constituants biopolymères des fibres. Si tel avait été le cas, la dégradation des fibres aurait présenté des différences notables.

4.1.6 Analyse mécanique dynamique (DMA)

i. Résumé

La conception des pièces et des outils de fabrication et de construction à partir de la combinaison de ressources végétales et de polymères thermoplastiques, dans le but d'obtenir un produit solide et durable dans le temps, a pris de l'ampleur récemment. Pour certains, il est nécessaire de développer des matériaux composites afin de substituer les matériaux conventionnels fabriqués à partir de fibres de carbone, de verre ou d'aramide, en raison de leurs coûts de fabrication élevés, de la difficulté de leur recyclage et de leur caractère non renouvelable.

Cependant, les fibres du bois se présentent comme des alternatives concurrentes en raison de leur avantage économique, de leur caractère renouvelable et de leur recyclabilité plus simple. L'objectif de cette section est d'étudier les propriétés liées à l'analyse mécanique dynamique (DMA). Des fréquences de 1 Hz et 20 Hz ont été utilisées sur une plage de températures comprises entre 0 et 120 °C. Les modules de stockage E' et de perte E'' ainsi que le facteur d'amortissement ont été analysés et commentés. On remarque que plus le taux de fibres augment, plus le module de stockage E' s'améliore pour les fibres traitées.

Le facteur de proportionnalité permettant de prédire le comportement des matériaux quant à leur caractère rigide, a été discuté ainsi que d'autres paramètres intrinsèques.

ii. Analyse et discussion des résultats de DMA

La Figure 4.9 et la Figure 4.10 présentent respectivement les courbes de variation du module de conservation et de perte ainsi que le facteur d'amortissement aux fréquences 1Hz et 20 Hz. L'amortissement présente un caractère dépendant de la fréquence et ceci à cause du comportement visqueux du thermoplastique PEBD. Ce comportement est en accord avec celui obtenu par Ropers et al. [241].

En effet, pour les deux fréquences et quel que soit le taux, que la fibre soit traitée ou non, le module de conservation diminue en fonction de la température. Cela signifie que le matériau perd sa résistance lorsque la température augmente de manière exponentielle. Comme nous l'avons expliqué précédemment dans la section 4.1.5, il est du même ordre d'idée que la mobilité des chaînes moléculaires est fortement influencée par la température, notamment dans le cas des composites à matrice thermoplastique. De nombreux travaux de recherche ont mis en évidence ce comportement des composites [78-219-221-222].

En considérant les deux fréquences, on note une augmentation du module de stockage E' des composites par rapport au PEBD vierge, celle-ci devient significative lorsque le taux de fibres augmente. On observe une différence du module E' comprise entre 50MPa et 100MPa pour tous les échantillons en comparant les deux fréquences 1Hz et 20Hz. Cela veut dire que la fréquence a un effet sur le module de conservation des composites. Plus précisément, selon la théorie des matériaux viscoélastiques décrite dans la littérature, à faible fréquence, les matériaux tendent à se comporter comme un fluide visqueux ou un solide souple, diminuant ainsi leur module de stockage E' . En revanche, à haute fréquence, la sollicitation étant plus rapide, les chaînes moléculaires n'ont pas le temps nécessaire pour se réarranger ; par conséquent, elles se comportent comme des matériaux rigides. C'est ce qui est observé dans notre cas. Le module de perte caractérise le comportement visqueux des matériaux. Pour les deux fréquences et dans l'intervalle de température compris entre 0 et 120°C le module de perte diminue lorsque la température augmente, mais il augmente

avec le taux de fibre par rapport au PEBD vierge. Ce comportement du module est corroboré avec les travaux de Ndlovu et al. [242], Mijiyawa et al [77], Lai et al.[223-224].

Par ailleurs, quelle que soit la fréquence (1 Hz ou 20 Hz), le taux d'amortissement augmente avec l'élévation de la température. En revanche, ce taux diminue lorsque la fraction massive de fibres augmente. Ce comportement peut s'expliquer par la faible mobilité des chaînes moléculaires du PEBD au sein du renfort. Ces résultats concordent avec ceux obtenus et expliqués par les auteurs Mijiyawa et al. [77] ayant employé le PEHD avec les fibres de bouleau et de tremble; Ndlovu et al. [242] qui ont utilisé le PEBD avec la farine de bois. Le passage de l'état rigide à l'état ductile et caoutchouteux des matériaux est théoriquement marqué par la température de transition vitreuse de la phase amorphe des matériaux semi-cristallins. En effet, on a observé un petit pic faiblement détectable entre 0 et 5 °C, qui correspond probablement à la fin d'un phénomène ayant débuté en dessous de 0 °C ,et ceci, si la plage d'analyse s'était étendue vers les températures négatives, le phénomène serait plus visible .

En se référant aux travaux de Ndlovu et al. [242], on remarque que ce phénomène apparaît à 5 °C. Les auteurs ont attribué ce phénomène à la relaxation, c'est-à-dire à la transition vitreuse du PEBD. Il a également été constaté que, dans les deux cas de fréquences (1 Hz et 20 Hz), une image nettement visible autour de 120 °C, alors qu'au même moment, les composites ne présentent aucune image à cette température. Il y a donc eu un déplacement du phénomène, c'est-à-dire que les renforts utilisés dans cette étude ont contribué à déplacer la transition vers des températures plus élevées, car l'énergie nécessaire pour amorcer la mobilité des chaînes est plus importante dans ce cas. Ce constat est également fait dans la littérature précisément par les auteurs [225-226]. Un faible taux de dissipation d'énergie par les matériaux est dû à une grande immobilité des édifices moléculaires dans la phase amorphe des composites. Ceux-ci, renforcés de fibres traitées ou non, contribuent à la consolidation des chaînes macromoléculaires, ce qui induit le phénomène d'enchevêtrement des liaisons et empêche le mouvement libre des molécules. Par conséquent, ces effets contribuent à l'augmentation de la transition vitreuse.

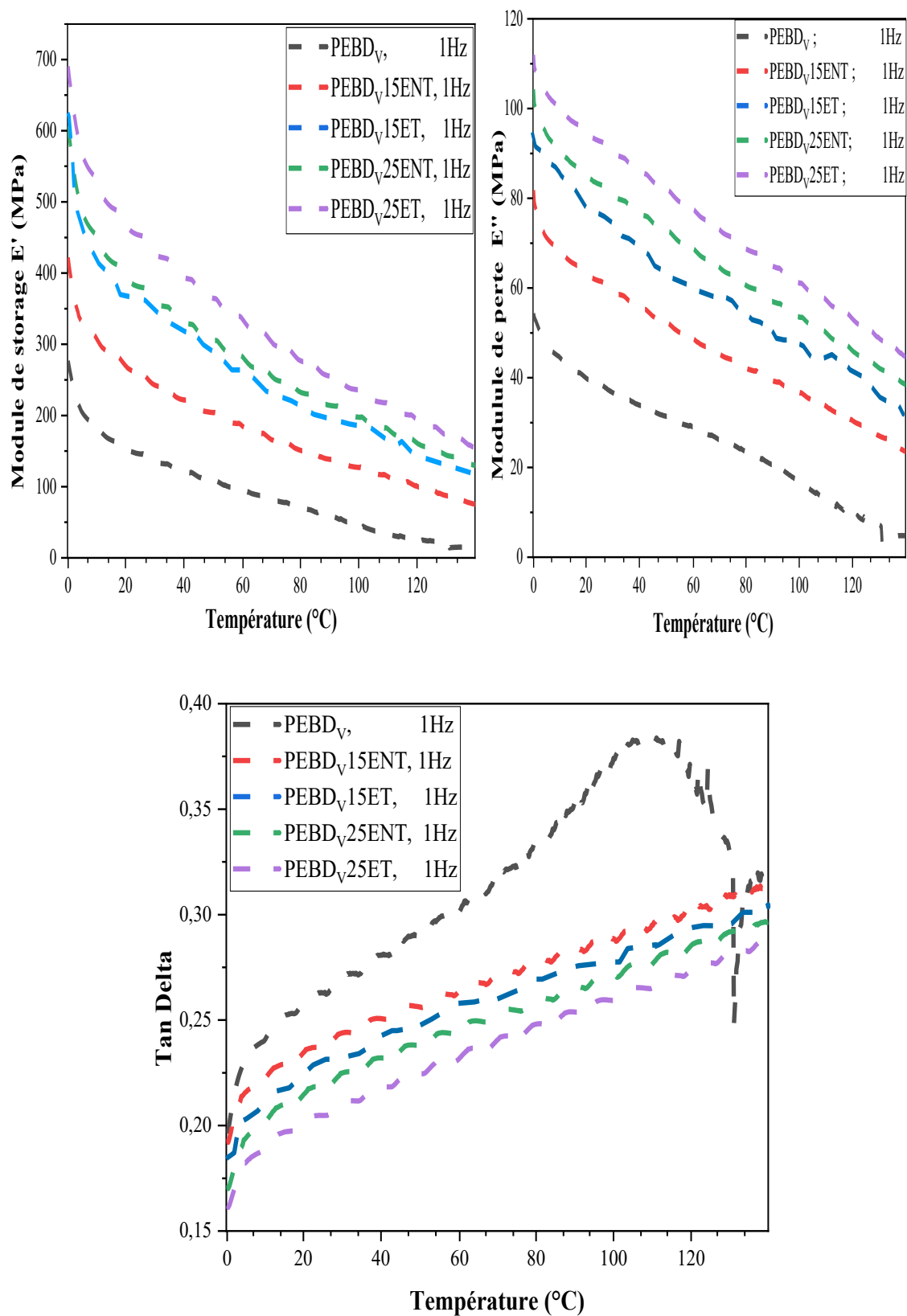


Figure 4.9 Analyse mécanique dynamique : Composantes E' , E'' et $\tan \delta$ à 1 Hz

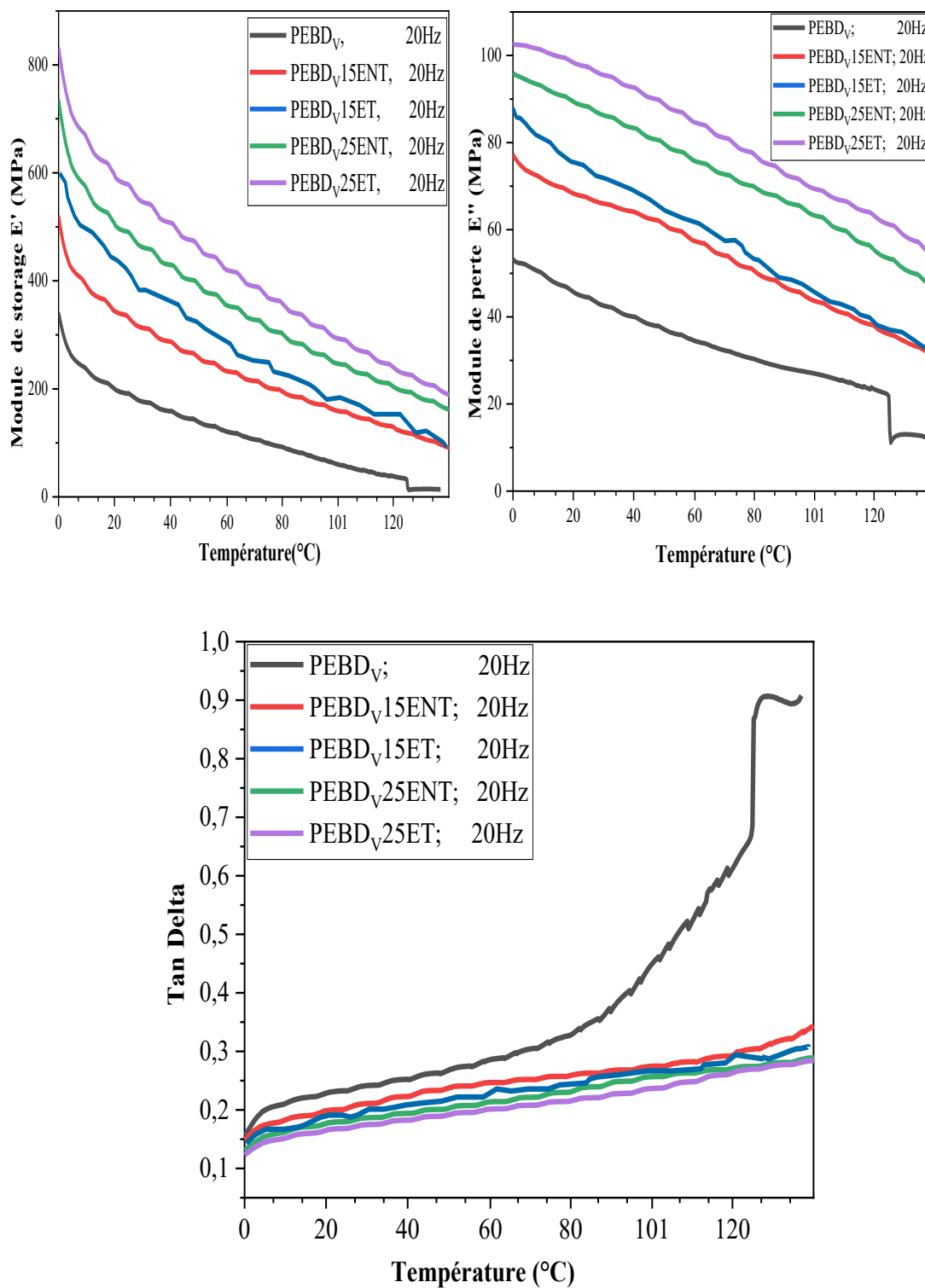


Figure 4.10 Analyse mécanique dynamique : Composantes E' , E'' et $\tan\delta$ à 20 Hz

iii. Module de stockages via facteur de proportionnalité

La **Figure 4.11** présente l'évolution, en fonction de la température, de l'énergie de stockage selon les fréquences étudiées. La différence observée entre les valeurs à 1 Hz et 20 Hz est faible. Bien que cette différence ne soit pas significative, elle n'exclut pas une dépendance de l'énergie de stockage à la fréquence de déformation. En revanche, dans l'intervalle de 0 à 40 °C, on remarque une diminution plus rapide du facteur de proportionnalité pour les composites PEBD_V15ENT, PEBD_V15ET et le PEBD_V à 1 Hz qu'à 20 Hz. Entre 40 et 80 °C, le même comportement est observé, et de 80 à 120 °C, ce comportement persiste, mais cette fois à 1 Hz, les valeurs se rapprochent davantage de zéro que dans le cas de 20 Hz. Une augmentation de la température au-delà de 120 °C favoriserait une chute vers zéro, qui se manifesterait d'abord à 1 Hz. Cela indique qu'à des températures élevées, les composites ainsi que la matrice PEBD deviennent plus visqueux, ne stockant plus d'énergie ; par conséquent, ils perdent leur rigidité et deviennent plus ductiles ou caoutchouteux. Cette information, qui correspond au facteur de proportionnalité de l'énergie de stockage, est essentielle pour prédire le comportement viscoélastique des matériaux tout en déterminant leur rigidité, leur ductilité et leur durabilité. Les travaux de Ropers et al.[241] sont en accord avec les travaux de cette étude.

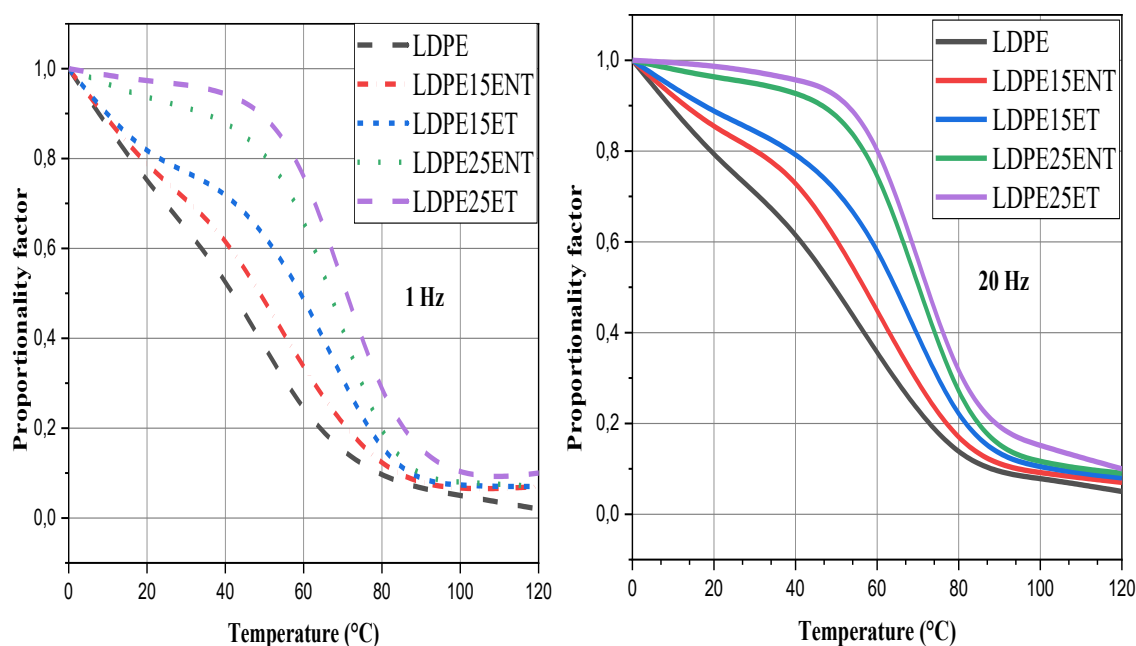


Figure 4.11 Facteur de proportionnalité du module de stockage a 1 Hz et 20 Hz

Par ailleurs, ce facteur de proportionnalité confirme que le taux de fibres influence considérablement l'énergie de conservation lors de la déformation des matériaux ainsi étudiés. Pour les deux fréquences, les composites chargés avec 25 % de fibres présentent un plateau de facteurs de proportionnalité plus élevé que celui des composites chargés avec 15 % de fibres. Cela démontre que les fibres ont joué leur rôle de renfort en consolidant et en renforçant les zones amorphes, qui sont les principaux sites de déformations des matériaux semi-cristallins.

Une variation est également observée en fonction du traitement des fibres. Les composites à fibres présentent un meilleur facteur de proportionnalité que ceux dont les fibres n'ont pas été traitées au NaOH. L'objectif du traitement était de délignifier les fibres afin d'obtenir une cellulose du meilleur taux de cristallinité et de réduire la rugosité des fibres, ce qui améliore leur capacité à s'adhérer à la matrice via l'agent de couplage PE-g-MA. La présence de lignine dans les fibres indique que celle-ci n'a pas été éliminée majoritairement, ou que la rugosité a été le facteur le plus déterminant lors du traitement. Cela constitue un atout pour une bonne liaison entre les éléments constitutifs du composite et, par conséquent, favoriser le déplacement du facteur ductile vers le facteur rigide. En effet, le taux de fibres prévaut sur le traitement quant à l'amélioration des propriétés protégées lors de l'analyse mécanique dynamique de nos matériaux composites.

iv. Diagramme de Cole-Cole

Le diagramme de Cole-Cole (**Figure 4.12**) est une représentation de la courbe maîtresse permettant d'évaluer l'homogénéité des systèmes polymères [187]. Ainsi, si le diagramme se présente sous la forme d'un demi-cercle parfait, le système polymère est considéré comme homogène [188], sinon le système polymère est considéré hétérogène mais possédant une bonne liaison interfaciale.

Cependant, d'après la **Figure 4.12**, on constate que la quantité de fibres dans le polymère PEBDV influence le caractère homogène des composites, au point que, sur les deux diagrammes Cole-Cole (1 Hz et 20 Hz), une évolution semi-circulaire parfaite est observée pour le PEBDV, indiquant que la matrice PEBDV est homogène. L'ajout de fibres selon différentes proportions modifie l'évolution des courbes des composites, effet

particulièrement marqué pour les composites contenant 15 % de fibres (traitées ou non). Par conséquent, ces composites $PEBD_V15ENT$ et $PEBD_V15ET$ sont hétérogènes, car leur courbe E'' (MPa) = $f(E'(MPa))$ est semi-circulaire imparfait.

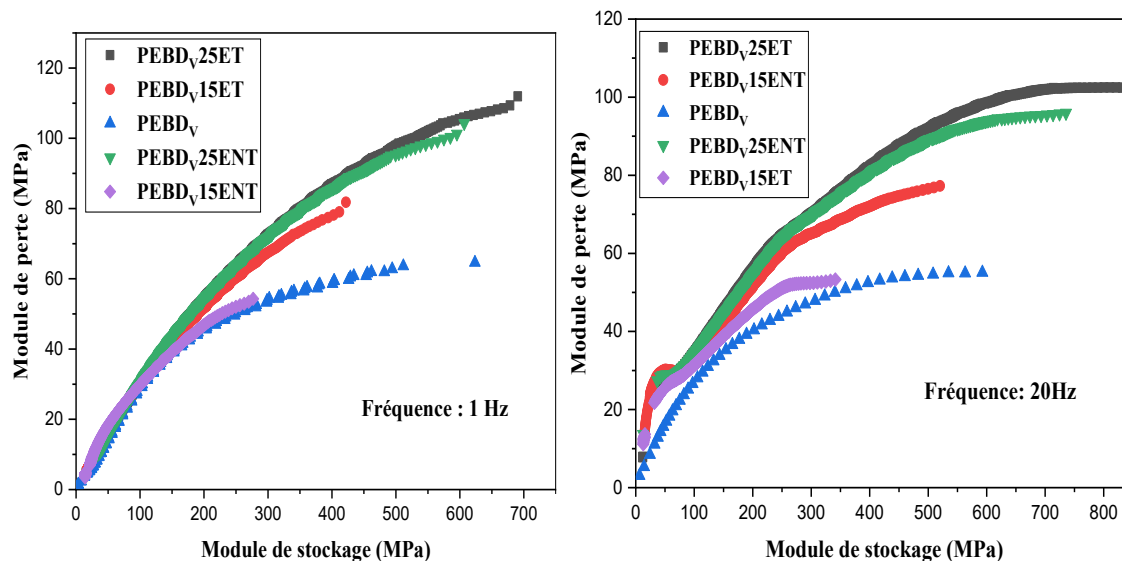


Figure 4.12 Diagramme de Cole-Cole à 1Hz et 20Hz

Au regard de ce qui précède, nous pouvons dire que les matériaux composites à matrice thermoplastique renforcés par les fibres végétales sont d'une grande importance capitale dans plusieurs domaines suffisamment évoqué plus haut. Cependant, la connaissance des propriétés thermiques et mécaniques des constituants est primordiale pour définir le domaine d'application du produit composite. Parmi les recherches visant à choisir les matériaux incluant l'étude de l'énergie de stockage E' de perte E'' , l'amortissement, le facteur de proportionnalité P_i qui est le rapport de l'énergies de stockage $E'(T_i)$ à température T_i par l'énergies de stockage $E'(T_{basse})$ à basse température étudiée, du diagramme cole-cole qui renseigne sur le caractère homogène du système polymère ainsi que d'autres paramètres qui en découle de cette analyse. Le facteur P_i permet de prédire des formes de rigidité ou de ductilité qui sont l'un des facteurs de description de la durabilité des matériaux ainsi étudiés.

Les matériaux composites à matrice thermoplastique renforcée par des fibres végétales revêtent une importance capitale dans de nombreux domaines, comme cela a été évoqué précédemment. Cependant, la connaissance des propriétés thermiques et mécaniques des

constituants est essentielle pour définir le domaine d'application. Les résultats présentés dans cette section ont permis de fabriquer un éco matériau utile qu'est le pavé écologique qui puissent servir à substituer ceux conventionnel fait à base du ciment, du sable et du gravier dont les coûts qui y sont associés sont exorbitants et dont la recyclabilité s'avère couteux, ce qui n'est pas le cas pour les éco-pavés.

4.1.7 Topographie des composites au MEB-EDX

La détermination de la structure du composite est nécessaire pour comprendre son aspect microscopique et pour formuler des observations relatives aux propriétés physico-chimiques et mécaniques du matériau. L'association du MEB et de l'EDX permet également de détecter la présence de certains éléments chimiques dans le composite, renseignant ainsi sur l'état de transformation chimique de celui-ci. Seuls les composites à matrice vierge ont été analysés et présentés dans ce document.

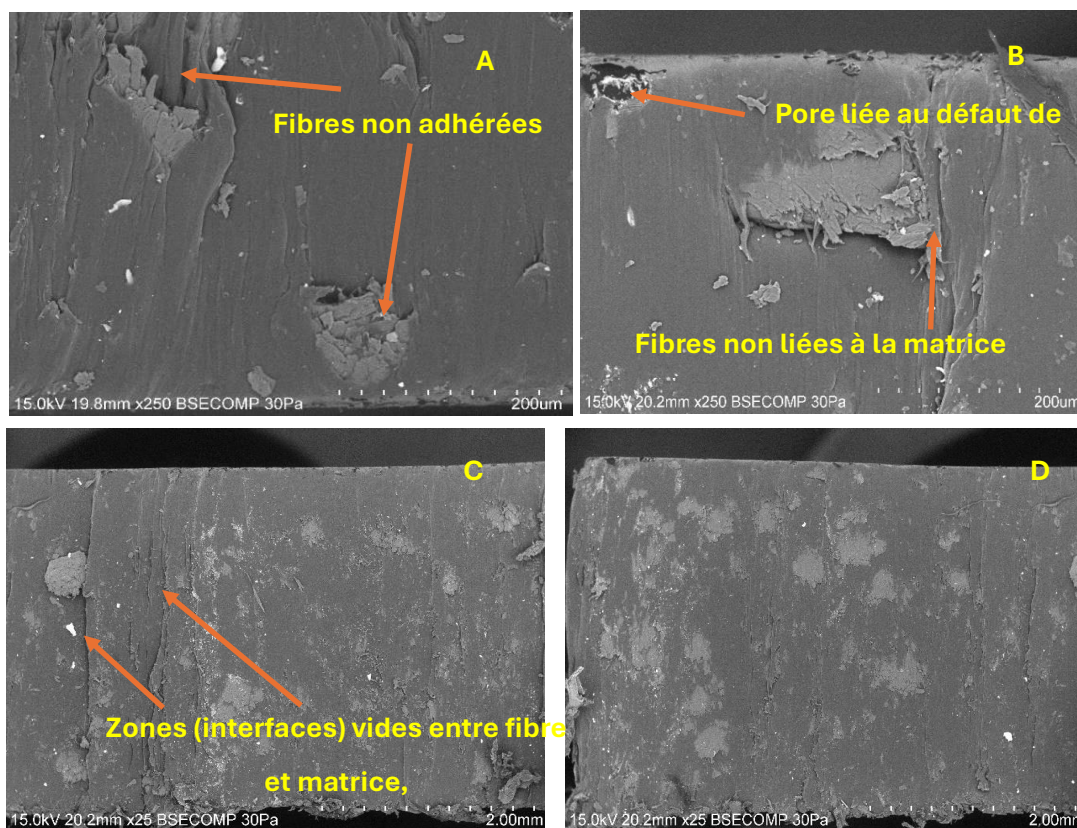


Figure 4.13 MEB: A- PEBDV15ENT; B- PEBDV25ENT; C- PEBDV15ET; D- PEBDV25ET

D'après la [figure 4.13 A, B](#), on observe la présence de nombreux défauts localisés entre les fibres et la matrice. En revanche, la [figure 4.13 C](#) montre également des défauts, mais de nature différente. Ces observations sont similaires sur les topographies des quatre zones distinctes (correspondant à des sections égales de chaque éprouvette) analysées pour chacune des quatre formulations. Les défauts peuvent être attribués soit à une mauvaise homogénéisation entre les fibres et la matrice, soit à une adhésion insuffisante entre les éléments du composite, ou encore à une quantité insuffisante de fibres pour remplir entièrement la matrice, ce qui explique le caractère hétérogène de ces composites (PEBD_v15ENT, PEBD_v25ENT, PEBD_v15ET).

Le diagramme de Cole-Cole, discuté précédemment dans la section sur le DMA, corrobore cette hétérogénéité de certains composites, qui présente une géométrie semi-circulaire imparfaite contrairement au polymère PEBDV pur. En effet, les résultats de résilience, soutenus par la présence des défauts que nous avons hypothéqués, sont confirmés. Contrairement, la [figure 4.13 D](#), ne présente pas de défaut majeur. Cela est une preuve de l'homogénéité de ces types de composite (PEBD_v25ET), ce qui est en accord avec le diagramme de cole-cole.

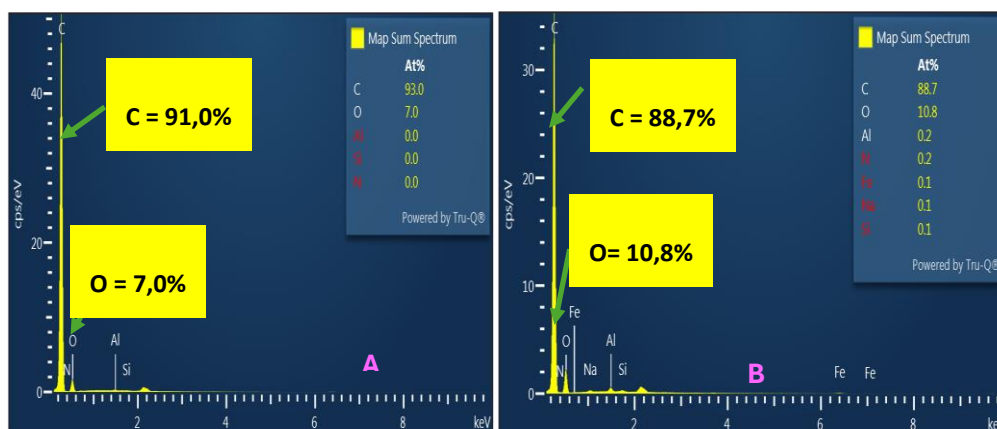


Figure 4.14 Analyse EDX des composites : A- PEBD_v15ENT; B- PEBD_v15ET

L'EDX ([figure 4.14](#)) de ces composites montre que le traitement des fibres a entraîné une modification de la composition chimique des constituants des fibres et du matériau composite lui-même. Une diminution de 4,85 % du carbone et une augmentation d'environ 54,28 % de l'oxygène ont été enregistrées. Cette variation, caractérisée par une diminution

du carbone et un gain en oxygène, peut résulter d'une élimination partielle des hémicelluloses et de la lignine, lesquelles sont riches en atomes de carbone. Par ailleurs, le traitement nettoie la fibre en éliminant les impuretés et les cires naturelles, ce qui entraîne l'exposition de la structure cellulosique sous-jacente, intrinsèquement oxygénée. La densité en groupements hydroxyle (-OH) augmente dans ce cas, car les potentielles liaisons hydrogène intra- et inter-chaînes peuvent se rompre et libérer en surface des groupements hydroxyle auparavant engagés. De plus, nous avons précisé ci-dessus, et d'après la littérature, qu'aucun élément de la solution alcaline de NaOH n'entre en réaction avec le groupement -OH de la cellulose. Au contraire, le rôle de cette solution alcaline est, dans un premier temps, de délignifier la fibre afin de lui permettre d'acquies un caractère plus cristallin, en passant de la cellulose I (amorphe) à la cellulose II (cristalline), puis de débarrasser la fibre des impuretés et de tout autre élément (par exemple les minéraux) sensible à cette solution. Par conséquent, les 0,1 % de Na présents dans les fibres correspondent à une trace de cet élément qui n'a pas été éliminée lors du rinçage. La présence d'autres éléments, tels que l'aluminium et l'azote, pourrait provenir des minéraux absorbés lors de la croissance de la plante ou de la solution alcaline.

4.1.8 Analyse spectroscopique FTIR-ATR

L'analyse au spectroscopie IR à transformée de Fourier est réalisée sur trois différents échantillons. Les résultats sont présentés dans la Figure 4.15 et la Figure 4.16.

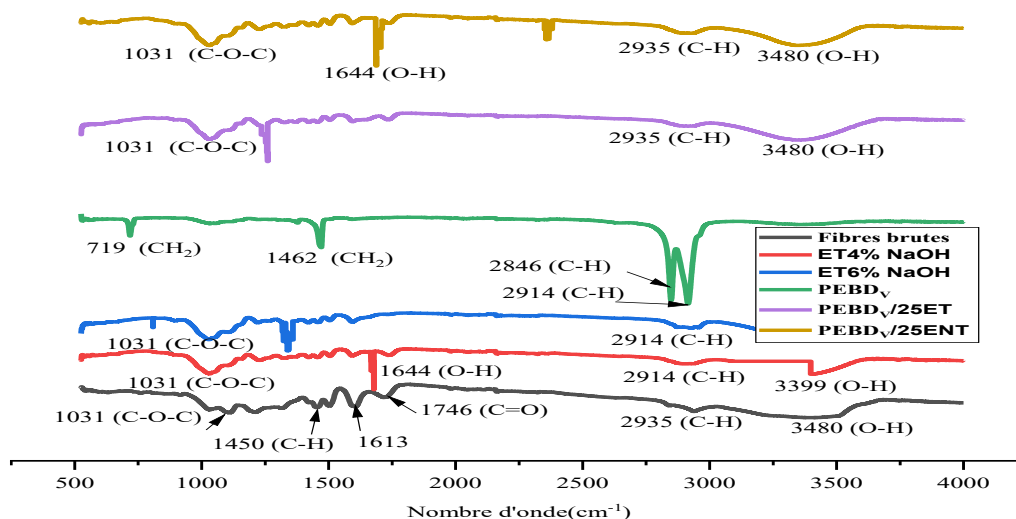


Figure 4.15 FTIR-ATR de quelques échantillons de fibres traitées et de composites

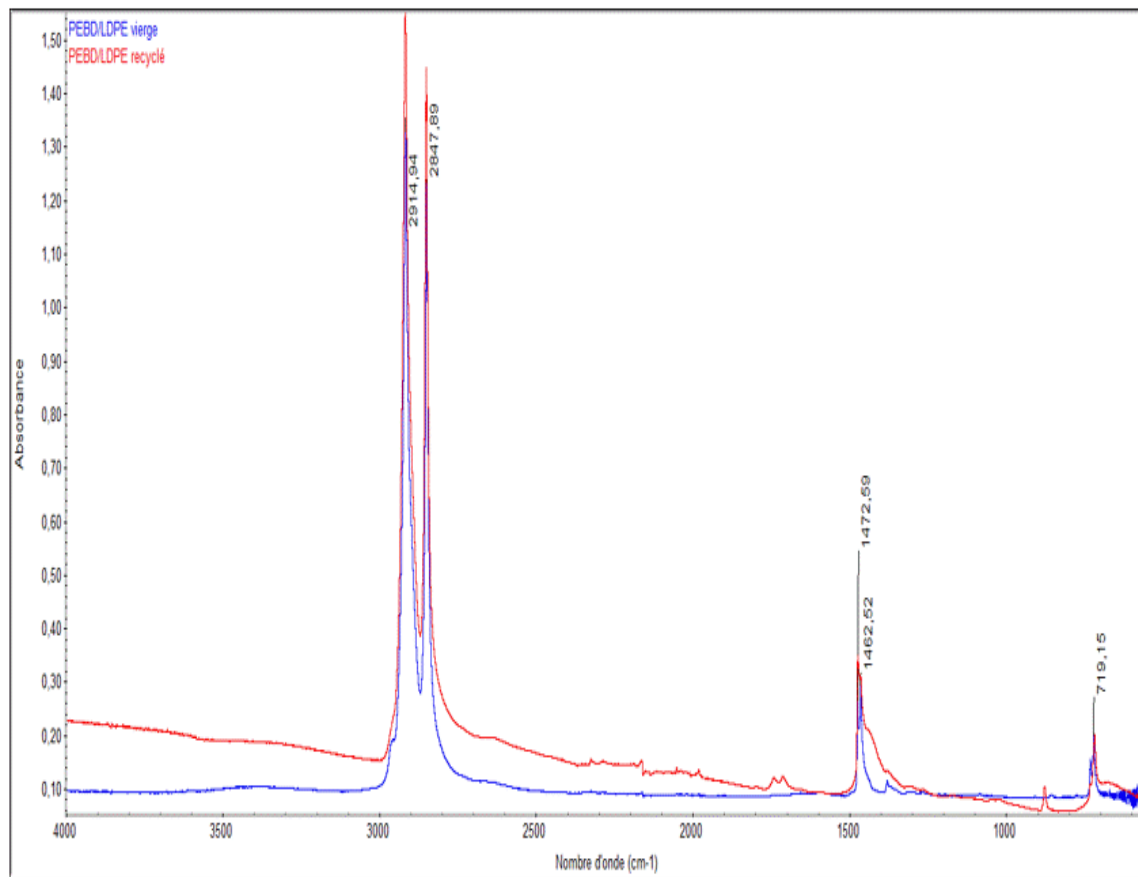


Figure 4.16 FTIR-ATR de PEBD vierge et recyclé

La vibration des groupes C–O, caractérisés par la longueur d'onde 1031 cm^{-1} , correspondent à la cellulose et à l'hémicellulose [249].

Les pics correspondant aux longueurs d'ondes comprises entre 2846 cm^{-1} et 2935 cm^{-1} expriment la vibration et l'élongation asymétrique des liaisons C–H du groupe CH_2 . Ces pics sont plus visibles et bien distincts pour les deux types de PEBD (**Figure 4.16**). Ce qui est confirmé par les travaux de Hamzah et al.[250]. Pour les deux composites PEBD_v25ET et PEBD_v25ENT, le pic comprend entre 3399 cm^{-1} et 3480 cm^{-1} correspondent à la vibration des groupes OH. Ce pic, beaucoup plus grand que pointu, indique la présence de OH liés aux alcools [251]. Le groupement C=O est caractérisé par le pic à 1746 cm^{-1} [201].

Les pics de longueur d'onde compris entre 1050 cm^{-1} et 1450 cm^{-1} correspondent à l'élongation de C–O [252]. La présence du groupement OH à 1644 cm^{-1} est spécifique pour la molécule d'eau [201]. Ce qui montre que ces composites absorbent l'humidité lorsqu'ils

sont mal conditionnés. C'est le cas de PEBD_v25ENT. De tout ce qui précède, il convient de noter que les fibres ayant subi un traitement ont perdu certains groupements fonctionnels pour en créer de nouveaux. Par conséquent, les équations de réaction susceptibles de s'établir entre les différents constituants du composite, telles que décrites précédemment, sont vérifiées. Cela confirme notre hypothèse selon laquelle l'hydroxyde de sodium, par l'intermédiaire de l'élément sodium, n'établirait pas de liaison avec la cellulose.

4.1.9 Analyse aux diffractions des rayons X (DRX)

L'analyse de la Figure 4.17 met en évidence trois zones de pics présentant des intensités et des angles de Bragg différents. Les deux premières photos sont particulièrement intéressantes dans cette étude, car elles correspondent aux plans cristallographiques (110 et 200) et aux angles de Bragg caractéristiques de la cellulose [233-234-235-236].

Dans le premier (I_{am}), correspondant à la partie amorphe de la cellulose, les fibres traitées avec 6% m/v de NaOH ont un pic dont l'intensité est faible mais avec une base large contrairement au pic des fibres traitées avec 4% m/v de NaOH. Aussi, deux pics d'intensité semblable mais de base différente sont obtenus pour les fibres non traitées.

Les angles de Bragg de $15,72^\circ$ et $16,99^\circ$, ainsi que le doublet $15,24^\circ$ et $17,12^\circ$, correspondent respectivement aux fibres traitées avec 6 % m/v de NaOH, au composite PEBD_v15ENT et aux fibres non traitées. Ces valeurs encadrent et sont en corrélation avec celles trouvées par Bouhamed et al.[257], soit $14,88^\circ$ pour le bois d'olive non traitée et $16,09^\circ$ pour le bois d'olive traitée.

La seconde zone de pic (I_{200}), caractérise la présence de la cellulose cristalline. Les pics sont de même nature que dans le cas de I_{am} mais, l'intensité est plus élevée au niveau des fibres traitées avec 6% m/v de NaOH. Cependant, on note des angles de Bragg $22,72^\circ$; $23,08^\circ$; respectivement pour les fibres traitées avec 6% m/v de NaOH et pour les fibres non traitées.

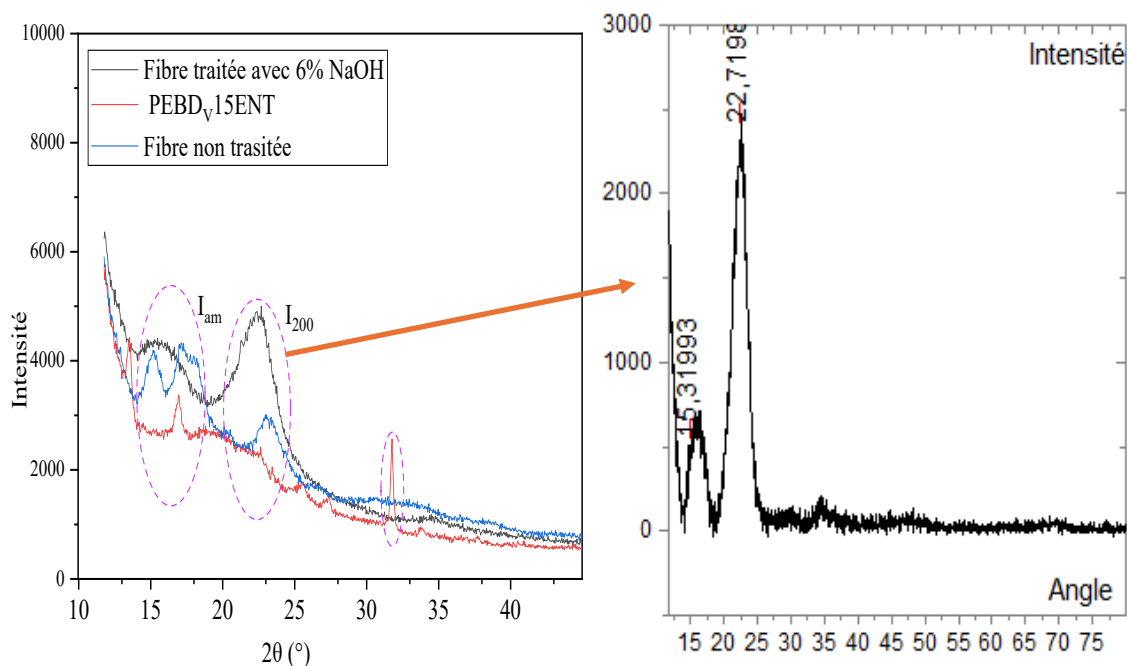


Figure 4.17 Diffractogramme aux rayons X des fibres traitées ou non

Il est possible d'évaluer le degré de cristallinité des fibres de plusieurs manières. La méthode la plus simple et largement utilisée dans la littérature est celle de Segal et al.[258]. Dans cette approche, il s'agit d'utiliser l'intensité des rayons et non celle intégrée des images de diffraction. L'expression est donnée par la formule suivante:

$$C_r I = \frac{I_{002} - I_{am}}{I_{002}} \times 100 \quad 4.4$$

I_{200} correspondant à l'intensité du pic le plus intense, dont l'angle de Bragg est compris entre $22,5^\circ$ et 23° , caractérisant la cellulose cristalline, tandis que I_{am} , représente l'intensité minimale du pic, située à environ 18° . I_{200} prend en compte les deux formes de cellulose (amorphe et cristalline), ce qui signifie qu'il existe une contribution de la cellulose amorphe dans le pic 200, contrairement aux pics 110, caractéristiques de la cellulose amorphe, pour lesquelles le pic est maximal. En adoptant, l'intégration de l'aire de chaque pic entier, et après calcul de l'aire du motif total, le degré de cristallinité est calculé pour chaque représentation du graphe 4.17 selon la formule 4.5 suivante :

$$I_C = \frac{\text{Aire des pics cristalin}}{\text{Aire totale des motifs}} \times 100 \quad 4.5$$

Il est de 56%, 41% et de 38% pour les fibres traitées avec 6% NaOH, les fibres non traitées et le composites PEBD_V15ENT respectivement. La contribution du PEBD semi-cristallin a fait que le taux de cristallinité du composite a chuté.

4.2 Partie 2. Vieillessement hydrique et hydrothermique

4.2.1 Cinétique d'absorption et de désorption d'eau des composites

4.2.1.1 Facteurs influençant les caractéristiques de la diffusion

Les matériaux composites ont été soumis à un vieillissement hydrothermique afin d'évaluer leur capacité à absorber l'eau. Les températures du milieu hydrique étaient fixées à 23; 50 et 75 °C. Ces valeurs ont été choisies pour se rapprocher des conditions environnementales réelles. Les échantillons ont été préalablement conditionnés dans un dessiccateur après formulation, afin d'éviter tout contact direct avec l'humidité ambiante. Le [tableau 4.13](#) présente le taux d'humidité résiduelle des différents échantillons après formulation.

Tableau 4.13 Humidité relative des bio-composites

Composites	Humidité résiduaire (%)
PEBD _V	-
PEBD _R	-
PEBD _V 15ENT	0,08 ± 0,02
PEBD _V 25ENT	0,17 ± 0,01
PEBD _V 15ET	0,06 ± 0,01
PEBD _V 25ET	0,12 ± 0,01
PEBD _R 15ENT	0,07 ± 0,02
PEBD _R 25ENT	0,15 ± 0,01
PEBD _R 15ET	0,07 ± 0,01
PEBD _R 25ET	0,13 ± 0,02

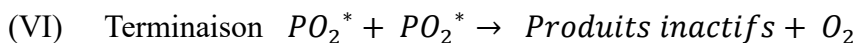
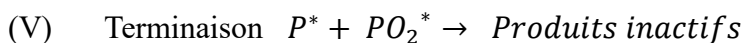
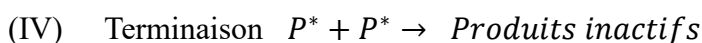
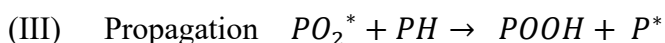
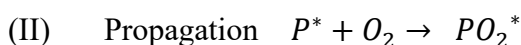
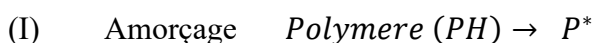
La prise d'eau a été évaluée par la formule dont l'expression est la suivante :

$$M = \frac{m_t - m_0}{m_0} \times 100 \quad 4.5$$

Avec m_t et m_0 respectivement les masses à l'instant d'absorption et anhydre avant l'absorption. La Figure 4.19 présente l'évolution de la prise de masse des composites en fonction de la durée, à différentes températures : 23 °C, 50 °C et 75 °C. On constate, pour les différentes représentations, qu'il n'y a pas de prise de masse du PEBD. Ce comportement

du polymère vis-à-vis de l'eau est dû à l'absence de groupements ayant une affinité avec l'eau. Autrement dit, le caractère hydrophobe du PEBD lui confère ce comportement. À partir de 50 °C du milieu hydrique, on enregistre une faible variation de masse du PEBD. Ces valeurs seraient liées à l'oxydation radicalaire (voir équation) du PEBD. Par ailleurs, certains composites ont atteint l'état d'absorption à l'équilibre et commencent à perdre leur masse après un certain temps. Ce comportement sera expliqué par la suite dans les paragraphes suivants. Le [tableau 4.14](#) et le [tableau 4.15](#) présentent les valeurs maximales à la saturation des composites en fonction de la température et de la durée de saturation. On observe, à travers ces tableaux, que la prise d'humidité des composites dépend davantage de la fraction massique et du traitement des fibres que de la température. En revanche, le temps de saturation en humidité des composites est lié à la température du milieu hydrique. En effet, le caractère diffusif de l'humidité au sein des composite dépend de [259] [260] :

- La fraction massique de fibre;
- Le traitement chimique ou non de fibre;
- La température du milieu hydrique.



Oxydation
radicalaire des
polymères

Tableau 4.14 Masse à saturation des composites PEBD_v/fibre d'eucalyptus

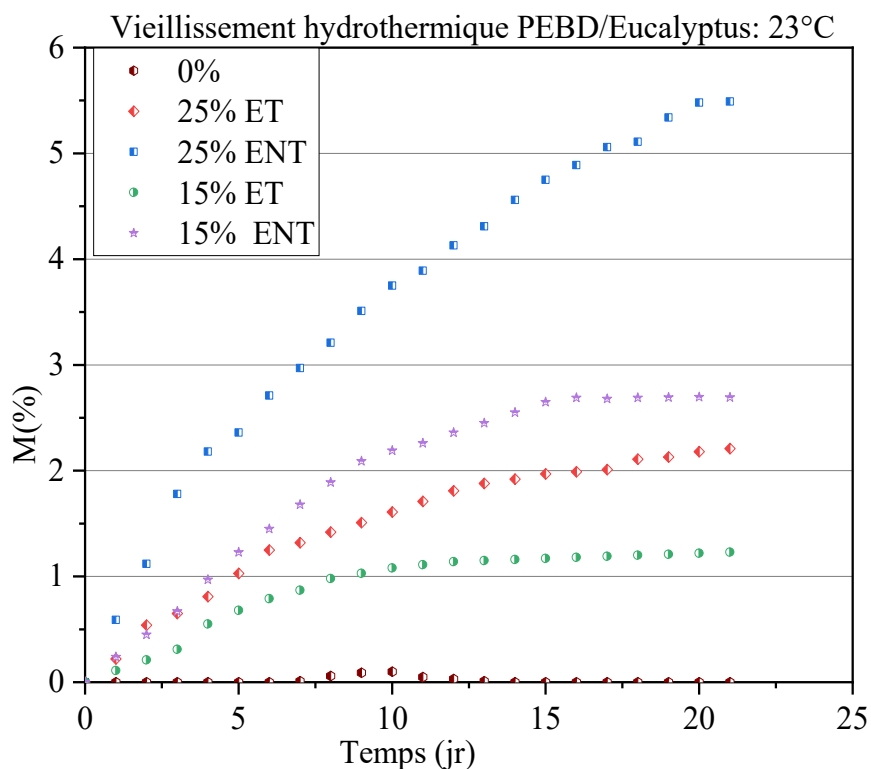
Composite PEBD _v	Température du milieu hydrique et thermo-hydrique					
	23°C		50°C		75°C	
	Temps(jr)	M _s (%)	Temps(jr)	M _s (%)	Temps(jr)	M _s (%)
0%	-	-	8*	0,02±0,001	4*	0,05±0,001
15%ENT	16	2,53±0,5	12	2,51±0,2	11	2,51±0,4
25%ENT	-	-	18	5,48±0,4	10	3,48±0,3
15%ET	14	1,08±0,2	11	1,09±0,1	10	2,46±0,5
25%ET	-	-	11	2,03±0,3	9	2,32±0,2

* date au-delà de laquelle aucune variation n'est obtenue, et avant laquelle pas d'absorption

Tableau 4.15 Masse à saturation des composites PEBD_R/fibre d'eucalyptus

Composite PEBD _R	Température du milieu hydrique et thermo-hydrique					
	23°C		50°C		75°C	
	Temps(jr)	M _s (%)	Temps(jr)	M _s (%)	Temps(jr)	M _s (%)
0%	-	-	10*	0,01±0,001	5*	0,07±0,001
15%ENT	15	3,23±0,2	10	1,51±0,2	9	2,51±0,2
25%ENT	-	-	13	5,18±0,3	7	4,44±0,2
15%ET	17	1,51±0,3	9	1,26±0,2	12	2,23±0,3
25%ET	16	1,97±0,1	12	2,46±0,2	8	3,33±0,2

Par ailleurs, les valeurs de prise de masse des composites contenant 15 % et 25 % de fibres d'eucalyptus ($2,51 \pm 0,2$ et $5,48 \pm 0,4$ respectivement), illustrées à la **Figure 4.19** a et b montrent que la fraction de fibres influence l'absorption d'humidité des composites. Plus la proportion de fibres augmente, plus le composite absorbe les molécules d'eau. Cela s'explique par la présence plus élevée de groupements -OH et -COOH dans le composite contenant 25 % de fibres par rapport à celui contenant 15 % de fibres. Plusieurs travaux de la littérature confirment cette dépendance [145-241-242-243]. Les mêmes observations sont faites pour les composites à matrice de polyéthylène recyclé (Figure 4.20 a et b).

**Figure 4.18 a- Évolution de la teneur en eau des composites PEBD_v/Eucalyptus**

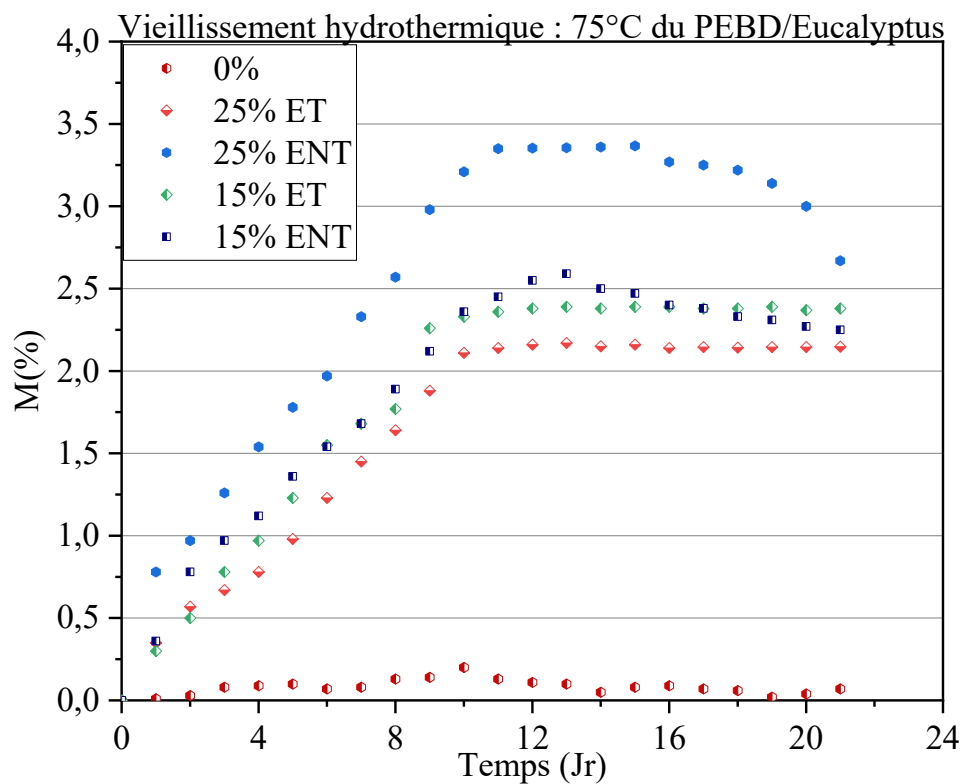
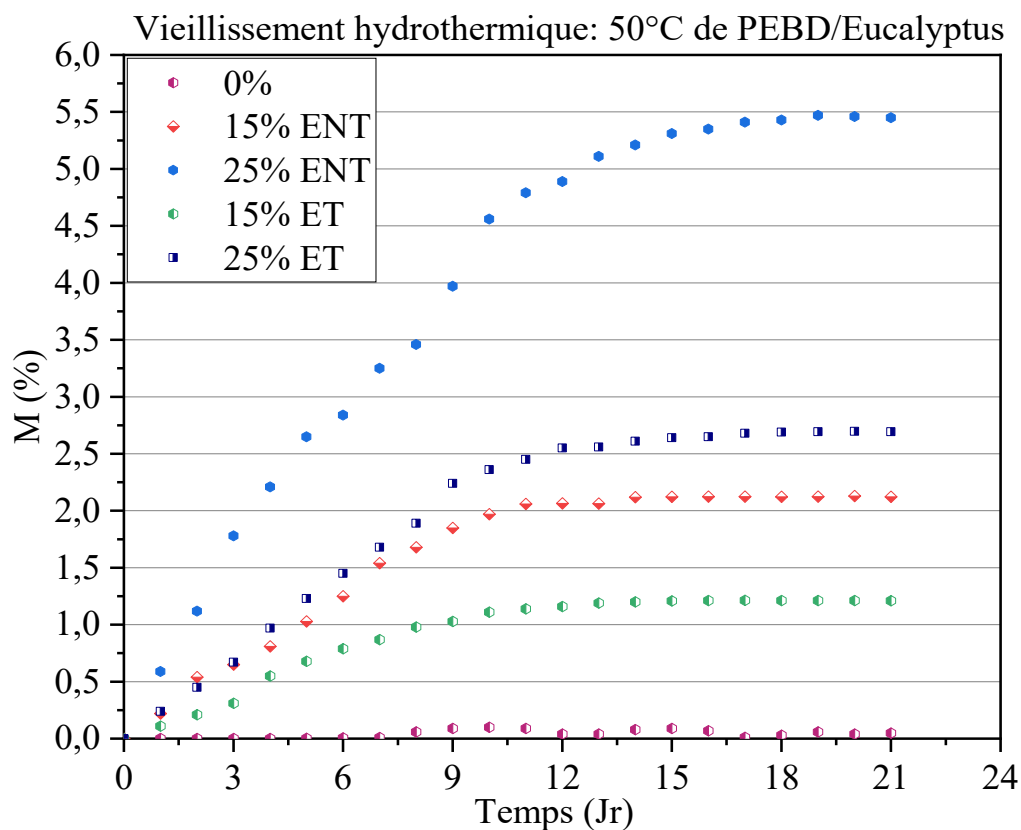


Figure 4.19 b- Évolution de la teneur en eau des composites PEBD_v/Eucalyptus

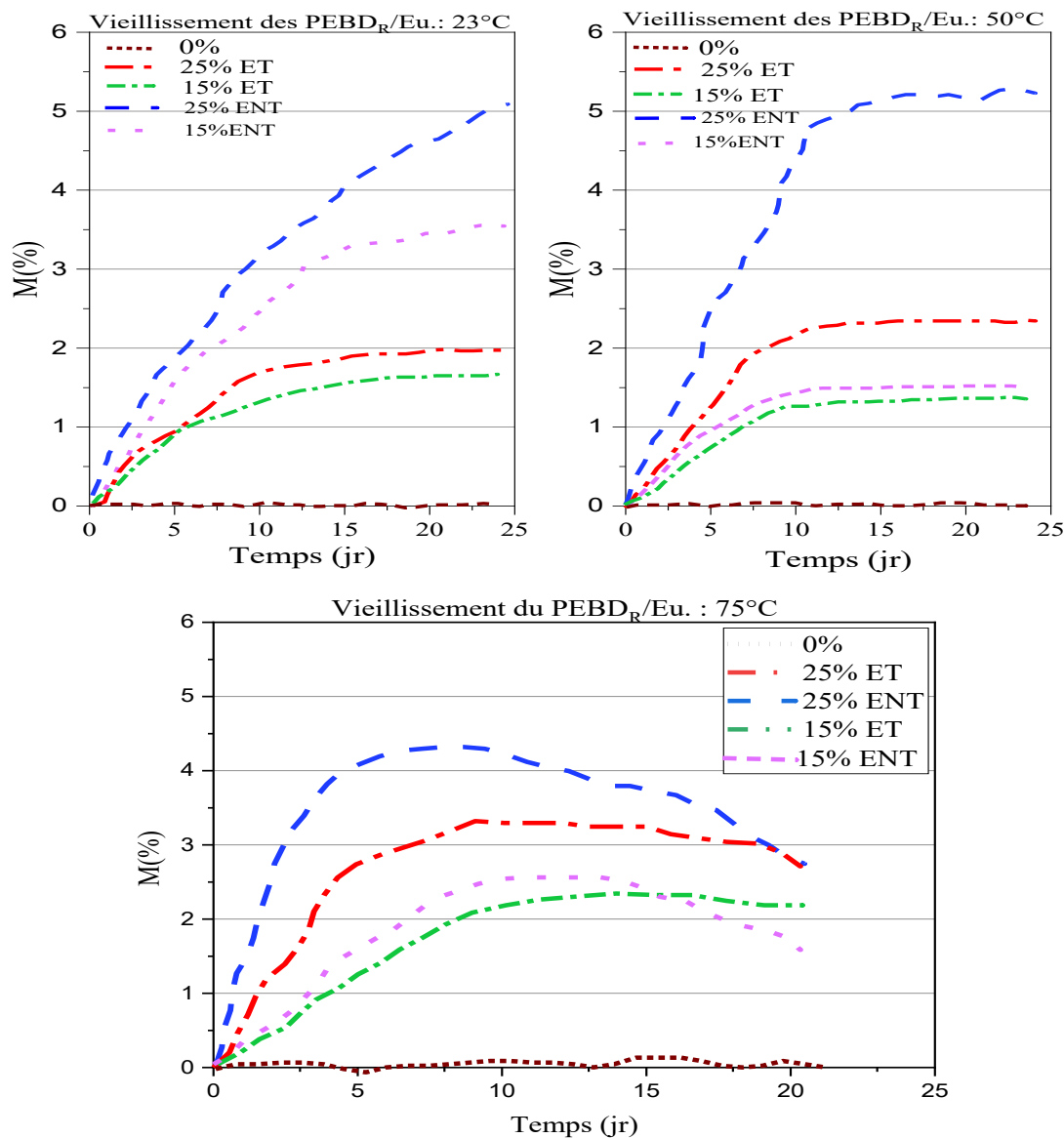


Figure 4.20. Évolution de la teneur en eau des composites PEBDR/Eucalyptus

4.2.1.2 Effet du traitement sur l'absorption d'eau des composites

L'objectif du traitement des fibres naturelles avant leur utilisation dans les composites est de diminuer leur caractère hydrophile et d'éliminer les impuretés susceptibles de faciliter leur absorption d'humidité. Au moins 75 % des articles consultés dans cette partie abordent le traitement chimique des fibres, soit dans le cas de réduire leur rugosité, ou encore augmenter leur caractère hydrophobe. En effet, à 50°C, par exemple ([tableau 4.14](#)), les composites à matrice de PEBD vierge renforcée par 25 % de fibres d'eucalyptus non traitées (ENT) et 25 % de fibres traitées (ET) présentent respectivement une prise de masse en eau

de 5,48 et 2,03 %. Ces résultats montrent que les composites contenant des fibres non traitées absorbent davantage d'eau que ceux renforcés par des fibres traitées. En conclusion, le caractère hydrophile des fibres explique ce comportement : lorsque les fibres sont traitées, on observe une diminution de l'absorption d'eau de 3,45 %. Les travaux de F. Zbidi et al. [264] confirment cette tendance. Le même comportement de réduction du taux d'absorption d'eau est également observé dans le cas des composites à matrice de PEBD recyclé. Les résultats de cette section corroborent avec les résultats de la section sur l'angle de contact où les fibres traitées ont une faible énergie de surface polaire et donc un angle de contact meilleur.

4.2.1.3 Effet de la température sur la prise d'eau des composites

D'après le [tableau 4.14](#), et à 23°C, les composites à matrice PEBD_V renforcés par 25% ENT et 25 %ET ont une absorption quasi linéaire sans abouti à une saturation. Le même comportement d'absorption est observé dans le [tableau 4.14](#) pour les composites à matrice PEBD_R mais, cette fois-ci les composites renforcés de 25%ET ont atteint la saturation. On peut en déduire que la présence du polymère recyclé est responsable de ce phénomène de saturation. Par ailleurs, le [tableau 4.14](#) montre que, pour les mêmes composites PEBD_V renforcés par 25 % de fibres ENT et 25 % de fibres ET, une saturation de 5,48 et 2,03 % est atteinte aux environs du 18^e et du 11^e jour respectivement à 50 °C, puis de 3,48 et 2,32 % aux 10^e et 9^e jours respectivement à 75 °C.

Aussi, le [tableau 4.15](#) présente une évolution similaire : à 50 °C, les composites PEBD_R renforcés par 25 % de fibres ENT et 25 % de fibres ET atteignent la saturation aux 13^e (5,18 %) et 12^e jours (2,46 %) respectivement ; à 75 °C, ces valeurs sont atteintes aux 7^e (4,44 %) et 8^e jour (3,33%) respectivement à 75°C.

De plus, à 75 °C, pour les composites des deux types de matrices (PEBDR et PEBDV), on observe une diminution de la masse des échantillons au cours du vieillissement (Figure 4.19 et Figure 4.20). La température favorise donc deux phénomènes de vieillissement thermo-hydrique dans le cadre de cette étude :

- Saturation rapide des composites;
- Endommagement des composites par perte de la matière.

En effet, la température n'a pas un effet significatif sur le taux d'absorption des composites. Dans les conditions où la température est basse, la prise de masse ainsi que la saturation

dépendent principalement de la durée d'exposition. Cela est confirmé par les Figure 4.19 et Figure 4.20 lorsqu'à 23°C où l'on observe qu'à 23 °C, certains composites continuent d'absorber des molécules d'eau après une longue période d'exposition. En conséquence, afin de mieux comprendre la saturation et le taux d'absorption, il s'avère nécessaire d'évaluer le comportement diffusif du matériau en fonction de la température, afin de mettre en évidence le lien imminent pouvant exister entre ces deux paramètres. Ainsi, dans la suite de notre travail, nous présentons l'effet de la température sur le coefficient de diffusion d'eau des composites qui est perçue comme la vitesse de migration des molécules d'eau au sein du matériau.

4.2.1.4 Facteurs influençant le coefficient de diffusion des composites

Théoriquement, et d'après la littérature, la diffusion d'une molécule au sein d'un matériau est généralement conditionnée par la température du milieu, la nature chimique (édifice moléculaire, cristallinité et liaisons chimiques), ainsi que par la nature physique du matériau (densité, conductivité, convection ou radiation).

Le coefficient de diffusion, ainsi déterminé pour chacun des composites, convient à la seconde loi de Fick relative à la diffusion d'un diffusant dans un matériau supposé isotrope et homogène. Cependant, le coefficient directeur de la partie linéaire de la courbe $M_t/M_s = f(\sqrt{t})$ pour $M_t/M_s \leq 50\%$, fournit les valeurs du coefficient de diffusion présenté dans le [tableau 4.16](#). Pour l'ensemble des composites de PEBD_V, la durée de prise de masse à la saturation est comprise entre 8 et 18 jours à 50 °C, et entre 4 et 11 jours à 75 °C. Quant aux composites de PEBD_R, cette durée varie entre 9 et 13 jours à 50 °C, et entre 5 et 13 jours à 75 °C.

Il ressort de ces observations qu'à une température élevée, la saturation est atteinte plus rapidement que lorsque la température est basse. Cela signifie que la température constitue un paramètre influençant la vitesse de migration des molécules d'eau au sein du matériau. On peut affirmer que le milieu du matériau est d'autant plus activé que la température est élevée, ce qui met en évidence le rôle central de l'énergie d'activation. L'analyse succincte des deux [tableau 4.16](#) et [tableau 4.17](#) confirment la saturation rapide en eau des composites de PEBD_R par rapport à ceux de PEBD_V à cause de leur coefficient de diffusion plus élevé et ceci en évoluant de 23°C vers 75°C.

Il a également été constaté que le taux de fibres ainsi que le traitement appliqué influencent la diffusion des molécules d'eau dans les composites. Dans un ordre décroissant, les facteurs influençant la diffusion peuvent être:

- La température du milieu hydrique;
- La fraction des fibres d'eucalyptus;
- Le traitement des fibres d'eucalyptus.

Tableau 4.16 Coefficient de diffusion des différents composites PEBD_V/Eucalyptus

Composites de PEBD _V	Température d'immersion		
	23°C	50°C	75°C
	D (.10 ⁻⁸ mm ² /s)		
0%	-	-	-
15%ENT	6,76	6,89	14,02
25%ENT	-	9,56	25,33
15%ET	1,84	2,96	5,14
25%ET	-	3,63	8,57

Tableau 4.17 Coefficient de diffusion des différents composites PEBD_R/Eucalyptus

Composites de PEBD _R	Température d'immersion		
	23°C	50°C	75°C
	D (.10 ⁻⁸ mm ² /s)		
0%	-	-	-
15%ENT	4,16	8,76	16,02
25%ENT	-	11,16	26,12
15%ET	2,13	6,96	3,59
25%ET	1,87	2,27	11,18

4.2.1.5 Influence du taux de fibre sur le coefficient de diffusion

Pour mieux comprendre l'évolution de la diffusion de l'eau au sein des composites, il est avant tout nécessaire de connaître la vitesse à laquelle cette diffusion progresse. À cet effet, l'absorption a été normalisée (Figure 4.22) en traçant l'évolution du rapport M_t/M_s (masse instantanée/masse à saturation) normalisé en fonction de la racine carrée du temps de vieillissement. Cependant, le taux de fibres exerce une influence significative sur cette vitesse en raison de la présence de groupements hydroxyles et carboxyles dans les biopolymères constitutifs des fibres d'une part, et en raison du fait que les fibres se

comportent comme des pailles pour faire rentrer l'eau dans le composite. Pour l'ensemble des composites, et ce aux trois températures étudiées, on observe une absorption plus importante lorsque le taux de fibres augmente.

À 50 °C, par exemple, les composites de PEBD_V renforcés par 25 % de fibres ENT présentent un M_t/M_s maximal estimé à 1,02 alors que celui de 15%ENT représente 0,42. Tous les composites ont le même comportement. Cet écart important montre que les composites de 25% m/m de fibre absorbent beaucoup d'eau que ceux renforcés par 15% m/m de fibre. Cela est en accord avec [245-246]. Le mécanisme régulant cette absorption d'eau par les fibres est essentiellement de nature chimique. En effet, selon les travaux de Dahkal *et al.* [[267], l'accès des molécules d'eau au sein des composites se fait par migration dans les capillaires à cause des défauts entre les chaînes de polymères et les fibres (défaut à l'interface), aussi, cette accessibilité d'eau est favorisée lorsque les fibres se comportent comme la paille. Ainsi, les molécules d'eau réagissent avec les groupements –OH et –COOH des fibres en établissant des liaisons hydrogène. L'eau joue, en effet, le rôle de plastifiant lorsqu'elle est liée, ce qui entraîne le gonflement du matériau [268], et, par conséquent, une diminution de ses propriétés mécaniques et donc sa performance. L'évolution du coefficient de diffusion de l'ensemble des composites est proportionnelle au taux de fibres, comme l'illustre la figure 4.20 a et b. Ce comportement, observé chez les composites vis-à-vis de leur environnement, a été étudié par plusieurs auteurs [249-250], dont les conclusions sont en accord avec nos résultats.

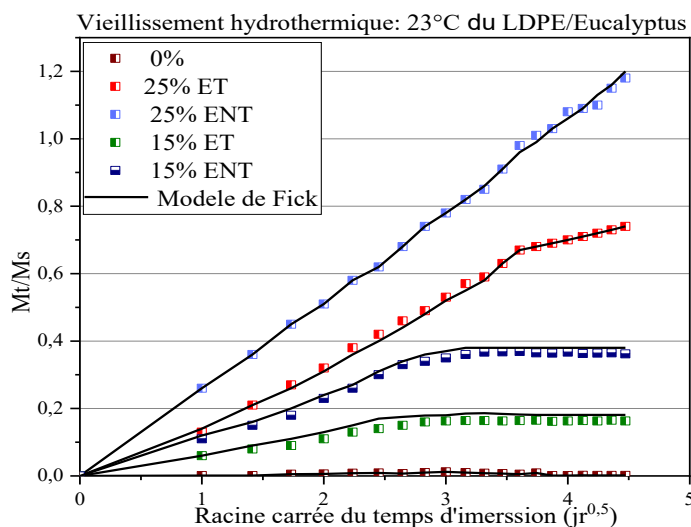


Figure 4.21 a- Prise d'eau des composites

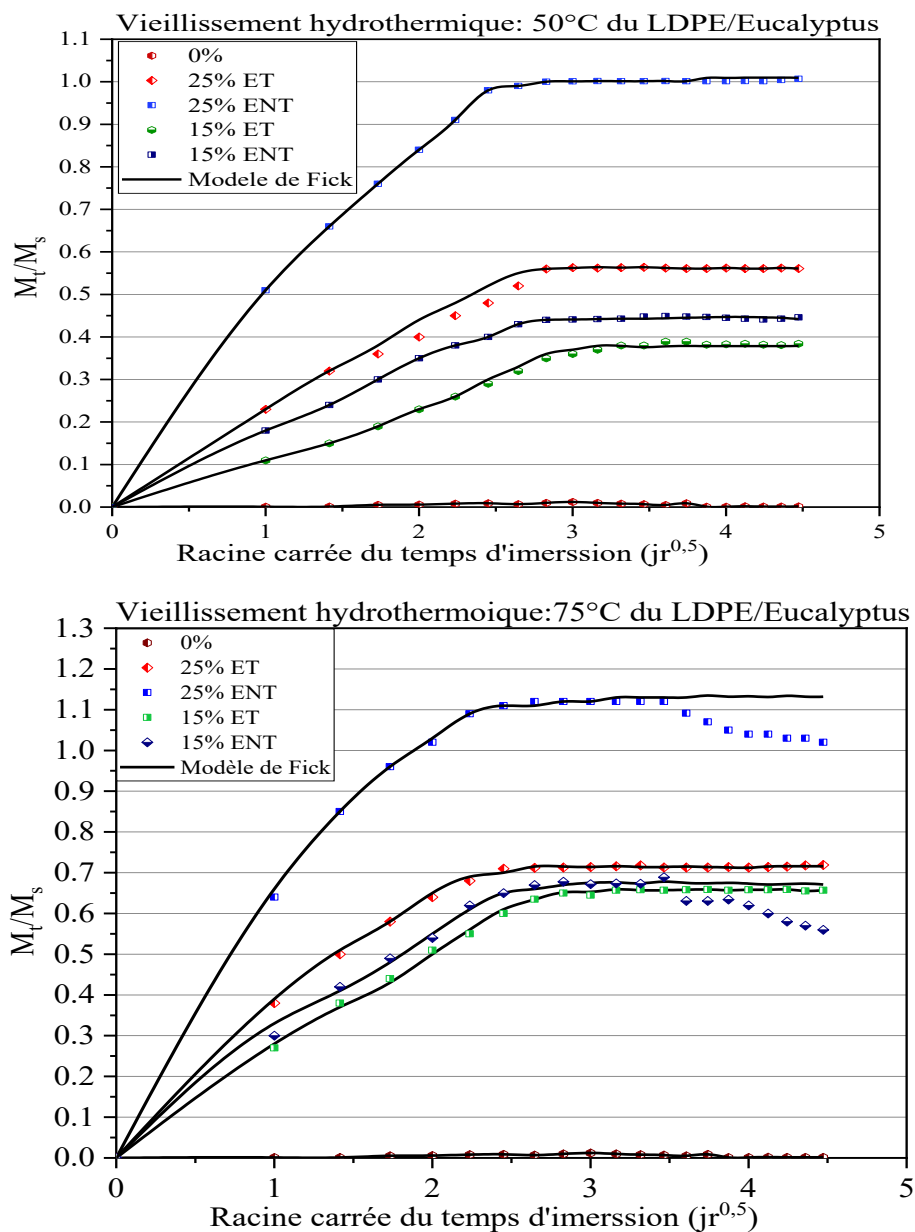


Figure 4.22 b- Prise d'eau des composites

4.2.1.6 Effet de la température d'immersion sur la dégradation du matériau

L'évolution de l'absorption normalisée (**Figure 4.22**) a permis de mettre en évidence un phénomène particulier lors du vieillissement hydrothermique à 75 °C, phénomène qui n'est pas observé à 23 °C ni à 50 °C. Il s'agit d'une perte de masse des composites contenant 25 % ENT et 15 % ENT. Cette perte, survenant respectivement au 14^e et au 16^e jour pour les composites à 25 % et 15 % ENT, traduit une diffusion de type fickien suivie d'une perte de masse du matériau, comme décrit par Weitsman [271].

Cette diminution de masse peut être attribuée à des phénomènes chimiques tels que l'hydrolyse des constituants de la fibre d'eucalyptus et l'oxydation du polymère PEBD. Cela implique que l'élévation de la température favorise l'activation de ces processus. Ce comportement est généralement observé sous des conditions sévères de vieillissement, et les travaux de Mortaigne et al.[272], Belan et al.[273], Tcharkhtchi et al.[274] et Dewimille et al.[275] confirment à suffisance.

4.2.2 Énergie d'activation et du coefficient de diffusion des composites

La Figure 4.23 présente l'évolution du coefficient de diffusion en fonction de la température de vieillissement. En effet, selon les théories relatives aux réactions chimiques et à l'établissement des liaisons chimiques, il en résulte que la migration des molécules d'eau ainsi que la formation de liaisons avec les autres constituants du composite sont généralement initiées par l'énergie d'activation.

Cette énergie d'activation dépend principalement de la température du milieu. La loi d'Arrhenius, utilisée pour la détermination du coefficient de diffusion (équation 4.6) d'une substance diffusante au sein d'un matériau, a permis de calculer l'énergie d'activation de chaque composite lors de sa première absorption d'eau en fonction de la température.

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad 4.6$$

D_0 = indice de perméabilité; E_a = énergie d'activation ($\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$);

T = température; R = constante des gaz ($8,317\cdot 10^{-3} \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$).

Tableau 4.18 Coefficient de diffusion:1ere absorption

Composites PEBD _v	Température du milieu hydrique et thermo-hydrique					
	23°C		50°C		75°C	
	D (mm ² /s)	M _t /M _s	D (mm ² /s)	M _t /M _s	D (mm ² /s)	M _t /M _s
0%	-	-	-	0,002	-	0,002
15% ENT	6,76.10 ⁻⁸	0,39	8,89.10 ⁻⁸	0,45	14,02.10 ⁻⁸	0,68
25% ENT	-	1,19	9,56.10 ⁻⁸	1,01	25,33.10 ⁻⁸	1,12
15% ET	1,84.10 ⁻⁸	0,19	2,96.10 ⁻⁸	0,39	5,14.10 ⁻⁸	0,65
25% ET	-	0,78	3,63.10 ⁻⁸	0,58	8,57.10 ⁻⁸	0,71

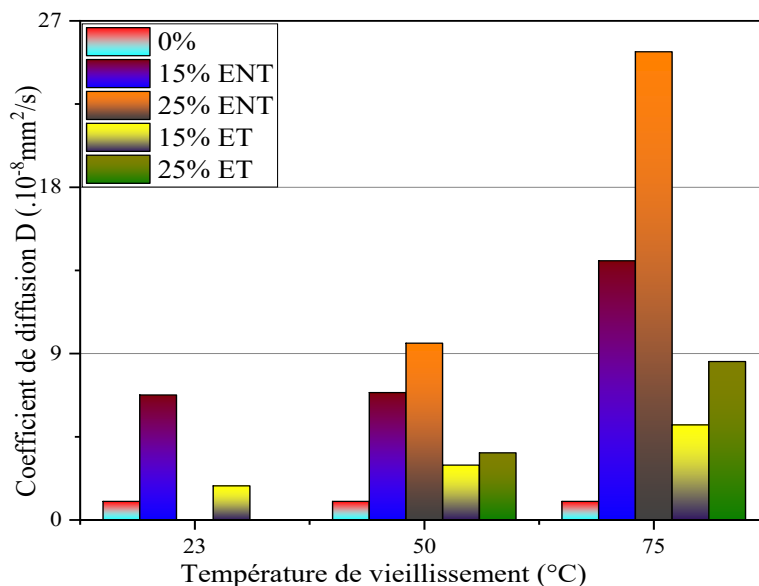


Figure 4.23 Évolution du coefficient de diffusion des composites PEBDV/Eucalyptus

La [figure 4.24](#) est la représentation de la fonction $\ln(D)$ par rapport à l'inverse de la température. Ce graphe a permis de déterminer l'énergie d'activation des matériaux ([figure 4.23](#)) permettant de comprendre leur influence sur le caractère diffusif d'eau des matériaux ainsi formulés. Les tableaux 4.19 et 4.20 présentent les valeurs de l'énergie d'activation à trois valeurs près.

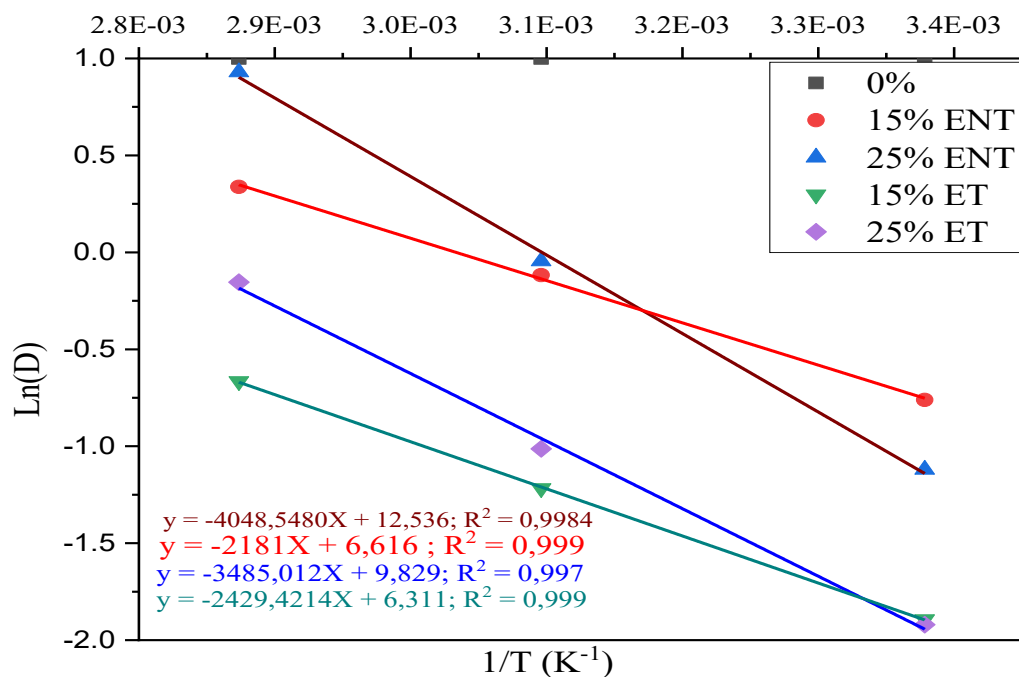


Figure 4.24 a- Détermination de l'énergie d'activation : absorption

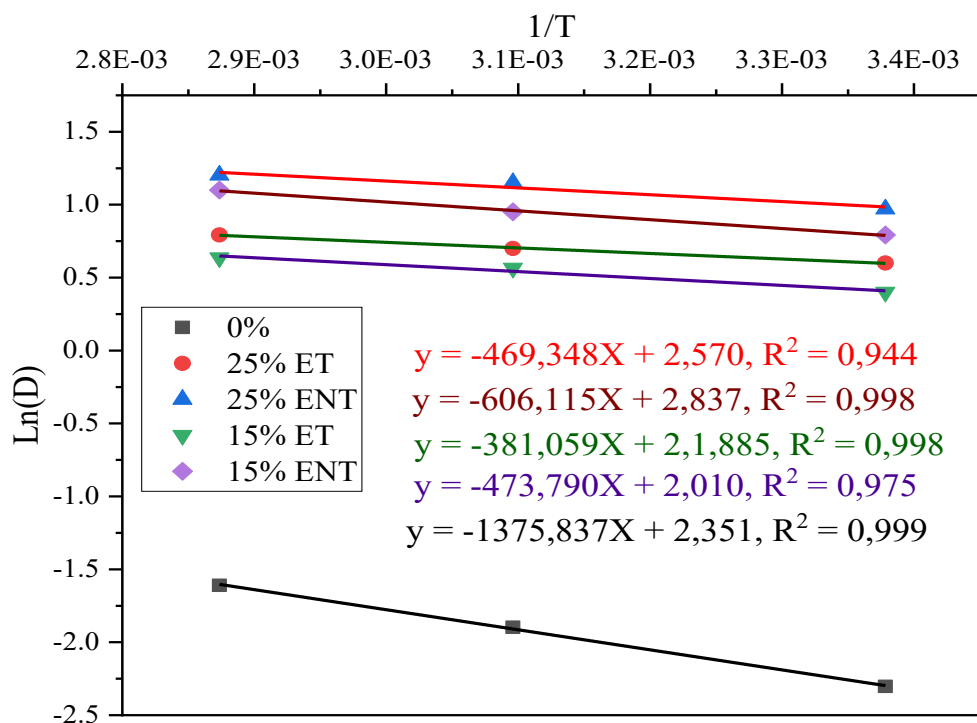


Figure 4.25 b-Détermination de l'énergie d'activation : réabsorption

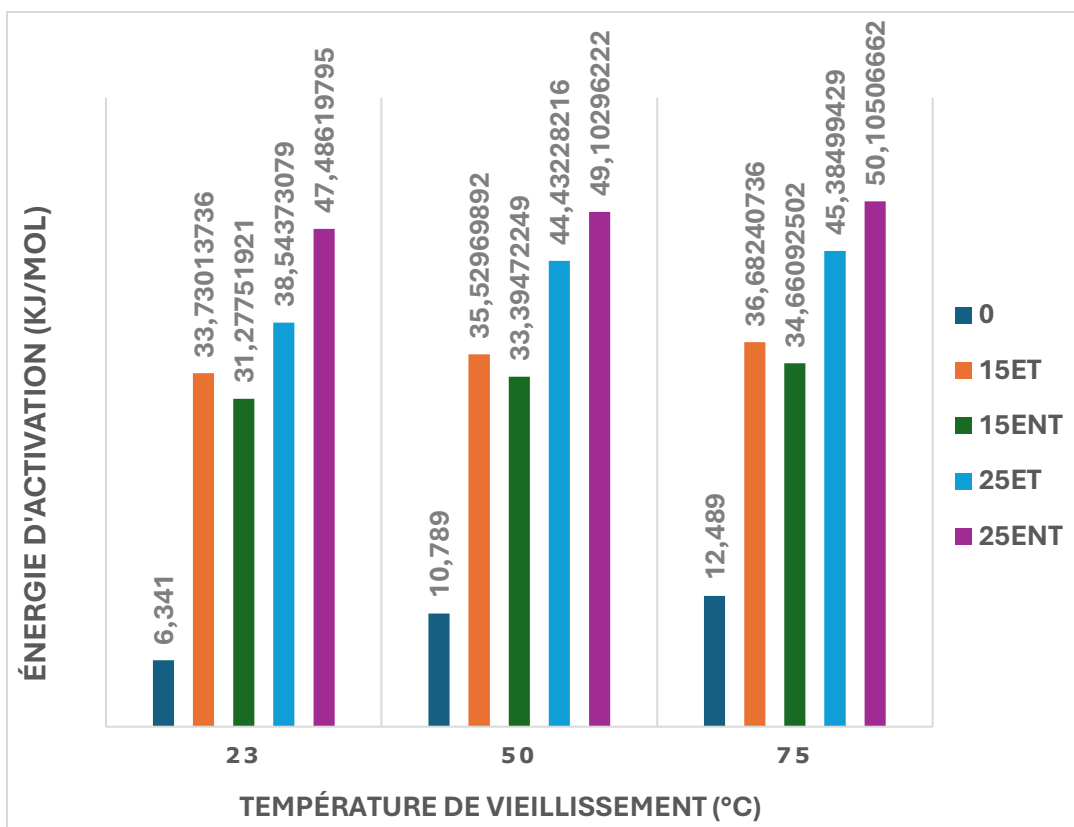


Figure 4.26 A- Énergie d'activation: absorption; B- la réabsorption

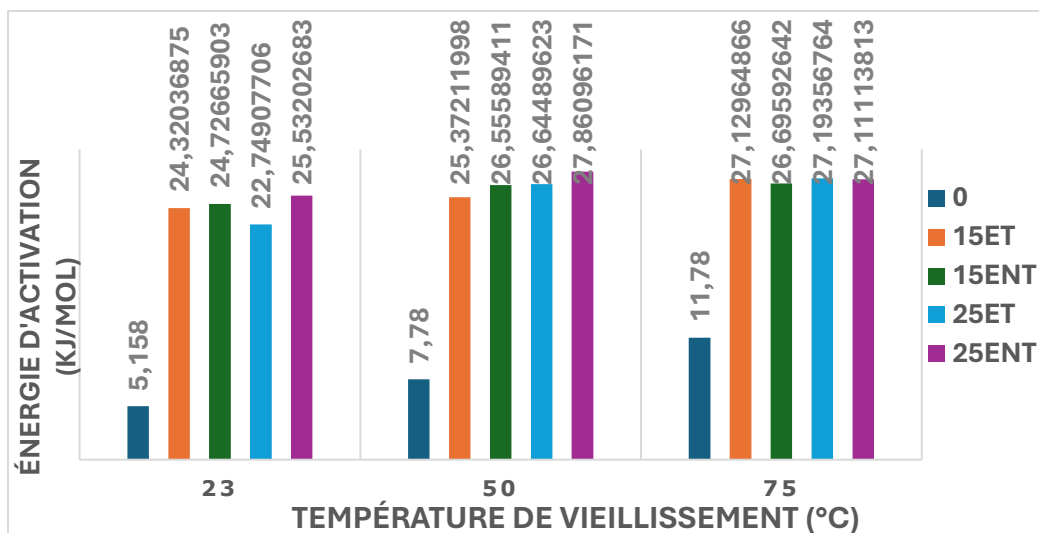


Figure 4.27 Énergie d'activation: réabsorption

Tableau 4.19 Énergie d'activation des composites à l'absorption

Composites de PEBD _v	Energie d'activation (kJ.mol ⁻¹)		
	23°C	50°C	75°C
0%	6,341	10,789	12,489
15% ET	33,730	35,529	36,682
15% ENT	31,277	33,394	34,660
25% ET	38,543	44,432	45,384
25% ENT	47,486	49,103	50,105

Tableau 4.20 Énergie d'activation des composites à la réabsorption

Composites de PEBD _v	Energie d'activation (kJ.mol ⁻¹)		
	23°C	50°C	75°C
0%	5,158	7,780	11,780
15% ET	24,320	25,372	27,129
15% ENT	24,726	26,555	26,695
25% ET	22,749	26,644	27,193
25% ENT	25,532	27,860	27,111

L'analyse de la figure 4.18 a permis de confirmer l'influence de la teneur en fibres et de leur traitement sur la diffusivité de l'eau. À l'absorption (Figure 4.23 A, **Tableau 4.19**), on observe une augmentation de l'énergie d'activation des composites avec l'augmentation du taux de fibres. La même tendance est constatée pour les composites à fibres traitées. Il

convient de noter que cette augmentation de l'énergie d'activation dépend de la présence des groupements –OH et –COOH des pectines, de cellulose et d'hémicellulose.

Dans certains cas, comme pour les fibres moins polaires, les molécules d'eau ne peuvent migrer de proche en proche que par l'intermédiaire des micropores et des défauts à l'interface du composite, afin d'atteindre les zones plus éloignées. Les énergies d'activation à l'absorption obtenues dans cette étude sont comprises entre 6,341 et 50,105 kJ.mol⁻¹ pour des températures comprises entre 23 et 75°C. Châteauminos et al.[276] ont obtenu une valeur de 28 kJ.mol⁻¹ à 70°C pour les composites glasse-epoxy. Il a été trouvé dans la littérature que, pour des bio-composites à fibres de bois et de matrice de polymère, le coefficient de diffusion pour un vieillissement hydrothermique est thermiquement activé. Cependant, les valeurs obtenues dans cette étude sont en accord avec la littérature, c'est-à-dire, plus on augmente la température plus le coefficient de diffusion et l'énergie d'activation augmentent (Tableau 4.19, 4.18, 4.19 et Figure 4.23). La même tendance est observée dans le cas de la réabsorption, mais avec une énergie d'activation moyenne autour de 26 kJ.mol⁻¹. Les composites sont généralement utilisés comme éléments de pièces dans plusieurs secteurs, tels que l'aéronautique, la construction et l'automobile. Cependant, il demeure difficile de contrôler le comportement de ces matériaux biosourcés, notamment dans des environnements évolutifs. Il est donc nécessaire d'étudier la réversibilité du phénomène d'absorption ainsi que sa cinétique, afin de mieux comprendre le comportement d'un produit fini.

4.2.3 Réversibilité de l'absorption des composites PEBD_v/Eucalyptus

Les mêmes conditions de travail ont été reconduites. Les éprouvettes ont été vieilles par immersion dans de l'eau distillée à des températures de 23, 50 et 75 °C. La température de 23 °C a été choisie car elle correspond au domaine d'utilisation environnementale, généralement considérée comme température ambiante. Les températures 50 et 75°C ont été sélectionnées sur la base la stabilité thermique (50 à 80°C) du PEBD.

4.2.3.1 Cycle d'absorption en immersion dans l'eau

Le cycle d'absorption, de désorption et de réabsorption d'eau a été étudié dans les mêmes conditions de température et de temps de vieillissement, et les résultats sont présentés sur la Figure 4.28.

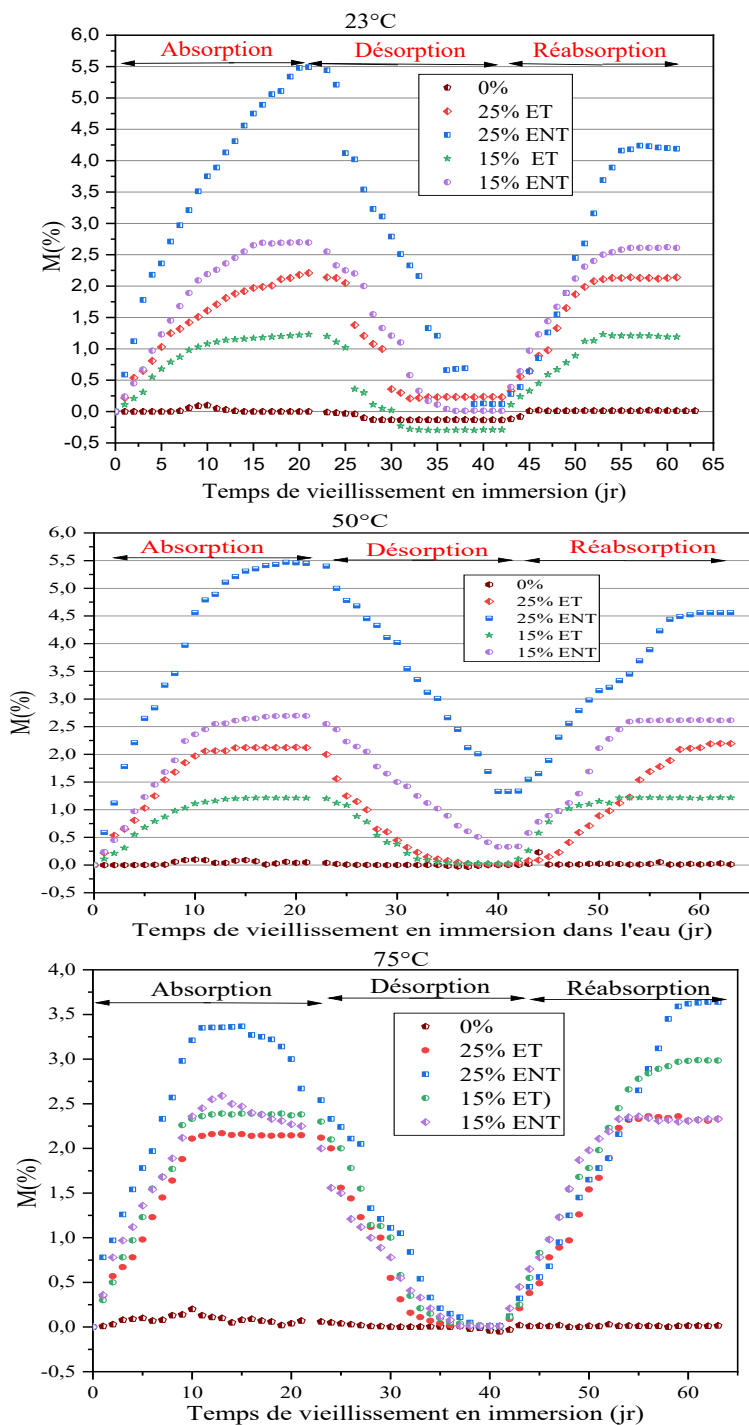


Figure 4.28 Cycle de vieillissement des composites à 23, 50 et 75°C

Une observation de cette Figure 4.28 présente trois phases :

- Une phase d'absorption;
- Une phase de désorption;
- Une phase de réabsorption.

On constate que la réabsorption est plus rapide pour les trois séries de composites, à l'exception du polymère sans fibres (0 %). De plus, la prise de masse maximale lors de la réabsorption a diminué pour les composites renforcés par 25 % ENT (4,27 % de réabsorption contre 5,48 % pour l'absorption à 23 °C, et 4,51 % de réabsorption contre 5,48 % pour l'absorption à 50 °C), alors qu'elle est plus prononcée à 75 °C (3,64 % de réabsorption contre 3,48 % d'absorption).

Ce phénomène rapide de réabsorption peut être attribué à la quantité d'eau liée et d'eau libre présente dans le matériau. La diminution observée à 23 et 50 °C serait liée à la perte de masse des constituants des fibres, relargués dans le milieu aqueux. Les analyses par spectroscopie IR et les mesures de la chute des propriétés mécaniques ont permis de confirmer les raisons de cette baisse de masse des composites lors de la réabsorption.

Par ailleurs, la désorption semble plus rapide pour les composites vieillissés à 23 °C, ce qui n'est pas le cas à 50 et 75 °C. La désorption, correspondant à la perte d'eau du composite hors milieu de vieillissement, peut s'expliquer par le fait que l'eau libre ou liée dans le composite commence à s'évaporer à une certaine température de séchage. Comme indiqué précédemment, selon la littérature, le processus de vieillissement hydrothermique est thermiquement activé, et l'énergie d'activation des liaisons hydrogène est plus importante, favorisant ainsi la présence d'eau liée par rapport à l'eau libre.

En effet, pour libérer ces molécules d'eau liées, il faut fournir une énergie suffisante pour rompre les liaisons, ce qui entraîne leur évaporation. D'autre part, si la désorption est rapide à 23 °C, on peut supposer que ces composites contiennent davantage d'eau libre que d'eau liée, favorisant ainsi l'évaporation même à température ambiante.

Tableau 4.21 Récapitulatif des phénomènes de réversibilité du vieillissement

Composites de PEBD _v	23°C			50°C			75°C		
	Abs1	Dés	Abs2	Abs1	Dés	Abs2	Abs1	Dés	Abs2
0%	0,001	-0,11	0,002	0,02	-0,01	0,01	0,1	0,01	0,1
15% ENT	2,53	0,011	2,38	2,53	0,33	2,51	2,51	0,012	2,3
25% ENT	5,51	0,12	4,26	5,52	1,33	4,5	2,28	0,012	3,76
15% ET	1,22	-0,29	1,25	1,23	0,025	1,25	2,46	0,01	2,9
25% ET	2,20	0,23	2,17	2,03	0,02	2,1	2,32	0,01	2,3

*Abs1 = absorption1, Abs2 = absorption2 ou réabsorption, Dés = désorption

4.2.3.2 Réabsorption des composites PEBD_v/Eucalyptus

Comparativement à la sorption, les composites réabsorbent l'eau à une vitesse plus faible. Plusieurs mécanismes peuvent expliquer ce comportement. Comme indiqué précédemment, le taux de fibres, la température ainsi que le traitement des fibres influencent à la fois l'absorption et la réabsorption. Dans le cas de l'absorption initiale, les énergies d'activation obtenues sont plus élevées que celles mesurées lors de la réabsorption. À 23 °C (**Figure 4.29**), l'absorption et la réabsorption semblent évoluer de manière similaire. Néanmoins, quelques variations sont enregistrées pour la réabsorption des composites à 25 % ENT, 25 % ET et 15 % ENT. En effet, la réabsorption du composite à 25 % ENT apparaît plus lente et atteint l'équilibre (4,26 %) aux environs du 14^e jour, contrairement à l'absorption, où ce même composite n'a pas encore atteint son équilibre. Un comportement similaire est observé pour les composites à 25 % ET, mais la réabsorption est plus rapide et atteint une asymptote (2,38 %) à partir du 11^e jour. Par ailleurs, on constate que l'absorption d'eau par l'ensemble des composites, à l'exception du composite à 15 % ET (dans les deux cas d'absorption), ne convient pas au modèle classique de diffusion de Fick, mais plutôt à celui de Langmuir. Il est donc possible que certains composites n'aient pas atteint l'équilibre d'absorption simplement parce que le temps nécessaire pour l'atteindre n'a pas été suffisant.

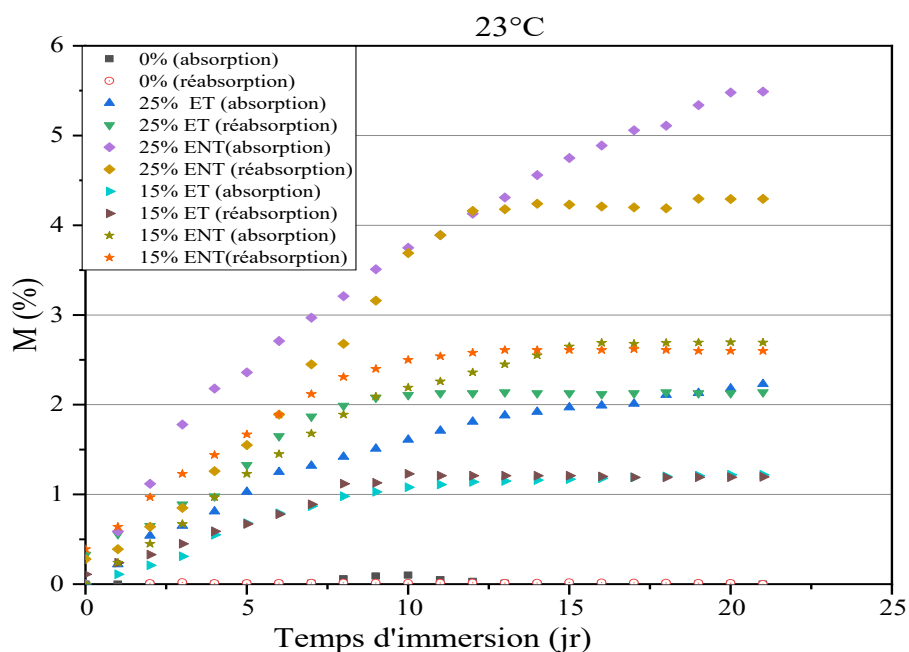


Figure 4.29 Comparaison des deux types de d'absorption (1ere et 2nd) : 23°C

Un comportement similaire à celui observé précédemment est constaté pour les absorptions à 50 °C (**Figure 4.30**) mais, tant pour la première que pour la deuxième absorption, les composites atteignent leur équilibre à des dates différentes. Cela indique que la température influence le mécanisme d'absorption.

La diffusion, dépendante de l'isotherme du milieu, est favorisée par une augmentation de la température du milieu hydrique, qui déclenche et accélère la migration de l'eau vers les zones libres capables de le stocker. D'autres molécules peuvent se lier par formation de liaisons hydrogène avec les groupements –OH de la cellulose et de l'hémicellulose, ou encore avec les groupements carboxyles de la pectine. La forte absorption observée pour les composites à 25 % ENT est principalement liée à la quantité de fibres et au fait que ces fibres n'ont pas été traitées au préalable.

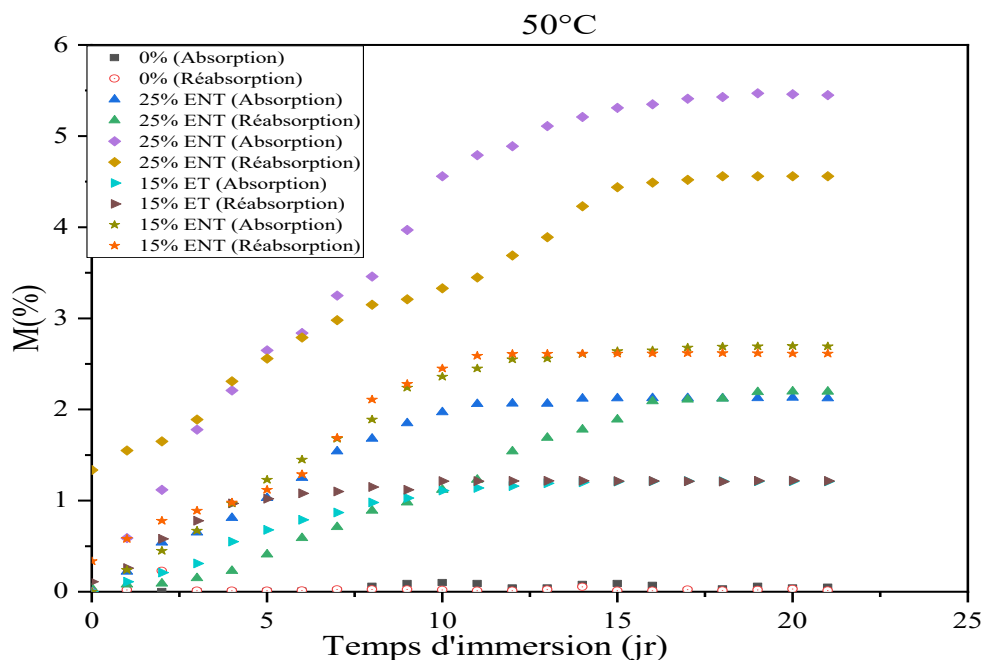


Figure 4.30 Comparaison des deux types de d'absorption (1ere et 2nd) : 50°C

À 75 °C (**Figure 4.31**), les deux types d'absorption sont pratiquement identiques, mais les composites à 25 % ENT présentent une légère augmentation à l'équilibre, avec une faible variation de l'absorption au fil des jours.

Pour les trois températures étudiées, la réabsorption suit un mécanisme similaire. Autrement dit, tous les composites soumis à une seconde absorption, après un temps pratiquement égal à celui de la première absorption, ont emmagasiné une quantité d'eau.

Par ailleurs, les dommages occasionnés lors de la première absorption influencent la seconde. C'est le cas du composite à 25 % ENT à partir du 16^e jour, pour lequel un excès de réabsorption de 1,48 % a été observé. Cet excès peut être attribué à la multiplication ou à l'élargissement des espaces vides dans le matériau, capable de contenir un plus grand volume d'eau libre, par suite d'une perte de fibres ou de leurs constituants.

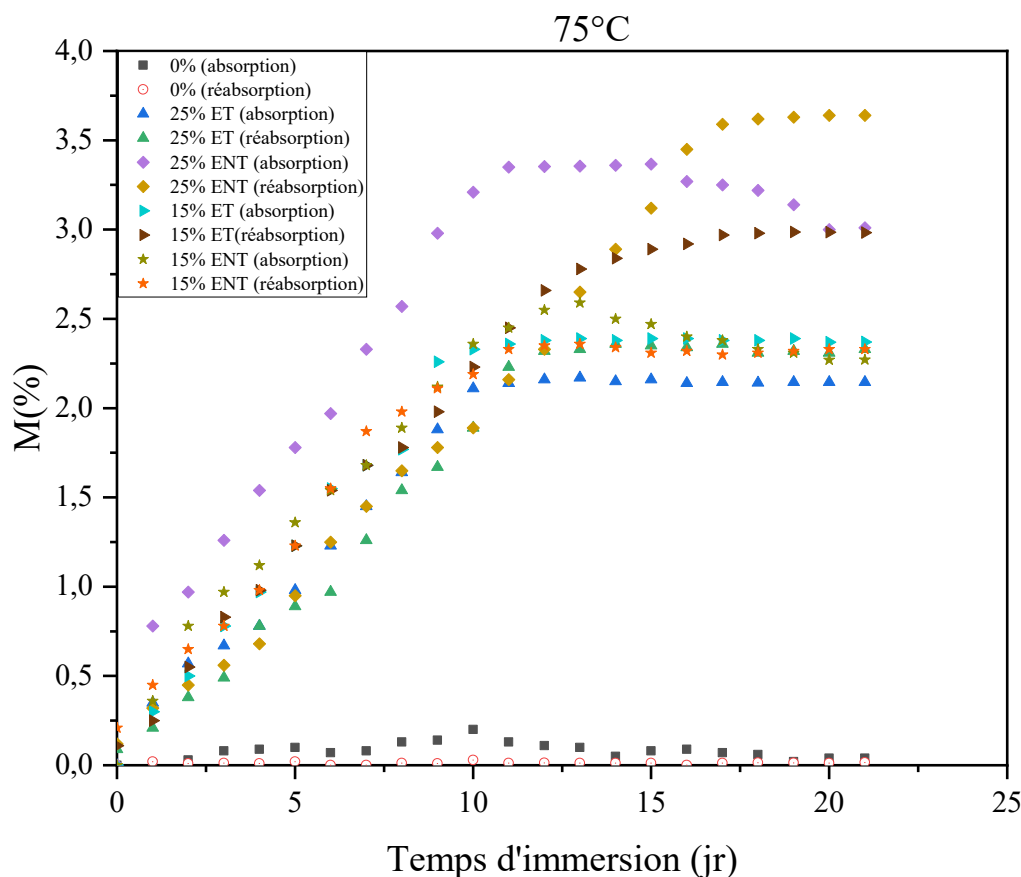


Figure 4.31 Comparaison des deux types de d'absorption (1ere et 2nd) : 75°C

Tableau 4.22 Coefficient de diffusion: 2eme absorption

Composites PEBD _v	Température du milieu hydrique et thermo-hydrique					
	23°C		50°C		75°C	
	D (mm ² /s)	M _t /M _s	D (mm ² /s)	M _t /M _s	D (mm ² /s)	M _t /M _s
0%	-	-	-	0,001	-	0,002
15% ENT	2,21.10 ⁻⁸	0,98	2,59.10 ⁻⁸	0,98	5,02.10 ⁻⁸	0,99
25% ENT	1,22.10 ⁻⁸	0,99	3,16.10 ⁻⁸	1,00	3,33.10 ⁻⁸	1,01
15% ET	1,14.10 ⁻⁸	1,02	1,76.10 ⁻⁸	1,00	1,89.10 ⁻⁸	1,00
25% ET	2,58.10 ⁻⁸	1,00	1,31.10 ⁻⁸	0,96	2,21.10 ⁻⁸	0,99

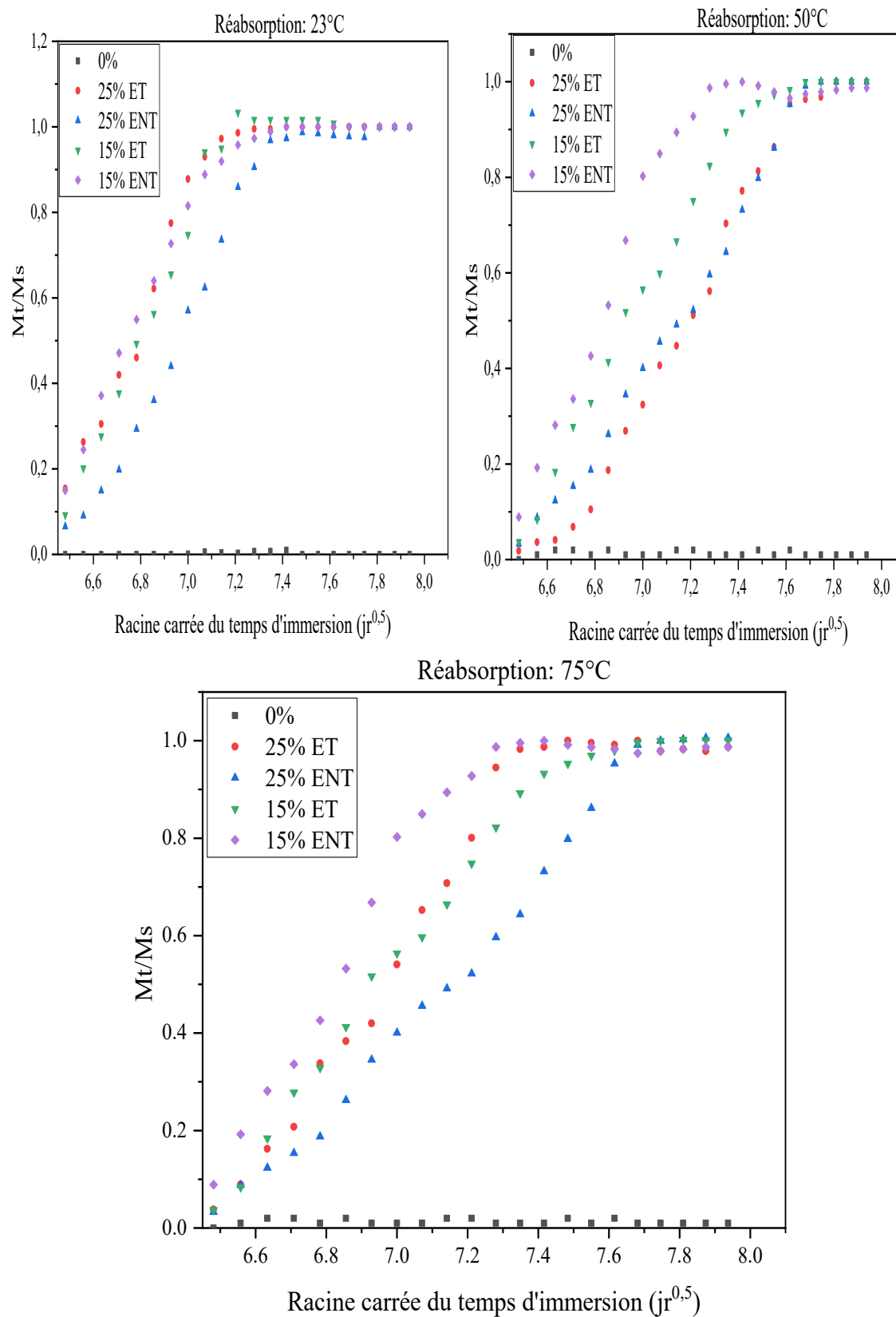


Figure 4.32 Réabsorption normalisée des composites à 23°C, 50°C et 75°C

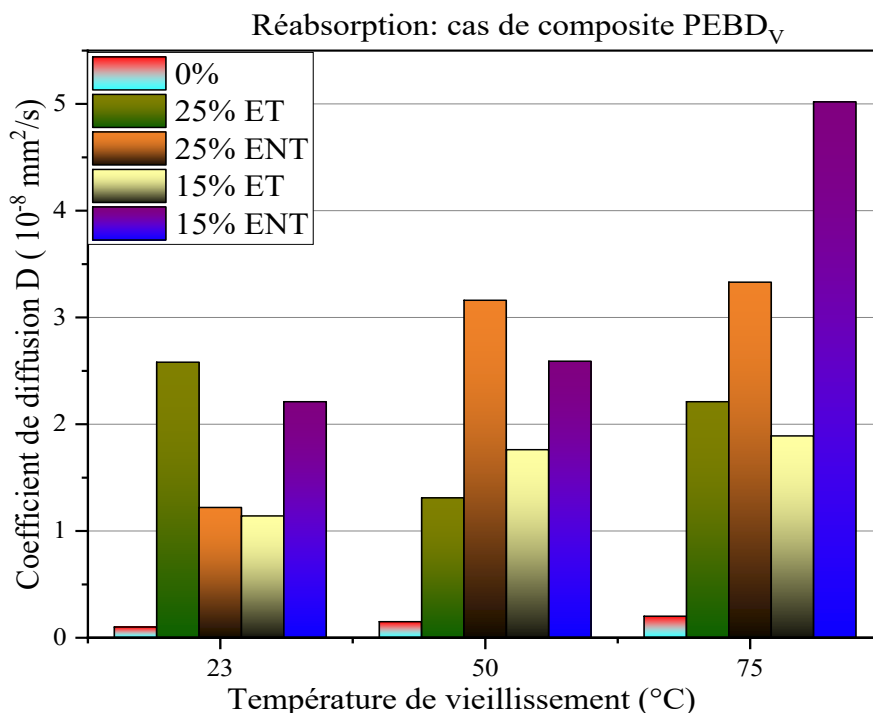


Figure 4.33 Coefficient de diffusion en fonction de la température de vieillissement

4.2.3.3 Évolution dimensionnelle des composites

Selon la littérature, l'absorption et la réabsorption d'eau par les composites peuvent parfois entraîner leur plastification. Cette plastification provoque le gonflement des composites, soit sur l'ensemble de leur surface, soit localement. Plusieurs auteurs ont étudié cette variation dimensionnelle des composites biosourcés. L'expression permettant d'évaluer cette grandeur, issue des travaux de Rouch et al.[277] et s'écrit :

$$\Delta(L, l, h) = \frac{(L, l, h)_t - (L, l, h)_d}{(L, l, h)_d} \quad 4.7$$

Avec, L, l, h respectivement, la longueur, la largeur et l'épaisseur de l'échantillon en (mm). Tous ces paramètres ont été mesurés à l'aide d'un pied à coulisse. Les résultats ont permis de tracer les graphiques présentés à la **Figure 4.34** pour les composites de PEBD_V renforcés par 25 % ET et 25 % ENT, et de confirmer à la fois la perte de poids des composites par diminution dimensionnelle et le gonflement induit par la plastification. L'analyse de ces graphiques révèle une dépendance de l'évolution dimensionnelle des composites à la température. Les composites vieillis à 75 °C présentent une épaisseur plus élevée (0,16 % pour 25 % ET ; 0,31 % pour 25 % ENT) au terme des 21 jours de vieillissement,

différemment à ceux vieillis à 50 °C (0,12 % pour 25 % ET ; 0,23 % pour 25 % ENT) et à 23 °C (0,09 % pour 25 % ET ; 0,19 % pour 25 % ENT) dans les mêmes conditions.

Par ailleurs, il a été constaté que le traitement des fibres influence également le changement dimensionnel des composites, un effet illustré par une diminution d'épaisseur (0,31 % pour 25 % ENT ; 0,16 % pour 25 % ET, par exemple).

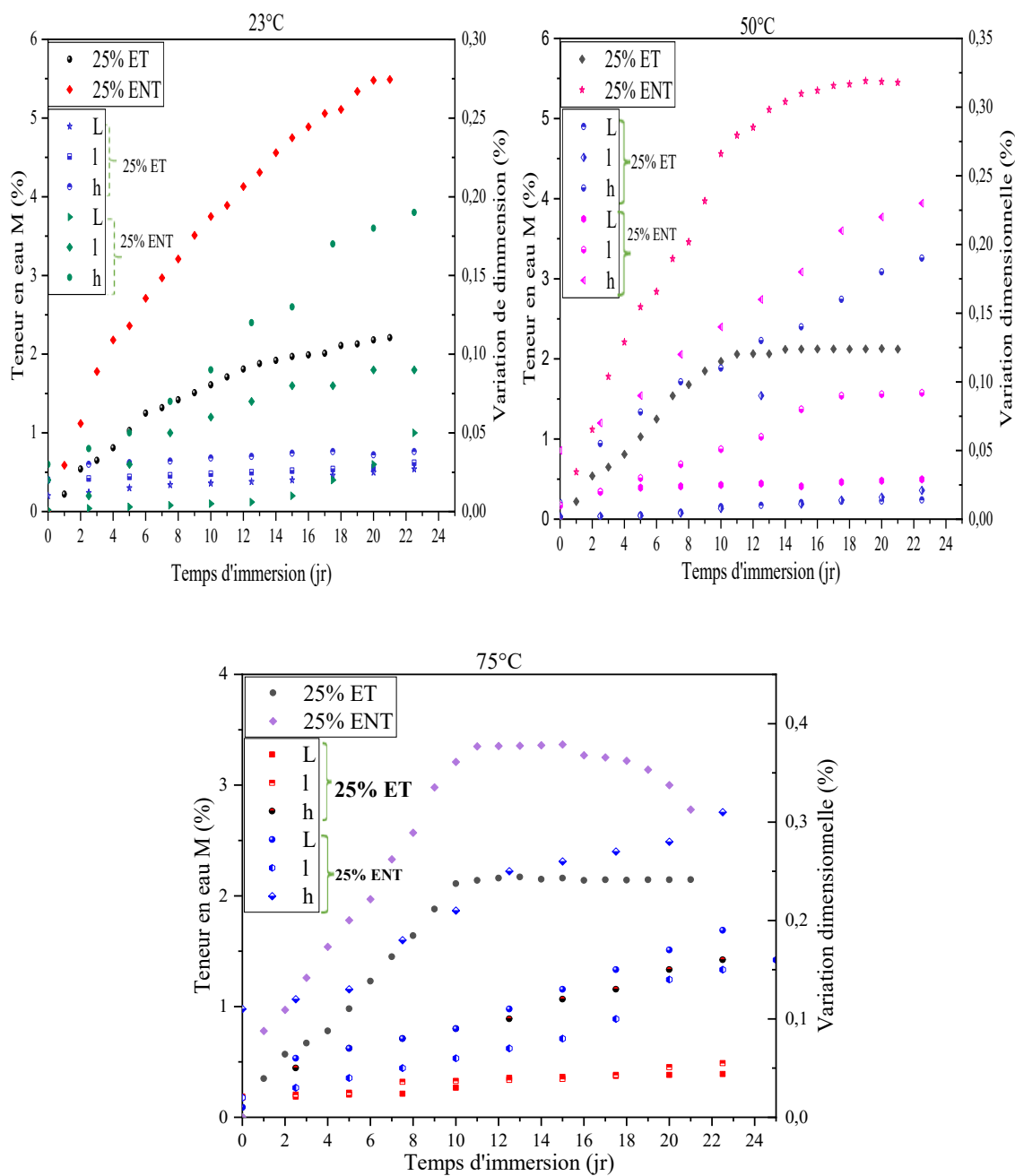


Figure 4.34 Changement dimensionnel des composites

4.2.4 Microscopie électronique à balayage (MEB)

La morphologie des composites analysée au microscope électronique à balayage après le cycle de vieillissement a permis de comprendre l'état des composites dans un environnement hydrique et hydrothermique. La **Figure 4.35** montre que les composites présentent des défauts après le vieillissement. Les **Figure 4.35- C** et **4.31-D** mettent en évidence des zones de décohésion entre les fibres et la matrice. La présence de fibres n'adhérant pas à la matrice, est également observée (**Figure 4.35-D**). Ces fibres enchevêtrées constituent une cause de la diminution des propriétés en traction et en flexion constatée dans la section 4.2.5, car la transmission des contraintes ne s'effectue pas efficacement entre la fibre et la matrice, mais plutôt entre les fibres elles-mêmes ou uniquement au sein de la matrice.

Par ailleurs, des zones vides, caractérisées par des micropores, sont visibles sur la **Figure 4.35- F**. La présence de ces micropores peut être liée au relargage ou à l'hydrolyse des composés de la fibre, ou encore à la lixiviation d'impuretés (graisses, eaux résiduelles lors du stockage, gaz générés lors de la formulation du composite, etc.). Ces différentes zones peuvent également indiquer la présence d'eau libre dans les cavités de la fibre ou de la matrice.

Il est donc compréhensible que les propriétés en traction et en flexion des composites, ainsi que leurs modules élastiques, soient réduites, la présence de défauts n'étant pas favorable à de bonnes performances mécaniques en raison de l'endommagement. La diminution de la masse résiduelle des composites vieillis à 75 °C, observée lors du séchage, est également confirmée par les **Figure 4.35-F** et **4.31-D**.

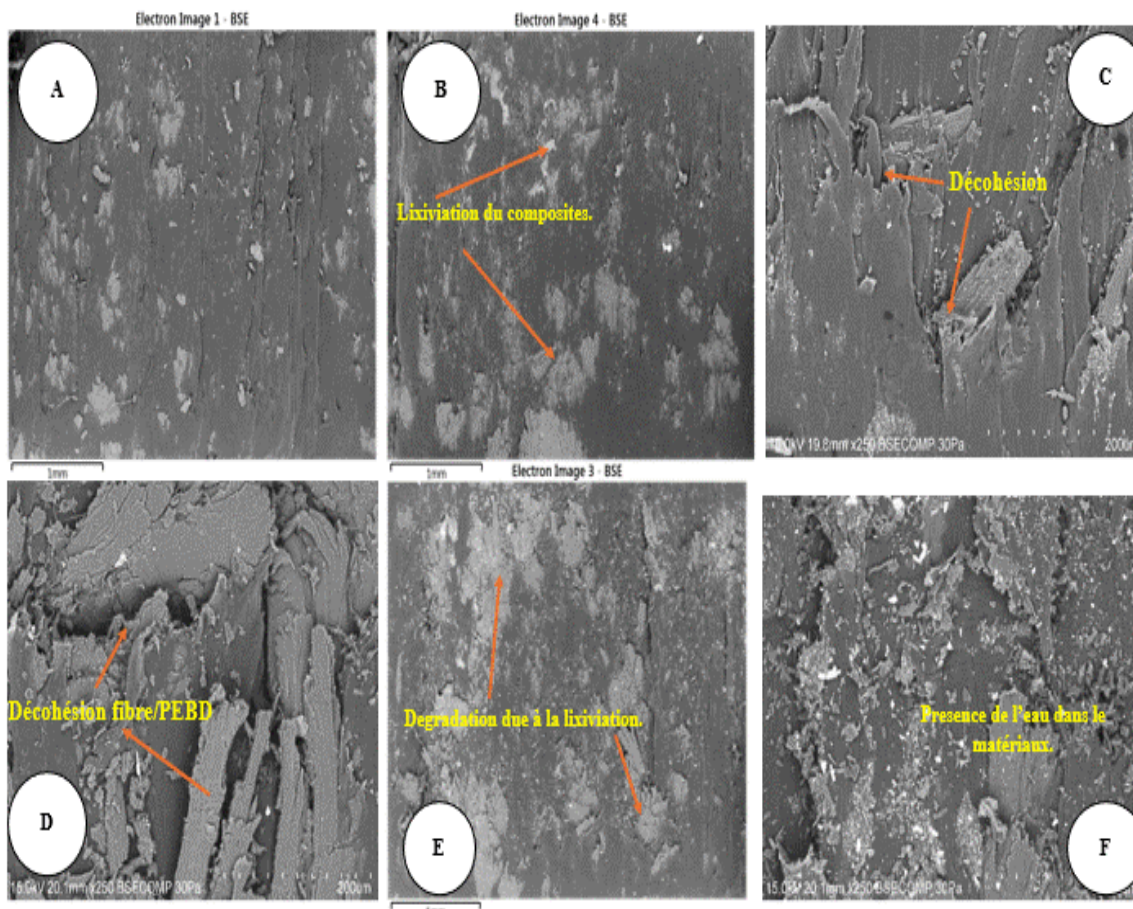


Figure 4.35 MEB des composites 25% : A- non vieilli ; B- vieillis 23°C ; C et E- vieillis 50°C ; D et F- vieillis 75°C

4.2.5 Analyse au FTIR-ATR

L'analyse infrarouge des composites vieillis, présentée à la **Figure 4.36** a et b, a permis d'identifier cinq bandes correspondant à différentes longueurs d'onde. En comparant ces résultats avec les valeurs répertoriées dans le **Tableau 4.23**, il apparaît que les bandes situées autour de $3400 - 3200 \text{ cm}^{-1}$, pour tous les types de vieillissement, caractérisent la vibration du groupe fonctionnel hydroxyle de la cellulose et de l'hémicellulose, bien que l'intensité d'absorbance varie selon les conditions. Entre 3000 et 2800 cm^{-1} , une vibration correspondante aux groupes $-CH$ de la cellulose et $-CH_2$ de l'holocellulose a été respectée dans les composites vieillis pendant trois semaines. Cette vibration est la plus intense pour les composites soumis à des températures de vieillissement de 50 et 75 °C . On peut en déduire que la forte absorbance, liée à l'intensification des vibrations des groupes $-CH$ et

-CH₂, résulte d'une excitation des liaisons sous l'effet d'un apport énergétique et par conséquent une dégradation irréversible est obtenue. Les longueurs d'onde situées autour de 1600 cm⁻¹ indiquent la présence d'eau libre dans les composites, à l'exception de ceux vieillissant à 75 °C pendant trois semaines. Cette absence confirme que le composite contenant 25 % de fibres vieilli à 75 °C ne contient plus d'eau libre. Ce constat corrobore l'hypothèse formulée précédemment, selon laquelle la présence de défauts dans les composites (**Figure 4.35-F**) caractéristique d'un endommagement par perte de matière ou de particules serait confirmée.

La présence de pectine, identifiée par la vibration de la liaison carboxyle à 1448,99 cm⁻¹ et 1409,87 cm⁻¹, n'a été observée que dans les composites vieillis à 50 °C et 75 °C pendant trois semaines. Cette particularité pourrait s'expliquer par le fait que la durée et la température de vieillissement ont favorisé non seulement la décohésion des fibres d'eucalyptus, mais aussi l'exposition de leurs constituants chimiques. Enfin, la bande située entre 1023 et 1014 cm⁻¹ correspond à la vibration des liaisons C–O–C de la cellulose pour tous les échantillons, avec un pic d'absorbance plus élevée et plus étroite pour le composite vieilli à 75°C pendant trois semaines. En somme, l'analyse FTIR-ATR a permis de mettre en évidence la présence des groupements fonctionnels caractéristiques, la dépendance des composites vis-à-vis de l'humidité, ainsi que l'interdépendance entre le vieillissement, sa durée et la température d'exposition. [258-259-260-261-262].

Tableau 4.23 Bande d'absorption de quelques groupements fonctionnels

Longueur d'onde (Cm ⁻¹)	Désignation
3600-3100	Caractéristique de la vibration d'étirement des liaisons -OH de l'Holo cellulose
2935	Étirement de la liaison CH- de la chaîne cellulosique
2862	Étirement de la liaison CH ₂ - de la chaîne de cellulose et de l'hémicellulose
1635	Vibration et cisaillement de la liaison-OH de l'eau
1425	Vibration de la liaison carboxyle caractéristique des pectines
1125-895	Étirement de la liaison C-O-C de la cellulose
895	Caractérise les liaisons de cellulose
700-650	Déformation hors plan de la liaison OH de l'eau

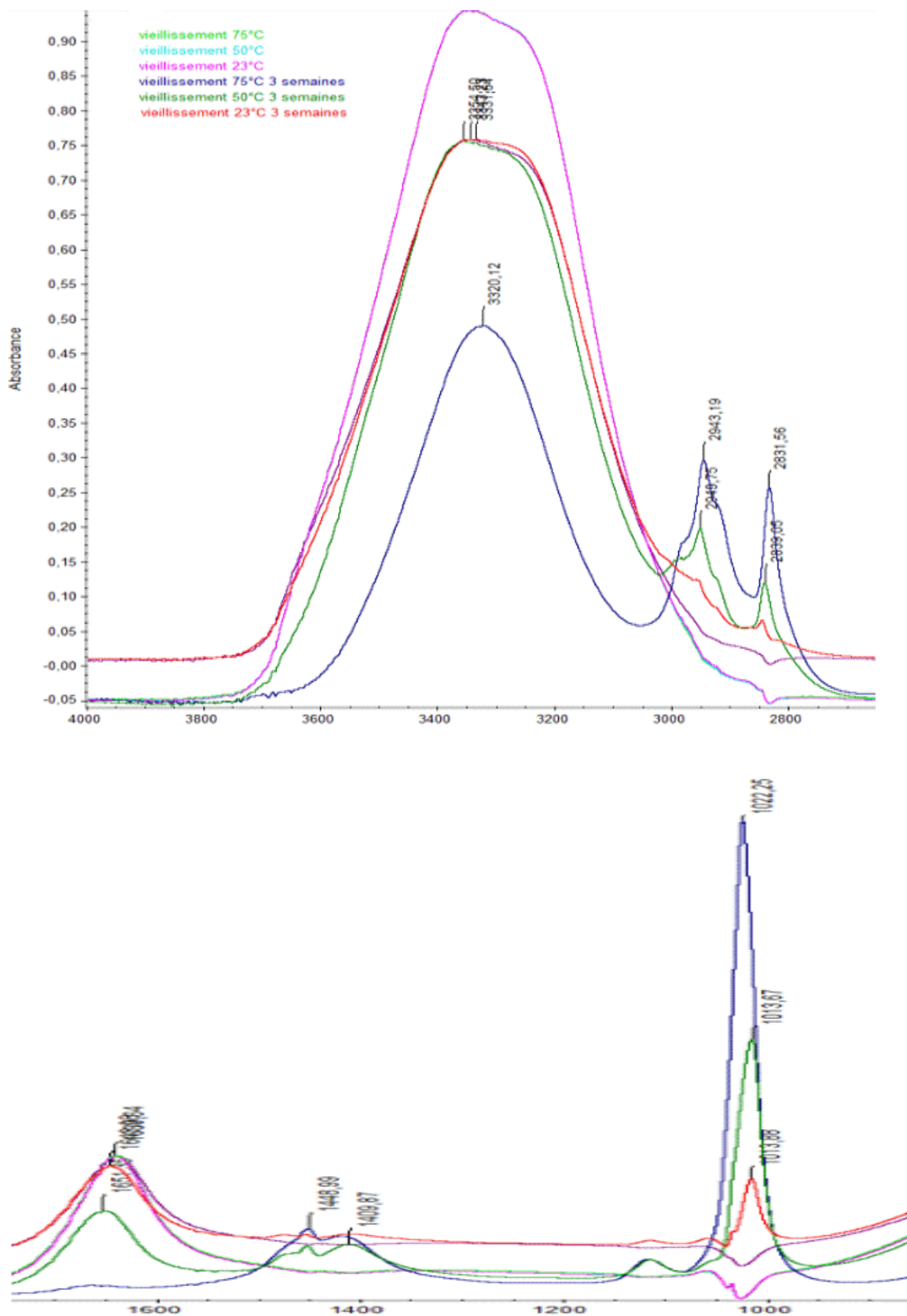


Figure 4.36 FTIR-ATR de composite vieillie: 25% fibres

4.2.6 Essai mécanique des éprouvettes vieilles

4.2.6.1 Vieillissement hydro-thermique

i. Essai de traction et de flexion

Cette section présente les résultats des essais de traction, de flexion et de résilience Charpy effectué sur les échantillons de composites vieillis dans les conditions thermo-hydriques. Les essais ont été portés sur les échantillons de composites à matrice de polyéthylène vierge et recyclé.

i.1 Traction des composites de polyéthylène vierge et recyclé

La figure 4.38 illustre l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation pour les composites vieillis à 23, 50 et à 75°C. Une rupture de tous les échantillons testés a été observée sauf le cas du PEBD vierge. Il a été observé que la résistance maximale à la traction de l'ensemble des échantillons diminue lorsque la température du milieu de vieillissement augmente. Autrement dit, pour les composites PEBD_v25ET, la résistance maximale est respectivement de 35,00; 32,50 et 27,00 MPa à 23; 50 et 75 °C. En comparant ces résultats à ceux des composites non vieillis, on note une chute de résistance de 3,10, 10,02 et 25,25 % après vieillissement à 23, 50 et 75 °C, respectivement. Cette diminution est également observée au niveau du module élastique et la déformation pour tous les composites.

Comme cela a été constaté lors de l'analyse des échantillons non vieillis, le taux de fibres ainsi que le traitement alcalin de celles-ci influencent significativement les propriétés mécaniques étudiées dans cette section. Par exemple, pour les composites PEBD_v25ET et PEBD_v25ENT, la résistance maximale enregistrée à 23 °C est de 35 et 27 MPa, respectivement. Cela montre que les composites à fibres traitées présentent une meilleure résistance que ceux à fibres non traitées. Dans les mêmes conditions, les composites PEBD_v15ET et PEBD_v25ET présentent respectivement des résistances maximales de 26,62 et 35,00 MPa, soit une amélioration de 23,94%. Cette perte de performance est attribuée à l'absorption d'eau, qui affaiblit l'interface du composite. Par ailleurs, la diminution de la déformation ainsi que la rupture des échantillons vieillis sont essentiellement dues à la fragilisation des liaisons intermoléculaires et interatomiques, qui

atteignent plus rapidement leur limite. Le tableau 4.20 résume l'ensemble des propriétés de traction des composites vieillis.

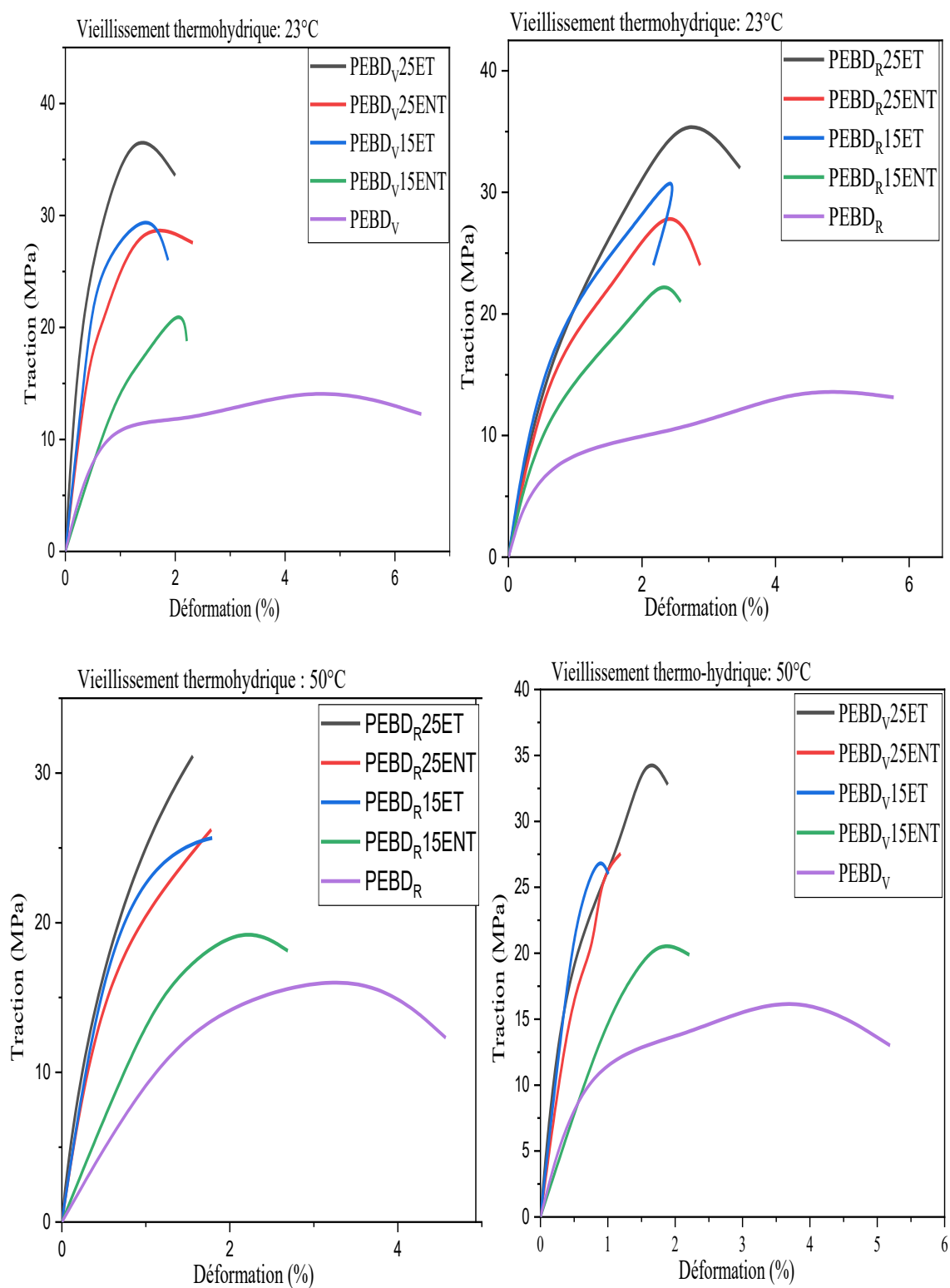


Figure 4.37 a- Traction : contrainte-déformation des composites vieillis

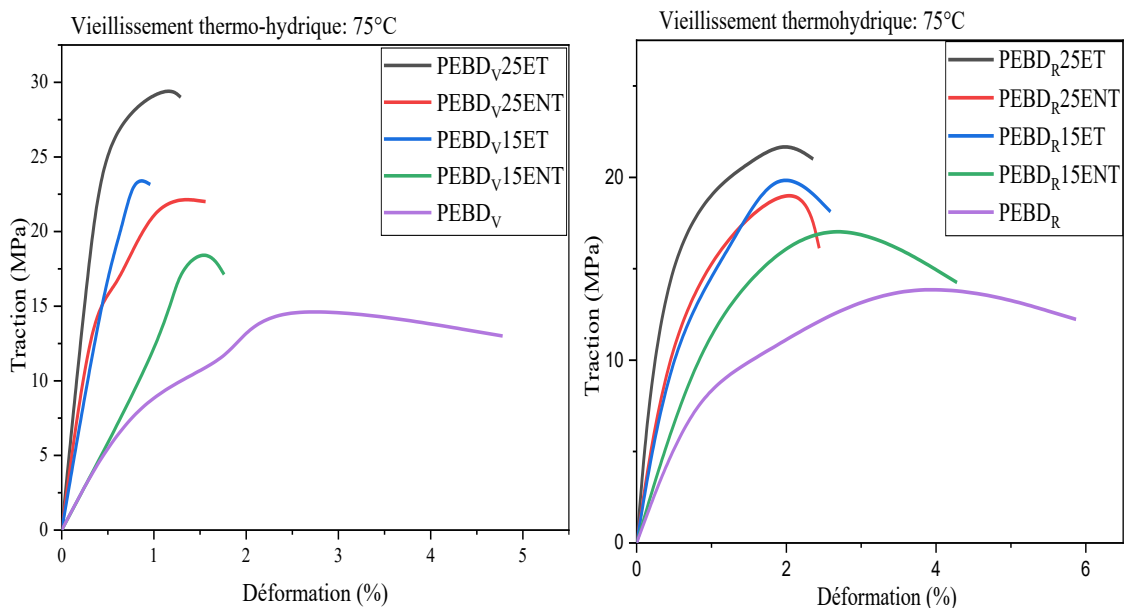


Figure 4.38 b- Traction : contrainte-déformation des composites vieillis

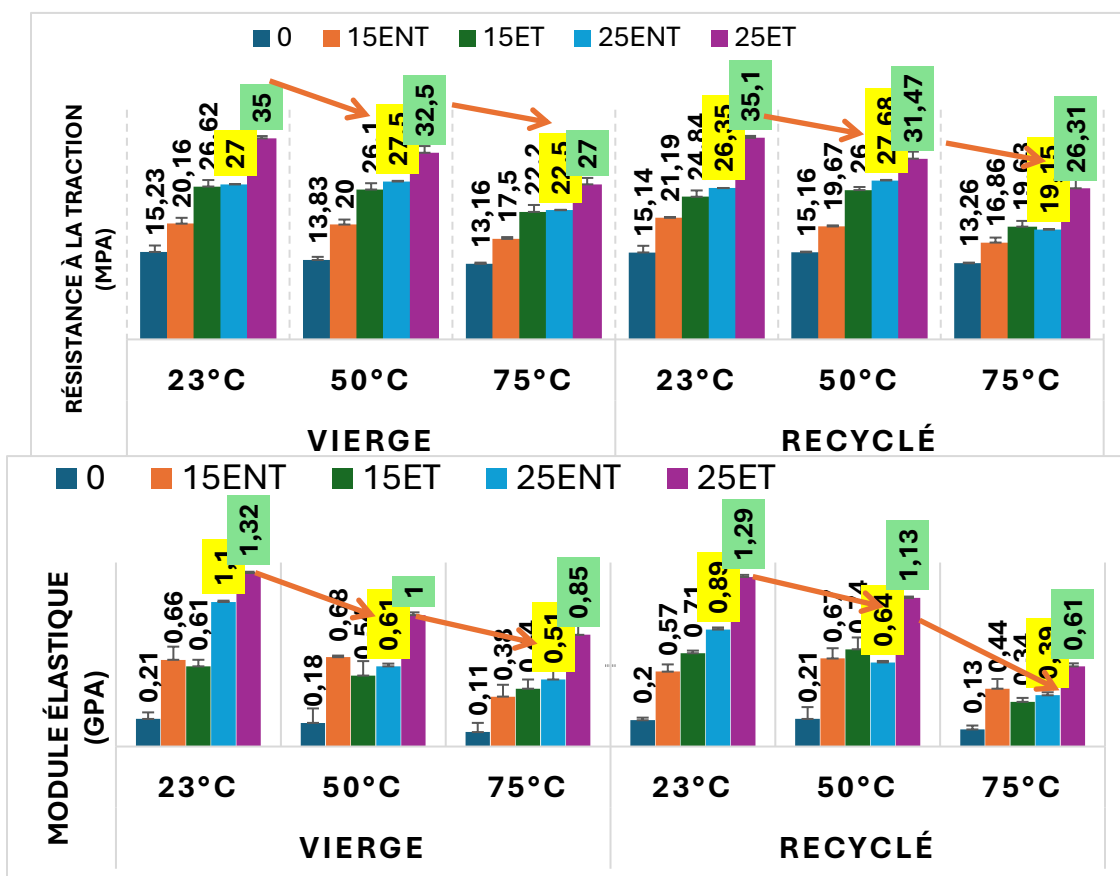


Figure 4.39 A- Résistance à la traction et son module élastique

Tableau 4.24 Propriété de traction des composites vieillies de 23 à 75°C

Composite		PEBD	PEBD15ENT	PEBD15ET	PEBD25ENT	PEBD25ET
V*	σ (MPa)	15,23	20,16	26,62	27,00	35,00
	<i>Écart-type</i>	1,12	1,01	1,13	0,49	0,41
	ε (%)	7,10	2,11	1,68	2,00	1,87
	<i>Écart-type</i>	0,31	0,16	0,11	0,14	0,11
	E (GPa)	0,21	0,66	0,61	1,10	1,32
	<i>Écart-type</i>	0,03	0,02	0,04	0,10	0,10
R*	σ (MPa)	15,14	21,19	24,84	26,35	35,10
	<i>Écart-type</i>	1,16	0,87	0,54	1,17	1,23
	ε (%)	5,66	2,16	2,00	2,68	3,12
	<i>Écart-type</i>	0,12	0,10	0,13	0,11	0,11
	E (GPa)	0,20	0,57	0,71	0,89	1,29
	<i>Écart-type</i>	0,01	0,01	0,03	0,01	0,03
50°C						
V*	σ (MPa)	13,83	20,00	26,10	27,50	32,50
	<i>Écart-type</i>	0,54	0,87	1,10	1,13	1,17
	ε (%)	5,11	1,59	0,86	1,11	1,51
	<i>Écart-type</i>	0,03	0,04	0,02	0,02	0,01
	E (GPa)	0,18	0,68	0,54	0,61	1,00
	<i>Écart-type</i>	0,02	0,01	0,01	0,01	0,06
R*	σ (MPa)	15,16	19,67	26,00	27,68	31,47
	<i>Écart-type</i>	0,12	0,18	1,13	1,00	0,74
	ε (%)	5,20	2,16	1,62	1,52	1,67
	<i>Écart-type</i>	0,01	0,01	0,04	0,04	0,10
	E (GPa)	0,21	0,67	0,74	0,64	1,13
	<i>Écart-type</i>	0,01	0,01	0,02	0,06	0,10
75°C						
V* = Vierge; R* = Recyclé						
V*	σ (MPa)	13,16	17,5	22,20	22,50	27,00
	<i>Écart-type</i>	0,21	0,32	1,21	1,36	1,12
	ε %	2,61	1,51	0,96	1,36	1,21
	<i>Écart-type</i>	0,20	0,04	0,02	0,14	0,11
	E (GPa)	0,11	0,38	0,44	0,51	0,85
	<i>Écart-type</i>	0,03	0,01	0,01	0,02	0,02
R*	σ (MPa)	13,26	16,86	19,63	19,15	26,31
	<i>Écart-type</i>	0,11	0,11	1,10	0,21	0,34
	ε (%)	3,61	3,36	2,16	2,10	2,10
	<i>Écart-type</i>	0,12	0,02	0,03	0,03	0,11
	E (GPa)	0,13	0,44	0,34	0,39	0,61
	<i>Écart-type</i>	0,01	0,02	0,03	0,04	0,13

i.2 Flexion des composites à matrice vierge et recyclé

Les mêmes constats observés lors des essais de traction sont également relevés pour les tests de flexion. La **Figure 4.41** présente les résultats des essais de flexion des composites vieillis dans les mêmes conditions.

Par rapport aux composites non vieillis, et à 75 °C, on note une diminution de la résistance à la flexion des échantillons vieillis de 46,09 % (51,16 MPa contre 27,32 MPa), 48,94 % (41,13 MPa contre 21,12 MPa), 36,16 % (34,76 MPa contre 22,19 MPa), 40,82 % (29,89 MPa contre 17,69 MPa) et 27,69 % (23,97 MPa contre 17,26 MPa) respectivement pour les composites PEBD_V25ET; PEBD_V25ENT; PEBD_V15ET; PEBD_V15ENT et PEBD_V. Les travaux de Chen et al. [283] confirmant cette faible résistance à la flexion pour des températures de vieillissement 23, 45, 70 et 100°C et spécifiquement cette diminution est de 42,3% pour une température de vieillissement hydrothermale de 100°C. Le même constat est observé dans le cas de comparaison des composites non vieillis avec ceux vieillis à 50 et 23°C. Les composites à matrice de PEBD_R ont le même comportement.

Par ailleurs, le taux et le traitement des fibres, ainsi que la température du milieu de vieillissement, ont exercé une influence significative sur la diminution des propriétés mécaniques des composites vieillis. Le tableau correspondant reprend les effets de ces caractéristiques en caractéristiques du facteur de résistance à la flexion. Ce tableau permet d'apprécier la performance des composites vieillis sur la base des scores obtenus selon les pourcentages. Cinq signes distincts ont été définis et attribués aux types d'évolution du comportement des composites : ++ = très bon (>50%), + = bon (<50%); - = diminution; +/- = plus ou moins bon; -- = grande chute (voir **Tableau 4.25**). Les critères relatifs aux pourcentages ont été évalués en considérant les paramètres initiaux (température, traitement ou non, taux de fibres) de vieillissement.

Les critères relatifs aux pourcentages ont été évalués en tenant compte des paramètres initiaux de vieillissement (température, traitement ou non, taux de fibres). Par exemple, l'évaluation de l'effet du taux de fibres sur la performance des composites vieillis a été réalisée en comparaison comme référence l'éprouvette sans fibres (0 %) vieillie dans les mêmes conditions. De même, l'effet du traitement a été déterminé en comparant des expériences vieilles dans les mêmes conditions et contenant la même quantité de fibres.

En ce qui concerne la température, celle de 23 °C a été retenue comme référence de vieillissement. Le module de flexion et la déformation à la rupture suivent le même comportement, et les observations sont similaires. L'analyse du tableau révèle que le taux et le traitement des fibres d'eucalyptus améliorent la performance des composites à l'état non vieillissant. Cependant, cette performance diminue après vieillissement, la température étant le facteur ayant exercé l'influence la plus marquée sur cette dégradation.

Tableau 4.25 Influence du taux de fibre sur les propriétés en flexion des vieilliss

Composites PEBD vieilliss		Propriétés de flexion			Constat pour la flexion		
		Résistance à la flexion (MPa)	Module de Young (GPa)	Déformation (%)	TF (%)	t	T. (°C)
							23
0%	PEBD _v	16,17 ± 1,11	0,59 ± 0,02	5,38 ± 0,17			+/-
15%ENT		22,10 ± 0,43	0,78 ± 0,01	3,16 ± 0,20	+	+/-	+/-
25%ENT		33,18 ± 1,10	2,10 ± 0,03	3,00 ± 0,16	++	+/-	+/-
15%ET		33,10 ± 1,21	1,11 ± 0,03	3,10 ± 0,11	++	+	+/-
25%ET		38,00 ± 1,10	2,87 ± 0,04	2,85 ± 0,11	++	+	+/-
0%	PEBD _r	17,32 ± 1,17	0,47 ± 0,01	4,66 ± 0,13			+/-
15%ENT		25,18 ± 0,31	0,74 ± 0,02	3,84 ± 0,18	+	+/-	+/-
25%ENT		35,18 ± 1,00	2,23 ± 0,02	3,10 ± 0,10	++	+/-	+/-
15%ET		33,16 ± 1,12	1,21 ± 0,03	3,10 ± 0,18	++	+	+/-
25%ET		38,16 ± 1,31	2,67 ± 0,03	2,66 ± 0,10	++	+	+/-
							50
0%	PEBD _v	16,12 ± 1,13	0,51 ± 0,02	4,00 ± 0,11			-
15%ENT		26,21 ± 0,21	0,64 ± 0,02	0,69 ± 0,20	++	+/-	+
25%ENT		32,50 ± 1,00	1,57 ± 0,02	1,50 ± 0,10	++	+/-	-
15%ET		26,16 ± 1,00	1,00 ± 0,04	0,68 ± 0,14	++	+/-	-
25%ET		37,00 ± 1,10	1,31 ± 0,03	0,98 ± 0,11	++	+	-

0%	PEBD _R	15,18 ± 1,10	0,43 ± 0,01	5,00 ± 0,11			-
15%ENT		27,00 ± 0,38	0,68 ± 0,02	1,62 ± 0,20	++	+/-	+
25%ENT		27,00 ± 1,23	1,00 ± 0,02	1,61 ± 0,19	++	+/-	-
15%ET		23,11 ± 1,00	0,91 ± 0,03	3,50 ± 0,13	++	-	-
25%ET		36,00 ± 1,12	1,41 ± 0,06	2,00 ± 0,10	++	+	-
							75
0%	PEBD _V	15,26 ± 1,11	0,21 ± 0,03	5,22 ± 0,16			-
15%ENT		17,69 ± 0,39	0,55 ± 0,04	3,10 ± 0,20	+	+/-	--
25%ENT		21,12 ± 1,00	1,10 ± 0,01	3,00 ± 0,11	+	+/-	--
15%ET		22,19 ± 1,03	0,44 ± 0,03	3,00 ± 0,13	+	+	--
25%ET		27,32 ± 1,16	1,17 ± 0,03	2,67 ± 0,17	++	+	--
0%	PEBD _R	12,16 ± 1,12	0,21 ± 0,02	9,00 ± 0,10			-
15%ENT		14,16 ± 0,40	0,55 ± 0,03	5,00 ± 0,23	+	+/-	--
25%ENT		24,00 ± 1,50	0,61 ± 0,02	4,12 ± 0,11	++	+/-	--
15%ET		23,12 ± 1,16	0,48 ± 0,05	3,92 ± 0,13	++	+	--
25%ET		26,00 ± 1,12	1,15 ± 0,02	3,11 ± 0,21	++	+	--

Tf = taux de fibre; *t* = traitement; *T* = température, ++ = très bon (>50%), += bon (<50%); - = diminution; +/- = plus ou moins bon; -- = grande chute

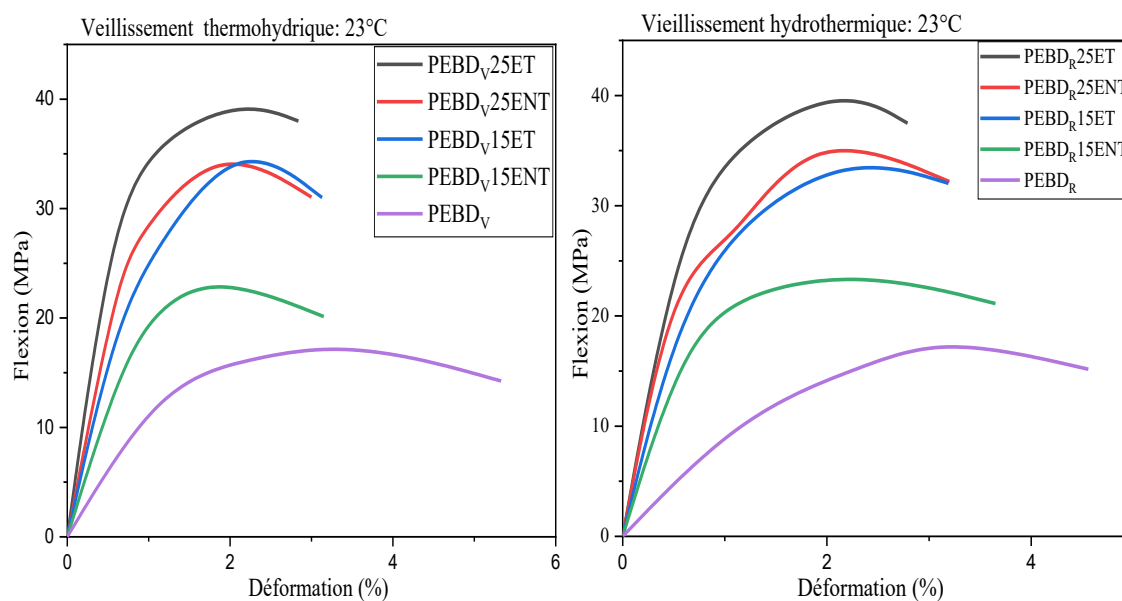


Figure 4.40 a- Essai de flexion : contrainte-déformation des vieillés à 23°C

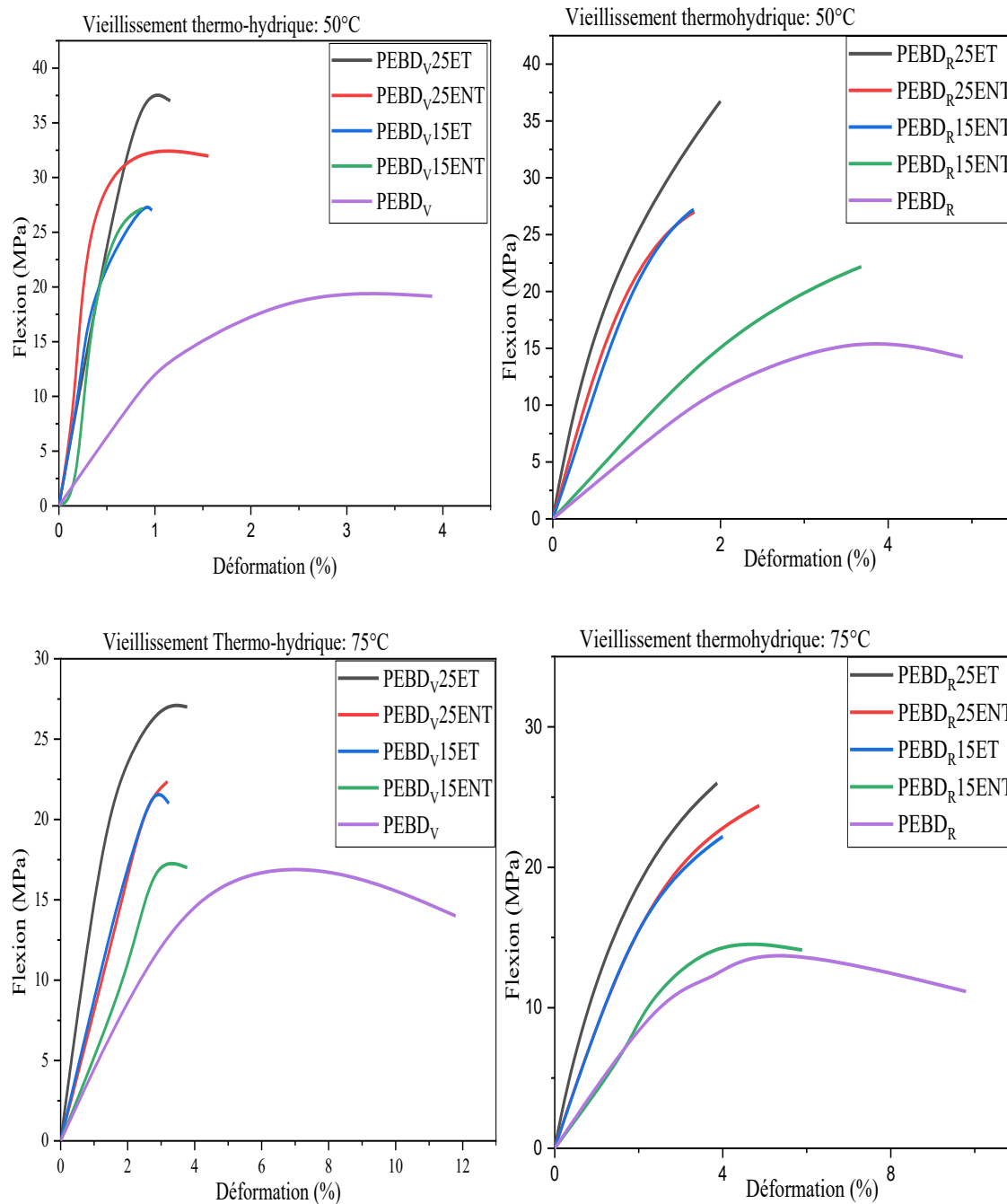


Figure 4.41 Essai de flexion : contrainte-déformation des vieillis à 50 et à 75°C

4.2.6.2 Test d'impact de Charpy

Les matériaux composites vieillis ont été testés afin de comparer leurs performances en termes d'énergie d'absorption à la rupture après un choc soudain. D'après la **Figure 4.42**, une diminution de l'énergie d'absorption à la rupture a été observée, traduisant le

comportement fragile des matériaux vieilliss. Ce caractère fragile, commun à l'ensemble des composites vieillit, démontre une fois de plus que les fibres n'assurent plus leurs rôles de renfort. Cette perte de capacité de renforcement des fibres, qu'elles soient traitées ou non, est attribuée à leur absorption d'eau, entraînant un phénomène de plastification des composites et, par conséquent réduisant ainsi leur pouvoir résistant.

La diminution de l'énergie d'absorption des matériaux vieilliss reflète également une baisse de leur résilience. En comparant la résilience selon les températures de vieillissement, on observe une chute plus prononcée à 75 qu'à 50 et 23 °C. Cette observation corrobore les résultats obtenus pour les propriétés de traction et de flexion.

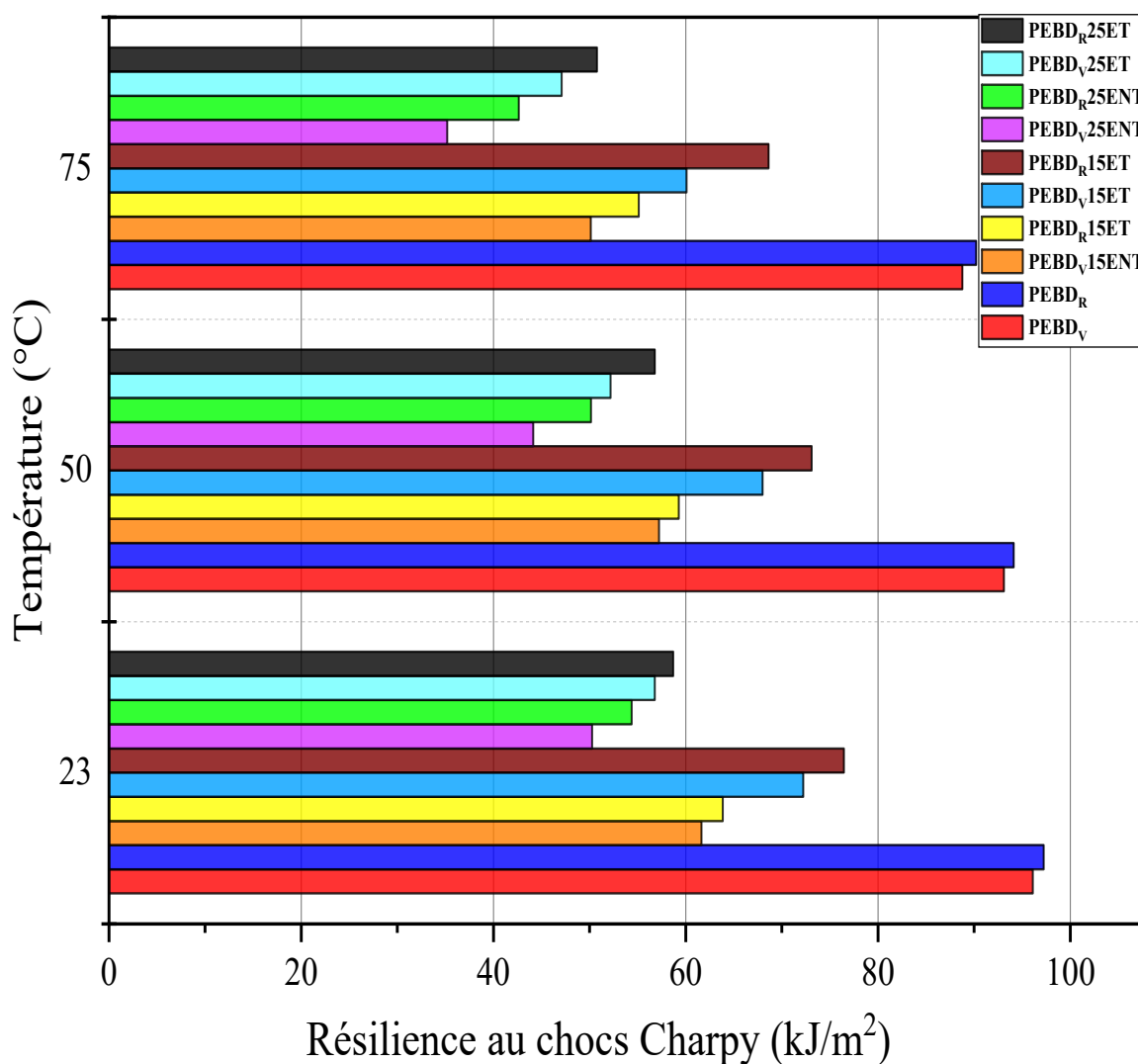


Figure 4.42 Test de résilience aux chocs Charpy des composites vieilliss

Tableau 4.26 Résilience aux chocs Charpy des composites vieillis

Matériaux	Résilience de chocs Charpy (kJ/m ²)		
	23°C	50°C	75°C
PEVD _V	96,12 ± 2,12	93,12 ± 2,14	88,79 ± 1,57
PEBD _R	97,25 ± 2,22	94,12 ± 1,11	90,21 ± 2,41
PEVD _V 15ENT	61,65 ± 1,12	57,23 ± 1,44	50,12 ± 2,46
PEVD _R 15ENT	63,87 ± 2,17	59,28 ± 1,58	55,13 ± 1,11
PEVD _V 15ET	72,23 ± 2,16	68,00 ± 2,23	60,1 ± 2,19
PEVD _R 15ET	76,47 ± 1,36	73,12 ± 1,12	68,63 ± 1,78
PEVD _V 25ENT	50,27 ± 1,20	44,13 ± 0,91	35,19 ± 0,72
PEVD _R 25ENT	54,39 ± 1,44	50,16 ± 0,77	42,64 ± 0,23
PEVD _V 25ET	56,79 ± 1,74	52,19 ± 1,10	47,1 ± 0,58
PEVD _R 25ET	58,71 ± 2,29	56,78 ± 1,09	50,77 ± 1,16

4.2.6.3 Traction et flexion des composites vieillis thermiquement

Dans ce paragraphe, les propriétés essentielles enregistrées lors du vieillissement thermique sont la résistance à la traction, la résistance à la flexion et la résilience à l'impact de Charpy. Pour chaque essai, trois échantillons ont été testés, et la valeur moyenne a été obtenue.

4.2.6.4 Test de traction

Ici également, la figure 4.37 présente une évolution de la résistance à la traction selon les températures, le taux de fibre ainsi que le traitement. Pour les deux types de polyéthylènes, le comportement reste similaire. Les figures montrent malgré l'effet de la température sur la diminution de la résistance à la traction des composites, la fraction de fibre a joué le rôle de renfort. En effet, à 80°C, la déformation à la rupture est plus prononcée qu'à 50°C, car les matériaux sont subitement passés à leur état plastique et sont devenus ductiles avant de se rompre. Ce comportement peut s'expliquer par les phénomènes viscoélastiques précédemment décrits dans la section consacrée aux résultats de l'analyse mécanique dynamique (DMA). En prenant comme référence la température de 50°C afin de mieux comprendre l'effet de l'augmentation de la température sur le comportement en traction des composites, on observe une diminution de la résistance à la traction des composites PEBD_V25ET, PEBD_V25ENT, PEBD_V15ET et PEBD_V15ENT respectivement de 43, 22, 38,

26% et des composites $PEBD_{R25ET}$, $PEBD_{R25ENT}$, $PEBD_{R15ET}$ et $PEBD_{R15ENT}$ respectivement de 39, 54, 25, 17% et ceci à 80°C. Cette diminution des propriétés est visible, dans la mesure où tant le polymère que la fibre est sensible à chaleur.

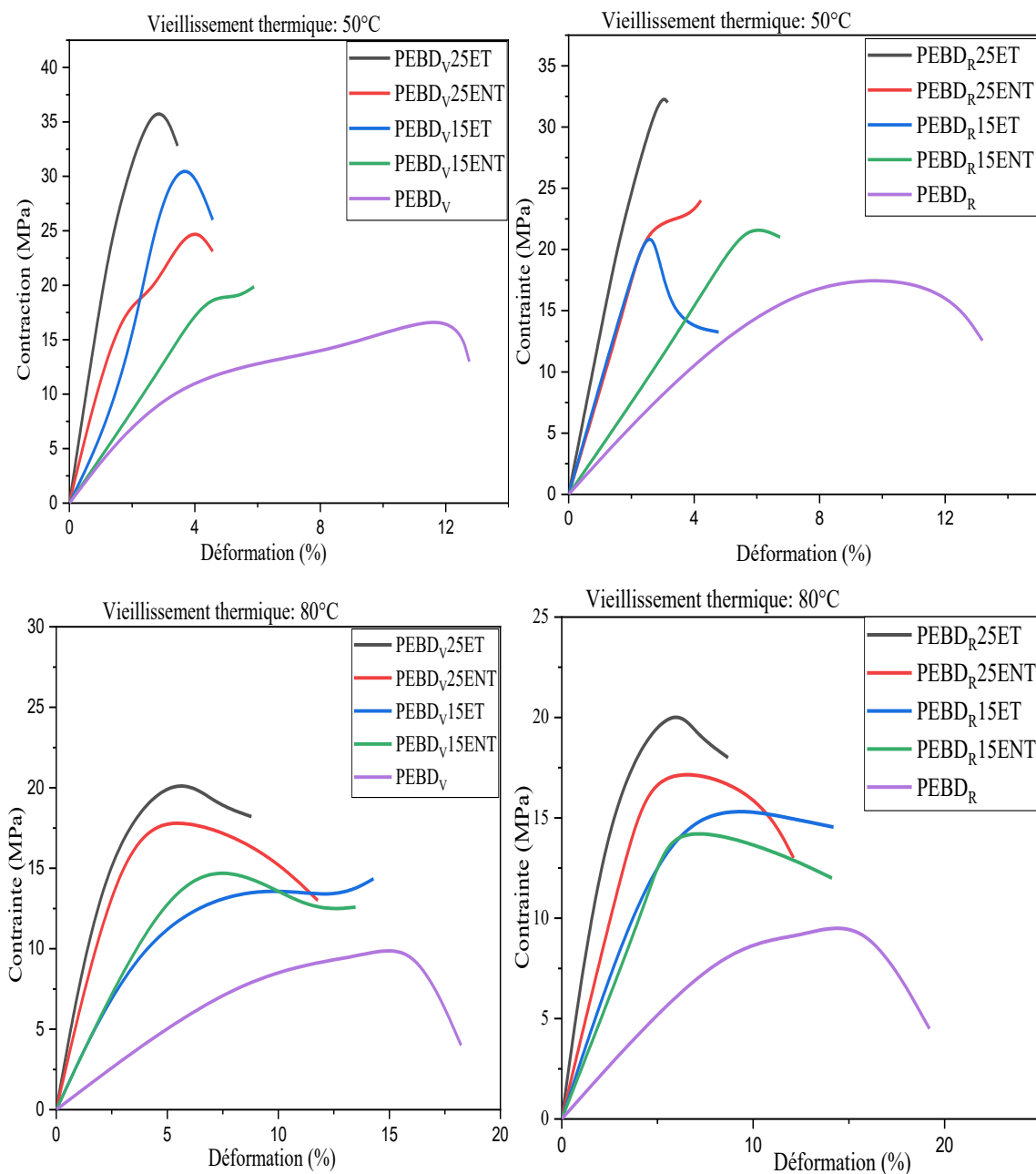


Figure 4.43 Traction: contrainte-déformation des : a) vieillis à 50°C, b) vieillis à 80°C

4.2.6.5 Test de flexion trois-points

Les propriétés de flexion trois points (figure 3.38) évoluent de manière similaire à celles liées en traction. En effet, tous les composites vieillis ont perdu leur résistance par rapport

aux composites non vieillis, soumis à la même charge. Par exemple, pour les composites PEBD_V25ET et PEBD_V15ET vieillis, on note des valeurs maximales de $31,23 \pm 1,43$ MPa et $21,36 \pm 1,43$ MPa respectivement, contrairement aux composites non vieillis dont les valeurs maximales sont de $51,16 \pm 0,41$ MPa et $34,76 \pm 0,17$ MPa. La déformation maximale est de $5,67 \pm 0,33$ % et $7,21 \pm 0,27$ % respectivement comparée au non vieillis qui sont de $2,11 \pm 0,01$ % et $5,39 \pm 0,04$ % respectivement.

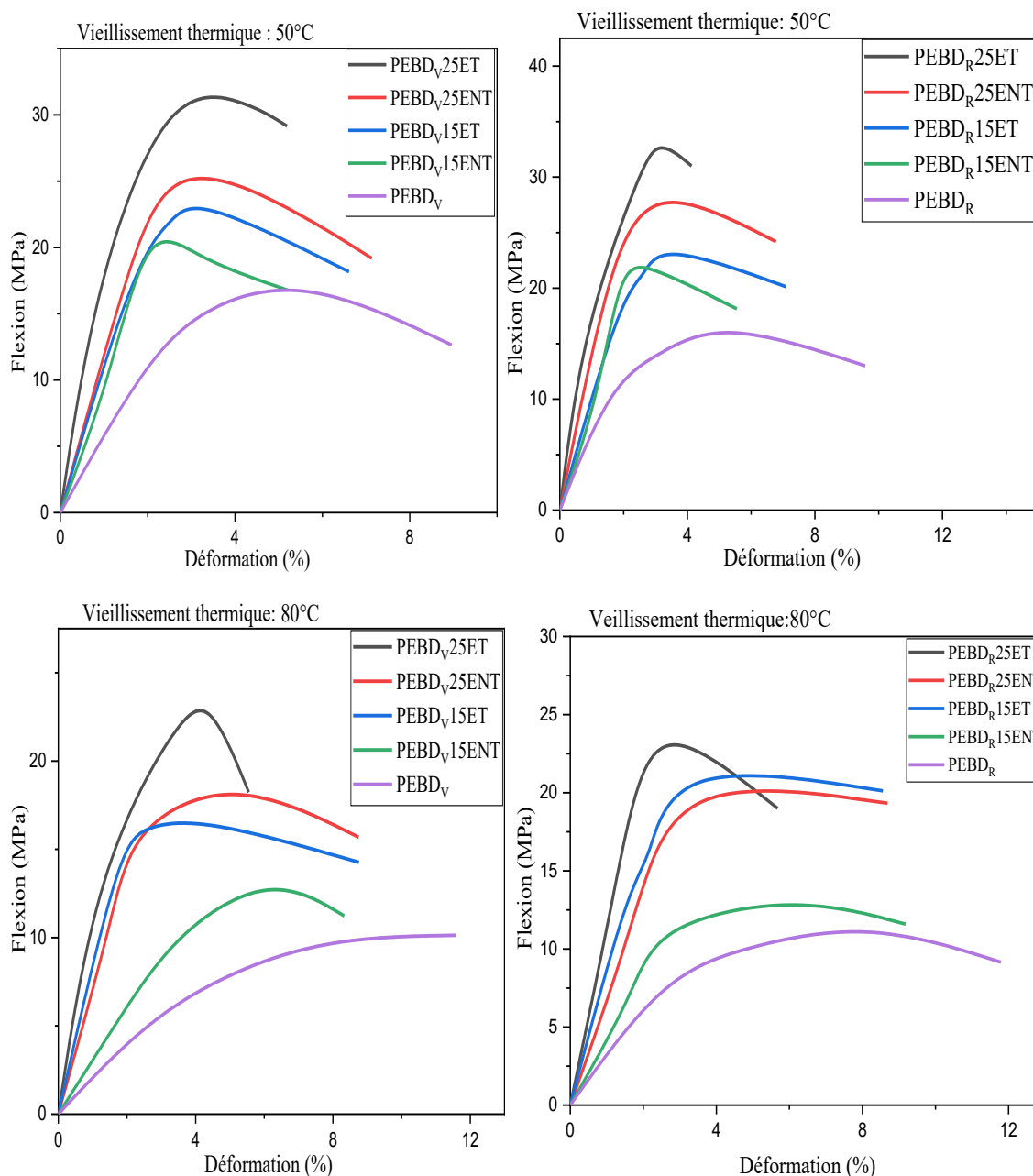


Figure 4.44 Traction : contrainte-déformation des vieillis à 50°C et à 80°C

4.3 Partie 3. Approche par éléments finis du vieillissement thermique

Le concept d'« homogénéisation » ou de « moyenne » permet de définir un matériau homogène équivalent, non pas à l'échelle microscopique, mais dont le comportement macroscopique est, en moyenne, identique à celui du matériau hétérogène [284][285][286]. Cependant, cette section traite principalement de l'échelle macroscopique, c'est-à-dire du comportement global (mécanique, thermique) des composites. L'objectif est de remonter les propriétés de l'échelle microscopique vers l'échelle macroscopique.

Après la réalisation d'essais standardisés sur des éprouvettes du matériau hétérogène, les propriétés mesurées, qui constituent une moyenne, sont saisies dans le logiciel de modélisation et de simulation numérique ANSYS. À partir du Volume Élémentaire Représentatif (VER) [287], des conditions aux limites périodiques sont appliquées pour simuler les chargements élémentaires, ce qui permet une prédiction numérique des constantes du matériau homogène équivalent. Il s'agit donc d'un processus visant à résumer la complexité microscopique du matériau hétérogène en un jeu de propriétés effectives pour le matériau homogène équivalent, rendant ainsi la simulation de structures complexes réalisable. Le cas des performances thermiques est étudié dans cette section.

Le vieillissement accéléré présente des avantages comme:

- La prévision du comportement à long terme;
- L'estimation des cinétiques d'évolution du comportement par le biais des modèles adaptés;
- Temps court de réalisation;
- Détermination des mécanismes (oxydation, fusion, transition vitreuse etc.) relatifs à l'endommagement (dégradation);
- Aisance dans le choix et le contrôle des paramètres de vieillissement;
- Extrapolation simplifiée à partir des résultats;

4.3.1 Valeurs expérimentales de la conductivité thermique des matériaux

Le **Tableau 4.27** présente les propriétés thermiques du PEBD_v et de ses composites renforcés par des fibres d'eucalyptus, à deux fractions massiques (15% et 25%) et sous

deux états (fibres brutes et fibres traitées). Les données révèlent une évolution systématique et significative des propriétés avec l'ajout de charges, permettant de tirer des conclusions sur l'impact des fibres.

La tendance observée est que la conductivité thermique (CT) augmente de façon substantielle avec la teneur en fibres, soit une augmentation de +117% (0,36 vers 0,78 W/m. K respectivement pour PEBD_v et pour PEBD_v25ET). Ce constat est en corrélation avec les travaux de Pradhan et al.[288]. Les fibres lignocellulosiques sont moins conductrices que les charges minérales mais présentent une CT supérieure à celle des thermoplastiques (PEBD~ 0,33-0,35 W/m. K), et, l'utilisation de ces fibres dans les matériaux à matrice PEBD occasionne des chemins préférentiels pour le transfert de la chaleur au sein du PEBD isolant. Le traitement des fibres (ET) améliore légèrement la CT par rapport aux fibres (ENT), cela probablement à cause de la meilleure adhésion interfaciale fibre/matrice qui réduit ainsi la résistance thermique. Les travaux de Li et al., montrent que l'ajout de 30 à 40% de fibres de cellulose peut augmenter la CT de composites de polyoléfines de 50 à 150%, et ceci selon l'orientation et de l'interface.

La densité de flux de chaleur suit la même tendance que la conductivité thermique. Elle augmente significativement avec la charge de fibres, soit +53% entre PEBD_v (379,8 W/m²) et PEBD_v25ET (582,2 W/m²). Étant liée à la CT par la loi de Fourier, théoriquement, un matériau conducteur transfère plus de chaleurs sous un même gradient de température. L'augmentation de cette propriété est une preuve que les composites sont dans l'ensemble conducteur que le polymère pur.

Une augmentation aussi marquée est souvent rapportée pour les composites chargés. Zhou et al., ont montré que l'ajout de fibres de chanvre dans du polypropylène pouvait multiplier la diffusivité thermique par un facteur de 3 à 10, et cela en fonction du volume de la fraction et du traitement des fibres. Cette constatation [289][290] corrobore avec nos résultats.

Par ailleurs, la capacité thermique massique (Cp) diminue avec l'ajout de fibres, soit une diminution de 25% entre PEBD_v (1478,9 J/Kg. K) et PEBD_v (J/Kg. K). En incorporant une charge ayant un Cp plus faible, la valeur effective du composite diminue. L'augmentation de la teneur en fibres de 15% à 25% a un impact bien plus significatif que

le passage de l'état brut à l'état traité. La charge à 25% modifie fondamentalement les propriétés de transfert de chaleur du matériau. Le traitement à améliorer légèrement les propriétés de transfert, très probablement en optimisant l'interface et en réduisant les propriétés, facilitant ainsi le cheminement de la chaleur.

Tableau 4.27 Conductivité thermique en fonction des paramètres

Matériaux	Conductivité thermique (W/m. K)	Densité de flux de chaleur (W/m ²)	Capacité thermique massique (J/Kg. K)	Diffusivité thermique (.10 ⁻⁷ m ² /s)
PEBD _V	0,36 ± 0,001	379,82 ± 06,89	1478,87 ± 12,29	2,58 ± 0,89.10 ⁻⁴
PEBD _V 15ENT	0,41 ± 0,002	473,79 ± 08,78	1331,28 ± 14,12	2,76 ± 0,44.10 ⁻⁴
PEBD _V 15ET	0,43 ± 0,001	478,54 ± 10,16	1387,69 ± 10,19	2,79 ± 0,10 ⁻³
PEBD _V 25ENT	0,67 ± 0,003	567,87 ± 09,54	1111,21 ± 11,89	5,48 ± 0,19.10 ⁻³
PEBD _V 25ET	0,78 ± 0,002	582,16 ± 07,63	1187,29 ± 14,89	5,54 ± 0,54.10 ⁻²

4.3.2 Température au sein de l'éprouvette de flexion

La **Figure 4.45** présente l'évolution de la température en fonction de la position le long du matériau. Les résultats de deux composites PEBD_V25ET et PEBD_V25ENT ont été présentés dans ce document.

On constate qu'à 50 °C, la température imposée dans le domaine de vieillissement thermique des deux composites diminue avec l'augmentation du coefficient de conduction, respectivement de 1,25 W/m/°C et 0,78 W/m/°C. Pour $L \in [0; 1,50 \text{ m}]$ la température chute plus rapidement (-12,62 °C/m) dans le cas de PEBD_V25ET que celle (-8,20 °C/m) du PEBD_V25ENT, ce qui corrobore avec les travaux de Saran et al. [291] qui ont travaillé sur l'analyse numérique et expérimentale du transfert de chaleur des composites en fibres naturelles renforcés par la poussière de verre usagé. Étant donné que le composite PEBDV25ET est renforcé par des fibres traitées, il présente une diminution de la zone amorphe et, par conséquent, la diffusion de la chaleur se transmet plus rapidement dans les structures moléculaires plus ordonnées que dans le cas du composite PEBDV25ENT, dont les fibres n'ont subi aucun traitement et présentent une proportion plus importante de zones amorphes. De plus, le taux de charge de fibre évolue avec la CT. Cette observation est en corrélation avec celle de Bledzki et al. [292]. À 80°C, la même diminution de la

température est observée avec une chute relative aux coefficients de conduction thermique. Pour $L \in [0; 1,50 \text{ m}]$, la chute est de $-33,73^\circ\text{C/m}$ et $-27,49^\circ\text{C/m}$ des composites PEBD_v25ET et PEBD_v25ENT respectivement. Les mêmes observations dans le cas de 50°C corrobore avec 80°C . En comparant les deux températures, on remarque que la vitesse de chauffage du matériau par conduction thermique est proportionnelle à la température de vieillissement. On peut donc déduire de cette observation l'expression suivante, vérifiable dans ces conditions de travail :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha \nabla^2 T \quad 4.8$$

Avec : T = température (en K ou $^\circ\text{C}$) ; t = temps (en s) ; $\alpha = \frac{k}{\rho c_p}$ = diffusivité thermique (en m^2/s) ; k = coefficient de conductivité thermique (en W/m.K) ; c_p = capacité thermique massique (en J/kg. K) et ρ = masse volumique (en kg/m^3). En considérant les facteurs influençant la vitesse de chauffage du composite, c'est-à-dire la conductivité thermique, la capacité thermique massique, l'épaisseur du matériau et la masse volumique; deux d'entre eux confirment cette différence de vitesse de chauffage des composites :

- La conductivité thermique
- La masse volumique (diffusivité thermique)

Plus la conductivité thermique est élevée (cas du composite PEBD_v25ET), plus le chauffage est rapide. De même, moins le matériau est dense, la capacité thermique massique et la conductivité thermique restant constantes, plus la vitesse de chauffage par conduction est importante. Ces deux approches, vérifiées pour les composites PEBD_v25ET, confirment que la vitesse de chauffage des composites est bien dépendante des deux paramètres précités. Bien que d'autres paramètres puissent également exercer une influence, cette section n'a pas approfondi l'analyse en soulignant l'ensemble des paramètres.

Par ailleurs, l'effet de la température sur la vitesse de diffusion de la chaleur (voir **Figure 4.45**, **Figure 4.46**, **Figure 4.47**) s'est révélé spécifique à la conduction thermique, à la masse volumique ainsi qu'à la diffusivité thermique. Plus la température est élevée, plus les composites à base de PEBD se dilatent, perdant ainsi de leur densité. Cette diminution

de densité entraîne une augmentation de la diffusivité, favorisant une diffusion plus rapide de la chaleur au sein du matériau (cas de 80 °C par rapport à 50 °C dans les deux figures). Dans les deux cas de température, la vitesse de diffusion de la chaleur au sein des deux types de composites s'accorde (PEBD_v25ET à 50°C ($2,50 \cdot 10^{-3}$ m/s) et 80°C ($2,53 \cdot 10^{-3}$ m/s) ; PEBD_v25ENT à 50°C ($2,51 \cdot 10^{-3}$ m/s) et 80°C ($2,52 \cdot 10^{-2}$ m/s)) diminue linéairement avant de se stabiliser montrant l'équilibre thermique au sein des matériaux. A noter que la vitesse de diffusion dépend de la fois de la température et du traitement des fibres. Une augmentation de la température favorise une diffusion plus rapide de la chaleur, avec une stabilité thermique correspondante à celle enregistrée expérimentalement (Figure 4.45).

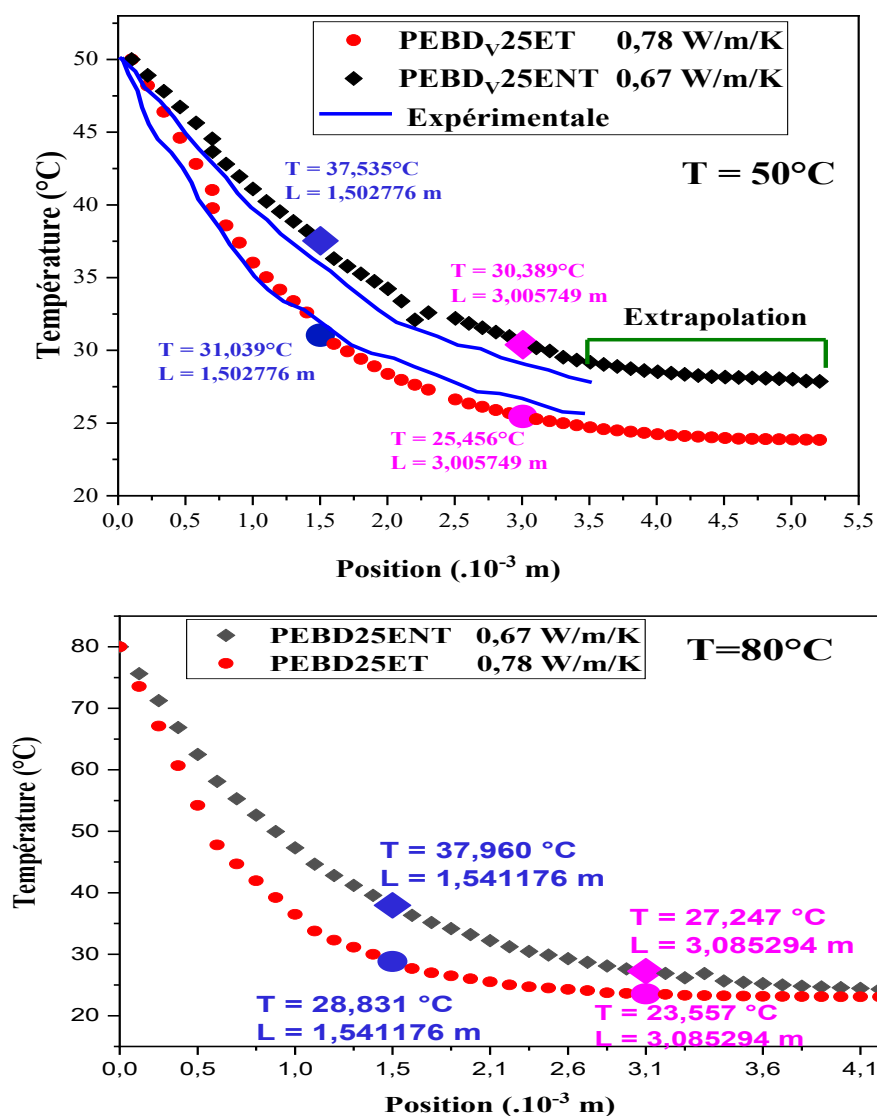


Figure 4.45 Évolution de la température au sein des composites a 50°C et a 80°C

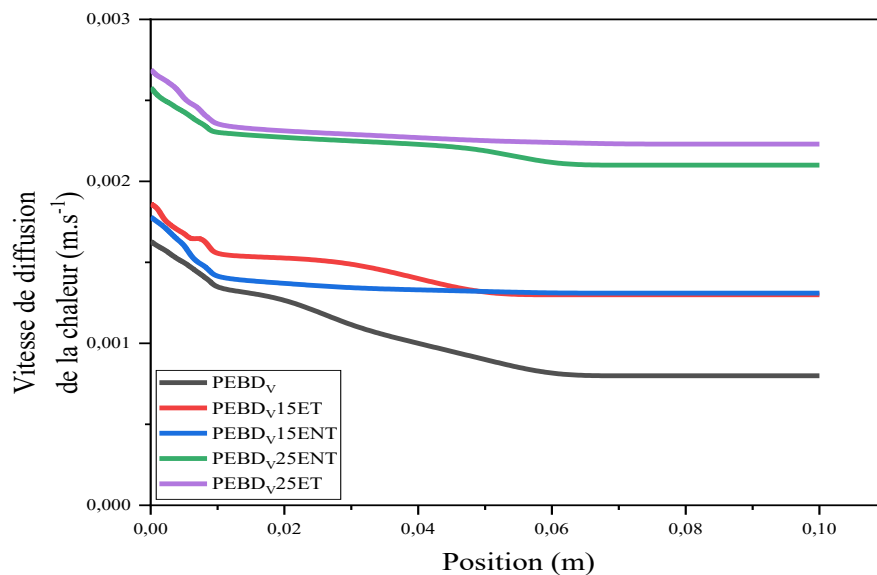


Figure 4.46 Vitesse expérimentale de diffusion de la chaleur au sein du matériau

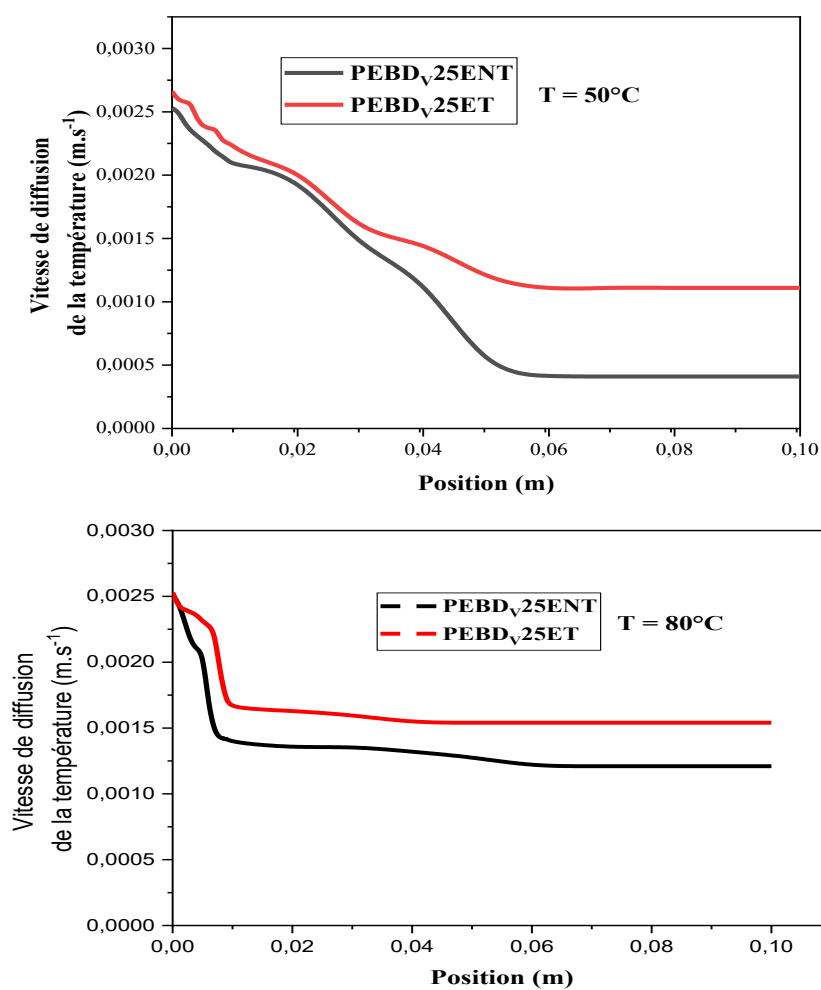


Figure 4.47 Vitesse de propagation de la chaleur le long du matériau

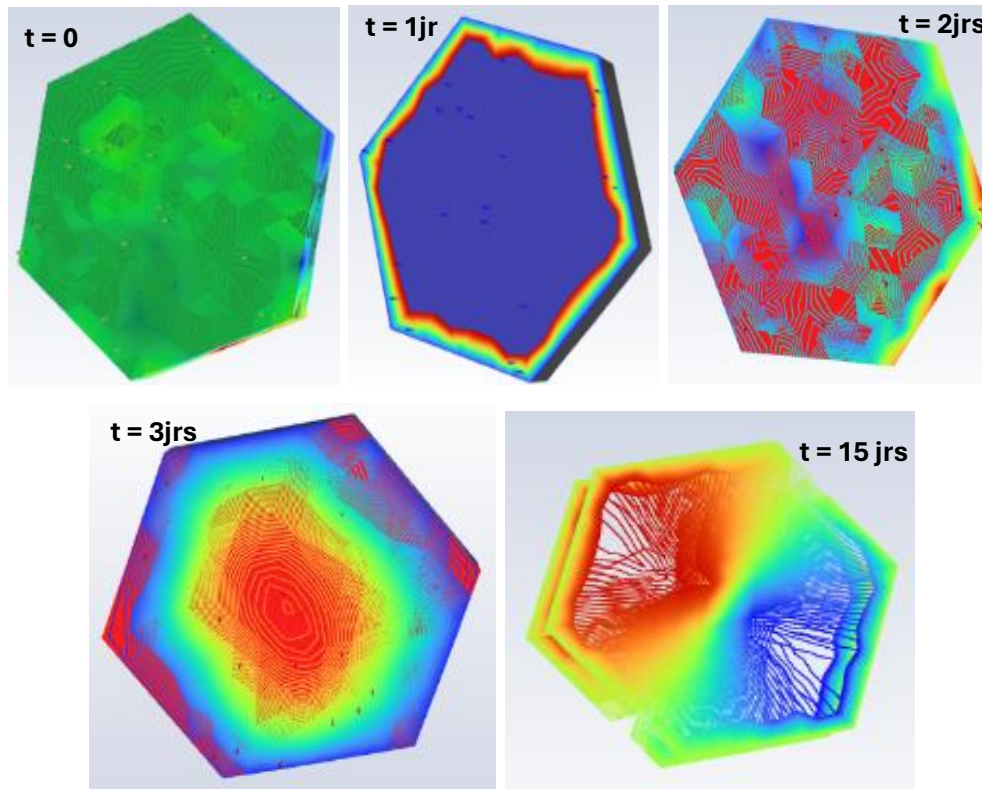


Figure 4.48 Propagation de de la chaleur au sein du matériau pavé en design 3D

On constate également qu'en dehors de la propagation de la chaleur au sein du matériau, au-delà d'une durée d'exposition de 15 jours, le matériau se dégrade par suite de la perte de la matière. La connaissance de la vitesse de propagation de la chaleur dans les matériaux étudiés n'est pas suffisante pour comprendre le comportement de ces derniers vis-à-vis de leur environnement. Il est donc nécessaire de déterminer le flux de chaleur dans ce cas de conduction et de s'assurer de la direction de propagation de ce flux au sein des matériaux étudiés, modélisés en trois D.

4.3.3 Direction et valeurs extrêmes du flux de chaleur

La **Figure 4.49** présente les valeurs maximales et minimales de la densité de flux de chaleur générée dans les composites étudiés, ainsi que les directions de propagation de ce flux. On observe une oscillation, avec des valeurs maximales et dépendantes de la position du flux dans les deux cas de température.

À 50 °C, une diminution du flux, restant linéaire jusqu'aux positions $L = 1,21$ m et $L = 3,50$ m respectivement des composites PEBD_v25ENT et PEBD_v25ET avant de rebondir vers

des valeurs élevées suivi des oscillations. Cette diminution du flux caractérise une propagation faiblement uniforme, due à l'homogénéité de la zone du composite ou à son caractère isotrope, précédemment supposé. L'oscillation du flux, quant à elle, indique que la propagation n'est pas uniforme dans les trois dimensions, ou que le matériau contient au moins deux phases majeures et des interphases telles que :

- La phase amorphe (PEBD et/ou fibres), responsable de la diminution du flux ;
- La phase cristalline (PEBD et/ou fibres), responsable de l'augmentation du flux ;
- L'interphase PEBD-PE-g-MA-Fibre, PEBD-PE-g-MA, PEBD-Fibre ou PE-g-MA-Fibre, qui peut provoquer une diminution ou une augmentation du flux selon leur nature physico-chimique.

À 80 °C, on observe le même mécanisme que précédemment, mais la diminution linéaire est accompagnée d'une oscillation plus tôt dans le composite PEBD_v25ET.

Cependant, la température exerce une influence de manière significative sur la diffusion du flux de chaleur. En comparant les graphiques correspondant aux deux températures, on observe que les flux minimaux sont pratiquement identiques, tandis que le flux maximal est plus élevé à 80 °C. Selon la loi de Fourier, on obtient l'expression 4.9 :

$$q = -k \frac{dT}{dx} \quad 4.9$$

Avec : q = densité de flux de chaleur (en W/m²), k = conductivité thermique du matériau (en W/m. K), et $\frac{dT}{dx}$ = gradient de température (expression de la variation de température par unité de distance) montre, en considérant la **Figure 4.45**, que ce gradient est plus élevé à 80 °C qu'à 50 °C. Or, plus ce gradient est important, plus le flux de chaleur au sein du matériau est élevé. Cela explique la valeur plus importante du flux à 80 °C, en particulier pour le composite PEBD_v25ET.

La conductivité thermique constitue également un indicateur clé de la propagation rapide du flux dans le matériau. Théoriquement, en fonction de la température et du comportement du matériau vis-à-vis de sa conductivité thermique, celui-ci propage la chaleur à une vitesse donnée.

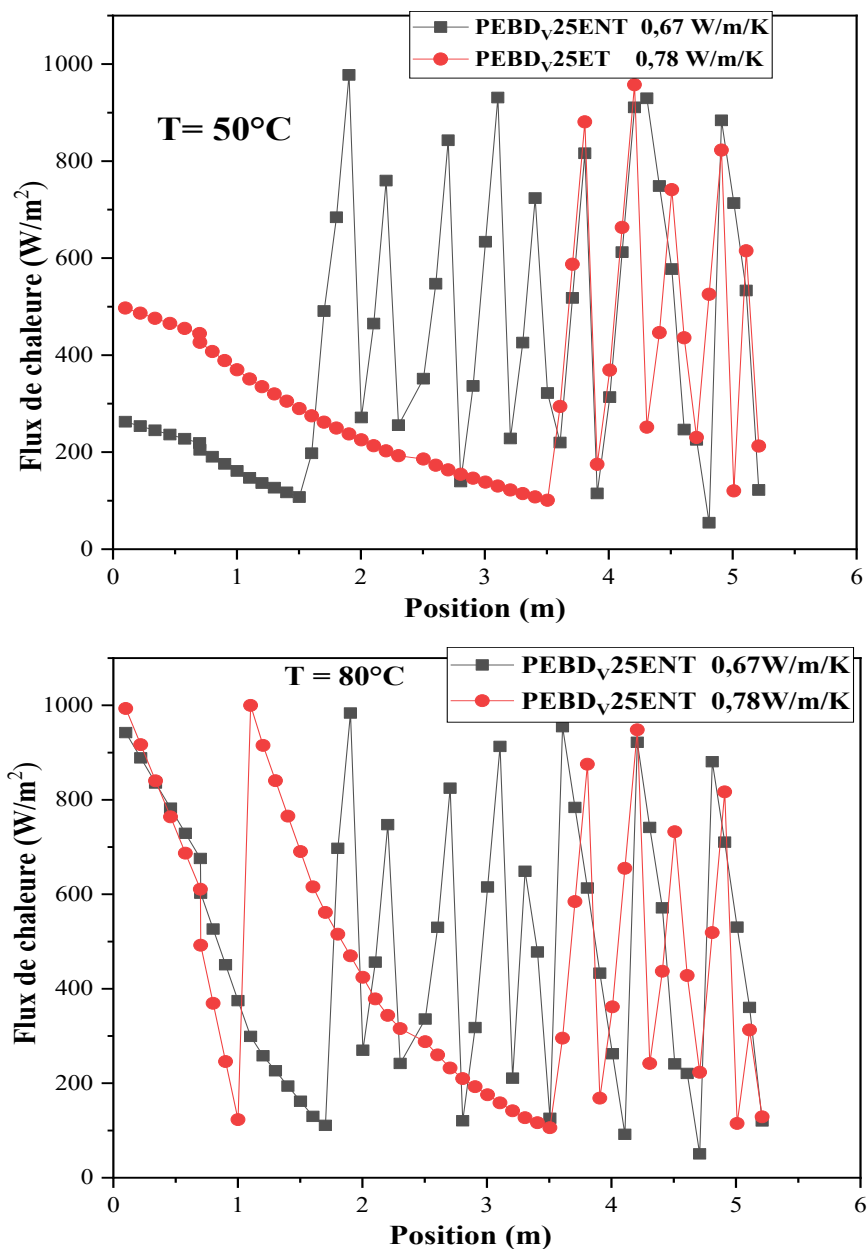


Figure 4.49 Flux de chaleur selon la position à 50°C et 80°C

4.3.4 Déformation symétrique selon la température

La déformation observée (voir **Figure 4.50**) est symétrique et réversible par rapport à la ligne d'application de la température. Cette déformation peut être à l'origine d'une décohésion, d'un gonflement, ou encore de la perte de matière, entraînant ainsi un endommagement du matériau. La déformation maximale, de $1,52 \cdot 10^{-2}$ m est obtenue à la fréquence 1164 Hz. Cette déformation se propage le long de l'axe X, ce qui peut être observée aux extrémités encerclées en couleur bleue.

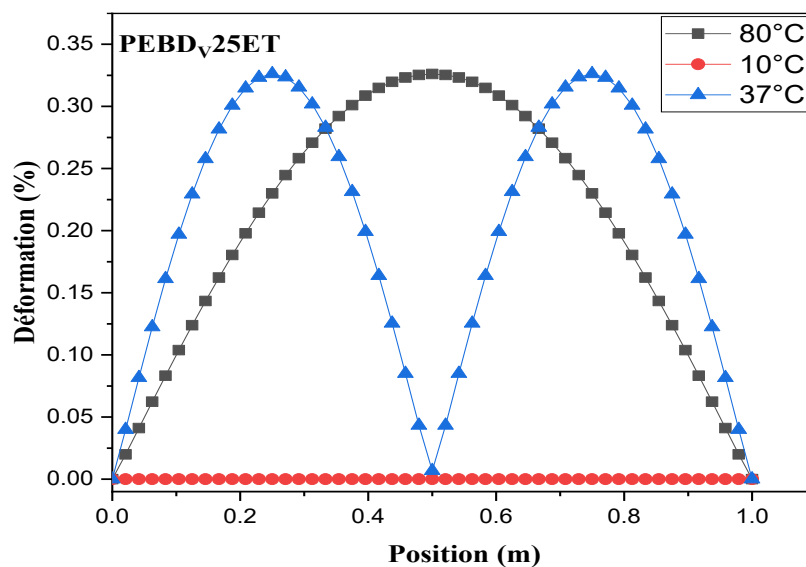
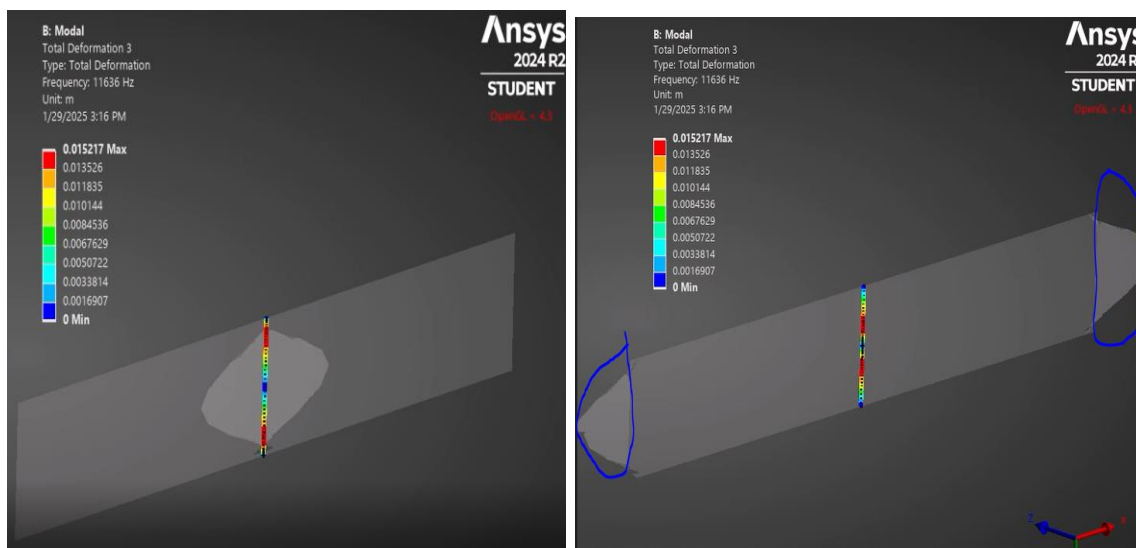


Figure 4.50 Déformation du composite: cas de 80°C en image ANSYS2024-R2

4.3.5 Simulation du phénomène thermique sur le matériau pavé

Dans ce cas, quatre températures différentes ont été appliquées au composite PEBDV25ET, à savoir 10, 37, 50 et 80 °C (Figure 4.51-A). Les deux premières ont été choisies en fonction des conditions environnementales réelles, tandis que les deux dernières ont été sélectionnées pour étudier l'effet de l'augmentation de la température sur la vitesse de propagation de la chaleur et le gradient de température, comme dans le cas précédent. Cependant, seuls les résultats correspondant à 10, 37 et 80 °C sont présentés dans ce

paragraphe. Les conditions aux limites imposées au matériau modélisé ont permis d'observer une augmentation du gradient de température par unité de distance à 10 °C, contrairement à ce qui est observé pour les températures de 37 °C et 80 °C. Ce comportement de diminution ou d'augmentation dépend donc de la température du domaine du matériau.

Les gradients respectifs de -395,13, -190,91 et 368,15°C/m respectivement de 80, 37 et 10°C montrent que l'intensité et le sens de la diffusion de la chaleur au sein du matériau sont fonction de la température et que la propagation se fait à travers le matériau. Le gradient à 10°C confirme que la diffusion du flux se fait dans le sens contraire du gradient et cela est évident théoriquement. La **Figure 4.51-B** illustre l'amplitude de la vitesse de diffusion du flux à 37 °C au cours de la simulation. Elle prend des valeurs maximales de $(2,20 \cdot 10^{-6} \text{m/s})$ et minimale nulle.

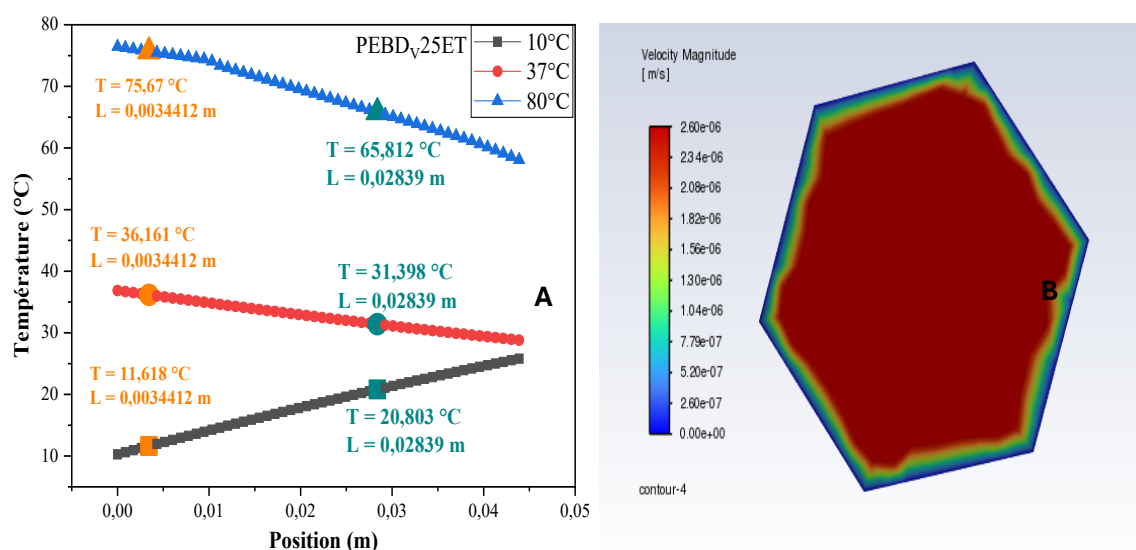


Figure 4.51 Simulation du gradient de température: **A**- gradient. **B**- amplitude à 37°C

4.3.6 Flux de chaleur totale en fonction de la température

La **Figure 4.53** illustre la densité du flux de chaleur dans le sens longitudinal et perpendiculaire à l'axe de vieillissement pour trois types de composites, selon les températures de 37, 50 et 80 °C. On observe une évolution similaire et symétrique du flux

dans les trois cas de composites. Les valeurs maximales sont enregistrées aux extrémités des matériaux et diminuent de manière symétrique vers le centre du matériau. L'extrémité proche de l'origine (0 m) semble présenter une densité de flux plus élevée que l'autre extrémité (0,022 m), notamment pour les températures 50 et 80°C.

La température constitue le facteur ayant influencé de manière significative cette propriété de densité de flux de chaleur. En relève, pour PEBD_v, une densité de flux maximale de 575, 300 et 150 W/m² respectivement à 80, 50 et 37°C. Pour PEBD_v25ENT, ces valeurs sont de 623, 325 et 185 W/m² respectivement aux mêmes températures. Enfin, pour PEBD_v25ET, la densité de flux maximale est de 635, 336 et 188 W/m² respectivement à 80, 50 et 37°C. Il ressort donc qu'une augmentation de la température favorise l'augmentation de la densité de flux de chaleur dans les composites.

Par ailleurs, la **Figure 4.54** présente l'effet de la conductivité thermique des composites sur la densité de flux de chaleur. On constate un effet peu significatif. Les composites PEBD_v25ET (0,78 W/m/K) sont plus diffusifs que les PEBD_v25ENT (0,67 W/m/K), ces derniers diffusants néanmoins plus de chaleur par unité de surface le PEBD_v.

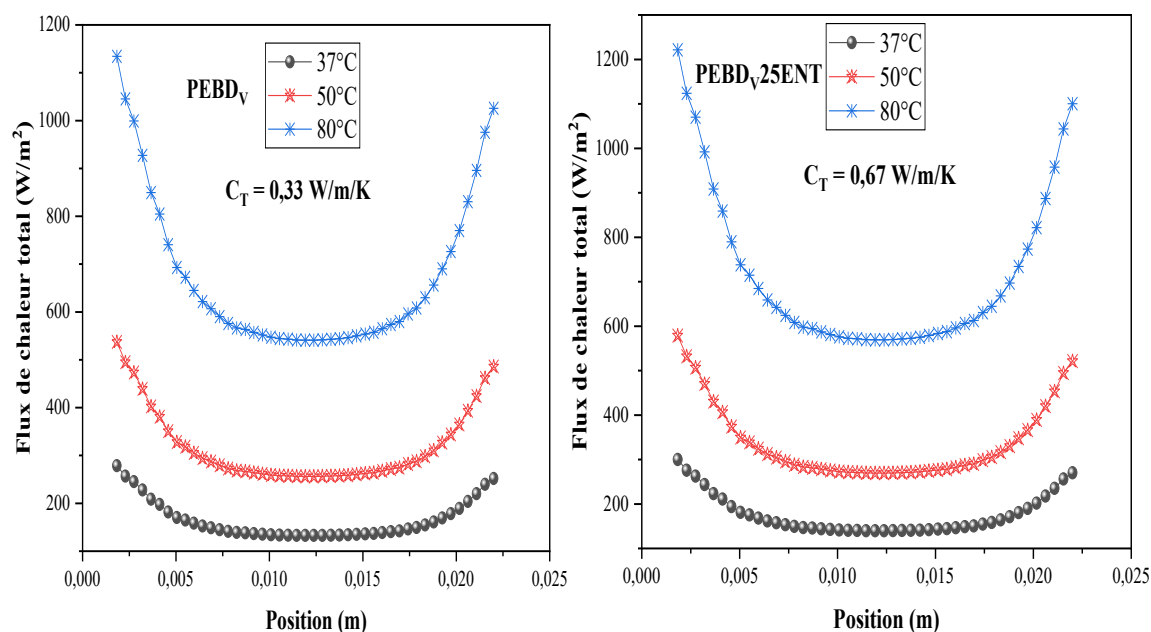


Figure 4.52 a- Effet de la température sur la densité de flux de chaleur

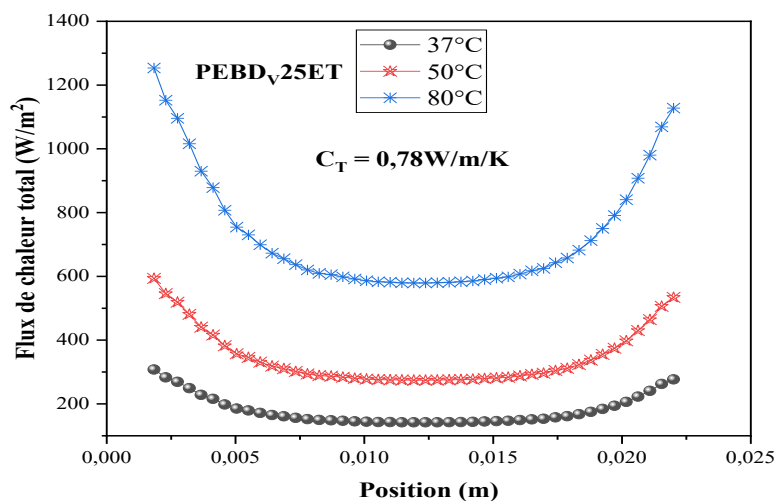


Figure 4.53 b- Effet de la température sur la densité de flux de chaleur

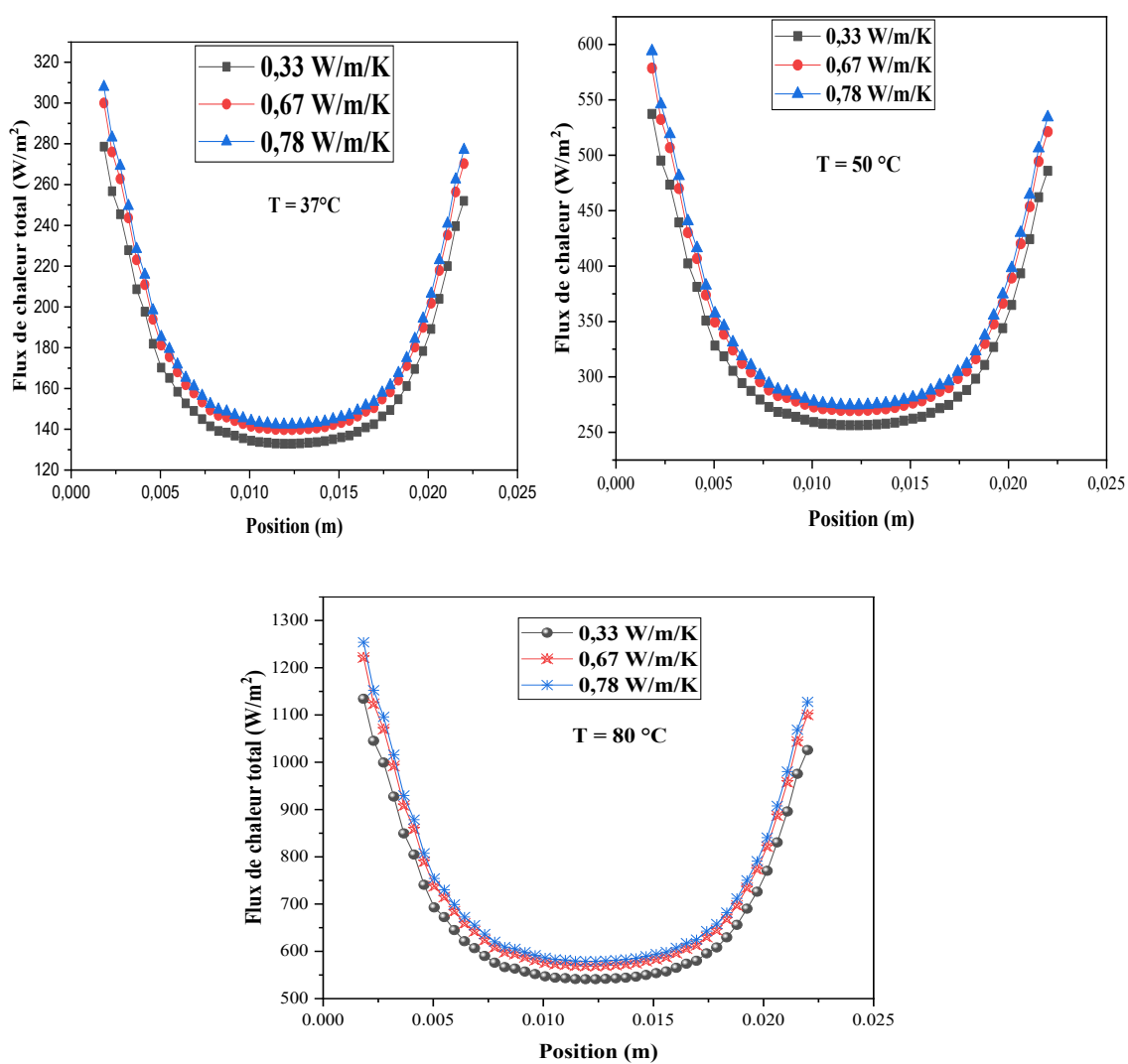


Figure 4.54 Effet de la conductivité thermique sur la densité de flux de chaleur

4.3.7 Vitesse de propagation de flux de chaleur dans le matériau PEVDv25ET

La vitesse de propagation de la densité du flux de chaleur est interpolée sur tous les nœuds des éléments du domaine de maillage afin de déterminer les valeurs le long de l'axe des abscisses. Chaque intersection des lignes droites représente la densité du flux local du matériau suivant cet axe. Le long de l'axe des abscisses, la vitesse d'entrée du flux est constante et égale à $2,00 \cdot 10^{-3}$ m/s tandis qu'elle est de $1,00 \cdot 10^{-3}$ m/s aux axes y et z. le long de l'axe des ordonnées. En effet, bien que la géométrie représentant la vitesse à la sortie du domaine semble similaire suivant les axes des abscisses et des ordonnées, elle apparaît plus uniforme le long de l'axe des abscisses que le long de l'axe des ordonnées. La valeur maximale ($1,50 \cdot 10^{-3}$ m/s) est obtenue à la position zéro, correspondant au centre du domaine étudié. En considérant cette position comme l'origine de l'axe des abscisses, la vitesse évolue de manière symétrique et chute drastiquement pour s'annuler aux extrémités. Cette observation permet de confirmer le caractère isotrope du matériau. Un phénomène inverse est observé le long de l'axe z, où une augmentation de la vitesse ($2,25 \cdot 10^{-3}$ m/s) est constatée entre la position zéro et l'extrémité positif.

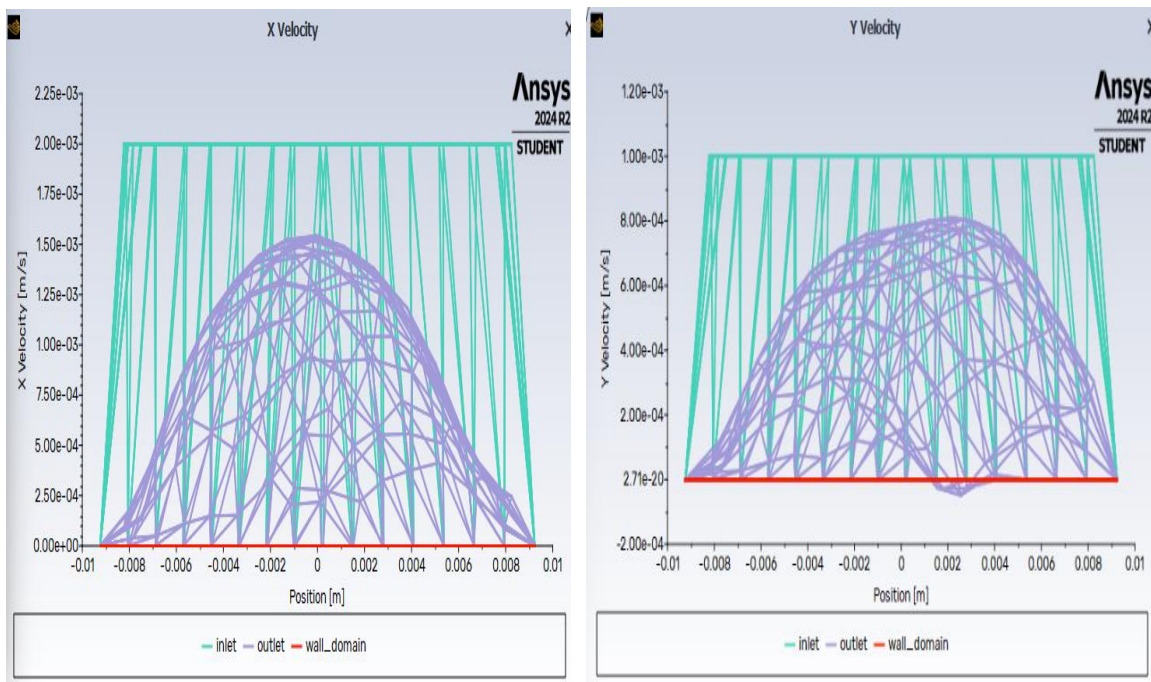


Figure 4.55 a-Vitesse de propagation de la densité de flux de chaleur suivant les axes

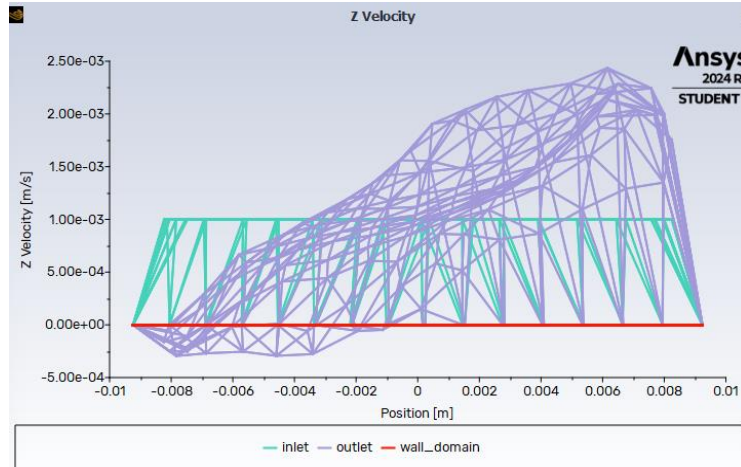


Figure 4.56 b-Vitesse de propagation de la densité de flux de chaleur suivant les axes

L'itération de la vitesse selon les axes x, y et z de la figure 4.49 montre de petites oscillations au début, caractérisant l'initialisation numérique. Cela s'explique également par un paramétrage adéquat du domaine du matériau étudié. La décroissance exponentielle de la vitesse jusqu'à environ 630 itérations, avant de se stabiliser, correspond au régime transitoire et indique l'atteinte de l'équilibre thermique.

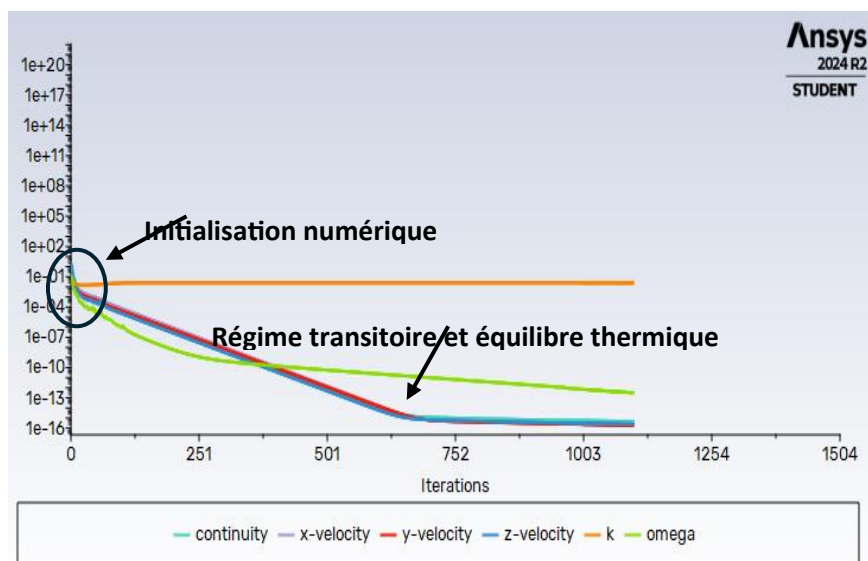


Figure 4.57 Itération de la vitesse de propagation de la densité de flux de chaleur

Cependant, la valorisation en produits utiles dans des domaines tels que la construction constitue une nécessité pour répondre aux problèmes de pollution et de recyclabilité.

Chapitre 5 - Conclusion et Perspectives

Le domaine des matériaux composites nécessite des études approfondies, notamment lorsqu'il s'agit d'incorporer des fibres de bois dans une matrice polymère. Il convient ainsi de considérer la matière cellulosique, qui est chimiquement instable, particulièrement sensible aux groupements hydroxyles. La durabilité de ces matériaux biosourcés demeure un véritable enjeu, constamment étudié. La présente étude s'intéresse principalement à l'influence des facteurs environnementaux, notamment l'humidité et la température, sur les composites de PEBD renforcés par des fibres d'eucalyptus. En effet, les vieillissements thermo-hydriques et en humidité accélérés, réalisés par immersion dans l'eau et selon le modèle d'absorption de Fick, ont été étudiés et analysés.

Conclusion :

Cette étude a permis de conclure ce qui suit :

- L'angle de Contact est amélioré après traitement avec 6% m/v NaOH ($84^{\circ} \pm 1,33$);
- Les propriétés morphologiques et chimiques (MEB-EDX, DRX et le FTIR) sont améliorées pour les composites chargés de fibres traitées;
- Cette présente étude et celle de Yufeng Ma et al. 2017 sont corrélées;
- Rôle de renfort (d'eucalyptus) dans les PE (PEBD), car ces fibres traitées ont améliorées certaines propriétés des composites: PEBDV25ET/PEBDV25ENT (51,16 MPa/41,13 MPa); soit une performance en flexion trois-points augmentée de 24,39%;
- Les travaux de Jingjing et cette étude se corroborent. Ce qui est pertinent pour réduire la dépendance du gisement de pétrole;
- La DMA a montré que, pour les deux fréquences considérées, le module de stockage E' des composites par rapport au PEBD vierge augmente, et cela devient significative lorsque le taux de fibres augmente, ce qui montre que les fibres ont jouées leur rôle de renfort;

- On note une différence du module de stockage comprise entre 50 et 100MPa pour tous les échantillons lors de la comparaison des fréquences 1 et 20Hz. Ce constat est également rapporté par Koffi et Mijiyawa;
- En adoptant le principe de la mécanique des milieux continus pour les composites modélisés dans l'interface ANSYS, les résultats de la simulation des propriétés thermiques permettent de conclure sur l'aspect microscopique des constantes de vitesse de dégradation des composites;

Ces constantes (présentées en annexe) augmentent en fonction de la température (pour 23 °C : 0,0227 – 0,048 j⁻¹ et 0,024 – 0,050 j⁻¹ ; pour 50 °C : 0,021 – 0,052 j⁻¹ et 0,015 – 0,052 j⁻¹ et pour 75 °C : 0,068 – 0,125 j⁻¹ et 0,074– 0,092 j⁻¹). Par ailleurs, la déformation reste variable au sein du matériau modélisé, confirmant l'hétérogénéité à l'échelle microscopique des composites.

Les résultats mécaniques ont été meilleurs pour les composites dont les fibres ont été traitées et dont la fraction a été augmentée. Par exemple, le test de flexion a montré une amélioration de 25%; 46 %; 72% et 114% des composites PEBDV15ENT (max 29,89 MPa), PEBDV15ET (34,76 MPa), PEBDV25ENT (41,13 MPa) et PEBDV25ET (51,16 MPa) par rapport à PEBDV (23,87 MPa) respectivement. La même tendance est obtenue pour les tests de traction. Une meilleure performance est obtenue pour les composites chargés de fibres traitées, contrairement à ceux des fibres non traitées. Dans certains cas de propriétés, l'amélioration est significative (traction, flexion, Charpy), en revanche, dans d'autres cas elle ne l'est pas (par exemple angle de contact, MEB).

Les deux types de vieillissement (thermohydrrique et thermique accéléré) ont permis de mieux comprendre la durabilité des composites dans des conditions bien définies. Cependant, ces deux types de vieillissement n'ont pas favorisé une bonne durabilité des composites, leurs propriétés mécaniques étant dégradées après vieillissement. Par ailleurs, l'absorption d'eau par les composites dépend de la nature et du taux de fibres. Les composites à faible taux de fibres et à fibres traitées absorbant moins d'eau. Il est également important de noter que le coefficient de diffusion, dépendant de l'énergie d'activation, elle-

même liée à la température du milieu hydrique est plus élevée pour les composites à fibres non traitées et à forte fraction de fibres.

L'approche par éléments finis du phénomène thermique a permis de comprendre l'aspect microscopique, notamment le flux de chaleur, la vitesse de diffusion du flux ainsi que la densité du flux de chaleur dans les matériaux selon les conditions aux limites. On observe une corrélation entre les vitesses expérimentales (figure 4.41) et numériques (figures 4.38 et 4.46) de propagation du flux de chaleur, ainsi qu'avec les vitesses numériques obtenues par itération (figure 4.49) [291][288][292]. Compte tenu du manque de certains matériels de production et d'analyse, cette étude n'a pas abordé les deux aspects suivants :

- L'analyse de la qualité des fibres (diamètre, nombre de fibres par unité de masse);
- La formulation des engrenages.

Recommandation et perspectives

Le comportement thermomécanique des matériaux composites à matrice thermoplastique (TP), thermodurcissable (TD) ou élastomère, renforcés par des fibres naturelles, ainsi que leur durabilité face aux facteurs environnementaux, est complexe et pluridisciplinaire (physico-chimie des matériaux, mécanique des matériaux, etc.).

➤ À cet égard, cette étude recommande :

- L'analyse thermique de calorimétrie différentielle à balayage (DSC) afin de déterminer les transitions thermiques comme T_g et T_m ;
- L'analyse thermogravimétrique (TGA) qui permet d'étudier la stabilité thermique et la dégradation des fibres naturelles;
- Chacune de ces analyses sur le matériau composite afin de comprendre l'influence des paramètres sur leur tenue thermique et rhéologique;
- Par exemple, pour les études de vieillissement, mettre en évidence tous les types de mécanismes qui puissent influencer le vieillissement comme le cas des oxydations, des endommagements (initiation, propagation, phase irréversible) à long terme.

Par ailleurs, afin d'interpréter avec précision la durabilité des composites, les études doivent également être réalisées dans des conditions réelles, en dehors des conditions accélérées.

Il est donc primordial de soumettre les différents matériaux aux conditions environnementales réelles, tout en définissant les paramètres d'étude (par exemple, l'humidité relative, la température, la pression, les conditions de rayonnement UV, etc.) selon les saisons.

➤ **En perspectives :**

- **Étude du comportement rhéologique des composites**
 - Analyse thermique et de calorimétrie différentielle à balayage (DSC) afin de déterminer les transitions thermiques comme T_g et T_m;
 - Optimiser la qualité et la fonctionnalité des matériaux finis connaissant leurs déformations.
- **Optimiser les réactions de mercerisation**
 - Étudier plusieurs cas de concentration en m/v NaOH et de combinaison des paramètres temps et température pour minimiser leur effet sur la qualité des fibres et sur l'environnement immédiat.
- **Prédiction des contraintes physico-chimiques et mécanique qui affecte la durabilité et la performance des composites biosourcés**
 - Étude des phénomènes et leurs mécanismes intrinsèques sur le vieillissement hydrothermique des composites: cas des oxydations, des endommagements (initiation, propagation, phase irréversible) à long terme.

Par ailleurs, en récapitulatif sur la composition de cette étude de thèse, le premier chapitre, consacré à l'introduction générale, a permis de situer la présente étude dans son contexte. La demande croissante de matériaux biosourcés dans des secteurs tels que l'automobile, l'aéronautique ou la construction contraint les industriels et les chercheurs à utiliser des thermodurcissables ou des thermoplastiques comme matrices, renforcées par des fibres naturelles relève généralement de la végétation. Cela a permis à chaque entité de développement des approches méthodologiques fondées sur la théorie des matériaux. Ce chapitre aborde également la problématique de la pollution liée aux effluents plastiques et la nécessité de les recycler afin de réduire leur impact sur les compartiments eau, air et sol, tout en présentant l'objectif général et les objectifs spécifiques de l'étude. Le deuxième chapitre traite du cadre théorique et de la recension des écrits. Les approches méthodologiques et les théories régissent le domaine des matériaux composites y sont

exposées. Étant donné le volume des études existantes dans ce domaine, une recension des écrits a été réalisée afin de présenter les travaux antérieurs, en mettant l'accent sur les matériaux biosourcés, leurs propriétés recherchées et les méthodologies généralement employées. Par ailleurs, ce chapitre présente également la ressource d'eucalyptus ainsi que les procédés de vieillissement hydrique et thermo-hydrique dans des conditions accélérées.

Ainsi, le chapitre trois a traité de la méthodologie de l'étude tout en présentant les appareils de mesure (FTIR-ATR, MEB-EDX, DRX, balance, pycnomètre, etc.) et les dispositifs de test (Intron, Charpy, goulotte de puits, DMA, système de vieillissement, etc.) utilisés pour la caractérisation physico-chimique des fibres, ainsi que pour l'évaluation des propriétés mécaniques et de durabilité des composites PEBD-fibre d'eucalyptus formulés.

Le chapitre quatre a présenté les résultats et discussions de la présente étude en deux parties. La première partie a exposé les différents résultats, tels que la caractérisation physico-chimique des fibres d'eucalyptus produites et les essais mécaniques des composites en état d'éprouvette non vieillissant. Ces résultats ont ensuite été comparés entre matériaux recyclés et non recyclés, puis confrontés aux données de la littérature. La deuxième partie a présenté les résultats relatifs au vieillissement accéléré des composites, en mettant l'accent sur l'influence des paramètres déterminant le vieillissement, ainsi que sur la performance de ces matériaux. Afin de mieux comprendre la corrélation entre l'expérimentation et le comportement réel des matériaux soumis au vieillissement thermique (cas étudiés), une approche par la méthode des éléments finis a été réalisée à l'aide de l'outil ANSYS-2024, où les données expérimentales de vieillissement thermique ont été implémentées. Enfin, le chapitre cinq propose une synthèse des différents chapitres de cette thèse (figure 5.1), tout en mettant en évidence les contenues.

Chapitre 6 - Référence bibliographique

- [1] « (PDF) Caractérisation des déchets plastiques et leur valorisation dans le béton au Togo », ResearchGate. Consulté le: 10 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: https://www.researchgate.net/publication/368817673_Caracterisation_des_dechets_plastiques_et_leur_valorisation_dans_le_beton_au_Togo
- [2] K. E. Koledzi, G. Baba, J. Agbebavi, D. Koffi, et G. Matejka, « Gestion des déchets dans les villes en développement : transfert, adaptation de schéma et sources de financement », *Environ. Ingénierie Dév.*, vol. N°68-Novembre 2014, p. 7814, nov. 2014, doi: 10.4267/dechets-sciences-techniques.169.
- [3] C. Tissandier, R. C. V. Fletes, R. González-Núñez, et D. Rodrigue, « Microcellular Agave Fibre-High Density Polyethylene Composites Produced by Injection Molding », vol. A 2 (11) (2012) 677-692, p. 16, 2012.
- [4] A. K. Mohanty, M. Misra, et L. T. Drzal, « Sustainable Bio-composites from Renewable Resources: Opportunities and Challenges in the Green Materials World », in *Renewable Energy*, 1^{re} éd., B. Sørensen, M. A. Green, P. Lund, A. Luque, I. MacGill, P. Meibom, N. I. Meyer, W. Patterson, S. L. Pedersen, A. Rabl, H. Tsuchiya, et G. Watt, Éd., Routledge, 2018, p. 396-409. doi: 10.4324/9781315793245-107.
- [5] F. Mijiyawa, D. Koffi, B. V. Kokta, et F. Erchiqui, « Formulation and tensile characterization of wood-plastic composites: Polypropylene reinforced by birch and aspen fibers for gear applications », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 28, n° 12, p. 1675-1692, déc. 2015, doi: 10.1177/0892705714563120.
- [6] A. Koffi, F. Mijiyawa, D. Koffi, F. Erchiqui, et L. Toubal, « Mechanical Properties, Wettability and Thermal Degradation of HDPE/Birch Fiber Composite », *Polymers*, vol. 13, n° 9, p. 1459, avr. 2021, doi: 10.3390/polym13091459.
- [7] K. K. Agbozouhou, D. Koffi, F. Erchiqui, et S. Barnabé, « ZnO Treatment on Mechanical Behavior of Polyethylene/Yellow Birch Fiber Composites When Exposed to Fungal Wood Rots », 3 août 2023. doi: 10.20944/preprints202308.0225.v1.
- [8] A. Bravo, L. Toubal, D. Koffi, et F. Erchiqui, « Development of novel green and biocomposite materials: Tensile and flexural properties and damage analysis using acoustic emission », *Mater. Des. 1980-2015*, vol. 66, p. 16-28, févr. 2015, doi: 10.1016/j.matdes.2014.10.026.
- [9] « Polymer Engineering Sci - 2007 - Huang - Nonisothermal crystallization behavior and nucleation of LDPE Al nano- and.pdf ».
- [10] P. N. Khanam et M. A. A. AlMaadeed, « Processing and characterization of polyethylene-based composites », *Adv. Manuf. Polym. Compos. Sci.*, vol. 1, n° 2, p. 63-79, avr. 2015, doi: 10.1179/2055035915Y.0000000002.

- [11] X. Fang *LW Fan, Q Ding, XL Yao, YY Wu, JF Hou, X Wang, ZT Yu, GH Cheng, YC Hu*, « Thermal energy storage performance of paraffin-based composite phase change materials filled with hexagonal boron nitride nanosheets », *Energy Convers. Manag.*, vol. 80, p. 103-109, 2014.
- [12] L. Fang, Y. Leng, et P. Gao, « Processing of hydroxyapatite reinforced ultrahigh molecular weight polyethylene for biomedical applications », *Biomaterials*, vol. 26, n° 17, p. 3471-3478, juin 2005, doi: 10.1016/j.biomaterials.2004.09.022.
- [13] *Science des matériaux*. La Vergne (Tenn.): MyiLibrary, 2010.
- [14] K. Bourai, « Étude du comportement thermique d'un composite bois-polymère pour une application en rotomoulage ». Université Laval Canada, 2010
- [15] « Lionel Gendre 6622-les-grandes-familles-de-matériaux-composites-ensps.pdf, Edité le 04/05/2011 ».
- [16] A. Sauget, « Développement de matériaux composites fibreux hautes performances à matrice bio-sourcée », Université de Lorraine, 2014.
- [17] T. N. Ho Thi, « Étude de l'influence de la température et de l'humidité sur les propriétés mécaniques en traction des fibres de chanvre et de coco », PhD Thesis, École de technologie supérieure, 2008. Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://espace.etsmtl.ca/id/eprint/128>
- [18] D. Scida, M. Assarar, R. Ayad, et C. Poilâne, « Effet de l'humidité sur le comportement mécanique des composites à fibres de lin », U Poitiers, Comptes Rendus des JNC 17 - Poitiers 2011, 2011. [En ligne]. Disponible sur: <https://hal.science/hal-00597760v1>
- [19] M. Rouch, « Contribution à la compréhension des mécanismes de vieillissement hydrothermique de matériaux composites unidirectionnels polyester insaturé/fibre de lin », Normandie Université, Normandie Université, 2018. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-01842261v1>
- [20] Z. Samouh, « Textiles à base de fibres naturelles d'origine marocaine pour application matériaux composites », PhD Thesis, Centrale Lille Institut; Université Chouaïb Doukkali. Faculté des sciences ..., 2021. Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-03976587/>
- [21] A. Bravo, L. Toubal, D. Koffi, et F. Erchiqui, « Development of novel green and biocomposite materials: Tensile and flexural properties and damage analysis using acoustic emission », *Mater. Des. 1980-2015*, vol. 66, p. 16-28, 2015, Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0261306914008140?casa_token=isciff6wcteaiaaaa:idmwzj-7n1p6apjhpburxue-3vq5yueki2b26nwynjn7bvverhtuuq9zzmk2btdpautkxp3o
- [22] A. Bravo, L. Toubal, D. Koffi, et F. Erchiqui, « Characterization of Tensile Damage for a Short Birch Fiber-reinforced Polyethylene Composite with Acoustic Emission », *Int. J. Mater. Sci.*, vol. 3, n° 3, 2013.

- [23] A. Koffi, F. Mijiyawa, D. Koffi, F. Erchiqui, et L. Toubal, « Mechanical Properties, Wettability and Thermal Degradation of HDPE/Birch Fiber Composite », *Polymers*, vol. 13, n° 9, p. 1459, avr. 2021, doi: 10.3390/polym13091459.
- [24] F. Mijiyawa, D. Koffi, B. V. Kokta, et F. Erchiqui, « Formulation and tensile characterization of wood–plastic composites: Polypropylene reinforced by birch and aspen fibers for gear applications », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 28, n° 12, p. 1675-1692, déc. 2015, doi: 10.1177/0892705714563120.
- [25] T. Le Hoang, « Etude de caractérisation du comportement de composites cimentaires incorporant des fibres courtes de lin », PhD Thesis, Caen, 2013. Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.fr/2013caen2042>
- [26] J. Page, « Formulation et caractérisation d'un composite cimentaire biofibré pour des procédés de construction préfabriquée », PhD Thesis, Normandie Université, 2017. Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-01713160/>
- [27] K. Van de Velde et P. Kiekens, « Thermoplastic pultrusion of natural fibre reinforced composites », *Compos. Struct.*, vol. 54, n° 2-3, p. 355-360, 2001, Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0263822301001106?Casa_token=nnut7pgw2k0aaaa:LRV-zdfpupda0cjkgz8-byzlsd1a_d6n57fx0udfxsjydu2fzcs1kix4eogploaw0fls
- [28] G. Ramakrishna et T. Sundararajan, « Studies on the durability of natural fibres and the effect of corroded fibres on the strength of mortar », *Cem. Concr. Compos.*, vol. 27, n° 5, p. 575-582, 2005, Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0958946504001489?Casa_token=nvotexrzbauaaaa:nudl_tuxngy5au1kxiqmyale_a-svdvaaavtrc4jolc2e2i07hzw3vh7usrsetyouojzrpn
- [29] « cimbetonbetons_Formulation_fabrication2 ». http://www.sofaper.fr/upload/Dossiers%20techniques/cimbeton%20betons_Formulation_fabrication2.pdf
- [30] 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.
- [31] Y. Djeboun, « Contribution à la caractérisation des matériaux composites renforcés de fibres végétales », Université Mohamed khider Biskra, 2018.
- [32] A. Mokhtari, « Modélisation du comportement et de la rupture des composites a matrices thermoplastiques », Centre de Recherche en Technologies Industrielles (CRTI), 2016.
- [33] « Fibre de chanvre industriel », Hash Marihuana & Hemp Museum. Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://hashmuseum.com/fr/connaissances-sur-le-cannabis/chanvre-industriel/fibre-de-chanvre-industriel/>

- [34] yoanngsp, « Le lin, fibre textile naturelle et écologique », GSP Textile. Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.gsp-textile.fr/le-lin-fibre-textile-naturelle-et-ecologique/>
- [35] I. Duquesne, « Bambou : La force de la durabilité et de la résistance », Blog GiftCampaign.fr. Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.giftcampaign.fr/blog/bambou/>
- [36] « Comment fabriquer de la pâte d'eucalyptus ? | Fabrication de pâte de bois ». Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://paperpulingmachine.com/applications/wood-pulp-making/eucalyptus-pulp-making/>
- [37] « Isoler son sol avec de la fibre de coco », Mon-isolation.pro. Consulté le: 21 mars 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.mon-isolation.pro/isoler-sol-de-fibre-de-coco/>
- [38] L. Boukezzi, « Influence du vieillissement thermique sur les propriétés du polyéthylène réticulé chimiquement utilisé dans l'isolation des câbles de haute tension », Ecole Nationale Polytechnique, 2007.
- [39] D. Khaled, « Étude des vieillissements artificielles d'un film de polyéthylène basse densité (PEBD)(«Température, Eau et Rayons UV») », Université Ibn Khaldoun-Tiaret-, 2011.
- [40] <https://www.mcours.net/cours/pdf/yass3/yass3cli992.pdf> « Thermoplastiques renforcés de fibres de verre courtes bibliographie et démarche.pdf ».
- [41] H. Khaled, « Caractérisation du polyéthylène basse densité soumis aux irradiations ultraviolettes », PhD Thesis, Université Mouloud Mammeri, 2018. Consulté le: 8 avril 2025. [En ligne]. Disponible sur: https://www.ummo.dz/dspace/bitstream/ummo/8511/1/AitRahmaneAbderrahmane_Hetta kKhaled.pdf
- [42] K. Joseph, S. Thomas, et C. Pavithran, « Viscoelastic properties of short-sisal-fiber-filled low-density polyethylene composites: effect of fiber length and orientation », *Mater. Lett.*, vol. 15, n° 3, p. 224-228, nov. 1992, doi: 10.1016/0167-577X(92)90150-I.
- [43] P. V. Joseph, G. Mathew, K. Joseph, G. Groeninckx, et S. Thomas, « Dynamic mechanical properties of short sisal reinforced polypropylene composites ». *Composites Part A: applied science and manufacturing*, vol. 34, n°3, p. 275-290, 2003
- [44] E. Berrich, R. Alkhatib, N. Crespo, et M. Tazerout, « étude du comportement de dégradation de déchets thermoplastiques », p. 20-35, 2014. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.agir.ro/buletine/2194.pdf>
- [45] P. Kostka, K. Holeczek, R. Höhne, A. Filippatos, et N. Modler, « Extension and application of dynamic mechanical analysis for the estimation of spatial distribution of material properties », *Polym. Test.*, vol. 52, p. 184-191, juill. 2016, doi: 10.1016/j.polymertesting.2016.04.019.
- [46] J. W. Hearle, *Polymers and their properties*, vol. 1. E. Horwood, 1982.

- [47] T. Murayama, *Polymers: an encyclopedic source book of engineering properties encyclopedia reprint series*. John Wiley & Sons, New York, 1987.
- [48] K. Sewda et S. N. Maiti, « Dynamic mechanical properties of high density polyethylene and teak wood flour composites », *Polym. Bull.*, vol. 70, p. 2657-2674, 2013.
- [49] G. W. Ehrenstein, G. Riedel, et T. Pia, *Thermal analysis of polymers*. Carl Hanser Verlag, Munich, 2004.
- [50] « Chala Khaoula, D. Smail; Élaboration et caractérisation d'un matériau à base de Polyéthylène basse densité recyclé et chargé par le Talc; p78, 2016 ».
- [51] A. Lahrouni et J. Arman, « Étude de mélanges de polyéthylène et de polystyrène par diffraction de rayons X et par densimétrie », *Eur. Polym. J.*, vol. 31, n° 4, p. 347-352, avr. 1995, doi: 10.1016/0014-3057(94)00187-1.
- [52] K. A. Moly, H. J. Radosch, R. Androsh, S. S. Bhagawan, et S. Thomas, « Nonisothermal crystallisation, melting behavior and wide angle X-ray scattering investigations on linear low density polyethylene (LLDPE)/ethylene vinyl acetate (EVA) blends: effects of compatibilisation and dynamic crosslinking », *Eur. Polym. J.*, vol. 41, n° 6, p. 1410-1419, juin 2005, doi: 10.1016/j.eurpolymj.2004.10.016.
- [53] D.-H. Chen, L. Hong, X.-W. Nie, X.-L. Wang, et X.-Z. Tang, « Study on rheological properties and relaxational behavior of poly(dianilinephosphazene)/low-density polyethylene blends », *Eur. Polym. J.*, vol. 39, n° 5, p. 871-876, mai 2003, doi: 10.1016/S0014-3057(02)00348-8.
- [54] Y. Ma, C. Wang, et F. Chu, « Effects of fiber surface treatments on the properties of wood fiber-phenolic foam composites », *BioResources*, vol. 12, n° 3, p. 4722-4736, 2017, Consulté le: 25 septembre 2025. [En ligne]. Disponible sur: https://bioresources.cnr.ncsu.edu/wp-content/uploads/2017/05/BioRes_12_3_4722_Ma_WC_Effect_Fiber_Surface-Treatm_Props_Wood-Fiber_Phenolic_Foam_composites_11691.pdf
- [55] C. A. Koufopoulos, A. Lucchesi, et G. Maschio, « Kinetic modelling of the pyrolysis of biomass and biomass components », *Can. J. Chem. Eng.*, vol. 67, n° 1, p. 75-84, 1989.
- [56] S. M. Ward et J. Braslaw, « Experimental weight loss kinetics of wood pyrolysis under vacuum », *Combust. Flame*, vol. 61, n° 3, p. 261-269, 1985.
- [57] Z. Chen, Q. Zhu, X. Wang, B. Xiao, et S. Liu, « Pyrolysis behaviors and kinetic studies on Eucalyptus residues using thermogravimetric analysis », *Energy Convers. Manag.*, vol. 105, p. 251-259, nov. 2015, doi: 10.1016/j.enconman.2015.07.077.
- [58] Z. Chen *et al.*, « Characteristics and kinetic study on pyrolysis of five lignocellulosic biomass via thermogravimetric analysis », *Bioresour. Technol.*, vol. 192, p. 441-450, sept. 2015, doi: 10.1016/j.biortech.2015.05.062.
- [59] 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.

- [60] J. A. Caballero, R. Font, A. Marcilla, et A. N. Garcia, « Flash pyrolysis of Klason lignin in a Pyroprobe 1000 », *J. Anal. Appl. Pyrolysis*, vol. 27, n° 2, p. 221-244, 1993, Consulté le: 9 décembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/016523709380011N>
- [61] F. Shafizadeh, « Pyrolytic reactions and products of biomass », in *Fundamentals of thermochemical biomass conversion*, Springer, 1985, p. 183-217.
- [62] C. Branca, A. Albano, et C. Di Blasi, « Critical evaluation of global mechanisms of wood devolatilization », *Thermochim. Acta*, vol. 429, n° 2, p. 133-141, 2005, Consulté le: 9 décembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0040603105001541?casa_token=EH9m_swyc8caaaaa:kcvojkqaodjkqr74u8qpiop59qgmakvywql_Chom2g8xsgdp1vrnpzaa8vitaqozlofehdcqpw
- [63] P. V. Joseph, G. Mathew, K. Joseph, G. Groeninckx, et S. Thomas, « Dynamic mechanical properties of short sisal @bre reinforced polypropylene composites », *Composites Part A* 34, p. 275-290, 2003, [En ligne]. Disponible sur: www.elsevier.com/locate/compositesa
- [64] I. Mohagheghian, G. J. McShane, et W. J. Stronge, « Impact perforation of monolithic polyethylene plates: Projectile nose shape dependence », *Int. J. Impact Eng.*, vol. 80, p. 162-176, juin 2015, doi: 10.1016/j.ijimpeng.2015.02.002.
- [65] F. Gehring, « Étude du comportement mécanique et de l'endommagement de composites thermoplastiques renforcés de fibres courtes de chanvre: approche expérimentale et modélisation ». Université de Lorraine: Nancy, France, 2013
- [66] Demagna Koffi et F. Mijiyawa, « Formulation, caractérisation, modélisation et prévision du comportement thermomécanique des pièces plastiques et composites de fibres de bois: application aux engrenages », UQTR, 2018. Consulté le: 20 août 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://depot-e.uqtr.ca/id/eprint/8378/1/031930988.pdf>
- [67] M. Tazi, F. Erchiqui, F. Godard, et M. Bouazara, « Effet de la température sur les propriétés rhéologiques et thermo- physiques d'un composite plastique-bois », vol. 2, 2011.
- [68] A. Pizzi et K. L. Mittal, *Handbook of adhesive technology*, New York: Marcel Dekker, 1994. p. 19. CRC press, 2017.
- [69] J. George, K. Joseph, S. S. Bhagawan, et S. Thomas, « Influence of short pineapple fiber on the viscoelastic properties of low-density polyethylene », *Mater. Lett.*, vol. 18, n° 3, p. 163-170, 1993, Consulté le: 7 décembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0167577X9390119I>
- [70] J. Kubát, M. Rigdahl, et M. Welander, « Characterization of interfacial interactions in high density polyethylene filled with glass spheres using dynamic-mechanical analysis », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 39, n° 7, p. 1527-1539, avr. 1990, doi: 10.1002/app.1990.070390711.
- [71] K. Joseph, S. Thomas, et C. Pavithran, « Dynamic Mechanical Properties of Short Sisal Fiber Reinforced Low Density Polyethylene Composites », *J. Reinf. Plast. Compos.*, vol. 12, n° 2, p. 139-155, févr. 1993, doi: 10.1177/073168449301200202.

- [72] W. S. Carvalho et R. E. Bretas, « Thermoplastic/carbon fibre composites: correlation between interphase morphology and dynamic mechanical properties », *Eur. Polym. J.*, vol. 26, n° 7, p. 817-821, 1990, Consulté le: 7 décembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/001430579090135Q>
- [73] L. Kehler, D. Wicht, J. T. Wood, et T. Böhlke, « Dynamic mechanical analysis of pure and fiber-reinforced thermoset- and thermoplastic-based polymers and free volume-based viscoelastic modeling », *gamm-mitteilungen*, vol. 41, n° 1, p. e201800007, avr. 2018, doi: 10.1002/gamm.201800007.
- [74] S. C. Tjong, S.-A. Xu, R. K.-Y. Li, et Y.-W. Mai, « Mechanical behavior and fracture toughness evaluation of maleic anhydride compatibilized short glass fiber/SEBS/polypropylene hybrid composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 62, n° 6, p. 831-840, mai 2002, doi: 10.1016/S0266-3538(02)00037-4.
- [75] P. Kostka, K. Holeczek, A. Filippatos, A. Langkamp, et W. Hufenbach, « In situ integrity assessment of a smart structure based on the local material damping », *J. Intell. Mater. Syst. Struct.*, vol. 24, n° 3, p. 299-309, févr. 2013, doi: 10.1177/1045389X12462650.
- [76] J. L. Thomason, « Investigation of composite interphase using dynamic mechanical analysis: Artifacts and reality », *Polym. Compos.*, vol. 11, n° 2, p. 105-113, avr. 1990, doi: 10.1002/pc.750110206.
- [77] A. Koffi, F. Mijiyawa, D. Koffi, F. Erchiqui, et L. Toubal, « Mechanical Properties, Wettability and Thermal Degradation of HDPE/Birch Fiber Composite », *Polymers*, vol. 13, n° 9, p. 1459, avr. 2021, doi: 10.3390/polym13091459.
- [78] H. Sixta, Éd., *Handbook of pulp*. Weinheim : [Chichester: Wiley-VCH; John Wiley, distributeur], 2006.
- [79] G. Pétroff, « Étude papetière de quelques échantillons d'Eucalyptus congolais », 1965.
- [80] T. Quilhó, H. Pereira, et H. G. Richter, « within-tree variation in phloem cell dimensions and proportions in eucalyptus globulus », *iawa j.*, vol. 21, n° 1, p. 31-40, 2000, doi: 10.1163/22941932-90000234.
- [81] N. Saadaoui, A. Rouilly, K. Fares, et L. Rigal, « Characterization of date palm lignocellulosic by-products and self-bonded composite materials obtained thereof », *Mater. Des.*, vol. 50, p. 302-308, sept. 2013, doi: 10.1016/j.matdes.2013.03.011.
- [82] H. Focillon, « Contribution à l'amélioration de la compatibilité interfaciale fibres naturelles/matrice thermoplastique via un traitement sous décharge couronne », 2010. [En ligne]. Disponible sur: https://docnum.univ-lorraine.fr/public/scd_t_2010_0135_ragoubi.pdf
- [83] DO THI Vi Vi et Anne-Cécile grillet, « Matériaux composites à fibres naturelles / polymère biodégradables ou non », 2006. [En ligne]. Disponible sur: https://theses.hal.science/tel-00652477/file/37399_DO.pdf

- [84] M. M. Campbell et R. R. Sederoff, « Variation in lignin content and composition (mechanisms of control and implications for the genetic improvement of plants). », *Plant Physiol.*, vol. 110, n° 1, p. 3, 1996.
- [85] A. Lourenço *et al.*, « Lignin Composition and Structure Differs between Xylem, Phloem and Phellem in *Quercus suber* L. », *Front. Plant Sci.*, vol. 7, oct. 2016, doi: 10.3389/fpls.2016.01612.
- [86] J. Dai, A. F. Patti, et K. Saito, « Recent developments in chemical degradation of lignin: catalytic oxidation and ionic liquids », *Tetrahedron Lett.*, vol. 57, n° 45, p. 4945-4951, nov. 2016, doi: 10.1016/j.tetlet.2016.09.084.
- [87] J.-B. S. Tchinda, « Caractérisation et valorisation des substances extractibles de cinq essences camerounaises majeures de l'industrie du bois: Ayous, Moabi, Movingui, Padouk et Tali », Yaounde 1, 2015. [En ligne]. Disponible sur: <https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01751831>
- [88] R. Alen *et al.*, « Chemical pulping part 1, fibre chemistry and technology », 2011.
- [89] C. Baley, *Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites*. Ed. Techniques Ingénieur, 2005.
- [90] A. K. Mohanty, M. Misra, L. T. Drzal, S. E. Selke, B. R. Harte, et G. Hinrichsen, « Natural fibers, biopolymers, and biocomposites: an introduction », in *Natural fibers, biopolymers, and biocomposites*, CRC press, 2005, p. 17-51. Consulté le: 22 décembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.taylorfrancis.com/chapters/edit/10.1201/9780203508206-9/natural-fibers-biopolymers-biocomposites-introduction-amar-mohanty-manjusri-misra-lawrence-drzal-susan-selke-bruce-harte-georg-hinrichsen>
- [91] H. Cheung, M. Ho, K. Lau, F. Cardona, et D. Hui, « Natural fibre-reinforced composites for bioengineering and environmental engineering applications », *Compos. Part B Eng.*, vol. 40, n° 7, p. 655-663, oct. 2009, doi: 10.1016/j.compositesb.2009.04.014.
- [92] M. Cai *et al.*, « Influence of alkali treatment on internal microstructure and tensile properties of abaca fibers », *Ind. Crops Prod.*, vol. 65, p. 27-35, mars 2015, doi: 10.1016/j.indcrop.2014.11.048.
- [93] D. U. Shah, D. Porter, et F. Vollrath, « Can silk become an effective reinforcing fibre? A property comparison with flax and glass reinforced composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 101, p. 173-183, sept. 2014, doi: 10.1016/j.compscitech.2014.07.015.
- [94] S. Członka, A. Strąkowska, P. Pospiech, et K. Strzelec, « Effects of Chemically Treated Eucalyptus Fibers on Mechanical, Thermal and Insulating Properties of Polyurethane Composite Foams », *Materials*, vol. 13, n° 7, p. 1781, avr. 2020, doi: 10.3390/ma13071781.
- [95] K. A. Brown et J. Gurevitch, « Long-term impacts of logging on forest diversity in Madagascar », *Proc. Natl. Acad. Sci.*, vol. 101, n° 16, p. 6045-6049, avr. 2004, doi: 10.1073/pnas.0401456101.
- [96] D. Verhaegen *et al.*, « Historique de l'introduction du genre *Eucalyptus* à Madagascar », *bois forets trop.*, vol. 309, n° 309, p. 17, sept. 2011, doi: 10.19182/bft2011.309.a20462.

- [97] J. Bouillet *et al.*, « Coopération France - Brésil ».
- [98] J. Delwiche, « Évaluation du potentiel antifongique des huiles essentielles de mentha pulegium et d'eucalyptus camaldulensis dans la lutte biologique contre les champignons responsables de la détérioration des pommes en conservation », *Bull. Société R. Sci. Liège*, vol. 80, p. 824, 2011.
- [99] G. Aubert, « Première approche de l'influence du reboisement en eucalyptus camaldulensis sur des sols de Gansé (~~) », 1984.
- [100] « Eucalyptus_globulus ». Consulté le: 2 janvier 2025. [En ligne]. Disponible sur: https://www.discoverlife.org/nh/maps/Plantae/Dicotyledoneae/Myrtaceae/Eucalyptus/map_of_Eucalyptus_globulus.jpg
- [101] gouvernement canada, « Le Brésil supplante le Canada comme principal exportateur de pâte », page web du Ca. Consulté le: 7 avril 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://cfs.nrcan.gc.ca/coupes-selectives/75>
- [102] petit journal Sao Paulo, « ecologie - Les industries papetières brésiliennes sauvent la forêt », Scribbr. Consulté le: 23 avril 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.scribbr.fr/references/generateur/>
- [103] Le Maître Papetier., « Les indices foex* pour le bois et la biomasse ». Consulté le: 7 avril 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.lemaitrepapetier.ca/>
- [104] FAO, « fao Advisory Committee on Paper and Wood Products ». 2007.
- [105] A. Kumar, « Mechanical Properties Evaluation of Eucalyptus Fiber Reinforced Epoxy Composites », *J Mater Env. Sci*, vol. 5, n° 6, p. 1400-1410, 2015.
- [106] P. Behera, M. T. Noman, et M. Petrú, « Enhanced Mechanical Properties of Eucalyptus-Basalt-Based Hybrid-Reinforced Cement Composites », *Polymers*, vol. 12, n° 12, p. 2837, nov. 2020, doi: 10.3390/polym12122837.
- [107] J. E. Mejia-Ballesteros, L. Rodier, R. Filomeno, H. Savastano Jr, J. Fiorelli, et M. F. Rojas, « Influence of the fiber treatment and matrix modification on the durability of eucalyptus fiber reinforced composites », *Cem. Concr. Compos.*, vol. 124, p. 104280, nov. 2021, doi: 10.1016/j.cemconcomp.2021.104280.
- [108] D. W. Silva *et al.*, « Influence of thermal treatment of eucalyptus fibers on the physical-mechanical properties of extruded fiber-cement composites », *Mater. Today Proc.*, vol. 31, p. S348-S352, 2020, doi: 10.1016/j.matpr.2020.04.764.
- [109] S. Członka, A. Strąkowska, P. Pospiech, et K. Strzelec, « Effects of Chemically Treated Eucalyptus Fibers on Mechanical, Thermal and Insulating Properties of Polyurethane Composite Foams », *Materials*, vol. 13, n° 7, p. 1781, avr. 2020, doi: 10.3390/ma13071781.
- [110] G. H. D. Tonoli, H. Savastano, E. Fuente, C. Negro, A. Blanco, et F. A. Rocco Lahr, « Eucalyptus pulp fibres as alternative reinforcement to engineered cement-based composites », *Ind. Crops Prod.*, vol. 31, n° 2, p. 225-232, mars 2010, doi: 10.1016/j.indcrop.2009.10.009.

- [111] C. G. D. Oliveira, F. M. Margem, S. N. Monteiro, et F. P. D. Lopes, « Comparison between tensile behavior of epoxy and polyester matrix composites reinforced with eucalyptus fibers », *J. Mater. Res. Technol.*, vol. 6, n° 4, p. 406-410, oct. 2017, doi: 10.1016/j.jmrt.2017.08.002.
- [112] F. X. Espinach, L. A. Granda, Q. Tarrés, J. Duran, P. Fullana-i-Palmer, et P. Mutjé, « Mechanical and micromechanical tensile strength of eucalyptus bleached fibers reinforced polyoxymethylene composites », *Compos. Part B Eng.*, vol. 116, p. 333-339, mai 2017, doi: 10.1016/j.compositesb.2016.10.073.
- [113] D. W. Silva *et al.*, « Impact of accelerated aging cycles on the performance of extruded cement-based composites reinforced with non-bleached eucalyptus fibers », *Environ. Sci. Pollut. Res.*, vol. 31, n° 24, p. 35789-35799, mai 2024, doi: 10.1007/s11356-024-33665-4.
- [114] A. Bakatovich, N. Bakatovich, A. Silva, et F. Gaspar, « Thermal insulation materials based on eucalyptus bark fibres », *Constr. Build. Mater.*, vol. 449, p. 138559, oct. 2024, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2024.138559.
- [115] M. Ali *et al.*, « Thermal and acoustic characteristics of novel thermal insulating materials made of Eucalyptus Globulus leaves and wheat straw fibers », *J. Build. Eng.*, vol. 32, p. 101452, nov. 2020, doi: 10.1016/j.jobe.2020.101452.
- [116] P. Peças, H. Carvalho, H. Salman, et M. Leite, « Natural Fibre Composites and Their Applications: A Review », *J. Compos. Sci.*, vol. 2, n° 4, p. 66, nov. 2018, doi: 10.3390/jcs2040066.
- [117] M. S. Huda, L. T. Drzal, D. Ray, A. K. Mohanty, et M. Mishra, « Natural-fiber composites in the automotive sector », in *Properties and performance of natural-fibre composites*, Elsevier, 2008, p. 221-268. Consulté le: 9 janvier 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9781845692674500077>
- [118] K. G. Satyanarayana, J. L. Guimarães, et F. Wypych, « Studies on lignocellulosic fibers of Brazil. Part I: Source, production, morphology, properties and applications », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 38, n° 7, p. 1694-1709, juill. 2007, doi: 10.1016/j.compositesa.2007.02.006.
- [119] Section of Basic Engg., COAE&T, CCSHAU, Hisar-125004 et S. Bhardwaj, « Natural Fibre Composites- An Opportunity for Farmers », *Int. J. Pure Appl. Biosci.*, vol. 5, n° 5, p. 509-514, nov. 2017, doi: 10.18782/2320-7051.5876.
- [120] T. Väisänen, O. Das, et L. Tomppo, « A review on new bio-based constituents for natural fiber-polymer composites », *J. Clean. Prod.*, vol. 149, p. 582-596, avr. 2017, doi: 10.1016/j.jclepro.2017.02.132.
- [121] D. U. Shah, B. Sharma, et M. H. Ramage, « Processing bamboo for structural composites: Influence of preservative treatments on surface and interface properties », *Int. J. Adhes. Adhes.*, vol. 85, p. 15-22, oct. 2018, doi: 10.1016/j.ijadhadh.2018.05.009.
- [122] U. K. Vaidya, « Biobased bamboo composite development », Oak Ridge National Laboratory (ORNL), Oak Ridge, TN (United States), 2017. Consulté le: 1 octobre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.osti.gov/biblio/1400154>

- [123] C. Becerra, J. Montory, J. Vega-Lara, et J. Norambuena-Contreras, « A new biobased composite material using bark fibres eucalyptus », *The*, vol. 13, p. 46-50, 2016, Consulté le: 1 octobre 2024. [En ligne]. Disponible sur: https://www.researchgate.net/profile/Cecilia-Fuentealba/publication/314240239_New_Biobased_composite_material_using_bark_fibres_Eucalyptus/links/58bd58d5a6fdcc2d14e90738/New-Biobased-composite-material-using-bark-fibres-Eucalyptus.pdf
- [124] O. Faruk et M. Sain, *Biofiber reinforcements in composite materials*. Elsevier, 2014. Consulté le: 1 octobre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://books.google.com/books?hl=fr&lr=&id=bb08AwAAQBAJ&oi=fnd&pg=PP1&dq=Faruk,+O.%3B+Sain,+M.+Biofiber+Reinforcements+in+Composite+Materials%3B+Elsevier:+Amsterdam,+The+Netherlands,+2014%3B+ISBN+9781782421276.&ots=ozCdhulXLJ&sig=dip0yf7cOghkdGRN3wbOdyQVL58>
- [125] M. S. Kumar, A. Manna, et R. Dang, « A Review on Natural Fiber Reinforced Composites and its Applications. », Consulté le: 1 octobre 2024. [En ligne]. Disponible sur: https://www.academia.edu/download/69604606/A_Review_on_Natural_Fiber_Reinforced_Composites_and_its_Applications._IJRASET.pdf
- [126] P. Peças, H. Carvalho, H. Salman, et M. Leite, « Natural fibre composites and their applications: a review », *J. Compos. Sci.*, vol. 2, n° 4, p. 66, 2018, Consulté le: 1 octobre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.mdpi.com/2504-477X/2/4/66>
- [127] M. G. Kamath, G. S. Bhat, D. V. Parikh!, et D. Mueller, « Cotton Fiber Nonwovens for Automotive Composites », *Int. Nonwovens J.*, vol. os-14, n° 1, p. 1558925005os-14, mars 2005, doi: 10.1177/1558925005os-1400105.
- [128] K. G. Satyanarayana, J. L. Guimarães, et F. Wypych, « Studies on lignocellulosic fibers of Brazil. Part I: Source, production, morphology, properties and applications », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 38, n° 7, p. 1694-1709, 2007, Consulté le: 1 octobre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1359835X07000279>
- [129] K. Rohit et S. Dixit, « A Review - Future Aspect of Natural Fiber Reinforced Composite », *Polym. Renew. Resour.*, vol. 7, n° 2, p. 43-59, mai 2016, doi: 10.1177/204124791600700202.
- [130] K. Rohit et S. Dixit, « A Review - Future Aspect of Natural Fiber Reinforced Composite », *Polym. Renew. Resour.*, vol. 7, n° 2, p. 43-59, mai 2016, doi: 10.1177/204124791600700202.
- [131] M. Carus et L. Sarmiento, « The European Hemp Industry: Cultivation, processing and applications for fibres, shivs, seeds and flowers », *Eur. Ind. Hemp Assoc.*, vol. 5, p. 1-9, 2016, Consulté le: 1 octobre 2024. [En ligne]. Disponible sur: https://www.researchgate.net/profile/Michael-Carus/publication/281366876_The_european_hemp_industry_Cultivation_processing_and_applications_for_fibres_shives_and_seeds/links/5f88b42f299bf1b53e2beec1/The-european-hemp-industry-Cultivation-processing-and-applications-for-fibres-shives-and-seeds.pdf
- [132] E. Marsyahyo, Soekrisno, Heru Santoso Budi Rochardjo, et Jamasri, « Identification of Ramie Single Fiber Surface Topography Influenced by Solvent-Based Treatment », *J. Ind. Text.*, vol. 38, n° 2, p. 127-137, oct. 2008, doi: 10.1177/1528083707087835.

- [133] C. J. Biermann, *Handbook of pulping and papermaking*. Elsevier, 1996. Consulté le: 16 octobre 2024. [En ligne]. Disponible sur: https://books.google.com/books?hl=fr&lr=&id=sfZfyEmqs_AC&oi=fnd&pg=PP1&dq=C.+J.+Biermann,+Handbook+of+pulping+and+papermaking,+Academic+Press,+Second+edition,+1996+&ots=Z_QgLIZh8l&sig=GgvaUMV1GVJApiFrVcpjZSN4Qjo
- [134] E. Loranger, R. Lanouette, et D. Myja, « Impact de l'oxydation tempo lors de la mise en pâte thermomecanique ». janvier 2016. Consulté le: 6 octobre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://depot-e.uqtr.ca/id/eprint/7785/1/031167334.pdf>
- [135] 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.
- [136] 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, sept. 2016, doi: 10.1016/S1672-6529(16)60315-3.
- [137] H. Abral, MF Gafar, H Andriyanto, Ilhamdi, SM Sapuan, MR Ishak, Evitayani, « Alkali Treatment of Screw Pine (*Pandanus Odoratissimus*) Fibers and Its Effect on Unsaturated Polyester Composites », *Polym.-Plast. Technol. Eng.*, vol. 51, n° 1, p. 12-18, janv. 2012, doi: 10.1080/03602559.2011.593090.
- [138] M. Y. Hashim, A. M. Amin, O. M. F. Marwah, M. H. Othman, M. R. M. Yunus, et N. Chuan Huat, « The effect of alkali treatment under various conditions on physical properties of kenaf fiber », *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 914, p. 012030, oct. 2017, doi: 10.1088/1742-6596/914/1/012030.
- [139] Z. Koadri, A. Benyahia, N. Deghfel, K. Belmokre, B. Nouibat, et A. Redjem, « Étude de l'effet du temps de traitement alcalin de fibres palmier sur le comportement mécanique des matériaux à base d'argile rouge de la région de M'sila », *Matér. Tech.*, vol. 107, n° 4, p. 404, 2019, doi: 10.1051/mattech/2019031.
- [140] D. T. V. V. Anne-Cécile Grillet, « Matériaux composites à fibres naturelles / polymère biodégradables ou non », 2006.
- [141] S. Khamtree, T. Ratanawilai, et S. Ratanawilai, « The effect of alkaline-silane treatment of rubberwood flour for water absorption and mechanical properties of plastic composites », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 33, n° 5, p. 599-613, mai 2020, doi: 10.1177/0892705718808556.
- [142] Q. Wang, Z. Xiao, W. Wang, et Y. Xie, « Coupling pattern and efficacy of organofunctional silanes in wood flour-filled polypropylene or polyethylene composites », *J. Compos. Mater.*, vol. 49, n° 6, p. 677-684, mars 2015, doi: 10.1177/0021998314525065.
- [143] M. Farsi, « Wood-plastic composites: influence of wood flour chemical modification on the mechanical performance », *J. Reinf. Plast. Compos.*, vol. 29, n° 24, p. 3587-3592, déc. 2010, doi: 10.1177/0731684410378779.

- [144] M. Z. Khan, S. K. Srivastava, et M. Gupta, « Enhancement of the properties of hybrid woods polymer composites by chemical pre-treatments », *Proc. Inst. Mech. Eng. Part J. Mater. Des. Appl.*, vol. 235, n° 4, p. 828-841, avr. 2021, doi: 10.1177/1464420720980033.
- [145] P. Suwanruji, T. Tuechart, W. Smitthipong, et R. Chollakup, « Modification of pineapple leaf fiber surfaces with silane and isocyanate for reinforcing thermoplastic », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 30, n° 10, p. 1344-1360, oct. 2017, doi: 10.1177/0892705716632860.
- [146] P. Threepopnatkul, N. Kaerkitcha, et N. Athipongarporn, « Effect of surface treatment on performance of pineapple leaf fiber-polycarbonate composites », *Compos. Part B Eng.*, vol. 40, n° 7, p. 628-632, 2009.
- [147] M. Bakkal, M. S. Bodur, H. E. Sonmez, et B. C. Ekim, « The effect of chemical treatment methods on the outdoor performance of waste textile fiber-reinforced polymer composites », *J. Compos. Mater.*, vol. 51, n° 14, p. 2009-2021, juin 2017, doi: 10.1177/0021998316666335.
- [148] B. Kord et D. T. Haratbar, « Influence of fiber surface treatment on the physical and mechanical properties of wood flour-reinforced polypropylene bionanocomposites », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 29, n° 7, p. 979-992, juill. 2016, doi: 10.1177/0892705714551592.
- [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.*, n° 7: 295-329, 2000, p. 35, 2000.
- [150] A. Paul, K. Joseph, et S. Thomas, « Effect of surface treatments on the electrical properties of low-density polyethylene composites reinforced with short sisal fibers », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 57, n° 1, p. 67-79, janv. 1997, doi: 10.1016/S0266-3538(96)00109-1.
- [151] M. S. Sreekala, M. G. Kumaran, et S. Thomas, « Water sorption in oil palm fiber reinforced phenol formaldehyde composites », 2002.
- [152] K. Joseph, S. Thomas, et C. Pavithran, « Effect of chemical treatment on the tensile properties of short sisal fibre-reinforced polyethylene composites », *Polymer*, vol. 37, n° 23, p. 5139-5149, nov. 1996, doi: 10.1016/0032-3861(96)00144-9.
- [153] P. K. Kushwaha et R. Kumar, « Influence of chemical treatments on the mechanical and water absorption properties of bamboo fiber composites », *J. Reinf. Plast. Compos.*, vol. 30, n° 1, p. 73-85, janv. 2011, doi: 10.1177/0731684410383064.
- [154] Ruijun Gu et B. V. Kokta, « Mechanical Properties of PP Composites Reinforced with BCTMP Aspen Fiber », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 23, n° 4, p. 513-542, juill. 2010, doi: 10.1177/0892705709355232.
- [155] « Analyseurs thermiques - TA Instruments ». Consulté le: 22 décembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.tainstruments.com/products/thermal-analysis/>

- [156] I. Pleșa, P. Noțingher, S. Schlögl, C. Sumereder, et M. Muhr, « Properties of Polymer Composites Used in High-Voltage Applications », *Polymers*, vol. 8, n° 5, p. 173, avr. 2016, doi: 10.3390/polym8050173.
- [157] N. Saba, M. T. Paridah, K. Abdan, et N. A. Ibrahim, « Dynamic mechanical properties of oil palm nano filler/kenaf/epoxy hybrid nanocomposites », *Constr. Build. Mater.*, vol. 124, p. 133-138, oct. 2016, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2016.07.059.
- [158] D. Rouison, M. Couturier, M. Sain, B. MacMillan, et B. J. Balcom, « Water absorption of hemp fiber/unsaturated polyester composites », *Polym. Compos.*, vol. 26, n° 4, p. 509-525, août 2005, doi: 10.1002/pc.20114.
- [159] Z. Kesentini, « Influence de l'humidité sur le comportement en statique et en dynamique d'un composite PLA/Lin », Le Mans Université, 2023. Consulté le: 17 avril 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-04001957v1/file/2022LEMA10143.pdf>
- [160] H. G. Carter et K. G. Kibler, « Langmuir-Type Model for Anomalous Moisture Diffusion In Composite Resins ».
- [161] H. Chen, M. Miao, et X. Ding, « Influence of moisture absorption on the interfacial strength of bamboo/vinyl ester composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 40, n° 12, p. 2013-2019, déc. 2009, doi: 10.1016/j.compositesa.2009.09.003.
- [162] 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, oct. 2013, doi: 10.1002/app.39148.
- [163] A. Roudier *et al.*, « Caractérisation des propriétés biochimiques et hygroscopiques d'une fibre de lin », *Matér. Tech.*, vol. 100, n° 5, p. 525-535, 2012, Consulté le: 9 avril 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.mattech-journal.org/articles/mattech/abs/2012/05/mt110102/mt110102.html>
- [164] A. Stamboulis, C. A. Baillie, et T. Peijs, « Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 32, n° 8, p. 1105-1115, 2001, Consulté le: 9 avril 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1359835X0100032X>
- [165] P. Navi et F. Heger, *Comportement thermo-hydrromécanique du bois: Applications technologiques et dans les structures*. PPUR presses polytechniques, 2005.
- [166] J. W. Hearle et W. E. Morton, *Physical properties of textile fibres*. Elsevier, 2008.
- [167] P. Bonniau et A. R. Bunsell, « A Comparative Study of Water Absorption Theories Applied to Glass Epoxy Composites », *J. Compos. Mater.*, vol. 15, n° 3, p. 272-293, mai 1981, doi: 10.1177/002199838101500306.
- [168] 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° 10-11, p. 1357-1372, août 2002, doi: 10.1016/S0266-3538(02)00080-5.

- [169] A. Stamboulis, C. A. Baillie, et T. Peijs, « Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers », 2001.
- [170] H. Dhakal, Z. Zhang, et M. Richardson, « Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 67, n° 7-8, p. 1674-1683, juin 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2006.06.019.
- [171] Ludovic Freund, Pierre Chevrier, et Vanessa Bouchart, « Étude du vieillissement hygrothermique des composites renforcés de fibres naturelles: approche expérimentale et modélisation », Université de Lorraine, 2018. Consulté le: 15 avril 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-01870255>
- [172] V. Rohart, Martine Dubé, et Louis Laberge Lebel, « Montréal, le 28 juillet 2020 », école de technologie supérieure université du Québec, 2020. Consulté le: 15 avril 2024. [En ligne]. Disponible sur: https://espace.etsmtl.ca/id/eprint/2600/1/rohart_Vincent.pdf
- [173] M. Abakar, « Analyse des mécanismes d'endommagement et du comportement vibratoire d'un composite à constituants naturels dans un environnement hydrique ».
- [174] G. A. Testoni, « In situ long-term durability analysis of biocomposites in the marine environment », 2016. [En ligne]. Disponible sur: https://pastel.hal.science/tel-01299806/file/2015ENMP0046_archivage.pdf.
- [175] D. Scida, M. Assarar, R. Ayad, et C. Poilâne, « Effet de l'humidité sur le comportement mécanique des composites à fibres de lin », 2011.
- [176] Y. Weitsman, « Moisture in composites: sorption and damage », in *Composite materials series*, vol. 4, Elsevier, 1991, p. 385-429. Consulté le: 24 décembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780444705075500135>
- [177] S. Kazemi Najafi, M. Tajvidi, et E. Hamidina, « Effect of temperature, plastic type and virginity on the water uptake of sawdust/plastic composites », *Holz Als Roh- Werkst.*, vol. 65, n° 5, p. 377-382, oct. 2007, doi: 10.1007/s00107-007-0176-6.
- [178] Y. Shen *et al.*, « Effect of Temperature and Water Absorption on Low-Velocity Impact Damage of Composites with Multi-Layer Structured Flax Fiber », *Materials*, vol. 12, n° 3, p. 453, févr. 2019, doi: 10.3390/ma12030453.
- [179] K. Bensalem, L. Toubal, J. C. Cuillère, V. François, et P. B. Gning, « Experimental and numerical studies study of hygrothermal aging of a short hemp fibers /polypropylene composite ». The 19th international conference on composite materials, 2013.
- [180] D. Abessolo, A. B. Biwole, D. Fokwa, et B. M. G. Koungang, « Effets de la longueur et de la teneur des fibres de bambou sur les propriétés physicomécaniques et hygroscopiques des Blocs de Terre Comprimée (BTC) utilisés dans la construction », 2020.
- [181] D. Rouison, M. Couturier, M. Sain, B. MacMillan, et B. J. Balcom, « Water absorption of hemp fiber/unsaturated polyester composites », *Polym. Compos.*, vol. 26, n° 4, p. 509-525, août 2005, doi: 10.1002/pc.20114.

- [182] K. Joseph, S. Thomas, et C. Pavithran, « Effect of ageing on the physical and mechanical properties of sisal-fiber-reinforced polyethylene composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 53, n° 1, p. 99-110, janv. 1995, doi: 10.1016/0266-3538(94)00074-3.
- [183] H. Dhakal, Z. Zhang, et M. Richardson, « Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 67, n° 7-8, p. 1674-1683, juin 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2006.06.019.
- [184] C. Chow, X. Xing, et R. Li, « Moisture absorption studies of sisal fibre reinforced polypropylene composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 67, n° 2, p. 306-313, févr. 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2006.08.005.
- [185] D. Scida, M. Assarar, R. Ayad, et C. Poilâne, « Effet de l'humidité sur le comportement mécanique des composites à fibres de lin », 2011, [En ligne]. Disponible sur: <https://hal.science/hal-00597760/document>
- [186] H. Dhakal, Z. Zhang, et M. Richardson, « Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 67, n° 7-8, p. 1674-1683, juin 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2006.06.019.
- [187] L. U. Devi, S. S. Bhagawan, et S. Thomas, « Dynamic mechanical analysis of pineapple leaf/glass hybrid fiber reinforced polyester composites », *Polym. Compos.*, vol. 31, n° 6, p. 956-965, juin 2010, doi: 10.1002/pc.20880.
- [188] J. D. Ferry, *Viscoelastic Properties of Polymers*, vol. 264. Wiley, 1980. Consulté le: 7 janvier 2025. [En ligne]. Disponible sur: https://books.google.com/books?hl=fr&lr=&id=9dqQY3Ujsx4C&oi=fnd&pg=PA1&dq=Ferry+JD.+Viscoelastic+properties+of+polymers.+New+York:+John+Wiley+and+Sons,+Inc.+%3B+1980.&ots=Fjz5SG_SII&sig=DmkRdEfEjHrZc6MPm9iw70BZHp4
- [189] « astm d 1110 – 84 (Reapproved 2001) Technical Association of Pulp and Paper Industry Standard Method T 207 om-81 Standard Test Methods for Water Solubility of Wood1 ».
- [190] « https://img.antpedia.com/standard/files/pdfs_ora/20221211/astm/ASTM%20D1110-21.pdf ».
- [191] D. Astm, « Standard Test Methods for Water Solubility of Wood ASTM D1110-21 ». Consulté le: 3 janvier 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.astm.org/d1110-21.html>
- [192] « Astm d1107-21 », PDF Standards Club. Consulté le: 3 janvier 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://standardsclub.com/product/astm-d1107-21/>
- [193] P. Egli, « Angles de raccordement et énergie de surface: introduction ». https://www.researchgate.net/profile/Matthew-Owen-6/publication/322329496_The_Effects_of_Different_Surface_Wettabilities_on_Droplet-Dry_Substrate_Impact_Outcomes/links/5a543ea7458515e7b7321a0c/The-Effects-of-Different-Surface-Wettabilities-on-Droplet-Dry-Substrate-Impact-Outcomes.pdf/
- [194] D. K. Owens et R. C. Wendt, « Estimation of the surface free energy of polymers », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 13, n° 8, p. 1741-1747, août 1969, doi: 10.1002/app.1969.070130815.

- [195] F. Mijiyawa, « Formulation, caractérisation, modélisation et prévision du comportement thermomécanique des pièces plastiques et composites de fibres de bois: application aux engrenages; mai 2017; 275p, p105-106 », UQTR, 2017.
- [196] D. Koffi, L. Toubal, et F. Erchiqui, « Étude comparative du comportement thermomecanique et en tribologie des composites de fibres naturelles recycles et non recycles ».
- [197] A. Bravo, « Doctorat présenté à l'université du québec à trois-rivières comme exigence partielle du doctorat en ingénierie offert en extension en vertu d'un protocole d'entente avec l'université du québec à chicoutimi », p. 251.
- [198] Ruijun Gu et B. V. Kokta, « Effect of Independent Variables on Mechanical Properties and Maximization of Aspen—Polypropylene Composites », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 21, n° 1, p. 27-50, janv. 2008, doi: 10.1177/0892705707085347.
- [199] « This test method is under the jurisdiction of ASTM Committee D20 on Plastics and is the direct responsibility of Subcommittee D20.10 on Mechanical Properties. Current edition approved April 2018. »
- [200] K. Sewda et S. N. Maiti, « Dynamic mechanical properties of high density polyethylene and teak wood flour composites », *Polym. Bull.*, vol. 70, n° 10, p. 2657-2674, oct. 2013, doi: 10.1007/s00289-013-0941-0.
- [201] V. Tserki, P. Matzinos, S. Kokkou, et C. Panayiotou, « Novel biodegradable composites based on treated lignocellulosic waste flour as filler. Part I. Surface chemical modification and characterization of waste flour », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 36, n° 7, p. 965-974, juill. 2005, doi: 10.1016/j.compositesa.2004.11.010.
- [202] J. George, S. S. Bhagawan, et S. Thomas, « Effects of environment on the properties of low-density polyethylene composites reinforced with pineapple-leaf fibre », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 58, n° 9, p. 1471-1485, sept. 1998, doi: 10.1016/S0266-3538(97)00161-9.
- [203] H. Luo *et al.*, « Investigating the microstructure-property relationship in Mg matrix composites reinforced by particles of different sizes using experiments combined with finite element simulation », *Powder Technol.*, vol. 433, p. 119220, janv. 2024, doi: 10.1016/j.powtec.2023.119220.
- [204] K. Zhao, R. Guo, G. Liu, et Y. Li, « Monte Carlo simulation for exploring the mechanical properties of particle-reinforced composites based on the scale boundary finite element method », *Compos. Struct.*, vol. 297, p. 115933, oct. 2022, doi: 10.1016/j.compstruct.2022.115933.
- [205] L. Qian, X. Pang, J. Zhou, J. Yang, S. Lin, et D. Hui, « Theoretical model and finite element simulation on the effective thermal conductivity of particulate composite materials », *Compos. Part B Eng.*, vol. 116, p. 291-297, mai 2017, doi: 10.1016/j.compositesb.2016.10.067.
- [206] F.-J. Sayas, « A gentle introduction to the Finite Element Method », avr. 2015, [En ligne]. Disponible sur: https://team-pancho.github.io/teaching/math838/anIntro2FEM_2015.pdf

- [207] J. N. Reddy et D. K. Gartling, *The Finite Element Method in Heat Transfer and Fluid Dynamics*, 0 éd. CRC Press, 2010. doi: 10.1201/9781439882573.
- [208] J. K. Farooqi et M. A. Sheikh, « Finite element modelling of thermal transport in ceramic matrix composites », *Comput. Mater. Sci.*, vol. 37, n° 3, p. 361-373, sept. 2006, doi: 10.1016/j.commatsci.2005.11.001.
- [209] T. Meng, C. Peng, R. Wang, et Z. Cai, « Experimental and finite element analysis of thermal conductivity in Cu matrix composites reinforced with surface-modified Kovar particles », *Mater. Chem. Phys.*, vol. 333, p. 130392, mars 2025, doi: 10.1016/j.matchemphys.2025.130392.
- [210] « G.Petroff, Étude papetiere de quelques échantillons d'eucalyptus congolaise; n° 103, p12, 1965 ».
- [211] F. Michaud, « rhéologie de panneaux composites bois/thermoplastiques sous chargement thermomécanique : Aptitude au postformage ». [En ligne]. Disponible sur: <https://dam-oclc.bac-lac.gc.ca/>
- [212] « Mijiyawa, Fayçal, KOFFI, Demagna, kokta, Bohuslav V., et al. Formulation et caractérisation en traction de composites bois-plastique : polypropylène renforcé par des fibres de bouleau et de tremble pour applications d'engrenages. *Journal of Thermoplastic Composite Materials* , 2015, vol. 28, no 12, p. 1675-1692. » Consulté le: 8 août 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://scholar.google.ca/scholar>
- [213] J. Bodig et B. A. Jayne, « Mechanics of wood and wood composites », 1982.
- [214] F. P. Laboratory (US), *Wood handbook: wood as an engineering material*, vol. 113. The Laboratory, 1999.
- [215] A. Ramezani Kakroodi, S. Leduc, et D. Rodrigue, « Effect of hybridization and compatibilization on the mechanical properties of recycled polypropylene-hemp composites », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 124, n° 3, p. 2494-2500, mai 2012, doi: 10.1002/app.35264.
- [216] K. Hamad, M. Kaseem, et F. Deri, « Recycling of waste from polymer materials: An overview of the recent works », *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 98, n° 12, p. 2801-2812, 2013.
- [217] F. Vilaplana et S. Karlsson, « Quality concepts for the improved use of recycled polymeric materials: a review », *Macromol. Mater. Eng.*, vol. 293, n° 4, p. 274-297, 2008.
- [218] J. George, M. S. Sreekala, et S. Thomas, « A review on interface modification and characterization of natural fiber reinforced plastic composites », *Polym. Eng. Sci.*, vol. 41, n° 9, p. 1471-1485, 2001.
- [219] M. D. H. Beg et K. L. Pickering, « Reprocessing of wood fibre reinforced polypropylene composites. Part I: Effects on physical and mechanical properties », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, n° 7, p. 1091-1100, 2008.

- [220] 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, 2008.
- [221] S.-Y. Fu, X.-Q. Feng, B. Lauke, et Y.-W. Mai, « Effects of particle size, particle/matrix interface adhesion and particle loading on mechanical properties of particulate–polymer composites », *Compos. Part B Eng.*, vol. 39, n° 6, p. 933-961, 2008.
- [222] S. Kalia, B. S. Kaith, et I. Kaur, *Cellulose fibers: bio-and nano-polymer composites: green chemistry and technology*. Springer Science & Business Media, 2011.
- [223] 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, 2012.
- [224] A. K. Mohanty, M. Misra, et L. T. Drzal, « Sustainable bio-composites from renewable resources: opportunities and challenges in the green materials world », *J. Polym. Environ.*, vol. 10, n° 1, p. 19-26, 2002.
- [225] Ruijun Gu et B. V. Kokta, « Maximization of the Mechanical Properties of Birch-Polypropylene Composites with Additives by Statistical Experimental Design », *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 23, n° 2, p. 239-263, mars 2010, doi: 10.1177/0892705708103402.
- [226] D. M. Panaitescu, M. Iorga, Z. Vuluga, D. Donescu, M. Dan, et S. Serban, « l'effet de l'interface dans les composites de fibres naturelles et de matières plastiques », vol. 52, p. 409-014, 2007.
- [227] A. A. Klyosov, *Wood-plastic composites*. John Wiley & Sons, 2007.
- [228] A. Ashori et S. Sheshmani, « Hybrid composites made from recycled materials: moisture absorption and thickness swelling behavior », *Bioresour. Technol.*, vol. 101, n° 12, p. 4717-4720, 2010.
- [229] M. Bengtsson et K. Oksman, « The use of silane technology in crosslinking polyethylene/wood flour composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 37, n° 5, p. 752-765, 2006.
- [230] K. E. Borchani, « Développement d'un composite à base d'un polymère biodégradable et de fibres extraites de la plante d'Alfa », Université de Sfax, 2016. Consulté le: 16 août 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-01808976/file/These-elfehri-karama-finale.pdf>
- [231] M. A. Sawpan, K. L. Pickering, et A. Fernyhough, « Improvement of mechanical performance of industrial hemp fibre reinforced polylactide biocomposites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 42, n° 3, p. 310-319, mars 2011, doi: 10.1016/j.compositesa.2010.12.004.
- [232] M. Rokbi et H. Osmani, « L'effet des traitements de surface des fibres sur les propriétés mécaniques de composites Polyester-fibres Alfa », présenté à 20ème Congrès Français de Mécanique, Besançon, 2011, p. 7. Consulté le: 16 août 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://hal.science/hal-03422584/document>

- [233] M. Morreale, R. Scaffaro, A. Maio, et F. P. La Mantia, « Effect of adding wood flour to the physical properties of a biodegradable polymer », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, n° 3, p. 503-513, mars 2008, doi: 10.1016/j.compositesa.2007.12.002.
- [234] Barrett, Nix, et Tetelman, « Potentiel interatomique « Les principes des matériaux d'ingénierie » ». Consulté le: 19 août 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.princeton.edu/~maelabs/mae324/glos324/potential.htm>
- [235] « <https://zhao.recherche.usherbrooke.ca/cours/chapitre%2014.pdf>, Propriétés mécaniques des matériaux ».
- [236] M. G. Groenli, « A theoretical and experimental study of the thermal degradation of biomass », The Norwegian University of Science and Technology, 1996.
- [237] C. D. Blasi, C. Branca, A. Santoro, et E. G. Hernandez, « Pyrolytic Behavior and Products of Some Wood Varieties ».
- [238] R. Alén, E. Kuoppala, et P. Oesch, « Formation of the main degradation compound groups from wood and its components during pyrolysis », *J. Anal. Appl. Pyrolysis*, vol. 36, n° 2, p. 137-148, 1996, Consulté le: 9 décembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0165237096009321>
- [239] C. D. Blasi, « Comparison of semi-global mechanisms for primary pyrolysis of lignocellulosic fuels ».
- [240] C. A. Koufopoulos, A. Lucchesi, et G. Maschio, « Kinetic modelling of the pyrolysis of biomass and biomass components », *Can. J. Chem. Eng.*, vol. 67, n° 1, p. 75-84, févr. 1989, doi: 10.1002/cjce.5450670111.
- [241] S. Ropers, M. Kardos, et T. A. Osswald, « A thermo-viscoelastic approach for the characterization and modeling of the bending behavior of thermoplastic composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 90, p. 22-32, nov. 2016, doi: 10.1016/j.compositesa.2016.06.016.
- [242] S. S. Ndlovu, A. J. Van Reenen, et A. S. Luyt, « LDPE–wood composites utilizing degraded LDPE as compatibilizer », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 51, p. 80-88, août 2013, doi: 10.1016/j.compositesa.2013.04.005.
- [243] K. Sewda et S. N. Maiti, « Dynamic mechanical properties of high-density polyethylene and teak wood flour composites », *Polym. Bull.*, vol. 70, n° 10, p. 2657-2674, oct. 2013, doi: 10.1007/s00289-013-0941-0.
- [244] K. H.-S. N'Tsule, D. Koffi, K. Nyonuwasoro, et G. D. Ngoma, « Effect of Temperature on Dynamic Mechanical Properties of Biobased LDPE-Eucalyptus Fiber Composites », *jsaer*, vol. 11, n° 12-2024, p. 1-9, 2024, [En ligne]. Disponible sur: www.jsaer.com
- [245] S. Lai, F. Yeh, Y. Wang, H. Chan, et H. Shen, « Comparative study of maleated polyolefins as compatibilizers for polyethylene/wood flour composites », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 87, n° 3, p. 487-496, janv. 2003, doi: 10.1002/app.11419.

- [246] M. Bengtsson, P. Gatenholm, et K. Oksman, « The effect of crosslinking on the properties of polyethylene/wood flour composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 65, n° 10, p. 1468-1479, août 2005, doi: 10.1016/j.compscitech.2004.12.050.
- [247] R. F. Landel et L. E. Nielsen, *Mechanical properties of polymers and composites*. CRC press, 1993. Consulté le: 10 décembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://books.google.fr/books?hl=en&lr=&id=l0xUDwAAQBAJ&oi=fnd&pg=PP1&dq=Nielsen,+L.+E.+Mechanical+Properties+of+Polymers+and+Composites%3B+Marcel+Dekker:+New+York,+1974%3B+Vol.+2.&ots=TpogAdOkvk&sig=uDKKTgq7-TGQlZ8gSZ88ZdfvBIE>
- [248] M. Bengtsson, P. Gatenholm, et K. Oksman, « The effect of crosslinking on the properties of polyethylene/wood flour composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 65, n° 10, p. 1468-1479, 2005, Consulté le: 10 décembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0266353805000515>
- [249] M. Tufan, T. Güleç, E. Peşman, et N. Ayırlımış, « Technological and Thermal Properties of Thermoplastic Composites Filled with Heat-treated Alder Wood », *BioResources*, vol. 11, n° 2, p. 3153-3164, févr. 2016, doi: 10.15376/biores.11.2.3153-3164.
- [250] M. Hamzah, A. Rjeb, D. S. Houssaini, S. Sayouri, et S. Massey, « natural ageing of stabilised ldpe studied by atr-ir spectroscopy », n° 58, p. 73-77, 2011.
- [251] « file:///C:/Users/utilisateur/Downloads/10_exercices_pour_1_%C3%A9preuve_orale_Bac_S_tout.pdf; 10_exercices_pour_1_épreuve_orale_Bac_S_tout.pdf »;
- [252] « <https://phychim.ac-versailles.fr/IMG/pdf/Documents-formation-spectroscopies.pdf>, "L'analyse spectrale : spectroscopies IR et RMN" ».
- [253] Y. Yue, C Zhou, AD French, G Xia, G Han, Q Wang, Q Wu « Comparative properties of cellulose nano-crystals from native and mercerized cotton fibers », *Cellulose*, vol. 19, n° 4, p. 1173-1187, août 2012, doi: 10.1007/s10570-012-9714-4.
- [254] A. D. French et M. Santiago Cintrón, « Cellulose polymorphy, crystallite size, and the Segal Crystallinity Index », *Cellulose*, vol. 20, n° 1, p. 583-588, févr. 2013, doi: 10.1007/s10570-012-9833-y.
- [255] Y. Li, G. Li, Y. Zou, Q. Zhou, et X. Lian, « Preparation and characterization of cellulose nanofibers from partly mercerized cotton by mixed acid hydrolysis », *Cellulose*, vol. 21, n° 1, p. 301-309, févr. 2014, doi: 10.1007/s10570-013-0146-6.
- [256] R. Zuluaga, J. L. Putaux, J. Cruz, J. Vélez, I. Mondragon, et P. Gañán, « Cellulose microfibrils from banana rachis: Effect of alkaline treatments on structural and morphological features », *Carbohydr. Polym.*, vol. 76, n° 1, p. 51-59, mars 2009, doi: 10.1016/j.carbpol.2008.09.024.
- [257] N. Bouhamed, M. O. Lenoir, et Ksibi, « Élaboration et caractérisation d'un matériau composite à base de farine de bois d'olivier », Université le Havre Normandie, 2020. Consulté le: 23 août 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-03128890/document>

- [258] L. Segal, J. J. Creely, A. E. Martin, et C. M. Conrad, « An Empirical Method for Estimating the Degree of Crystallinity of Native Cellulose Using the X-Ray Diffractometer », *Text. Res. J.*, vol. 29, n° 10, p. 786-794, oct. 1959, doi: 10.1177/004051755902901003.
- [259] J. L. Bolland et G. Gee, « Kinetic studies in the chemistry of rubber and related materials. II. The kinetics of oxidation of unconjugated olefins », *Trans. Faraday Soc.*, vol. 42, p. 236-243, 1946.
- [260] J. L. Bolland et G. Gee, « Kinetic studies in the chemistry of rubber and related materials. III. Thermochemistry and mechanisms of olefin oxidation », *Trans. Faraday Soc.*, vol. 42, p. 244-252, 1946.
- [261] 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.
- [262] V. S. Chevali, D. R. Dean, et G. M. Janowski, « Effect of environmental weathering on flexural creep behavior of long fiber-reinforced thermoplastic composites », *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 95, n° 12, p. 2628-2640, déc. 2010, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2010.07.019.
- [263] 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° 10-11, p. 1357-1372, août 2002, doi: 10.1016/S0266-3538(02)00080-5.
- [264] F. Zbidi, M. Zidi, et S. Sghaier, « Evolution des propriétés mécaniques du composite à base des fibres du palmier doum sous l'effet du vieillissement hygrothermique », 2010. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.researchgate.net/profile/Salem-Sghaier-2/publication/313788912>
- [265] A. Roudier, « Analyse multi-échelle du comportement hygro-mécanique des fibres de lin », Université blaise pascal - clermont ii, université blaise pascal - clermont ii, 2012.
- [266] H. Rabii, « Impact de vieillissement hygrothermique de composites polyéthylène/ fibres courtes de lin sur les propriétés mécaniques », présenté à Colloque 01 Ecomatériaux, 2014, p. 11. [En ligne]. Disponible sur: https://enpc.hal.science/hal-01144552/file/0389_materiaux2014-ecomateriau.pdf
- [267] H. Dhakal, Z. Zhang, et M. Richardson, « Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 67, n° 7-8, p. 1674-1683, juin 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2006.06.019.
- [268] V. S. Chevali, D. R. Dean, et G. M. Janowski, « Effect of environmental weathering on flexural creep behavior of long fiber-reinforced thermoplastic composites », *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 95, n° 12, p. 2628-2640, déc. 2010, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2010.07.019.
- [269] H. Rabii, « Impact de vieillissement hygrothermique de composites polyéthylène/ fibres courtes de lin sur les propriétés mécaniques », Montpellier, France.: HAL Id: hal-01144552, 2014, p. 11. [En ligne]. Disponible sur: <https://enpc.hal.science/hal-01144552>

- [270] E. H. Saidane, D. Scida, M. Assarar, et R. Ayad, « Impact du vieillissement hydrothermique sur des composites à fibres de lin : paramètres de diffusion 3D et propriétés mécaniques », *Comptes Rendus des JNC 19 – INSA de Lyon*, 2015.
- [271] Y. Weitsman, « Moisture in composites: sorption and damage », in *Composite materials series*, vol. 4, Elsevier, 1991, p. 385-429. Consulté le: 18 septembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/B9780444705075500135>
- [272] B. Mortaigne, « Vieillissement hydrolytique de polyesters insaturés réticulés par le styrène », PhD Thesis, Paris, ENSAM, 1989. Consulté le: 19 septembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.fr/1989ENAM0004>
- [273] F. Belan, « Amélioration de la résistance à l'hydrolyse de résines polyester », PhD Thèse, Paris, ENSAM, 1995. Consulté le: 19 septembre 2024. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.fr/1995enam0036>
- [274] A. Tcharkhtchi, P. Y. Bronnec, et J. Verdu, « Water absorption characteristics of diglycidylether of butane diol-3,5-diethyl-2,4-diaminotoluene networks », *Polymer*, vol. 41, n° 15, p. 5777-5785, juill. 2000, doi: 10.1016/S0032-3861(99)00801-0.
- [275] B Dewimille et AR Bunsell, « The modelling of hydrothermal aging in glass fibre reinforced epoxy composites », *J. Phys. Appl. Phys.*, vol. 15, n° 10, p. 2079-2091, oct. 1982, doi: 10.1088/0022-3727/15/10/026.
- [276] A. Chateauminois, L. Vincent, B. Chabert, et J. P. Soulier, « Study of the interfacial degradation of a glass-epoxy composite during hygrothermal ageing using water diffusion measurements and dynamic mechanical thermal analysis », *Polymer*, vol. 35, n° 22, p. 4766-4774, oct. 1994, doi: 10.1016/0032-3861(94)90730-7.
- [277] M. Rouch, « Contribution à la compréhension des mécanismes de vieillissement hydrothermique de matériaux composites unidirectionnels polyester insaturé/fibre de lin ».
- [278] D. Fengel, « Characterization of Cellulose by Deconvoluting the OH Valency Range in FTIR Spectra », *Holzforschung*, vol. 46, n° 4, p. 283-288, janv. 1992, doi: 10.1515/hfsg.1992.46.4.283.
- [279] T. Kondo, « The assignment of IR absorption bands due to free hydroxyl groups in cellulose », *Cellulose*, vol. 4, n° 4, p. 281-292, 1997, Consulté le: 9 avril 2025. [En ligne]. Disponible sur: https://idp.springer.com/authorize/casa?Redirect_uri=https://link.springer.com/article/10.1023/A:1018448109214&casa_token=xydxgjfvd0caaaaa:bqzxea6n-mduiidwtoyfafvgskmgw90lltbdzufwia9spgzmeuo7cey2ml1c_tol0l2_3jtxarxcag
- [280] M. L. Nelson et R. T. O'Connor, « Relation of certain infrared bands to cellulose crystallinity and crystal latticed type. Part I. Spectra of lattice types I, II, III and of amorphous cellulose », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 8, n° 3, p. 1311-1324, mai 1964, doi: 10.1002/app.1964.070080322.
- [281] 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 J. Compos. Adv. Mater., vol. 24, n° 1, p. 81-95, 2014, Consulté le: 9 avril 2025. [En ligne]. Disponible sur: <https://hal.science/hal-01007416/>

- [282] M. L. Nelson et R. T. O'Connor, « Relation of certain infrared bands to cellulose crystallinity and crystal lattice type. Part II. A new infrared ratio for estimation of crystallinity in celluloses I and II », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 8, n° 3, p. 1325-1341, mai 1964, doi: 10.1002/app.1964.070080323.
- [283] Q. Chen, R. Zhang, D. Qin, Z. Feng, et Y. Wang, « Modification of the Physical-mechanical Properties of Bamboo-plastic Composites with Bamboo Charcoal after Hydrothermal Aging », *BioResources*, vol. 13, n° 1, p. 1661-1677, janv. 2018, doi: 10.15376/biores.13.1.1661-1677.
- [284] T. W. Clyne et D. Hull, *An introduction to composite materials*. Cambridge university press, 2019.
- [285] G. W. Milton, *The theory of composites*. SIAM, 2022.
- [286] S. Nemat-Nasser et M. Hori, *Micromechanics: overall properties of heterogeneous materials*, vol. 37. Elsevier, 2013.
- [287] H. Sankara, D. Baillis, O. Coulibaly, R. Coquard, N. Naouar, et Z. Saghruni, « Computational Model of Effective Thermal Conductivity of Green Insulating Fibrous Media », *Materials*, vol. 17, n° 1, p. 252, janv. 2024, doi: 10.3390/ma17010252.
- [288] P. Pradhan, A. Purohit, H. Jena, J. Singh, et B. B. Sahoo, « Effects of spherical fillers reinforcement on the efficacy of thermal conductivity in epoxy and polyester matrices: Experimental validation and prediction using finite element method », *J. Vinyl Addit. Technol.*, vol. 31, n° 1, p. 109-120, 2025.
- [289] B. Agoudjil, A. Benchabane, A. Boudenne, L. Ibos, et M. Fois, « Renewable materials to reduce building heat loss: Characterization of date palm wood », *Energy Build.*, vol. 43, n° 2-3, p. 491-497, 2011.
- [290] C. I. Idumah et A. Hassan, « Recently emerging trends in thermal conductivity of polymer nanocomposites », *Rev. Chem. Eng.*, vol. 32, n° 4, p. 413-457, 2016.
- [291] C. S. Saran et A. Satapathy, « Heat transfer analysis of natural fiber composites reinforced with waste glass dust: a numerical and experimental study », *Int. J. Therm. Sci.*, vol. 214, p. 109925, août 2025, doi: 10.1016/j.ijthermalsci.2025.109925.
- [292] A. K. Bledzki et O. Faruk, « Microcellular injection molded wood fiber-PP composites: Part II-Effect of wood fiber length and content on cell morphology and physico-mechanical properties », *J. Cell. Plast.*, vol. 42, n° 1, p. 77-88, 2006.

ANNEXE A- Articles publiés et Communications internationales

A/ JOURNAL OF SCIENTIFIC AND ENGINEERING RESEARCH, 2024, 11(12):1-9 ISSN: 2394-2630

Effect of Temperature on Dynamic Mechanical Properties of Biobased LDPE-Eucalyptus Fiber Composites

Komlavi Henri-Séraphin N'TSULE1,2,3,4*, Demagna KOFFI1, Kwamivi Nyonuwoosro
SEGBEAYA3,4, Guyh Dituba NGOMA5

https://www.researchgate.net/publication/390559334_Effect_of_Temperature_on_Dynamic_Mechanical_Properties_of_Biobased_LDPEEucalyptus_Fiber_Composites?_tp=eyJjb250ZXh0Ijp7ImZpcnN0UGFnZSI6InByb2ZpbGUiLCJwYWdlIjoicHJvZmlsZSJ9fQou
<https://jsaer.com/download/vol-11-iss-12-2024/JSAER2024-11-12-1-9.pdf>

B/ INTERNATIONAL JOURNAL OF COMPOSITE MATERIALS 2025, 15(1): 1-8
DOI: 10.5923/j.comaterials.20251501.01

Influence of the Alkaline Treatment of Eucalyptus Fibres on the Mechanical Behaviour of Low-Density Polyethylene Composites

Komlavi Henri-Séraphin N'Tsule1,2,3,4*, Demagna Koffi1, Kwamivi Nyonuwoosro Segbeaya3,4,
Guyh Dituba Ngoma5

https://www.researchgate.net/publication/388740384_Influence_of_the_Alkaline_Treatment_of_Eucalyptus_Fibres_on_the_Mechanical_Behaviour_of_Low-Density_Polyethylene_Composites?_tp=eyJjb250ZXh0Ijp7ImZpcnN0UGFnZSI6InByb2ZpbGUiLCJwYWdlIjoicHJvZmlsZSJ9fQ

C/ MATÉRIAUX D'INGÉNIERIE CLÉS ISSN : 1662-9795,

<https://www.scientific.net/ForLibraries>

Comparative study of quasi-static bending and Charpy impact test characteristics of virgin and recycled polyethylene composites reinforced with eucalyptus fibers

Komlavi Henri-Séraphin N'TSULE1,2,3,4*, Demagna KOFFI1, Kwamivi
NyonuwoosroSEGBEAYA3,4, Guyh Dituba NGOMA5

<https://main.scientific.net/editing-tool/author/titles/7178/papers/619613/update>

D/ <https://www.ajol.info/index.php/jrsul> , JSIL 24 STA 250509

Effect of hydric and thermo-hydric aging on the quasi-static tensile and flexural properties of bio sourced low-density polyethylene/Eucalyptus fiber composites

N'tsule KH-S*1,2,3,4, Koffi D1,2, SEGBEAYA KN3,4, Dituba Ngomae G5, Tejou SCK1.

Les auteurs de ces articles appartiennent aux structures de recherches suivantes :

1- Innovations Institute in Ecomaterials, Ecoproducts and Ecoenergy (I2E3), Université de Québec à Trois-Rivières (UQTR), C.P.500, Trois-Rivières, QC G9A 5H7, Canada,

2- Surface Modification and analysis Laboratory, Université de Québec à Trois-Rivières (UQTR), C.P.500, Trois-Rivières, QC G9A 5H7, Canada,

3- Laboratory of Waste Treatment and Recovery Management (GTVD), Université de Lomé (UL), Togo

4- Organic Chemistry Water Sciences and Environmental Laboratory (LaCOSEE), Université de Kara (UK), Togo

5- Engineering Laboratory, Université de Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT), Rouyn-Noranda, QC J9X 5E4, Canada

E/ Communications internationales

1- Journée scientifiques internationales de Lomé XXe édition de l'université de Lomé, placée sous le thème : recherche et innovation au service de la transformation structurelle et du développement des pays africains. Septembre 2024.

Attestation de participation et de communication sur le thème : **Influence des traitements alcalin et hybride alcalin-silane des fibres d'eucalyptus de type renfort sur les propriétés mécaniques du composite à matrice PEBD.**

Auteurs : *Komlavi N'TSULE, Demagna KOFFI, Kwamivi SEGBEAYA, Guy Dituba N'GOMA*

2- Journée scientifiques internationales de l'université d'Abomey Calavi -Benin placée sous le thème : valorisation des savoirs endogènes, gage d'un développement durable.

Attestation de communication sur le thème : **Étude du comportement thermomécanique et de la durabilité des composites PEBD/fibres d'eucalyptus.** Octobre 2024.

Auteurs : *Komlavi N'TSULE, Demagna KOFFI, Kwamivi SEGBEAYA, Guy Dituba N'GOMA*

3- Journée scientifiques internationales de l'université de Kara placée sous le thème : Consommation locale et valorisation des savoirs endogènes : quelles contributions des universités africaines pour renforcer la résilience des populations face aux crises planétaires? Octobre 2021.

Attestation de communication sur le thème : **Valorisation par le recyclage des thermoplastiques pour une conception des Eco matériaux : composites PEBD/fibres d'eucalyptus.**

Auteurs : *Komlavi N'TSULE, Demagna KOFFI, Kwamivi SEGBEAYA, Guy Dituba N'GOMA*

4- 33 em journée internationale sur les matériaux composites de Libreville, Gabon

6.1 ANNEXE B: Code de modélisation en 3D dans ANSYS2024-R2

```

Welcome to ANSYS Fluent 2024 R2

Copyright 1987-2024 ANSYS, Inc. All Rights Reserved.
Unauthorized use, distribution or duplication is prohibited.
This product is subject to U.S. laws governing export and re-export.
For full Legal Notice, see documentation.

Build Time: May 13 2024 11:21:01 EST Build Id: 10192

Connected License Server List: <Shared_Web_License_Server>

*****
Info: Your license enables 4-way parallel execution.
For faster simulations, please start the application with the appropriate parallel options.
*****

-----
This is a student version of ANSYS FLUENT. Usage of this product
license is limited to the terms and conditions specified in your ANSYS
license form, additional terms section.
-----

Host spawning Node 0 on machine "seraphin" (win64).

-----
ID      Hostname  Core  O.S.      PID      Vendor
-----
n0      seraphin  1/4   Windows-x64  11692   Intel(R) Core(TM) i5 M 520
host    seraphin           Windows-x64  6496    Intel(R) Core(TM) i5 M 520

MPI Option Selected: intel
-----

```

```

Cleanup script file is C:\Users\ntsul\cleanup-fluent-seraphin-6496.bat

Posting ANSYS Product Improvement Program startup data
Done.

> Multicore SMT processors detected. Processor affinity set!
Reading "C:\Users\ntsul\OneDrive\Attachments\oui oui_files\dp0\FFF\MECH\FFF.msh"...
Buffering for file scan...

    274 nodes, binary.
    393 nodes, binary.
    4955 triangular interior faces, zone 1, binary.
    301 triangular velocity-inlet faces, zone 5, binary.
    301 triangular pressure-outlet faces, zone 6, binary.
    180 triangular wall faces, zone 7, binary.
    2673 tetrahedral cells, zone 2, binary.

Building...
    mesh
    materials,
    interface,
    domains,
    zones,
    wall_domain
    outlet
    inlet
    sys_solid
    interior-sys_solid
    parallel,
Done.

Preparing mesh for display...
Done.

Writing Settings file "C:\Users\ntsul\OneDrive\Attachments\oui oui_files\dp0\FFF\Fluent\FFF.se⚠".
    writing rp variables ... Done.
    writing domain variables ... Done.
    writing sys_solid (type fluid) (mixture) ... Done.
    writing interior-sys_solid (type interior) (mixture) ... Done.
    writing inlet (type velocity-inlet) (mixture) ... Done.
    writing outlet (type pressure-outlet) (mixture) ... Done.
    writing wall_domain (type wall) (mixture) ... Done.
    writing zones map name-id ... Done.

Domain Extents:
x-coordinate: min (m) = -9.237604e-03, max (m) = 9.237604e-03
y-coordinate: min (m) = -1.052810e-02, max (m) = 1.073595e-02
z-coordinate: min (m) = -3.060000e-03, max (m) = 0.000000e+00
Volume statistics:
    minimum volume (m3): 9.807250e-11
    maximum volume (m3): 7.266803e-10
    total volume (m3): 9.004824e-07
Face area statistics:
    minimum face area (m2): 2.874135e-07
    maximum face area (m2): 1.819435e-06
Checking mesh.....
Done.

Error: gui-monitor-residuals: Uninitialized flow field.
Error Object: #f
Contour object is not valid to display, saving object.
Contour object is not valid to display, saving object.
Contour object is not valid to display, saving object.

Probe position = (-0.0065149819 -0.0041238833 -1.4938422e-06)
Surface group = outlet, Surface-id = 1, Surface-name = outlet, Zone-id = 6, Zone-name = outlet

Surface vertex 100
    Position = -0.00603044 -0.00389869 0

```

Surface vertex 100
 Position = -0.00603044 -0.00389869 0
 Current field value = 0
 Face through cell 2368

Thread 2, Cell 2438
 Centroid = -0.00536765 -0.00314384 -0.000404839
 Volume = 6.7213e-10
 Partition = 0
 Density = 1
 Pressure = 0
 Velocity = 0 0 0
 Mass Imbalance = 0
 k = 3.75e-07
 spec. diss. = 0.0025672
 Cell Value = 0

Contour object is not valid to display, saving object.
 Contour object is not valid to display, saving object.
 Contour object is not valid to display, saving object.
 Contour object is not valid to display, saving object.
 Contour object is not valid to display, saving object.

Writing Settings file "C:\Users\ntsul\OneDrive\Attachments\oui oui_files\dp0\FFF\Fluent\FFF.set"...
 writing rp variables ... Done.
 writing domain variables ... Done.
 writing travail (type fluid) (mixture) ... Done.
 writing interior-sys_solid (type interior) (mixture) ... Done.
 writing inlet (type velocity-inlet) (mixture) ... Done.
 writing outlet (type pressure-outlet) (mixture) ... Done.
 writing wall_domain (type wall) (mixture) ... Done.
 writing zones map name-id ... Done.

Fast-loading "C:\PROGRA~1\ANSYSI~1\ANSYSS~1\v242\fluent\fluent24.2.0\addons\afd\lib\hdfio.bin"
 Done.

Writing to seraphin:"C:\Users\ntsul\OneDrive\Attachments\oui oui_files\dp0\FFF\Fluent\FFF-Setup-Output.cas.h5" in NODE0 mode and compression level 1 ...
 Grouping cells for Laplace smoothing ...
 2673 cells, 1 zone ...
 5737 faces, 4 zones ...
 667 nodes, 1 zone ...
 Done.
 Done.

iter	continuity	x-velocity	y-velocity	z-velocity	k	omega	time/iter
1	1.0000e+00	4.1599e-07	2.7663e-01	4.2329e-01	0.0000e+00	7.9793e+04	0:00:00 99
2	1.0000e+00	3.1822e-01	2.4744e-01	1.4245e+00	0.0000e+00	1.0503e-01	0:01:38 98
Reversed flow on 59 faces (17.9% area) of pressure-outlet 6.							
3	3.2747e-01	3.5572e-01	3.8395e-01	5.9884e-01	0.0000e+00	3.7268e-02	0:01:18 97
Reversed flow on 62 faces (19.1% area) of pressure-outlet 6.							
4	1.6924e-01	0.0000e+00	0.0000e+00	1.9237e-01	0.0000e+00	1.5267e-02	0:01:01 96
Reversed flow on 55 faces (16.6% area) of pressure-outlet 6.							
5	1.2005e-01	0.0000e+00	0.0000e+00	0.0000e+00	0.0000e+00	7.7256e-03	0:01:08 95
Reversed flow on 47 faces (14.2% area) of pressure-outlet 6.							
6	8.9401e-02	3.1482e-02	2.8636e-02	4.3922e-02	3.3105e-02	4.6825e-03	0:00:54 94
Reversed flow on 40 faces (12.3% area) of pressure-outlet 6.							
7	6.3325e-02	2.1032e-02	1.8368e-02	2.7886e-02	2.6566e-02	3.4898e-03	0:00:42 93
Reversed flow on 33 faces (10.3% area) of pressure-outlet 6.							
8	4.5579e-02	1.5465e-02	1.2960e-02	1.9434e-02	2.2708e-02	2.1285e-03	0:00:34 92
Reversed flow on 33 faces (10.3% area) of pressure-outlet 6.							
9	3.4174e-02	1.2026e-02	9.6982e-03	1.3727e-02	2.0332e-02	2.6720e-03	0:00:27 91

```

Reversed flow on 26 faces (8.3% area) of pressure-outlet 6.
  11 1.8682e-02 8.5141e-03 6.1762e-03 7.6230e-03 1.7689e-02 2.2676e-03 0:00:34 89

Reversed flow on 25 faces (8.4% area) of pressure-outlet 6.

  iter continuity x-velocity y-velocity z-velocity          k          omega      time/iter
  12 1.3548e-02 7.4975e-03 5.2579e-03 5.8999e-03 1.6880e-02 1.2120e-03 0:00:27 88

Reversed flow on 24 faces (8.1% area) of pressure-outlet 6.
  13 1.0777e-02 6.5694e-03 4.3951e-03 4.3550e-03 1.6268e-02 1.0751e-03 0:00:22 87

Reversed flow on 24 faces (8.0% area) of pressure-outlet 6.
  14 8.0562e-03 5.8683e-03 3.8674e-03 3.4847e-03 1.5806e-02 8.8262e-04 0:00:17 86

Reversed flow on 28 faces (9.5% area) of pressure-outlet 6.
  15 6.3878e-03 5.3078e-03 3.4049e-03 2.8777e-03 1.5438e-02 5.7774e-04 0:00:13 85

Reversed flow on 29 faces (9.8% area) of pressure-outlet 6.
  16 5.0509e-03 4.8330e-03 3.0127e-03 2.2790e-03 1.5230e-02 4.1057e-04 0:00:11 84

Reversed flow on 29 faces (9.8% area) of pressure-outlet 6.
  17 4.2152e-03 4.3979e-03 2.6951e-03 1.8603e-03 1.5081e-02 3.6833e-04 0:00:08 83

Reversed flow on 30 faces (10.3% area) of pressure-outlet 6.
  18 3.3885e-03 4.0755e-03 2.4584e-03 1.6584e-03 1.4968e-02 3.1279e-04 0:00:23 82

Reversed flow on 30 faces (10.3% area) of pressure-outlet 6.
  19 2.8158e-03 3.7759e-03 2.2400e-03 1.3903e-03 1.4892e-02 3.8300e-04 0:00:18 81

Reversed flow on 31 faces (10.5% area) of pressure-outlet 6.
  20 2.4604e-03 3.5098e-03 2.0338e-03 1.2270e-03 1.4789e-02 2.9280e-04 0:00:14 80

Reversed flow on 31 faces (10.5% area) of pressure-outlet 6.
  21 2.0543e-03 3.2835e-03 1.8780e-03 1.0970e-03 1.4765e-02 2.2908e-04 0:00:11 79

```

6.2 Résultats de la variation du flux et de la température dans ANSYS2024-R2

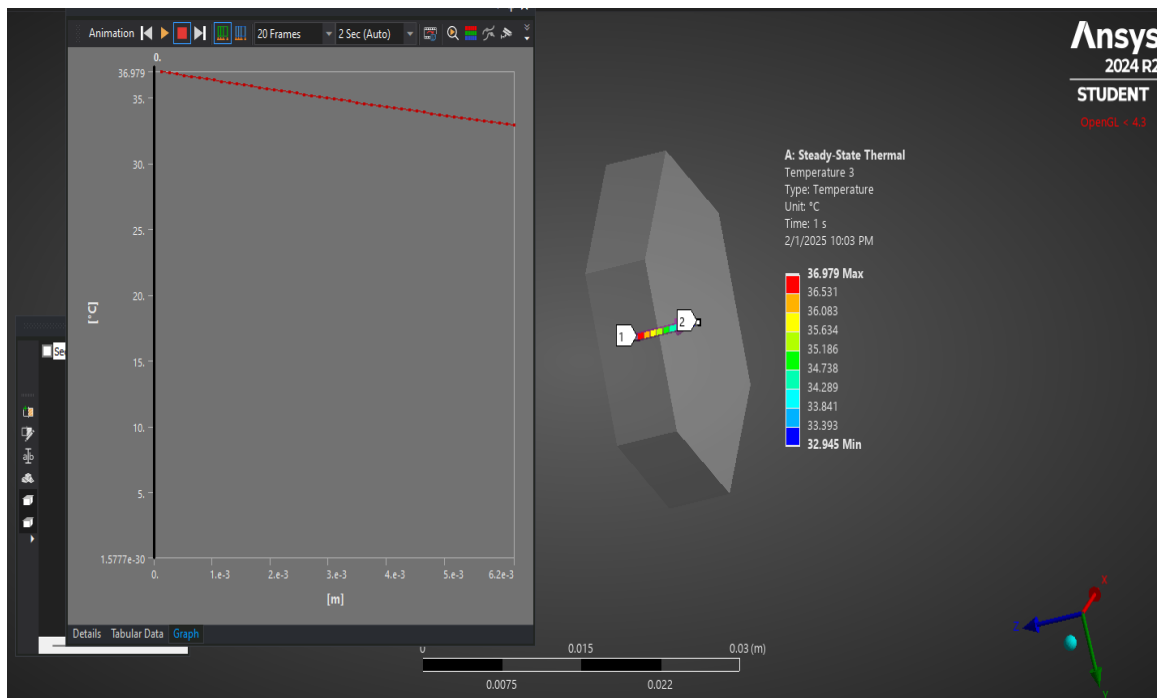


Figure 6.1 Variation suivant la direction et le sens d'évolution de la température

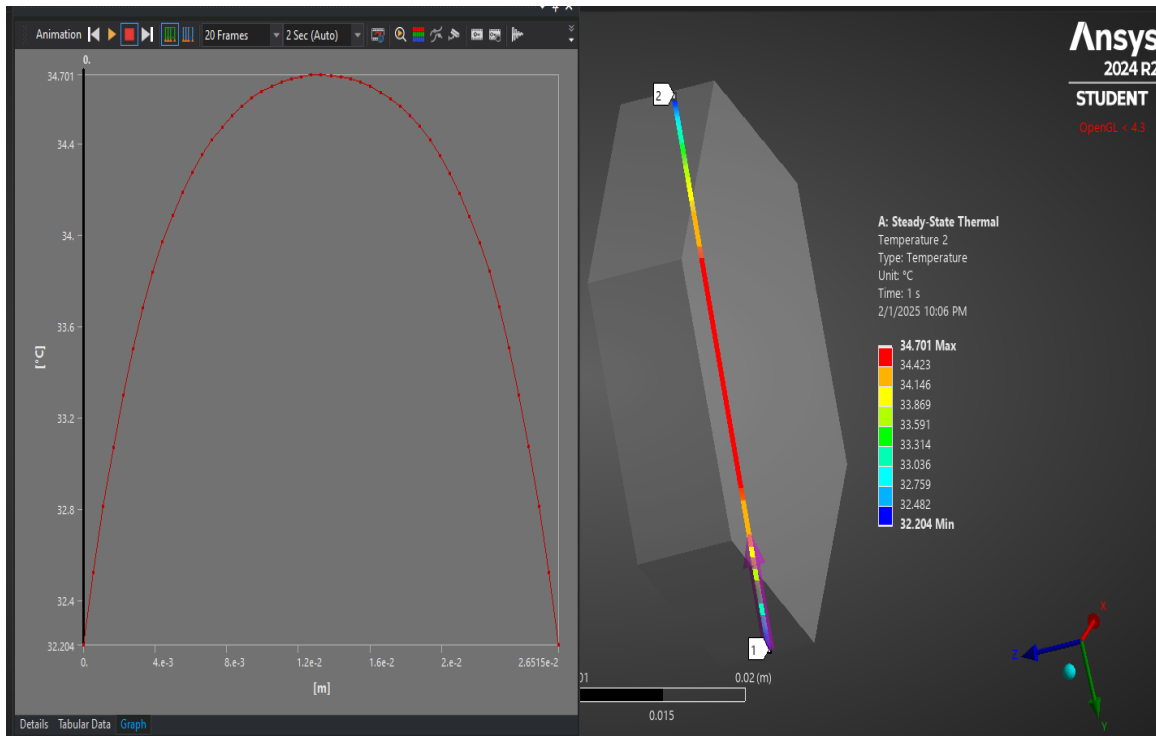


Figure 6.2 Variation suivant la direction perpendiculaire à celle d'évolution de la température

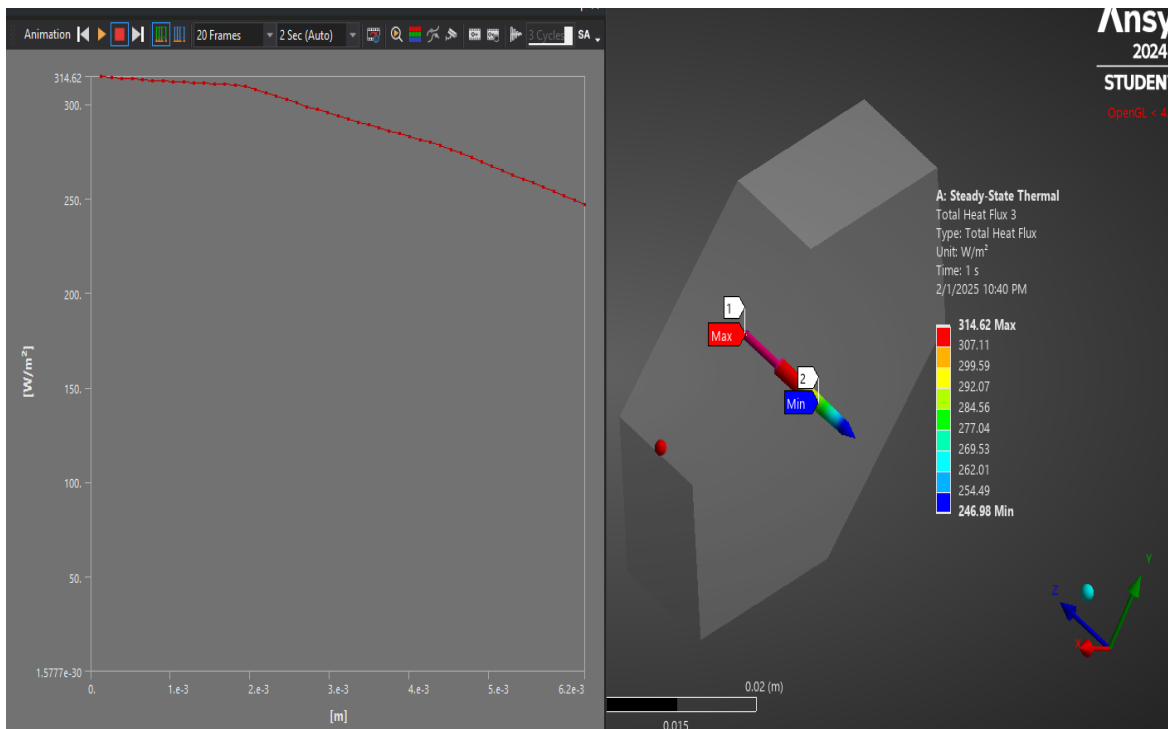


Figure 6.3 Densité de flux de chaleur total suivant la direction et le sens d'évolution de la température

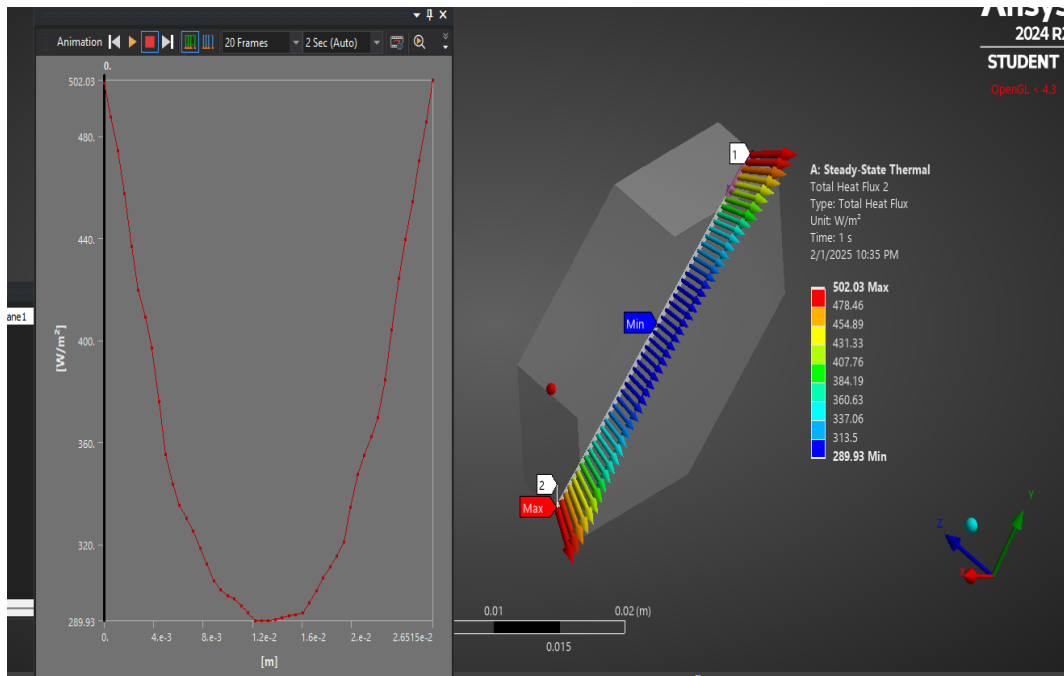


Figure 6.4 Densité de flux de chaleur total suivant la direction perpendiculaire a celle d'évolution de la température

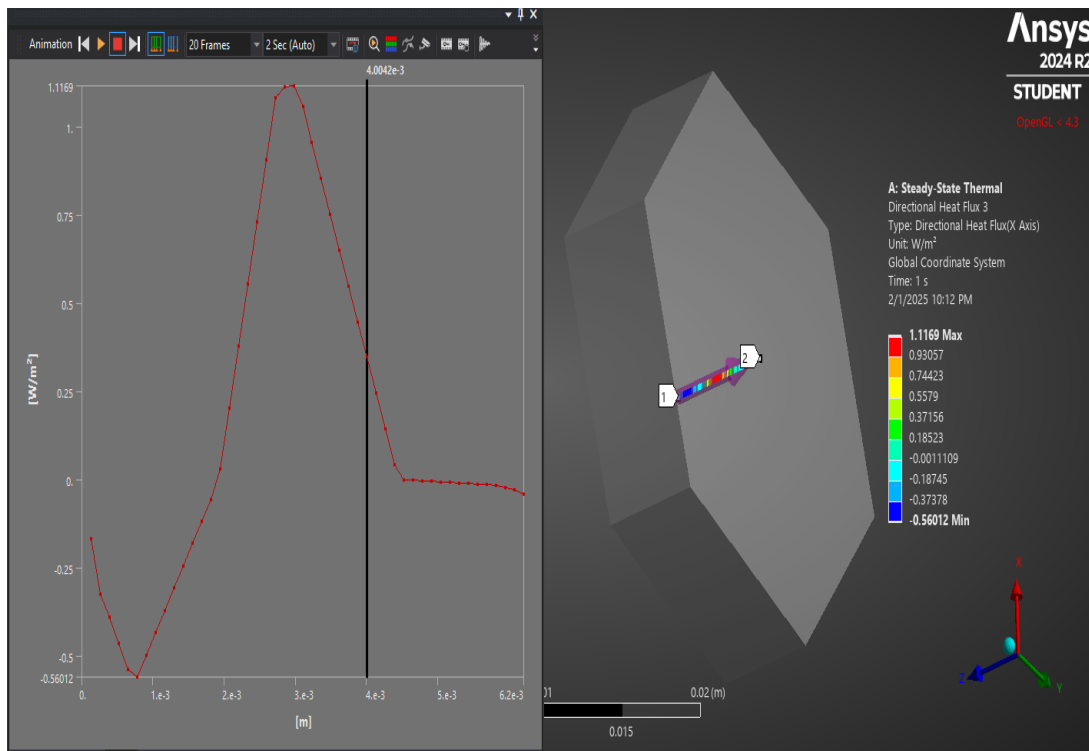


Figure 6.5 Densité de flux de chaleur suivant la direction et le sens d'évolution de la température

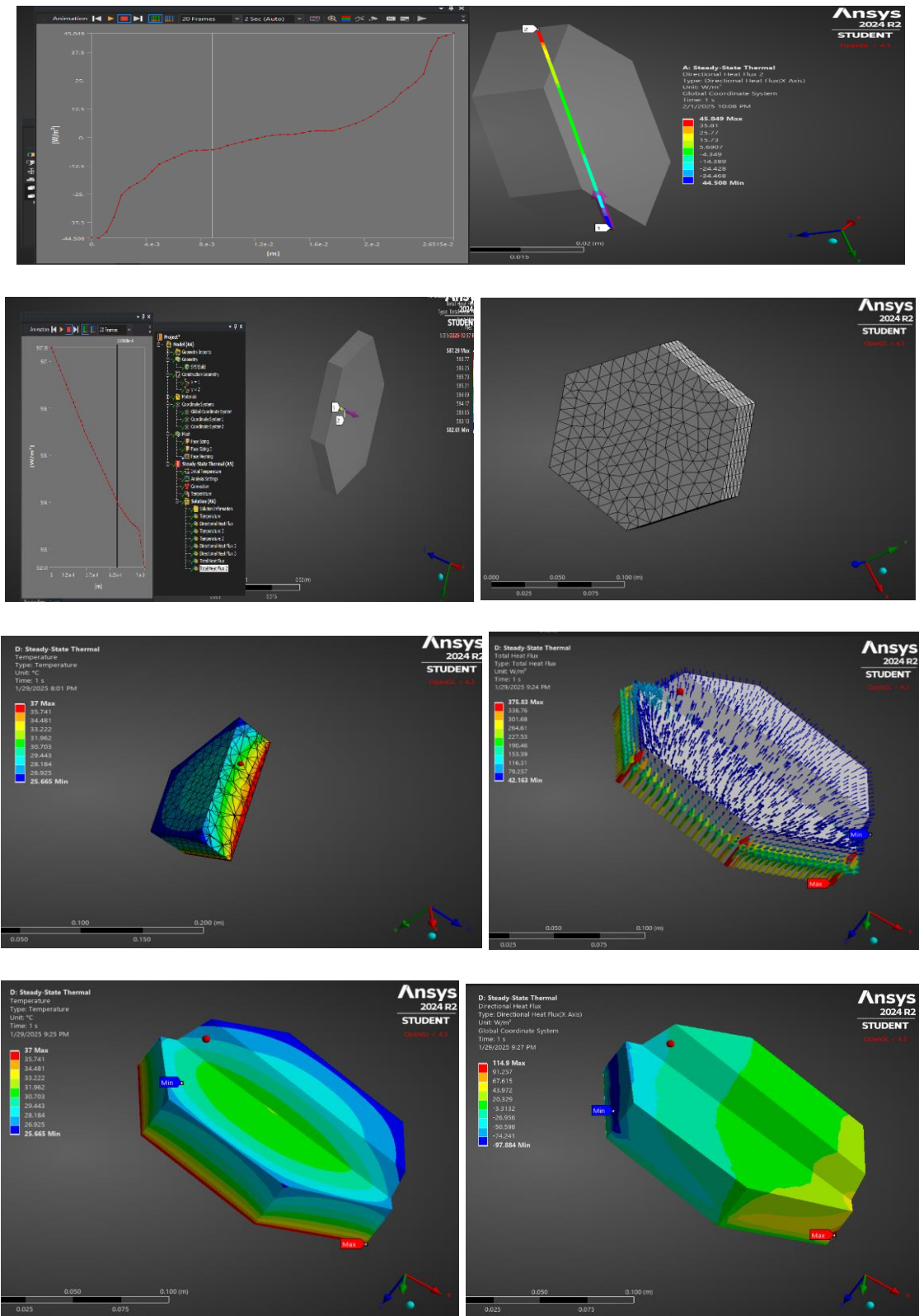
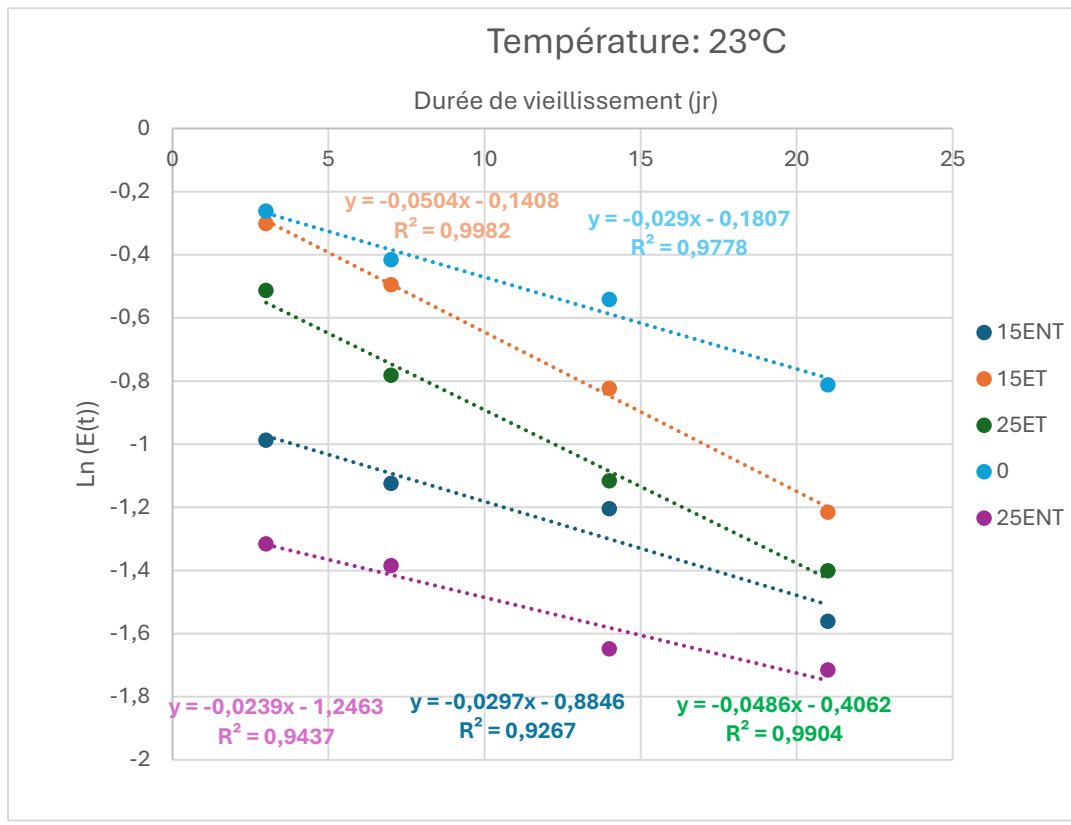


Figure 6.6 Densité de flux de chaleur suivant la direction et le sens d'évolution de la température

6.3 ANNEXE C: Constante de dégradation du module élastique



23°C est choisie pour correspondre non seulement à l'ambient mais aussi pour se situer dans la plage de stabilité thermique des PEBD

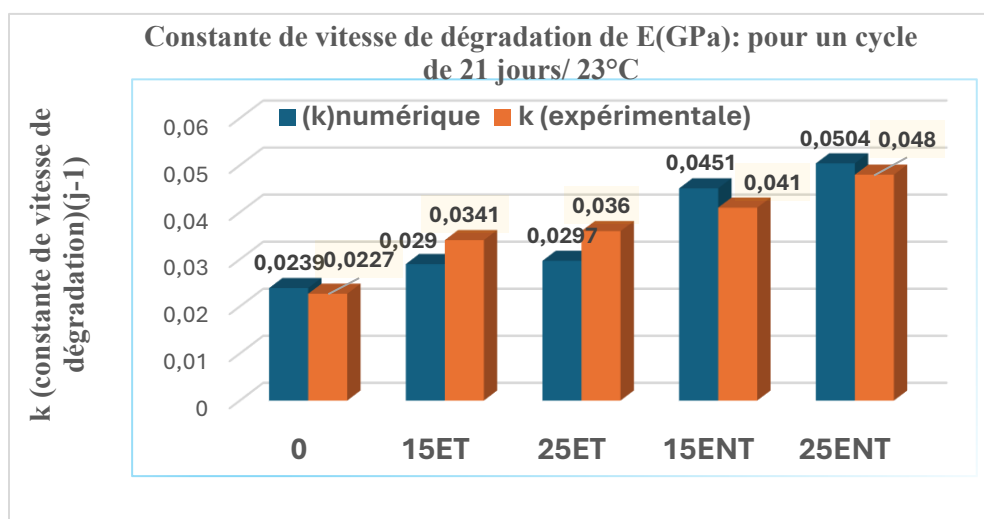


Figure 6.7 Constante de vitesse de dégradation de E à 23°C.

Les $k_{\text{expérimentale}}$ et $k_{\text{numérique}}$ tournent autour $0,0227 - 0,048j^{-1}$ et $0,024 - 0,050j^{-1}$ respectivement. Pas de variation significative entre les constantes de vitesses numériques et expérimentales à 0,01 près.

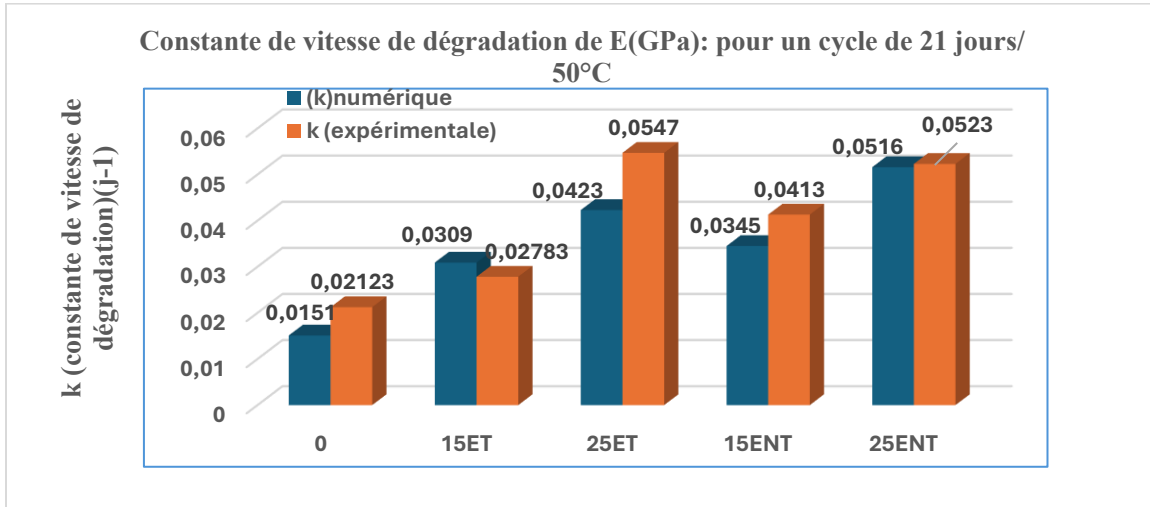


Figure 6.8 Constante de vitesse de dégradation de E à 50°C.

Les $k_{\text{expérimentale}}$ et $k_{\text{numérique}}$ tournent autour $0,021 - 0,052j^{-1}$ et $0,015 - 0,052j^{-1}$ respectivement. Pas de variation significative entre la constante de vitesses numérique et expérimentale.

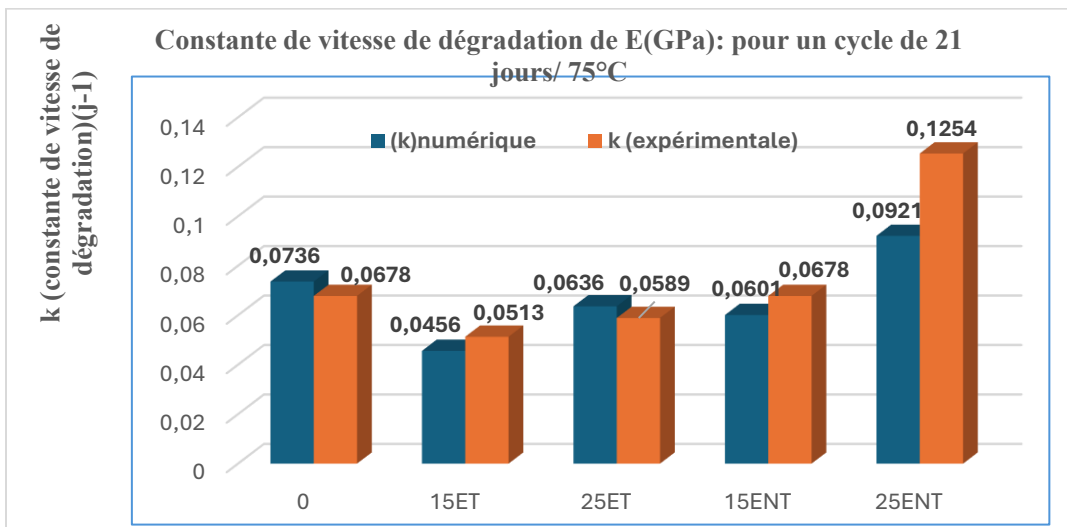


Figure 6.9 Constante de vitesse de dégradation de E à 50°C.

Les $k_{\text{expérimentale}}$ et $k_{\text{numérique}}$ tournent autour $0,068 - 0,125j^{-1}$ et $0,074 - 0,092j^{-1}$ respectivement

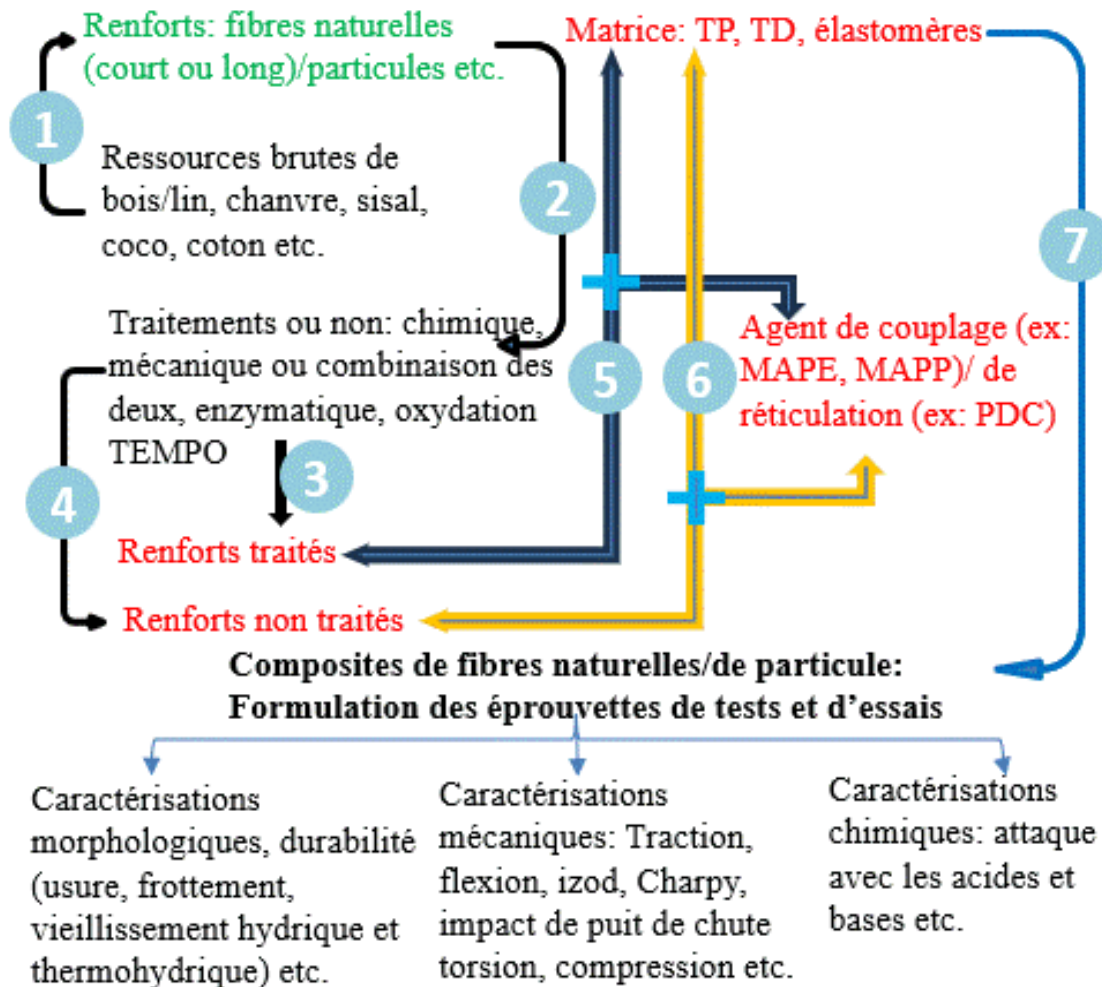
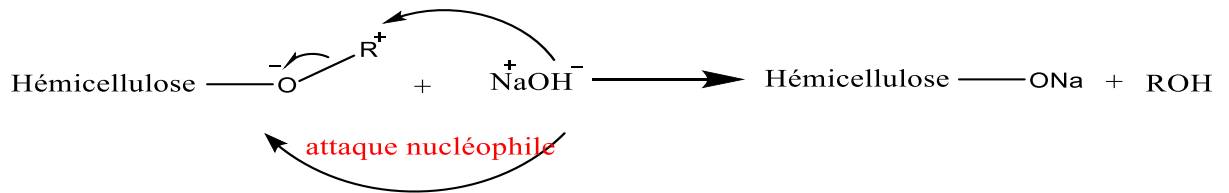


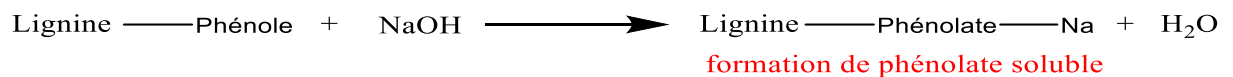
Figure 6.10 Étapes entreprises lors de la formulation des composites

Modification des fibres par mercerisation (NaOH)

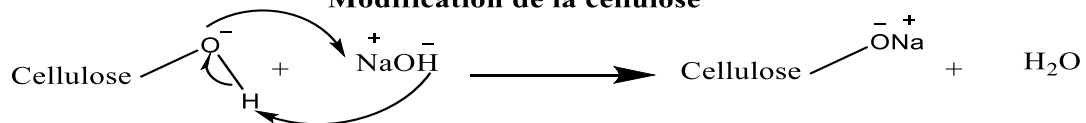
Hydrolyse des Hémicelluloses



Dégradation de la Lignine

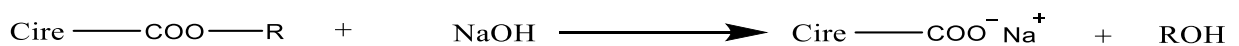


Modification de la cellulose



coupeure des liaisons hydrogènes intra- chaîne par l'ion Na^{\oplus} , conséquence, plus de groupe -OH disponible dans la molécule de cellulose traitée par rapport à la cellulose native (brute)

Saponification des esters de cires



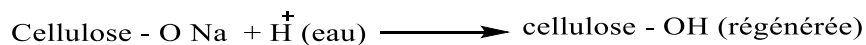
Fibre naturelle (brute)



Réactions simultanées

- 1- Hémicellulose + NaOH \longrightarrow fragments solubles
- 2- lignine + NaOH \longrightarrow lignine fragmentée + Phénolates
- 3- Cellulose-OH + NaOH \longrightarrow cellulose- $\text{O}^{\ominus}\text{Na}^{\oplus}$
- 4- Cires/impuretés + NaOH \longrightarrow Savons solubles

Après avoir rincé à l'eau



Structure finale du composite

Fibre naturelle - O - C(O) - CH = CH - C(O) - O - PE - (enchevêtrement) - PE

Fibre
(renfort)

MA-g-PE
(agent de pontage)

PE
(matrice thermoplastique)