

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou

Faculté du Génie de la Construction

Département de Génie Mécanique



Mémoire de fin d'études

En vue de l'obtention du diplôme de Master en Génie Mécanique

Spécialité : Génie des Matériaux

Thème

Elaboration et Caractérisation d'un composite Biodégradable à base de grignon d'olive

Réalisé par :

Mr. LAHLOU LAMINE

Mr. KHIMOUD SAMI

Devant le jury d'examen :

Mr. ALMANSBA M

UMMTO

Président

Mr. FERHOUM R

UMMTO

Encadrant

Mme MEGHLAOUI B

UMMTO

Examinatrice

Promotion : 2022 / 2023

Remerciements

Nous tenons à remercier en premier lieu «Allah» le tout puissant de nous avoir donné la santé, le courage et la volonté pour préparer ce mémoire.

On voudrait d'abord adresser notre gratitude à notre promoteur Mr FERHOUM R. pour son soutien, pour sa patience, sa disponibilité et surtout ses judicieux conseils, qui ont contribué à alimenter notre réflexion. On le remercie de nous avoir apporté toute son expérience et ses compétences sans lesquelles ce travail n'aurait pas pu aboutir.

Notre remerciement sincère pour les deux personnels du laboratoire de chimie et science des matériaux à l'université Mouloud Mammeri BASTOS, et plus particulièrement Mme BOUABDALLAH et Mr IDIR.

Nos remerciements s'adressent aussi aux membres du jury qui ont accepté d'évaluer ce mémoire.

DÉDICACES

JE DÉDIE CE MODESTE TRAVAIL :

- ✓ A MA MERVEILLEUSE ET TENDRE MÈRE, MON HONORABLE ET
AFFECTUEUX PÈRE
- ✓ A MES CHERS FRÈRES, WALID ET SAMI
- ✓ A MES TENTES, COUSINS ET COUSINES
- ✓ A TOUTE LA GRANDE FAMILLE LAHLOU ET LA FAMILLE FEDDI
- ✓ A MES AMIS, SALEM, MOHAMED OUAHIB, FATEH
- ✓ A MON BINÔME, CHER AMI SAMI

ET TOUS CEUX QUI DE PRÈS OU DE LOIN ONT CONTRIBUÉ À LA
RÉALISATION DE CE TRAVAIL.

LAMINE

Dédicaces

Je tiens vivement à dédier ce travail à celle qui m'a donné la vie,

Le symbole de tendresse et d'amour, qui s'est tant donnée pour mon bonheur et ma réussite, A ma chère mère.

A mon cher père, ce héros sans qui je ne serai pas devenu ce que je suis aujourd'hui.

A mes chers frères : Sofiane et Nassim auxquels je souhaite tant de réussite dans leurs vies, à mes oncles et tantes, à mes grands-parents, Et à toute la famille KHIMOUD et AYADI.

A mon épouse qui a cru en moi et m'a tant soutenu et poussé vers la réussite DALILA.

A tous mes amis de la promotion et aux enseignants qui nous ont accompagné durant tout notre parcours.

Et A tous ceux qui me connaissent.

SAMI

Liste des figures

Figure. I.1. : Structure d'une fibre végétale	5
Figure. I.2. : Modèle de la description de la structure d'une fibre végétale.....	6
Figure. I.3. : Représentation schématique d'une fibre de bois.....	7
Figure. I.4. : Représentation de la chaîne de cellulose.....	8
Figure. I.5. : Principaux glucides constituant les hémicellulose	9
Figure. I.6. : Structure de la pectine	10
Figure. I.7. : Structure de la lignine	10
Figure. I.8. : Motifs élémentaires de la lignine	11
Figure. I.9. : Exemple de défaut structural sur une fibre de lin	12
Figure. II.1. : Schéma représentatif d'un matériau composite.....	16
Figure. II.2. : Classification des matériaux composites suivant la forme des constituants	18
Figure. II.3. : Evolution du nombre d'articles et brevets dans le domaine des matériaux composites à renfort de fibres naturelles au cours des 20 dernières années	21
Figure. II.4. : Schéma de la mise en œuvre par extrusion bi-vis.....	23
Figure. II.5. : Schéma de la mise en œuvre en forme par injection	24
Figure. II.6. : Schéma de la mise en forme par compression.....	25
Figure. II.7. : Le processus de dégradation biologique des polymères biodégradables.....	25
Figure. II.8. : Grignon d'olive.....	27
Figure. II.9. : Taux d'absorption d'eau du PHBV et des composites PHBV/FGO en fonction de la teneur en charge, i.e. 10, 20 et 30% massique	30
Figure. II.10. : Taux d'absorption d'eau du PHBV/FGO en fonction de la teneur en charge, i.e. 10, 20 et 30% massique, en absence et en présence du PHBV-g-MA.....	31
Figure. II.11. : Evolution du module d'Young du PHBV et des bio-composites PHBV/FGO en fonction de la teneur en charge, i.e. 10, 20 et 30% massique, en absence et en présence du PHBV-g-MA.....	32
Figure. II.12. : Spectre FTIR en transmission de la farine de grignon d'olive non traitée(FNT)	33
Figure. II.13. : Spectres IRTF des fibres de grignon d'olive non traitée (FNT) et traitée par le (3-triméthoxysilyl) propyl méthacrylate (FTS).....	33

Figure. II.14. : Evolution de la contrainte à la rupture des composites PS/FGO en fonction du taux de la farine du grignon d'olive traitée et non traitée	34
Figure. III.1. : Photo représentatif le filament du PLA et après avoir découpé le PLA.....	41
Figure. III.2. : Grignon d'olive	43
Figure. III.3. : Lavage du grignon d'olive.....	44
Figure. III.4. : Moulin traditionnel.....	45
Figure. III.5. : Moulin à café.....	45
Figure. III.6. : Photo avant tamisage.....	45
Figure. III.7. : Photo après tamisage	45
Figure. III.8. : Etuve de traitement thermique.....	46
Figure. III.9. : La farine de grignon d'olive dans l'étuve.....	46
Figure. III.10. : Traitement de la farine de grignon d'olive par l'ultra violet	47
Figure. III.11. : Schéma de l'enceinte UV	47
Figure. III.12. : La farine du GO après traitement UV	48
Figure. III.13. : Photo représentatives de la machine d'IRTF.....	49
Figure. III.14. : Extrudeuse Fila-bot EX2	50
Figure. III.15. : L'extrudeuse Fila-bot lors de l'extrusion	51
Figure. III.16. : Presse de l'injection Holipress V1.3	51
Figure. III.17. : L'empreinte de l'éprouvette de traction	52
Figure. III.18. : Eprouvette PLA a l'état vierge	52
Figure. III.19. : Eprouvette PLA vierge et charge 2,5%,5%,10%,30% du GO	52
Figure. III.20. : La machine de traction utilisée.....	53
Figure. VI.1. : Spectre IRTF de PLA vierge	55
Figure. VI.2. : Spectre IRTF de la farine du GO non traité	56
Figure. VI.3. : Spectre IRTF de la farine du GO traité thermiquement à 100C°	58
Figure. VI.4. : Spectre IRTF de la farine du GO traité thermiquement à 120C°	58

Figure. VI.5. : Spectre IRTF de la farine du GO traité thermiquement à 135C°	59
Figure. VI.6. : Spectre IRTF de la farine du GO traité thermiquement à 150C°	59
Figure. VI.7. : Spectres IRTF de la farine du GO superposé traité thermiquement	61
Figure. VI.8. : Spectre IRTF de la farine du GO non traité	61
Figure. VI.9. : Spectre IRTF de la farine du GO traité par UV pendant 12min	62
Figure. VI.10. : Spectre IRTF de la farine du GO traité par UV pendant 30min	62
Figure. VI.11. : Spectre IRTF de la farine du GO traité par UV pendant 1h.....	63
Figure. VI.12. : Spectre IRTF de la farine du GO traité par UV pendant 2h.....	63
Figure. VI.13. : Spectres IRTF de la farine du GO superposé traité par UV	65
Figure. VI.14. : Courbe de traction du l'éprouvette PLA vierge	66
Figure. VI.15. : Courbe de traction du l'éprouvette (97,5% du PLA + 2,5% du GO)	66
Figure. VI.16. : Courbe de traction du l'éprouvette (95% du PLA + 5% du GO).....	67
Figure. VI.17. : Courbe de traction du l'éprouvette (90% du PLA + 10% du GO)	67
Figure. VI.18. : Courbe de traction du l'éprouvette (70% du PLA + 30% du GO)	68
Figure. VI.19. : Courbes de traction des éprouvettes PLA/GO superposé	69
Figure. VI.20. : Evolution de module de Young en fonction du taux de charge	70

Liste des tableaux :

Tableau I : Propriétés mécaniques des fibres naturelles en comparaison avec des fibres renforcement conventionnelles	13
Tableau II.1. : Caractéristiques physico chimique des grignons obtenus par les différents systèmes d'extraction d'huile.....	29
Tableau II.2. : Composition de GO en hémicellulose, cellulose et lignine dans la littérature	29
Tableau III.1. : Propriétés mécaniques et physiques du PLA	42
Tableau III.2. : Les mélanges du PLA et grignon d'olive.....	49
Tableau VI.1. : Les bandes d'absorption pour la fibre cellulosique.....	57

Liste des abréviations :

CMC : Composite à matrice céramique

CMM : Composite à matrice métallique

CMO : Composite à matrice organique

FGO : Farine de grignon d'olive

IRTF : Infra rouge à transformer de Fourier

GO : Grignon d'olive

PHB : Poly hydrox butyrate

PLA : Acide poly lactique

UV : Ultraviolets

Sommaire

Introduction générale	1
------------------------------------	----------

Chapitre I : généralités sur les fibres végétales

I.1 Définition de la fibre végétale	4
I.2 Classification des fibres végétales	4
I.3 Morphologie de la fibre végétale.....	5
I.4 Structure de la fibre végétale	5
I.5 Composition chimique de la fibre végétale	6
I.5.1 Cellulose	7
I.5.2 Hémicellulose	8
I.5.3 Pectines	9
I.5.4 Lignine.....	10
I.6 Application des fibres végétales	11
I.7 Propriétés mécanique de la fibre végétale	12
I.8 Méthodes de modification de la surface des fibres végétales.....	13

Chapitre II : généralités sur les matériaux composites

II.1 Définition d'un matériau composite.....	16
II.2 Domaine d'application des matériaux composites	17
II.3 Classification des matériaux composites.....	17
II.3.1 Classification suivant la forme des constituants.....	17
II.3.1.1 Composites à fibres	17
II.3.1.2 Composites à particules.....	18
II.3.2 Classification suivant la nature des composites (matrice).....	18
II.3.2.1 Matrices thermoplastiques.....	19
II.3.2.2 Matrices thermodurcissables	19
II.4 Les principales qualités et défauts des matériaux composites.....	19
II.5 Les matériaux bio-composites.....	20

II.6 Les paramètres influençant les propriétés des matériaux composites à fibres de cellulose	21
II.6.1 La taille des fibres	21
II.6.2 L'orientation des fibres	22
II.6.3 Adhésion fibre/matrice	22
II.6.4 Influence du taux de renfort	23
II.7 Procédés de mise en forme des matériaux composites.....	23
II.8 Définition des polymères.....	25
II.8.1 Polymères biodégradables.....	25
II.8.2 Les bio-polymères	26
II.9 Définition du PLA	26
II.9.1 Vieillessement et dégradation du PLA.....	26
II.9.2 Incorporation de nano charges au PLA	27
II.10 Grignon d'olive	27
II.10.1 Définition du grignon d'olive.....	28
II.10.2 Types de grignons d'olive	28
II.10.3 Propriétés du grignon d'olive	29
II.10.4 Valorisation des grignons d'olives	29

Chapitre III : partie expérimentale

III.1. Matériaux utilisés.....	41
III.1.1. Propriétés du PLA.....	41
III.1.2. Préparation de la farine du grignon d'olive	43
III.1.2.1. Récolte du grignon d'olive.....	43
III.1.2.2. Lavage.....	44
III.1.2.3. Séchage	44
III.1.2.4. Broyage.....	45
III.1.2.5. Tamisage	45

III.2. Procédures expérimentales.....	46
III.2.1. Traitement de la farine de grignon d'olive.....	46
III.2.1.1. Traitement thermique.....	46
III.2.1.2. Traitement par ultra-violet.....	47
III.2.2. Analyse spectrale par infrarouge par transformée de Fourier IRTF.....	48
III.2.3. Elaboration des composites PLA/Grignon d'olive.....	49
III.2.3.1. Préparation des mélanges.....	49
III.2.3.2. Extrusion.....	50
III.2.3.3. L'injection.....	51
III.2.4. Les tests mécaniques.....	53
III.2.4.1. Test de traction.....	53

Chapitre VI : Résultats et Discussions

VI.1. Caractérisation de la farine de grignon d'olive par analyse spectrale IRTF.....	55
VI.1.1. Analyse spectrale par IRTF de la farine de grignon d'olive traité thermiquement.....	55
VI.1.2. Analyse spectrale par IRTF de la farine de grignon d'olive traité par UV.....	61
VI.2. Résultats des tests de traction.....	66
VI.3. Effet de taux de charge sur l'évolution du module de Young des composites.....	69
Conclusion générale.....	72

Introduction générale

Introduction générale

Depuis l'apparition des matériaux composites dans les années trente et jusqu'à nos jours, ils ont fortement participé au développement de nos technologies. Les matériaux composites sont de plus en plus utilisés, notamment dans les domaines industriels (automobile, travaux public, aériens, et spatiaux...) [1]. Ils apportent de nombreux avantages fonctionnels : la légèreté, résistance mécanique et chimique, maintenance réduite, liberté de formes, et insensibilités aux produits comme les graisses, les liquides hydrauliques, les peintures et les solvants. Ils permettent d'augmenter la durée de vie de certains équipements grâce à leurs propriétés mécaniques et chimiques.

L'utilisation des fibres végétales comme un renfort de matériaux composites présente plusieurs avantages. Premièrement, révolutionne peu à peu le paysage industriel, notamment dans l'automobile ou le facteur environnement est une valeur forte, outre le critère de légèreté auquel répondent idéalement les fibres végétales, ces derniers participent à l'amélioration de la recyclabilité des véhicules. Ces fibres sont largement disponibles à faible coût et leur utilisation en construction constitue de nouveaux débouchés pour les matières agricoles, d'autre part, la valorisation des fibres végétales permet la réduction des impacts environnementaux par rapport aux composites conventionnels puisque ce sont des matières premières, renouvelables, biodégradables, les fibres végétales sont une alternative économique et surtout écologique aux fibres synthétiques traditionnelles (fibres métalliques, minérales ou polymériques) [2] ; mais aussi leur mise en valeur apporte une alternative qui vient résoudre les problèmes environnementaux par les ressources fossiles qui d'ailleurs sont en court d'épuisement[3-4]. De nos jours, plusieurs types de fibres végétales sont utilisées : le lin, le chanvre, le jute, le sisal, le kenaf, le bois... etc. Ces fibres ont l'air d'avoir conquis et surtout répondu à plus exigences, au point d'avoir été introduites dans tous types de polymères qu'ils soient thermoplastiques (PS, PE, PP ou le PVC) ou thermodurcissables (résines époxydes, polymères insaturés et les résines phénoliques) [5-6]

Malgré les nouveautés qu'ont apporté les fibres végétales au monde des matériaux composites il reste certains désavantages qui représentent une entrave à leurs développement industriel et ce à cause du caractère hydrophile qu'elles ont responsable de leur forte absorption d'humidité par les liaisons hydrogènes ce qui induit au gonflement du matériau et sa dégradation ; mais aussi l'adhésion interface/matrice qui permet d'obtenir un matériau homogène et par conséquent un meilleur transfert de charges. C'est pour cela que des fois il faut recourir à des traitements ou des modifications chimiques pour améliorer cette adhésion et aller chercher les caractéristiques optimales du matériau qui vont répondre aux exigences.

Introduction générale

Le grignon d'olive est une ressource naturelle et un produit qui commence à trouver diverses utilisations. Issu des rejets des différentes huileries, l'Algérie et précisément la Kabylie regorge de cette matière qui est chaque année soit rejetée dans la nature ou carrément incinérée pour s'en débarrasser. C'est la disponibilité et le coût quasiment nul de ce déchet qui a justifié le choix de la farine de grignon d'olive comme charge dans la fabrication des matériaux composites à matrice acide poly lactique (PLA). Plusieurs travaux de recherche ont étudié les composites PLA/charges ligno-cellulosiques tels que la farine de bois, mais ils sont rares ceux qui ont étudié les composites polymères chargés avec de la farine de grignon d'olive. [7- 8]

C'est pour cette raison que cette étude a été entreprise dans l'objectif de l'élaboration et la caractérisation d'un nouveau matériau composite à base d'acide poly lactique comme matrice renforcé par la farine de grignon d'olive. La farine de grignon d'olive a été traitée avec deux traitements différents : traitement thermique et traitement par ultra-violet. Ces traitements permettent d'étudier l'absorbance de la farine de grignon d'olive.

Pour une étude détaillée et approfondie de cette problématique, ce manuscrit est subdivisé en quatre chapitres :

- Le premier chapitre est consacré à l'étude bibliographique sur les fibres végétales.
- Le deuxième chapitre évoque les généralités sur les matériaux composites.
- Le troisième chapitre : la partie expérimentale suivie pour mettre en œuvre notre composite PLA/farine de grignon d'olive.
- Le quatrième chapitre : sera consacré à discuter les différents résultats obtenus grâce aux tests et traitement réalisés au cours de l'élaboration des composites PLA/farine de grignon d'olive.

Introduction générale

Référence :

- [1] M. Marzano, « Les matériaux Composites », Dossier pédagogique, ANFA, 2014, p89.
- [2] C. Magniont, « Contribution à la formulation et à la caractérisation d'un éco-matériau de Construction à base d'agro-ressources », Thèse de doctorat, Université de Toulouse, France, 2010, p343.
- [3] C. Ihemochene, Etude de la Durabilité des Matériaux Composites Polyéthylène Haute Densité / Farine de Grignons d'Olive, Thèse de doctorat, Université de Bejaia, 2013.
- [4] J.A. Manson, P.E. Bourban, L. Carlsson, J.P. Mercier, Traité des Matériaux : Matériaux composites à matrice organique, Constituants, procédés, propriétés, Presses polytechniques et universitaires romandes, Ecole polytechnique fédérale de Lausanne, 2004; 15.
- [5] A. N. Oumer, D. Bachtiar, Modeling and experimental validation of tensile properties of sugar palm fiber reinforced high impact polystyrene composites, *Fibers and Polymers*, 2014; 15: 334-339.
- [6] D. Hammiche, A. Boukerrou, H. Djidjelli, A. Djerrada, Effects of some PVC-grafted maleic anhydrides (PVC-g-MAs) on the morphology, and the mechanical and thermal properties of (alfa fiber)-reinforced PVC composites, *Journal of vinyl & Additive Technology*, 2013; 19: 225–232.
- [7] M.A. Flores-Hernandez, I.R. Gonzalez, M.G. Lomeli-Ramirez, F.J. Fuentes-Talavera, J.A. Silva-Guzman, M.A. Cerpa-Gallegos, S. Garcia-Enriquez, Physical and mechanical properties of wood plastic composites polystyrene-white oak wood flour, *Journal of Composite Materials*, 2014; 48: 209–217.
- [8] K. C. Manikandan Nair, S. Thomas, G. Groeninckx, Thermal and dynamic mechanical analysis of polystyrene composites reinforced with short sisal fibres, *Composites Science and Technology*, 2001; 61: 2519–2529

CHAPITRE I

Généralités sur les fibres végétales

Introduction

Les fibres naturelles peuvent être classées selon leur nature (végétale, animale et minérale), et dans le cadre de ce chapitre nous nous intéressons au type de fibres végétales. De nos jours, il existe plusieurs types de fibres végétales qui sont utilisées dans divers domaines industriels : le lin, le chanvre, le sisal, le kenaf, le bois [1].

Dans ce chapitre, après rappel de la définition des fibres végétales, nous décrirons succinctement la classification des fibres végétales, leurs morphologies ainsi que leurs structures et leurs composants. En outre nous apporterons un aperçu sur leurs applications et leurs propriétés mécaniques. Enfin nous mentionnons les méthodes de modification de la surface des fibres végétales.

I.1 Définition de la fibre végétale

Les fibres végétales sont des structures fibreuses biologiques constituées de trois composants de base de la cellulose, l'hémicellulose et la lignine. Elles sont également composées de petites proportions de matières extractibles, de protéines et de certains composés inorganiques. Les proportions de ces composants varient considérablement selon le type de fibres végétales et leur âge [2].

I.2 Classification des fibres végétales

Il existe plusieurs critères de différenciation des fibres :

- ✓ Suivant l'organe de la plante dont elles sont issues, les fibres végétales peuvent être classées en fibres de tiges (kenaf, jute, lin, ramie), et de feuilles (sisal, abac, paille de graminée) [3].
- ✓ Suivant leur teneur en holocellulose (cellulose et hémicellulose) et en lignine, on peut distinguer les fibres ligneuses (dures et rigides provenant de matériaux ligneux tels que le bois d'œuvre, les résidus de l'industrie du bois et les fibres non ligneuses (douces, souples, issues de végétaux non ligneux souvent annuels relativement moins riches en lignine tels que le kenaf, le chanvre, le sisal, le jute et le lin) [2].
- ✓ Suivant leur longueur, les fibres végétales peuvent être groupées en deux catégories : fibres longues, dites libérienne, provenant des tiges d'écorce de tiges de plantes annuelles. Elles sont douces, tandis que les fibres longues issues de feuilles ou de troncs d'arbre sont plus dures et plus rigides à cause de leur richesse en lignine, et fibres courtes ou étoupes qui sont associées aux fibres longues [3].

I.3 Morphologie des fibres végétales

Sur le plan morphologique, la fibre végétale présente une variabilité très importante en fonction de son origine. En effet, les dimensions des fibres végétales dépendent de l'état de maturité et aussi des conditions environnementales de croissance de la plante. La variabilité du diamètre peut être très importante de long de la même fibre végétale [4].

La fibre végétale se caractérise aussi par la variabilité de l'épaisseur de sa paroi cellulaire qui découle de celle de la porosité des fibrilles [5].

I.4 Structure de la fibre végétale

La fibre végétale est un composite en elle-même. Le renfort est constitué par les couches de microfibrille cellulosique en partie cristalline. Ce dernier est enrobé d'une matrice polysaccharidique amorphe (hémicellulose et pectine), qui est associée par liaison hydrogène et covalentes à la lignine [6].

La fibre végétale est composée de plusieurs parois parallèles à l'axe de la fibre et disposée en couche superposée dans le sens radiale. Ces différentes couches qui forment la lamelle mitoyenne, la paroi primaire et la paroi secondaire. Ces dernières bordent un lumen de diamètre variable suivant l'espèce. La paroi secondaire est composée de trois couches de microfibrilles (S1, S2, S3), comme le montre la figure N°1 :

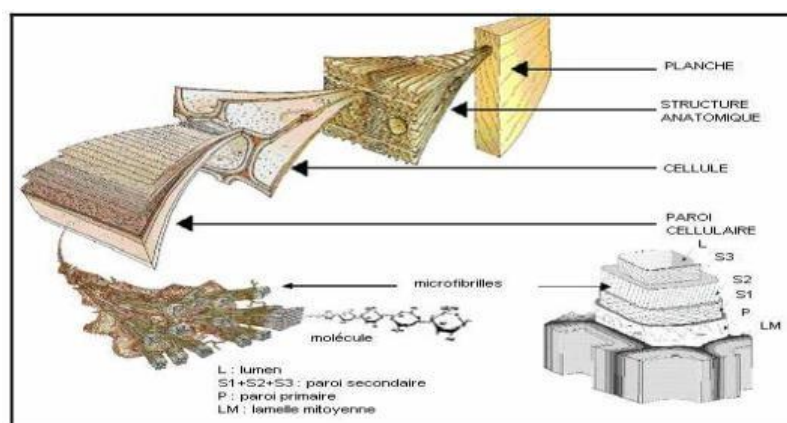


Figure. I.1. Structure d'une fibre végétale [2].

Les microfibrilles décrivent par rapport à l'axe de la fibre, un angle micro fibrillaire (MAF) dont la valeur varie d'une espèce à l'autre. L'orientation des microfibrilles par rapport à l'axe de la cellule joue un grand rôle dans les propriétés mécaniques des parois des fibres,

plus que l'angle des microfibrilles augmente, le module de Young (une mesure de la rigidité) décroît, tandis que l'extensibilité des parois augmente [7].

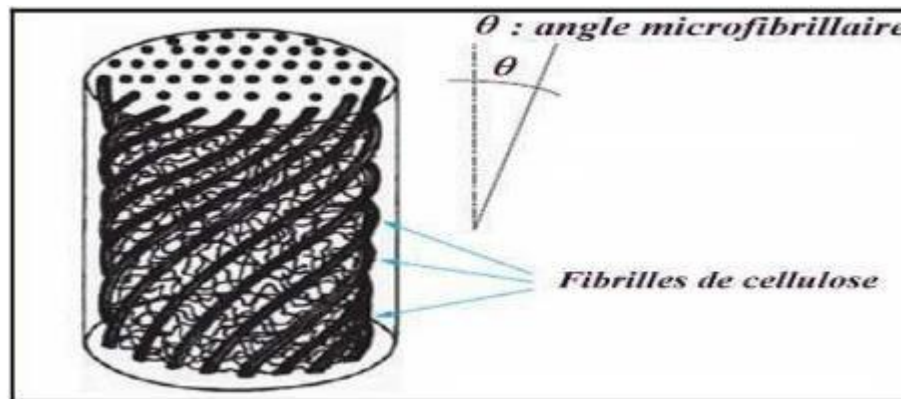


Figure. I.2. Modèle de la description de la structure d'une fibre végétale [6].

I.5 Composition chimique des fibres végétales

La biomasse végétale est constituée de plusieurs macromolécules étroitement liées entre elles au sein de la paroi végétale.

Comme nous l'avons vu précédemment les composés les plus majoritaires sont la cellulose, l'hémicellulose les pectines et les lignines. Ces différents constituants sont agencés de manière très complexe.

Dans le bois, la cellulose est concentrée à l'intérieur de la fibre (**Fig. I.3**). Les parois extérieures de la fibre sont composées principalement de lignines et d'hémicelluloses et les lamelles de jonction inter fibres sont composées presque uniquement de lignine. Un réseau supplémentaire de pectines (polymères de polysaccharides acides) augmente la complexité de la matrice. Le réseau polysaccharidique peut également être solidifié par un réseau secondaire de protéines HRGP (Hydroxyproline Rich Glyco Proteins) [8].

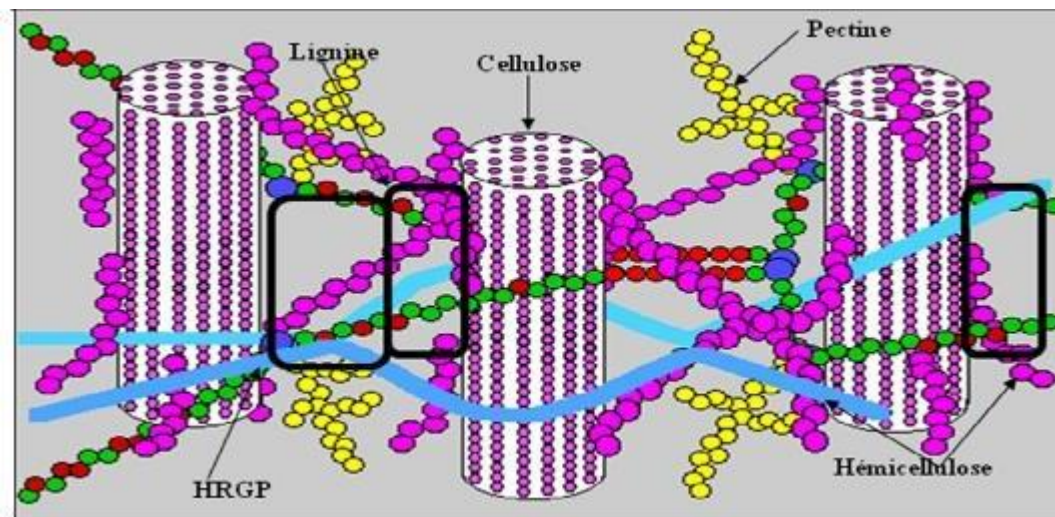


Figure. I.3. Représentation schématique d'une fibre de bois [9].

I.5.1 Cellulose

Il s'agit d'un homo-polysaccharide qui forme la substance majoritaire des fibres végétales et joue à la base un rôle structural. La cellulose est un homopolymère constitué du dimère du glucose, la cellobiose. C'est un type de glucose qui est composé de deux molécules de β -glucose. Le nombre de molécules de cellobiose (motif de répétition) constituant la cellulose est appelé le degré de polymérisation. Le degré de polymérisation diffère beaucoup selon l'origine de la cellulose, sa valeur peut varier de quelques centaines à quelques dizaines de milliers [10].

Quand il s'agit de régions cristallines, les chaînes macromoléculaires sont disposées régulièrement par opposition dans les régions amorphes, disposées de manière aléatoire [11]. La cellulose du bois présente un degré de cristallinité de l'ordre de 60 à 70 %. Ainsi, Eichhorn et al [12]. Donnent des valeurs du module de Young de la cellulose microcristalline. Il y est fait état d'un module de Young de 25 ± 4 Gpa, et est comparé à celui de 36 ± 7 Gpa pour de la cellulose microcristalline extraite du lin et 40 ± 4 Gpa pour la cellulose microcristalline extraite du chanvre. La dispersion de ces valeurs y est expliquée par le degré de cristallinité de la cellulose, dont la valeur à 5 Gpa à l'état amorphe est donnée à 128 Gpa à l'état cristallin [10].

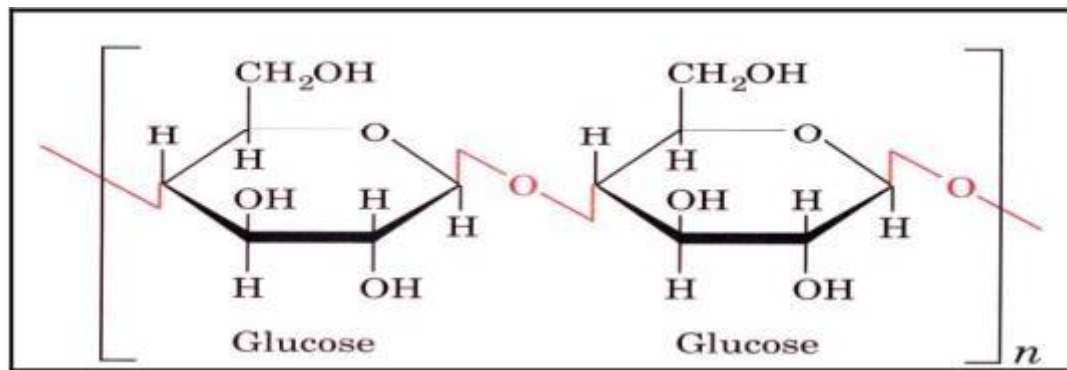


Figure. I.4. Représentation de la chaîne de cellulose [13].

➤ Utilisations

La cellulose est une matière première industrielle importante. Les fibres de cellulose sont utilisées sous forme de fibres pour la fabrication de pâte à papier. Elles sont également employées après transformation dans l'industrie chimique pour la fabrication de matières plastiques : acétate de cellulose, celluloïd, cellophane, rhodoïd... ainsi que dans la fabrication de fibres textiles artificielles : acétate de cellulose, viscose, lyocell, modal, rayonne... Les fibres de cellulose transformées sont, par ailleurs, utilisées comme précurseurs pour la production de fibres de carbone.

Et aussi utilisées pour produire :

- ✓ Les matériaux de friction (freins)
- ✓ Les nappes tramées, les produits d'isolation thermique et phonique
- ✓ Des produits divers utilisés en industrie agroalimentaire, les boyaux artificiels pour la charcuterie
- ✓ Des additifs alimentaires (agents texture)
- ✓ Les films pour pellicules photographiques [14].

I.5.2 Hémicellulose

On désigne par hémicellulose tout polysaccharide soluble dans l'eau et pouvant être extrait de la paroi des cellules végétales par des solutions acides.

Les hémicelluloses sont une classe de polymères très variés (de nombreux monomères et de nombreux branchement différents). Elles sont donc assez mal définies. Dans leurs états naturels. Leur structure est fonction de l'espèce végétale. Elles ont un degré de polymérisation compris entre 200 et 300. (La figure I.5.) montre les unités mono saccharidiques les plus représentatives de différentes familles d'hémicelluloses. Ce sont des polysaccharides dont la

chaîne principale linéaire est constituée respectivement de xylose, de mannose et de galactose [15, 9].

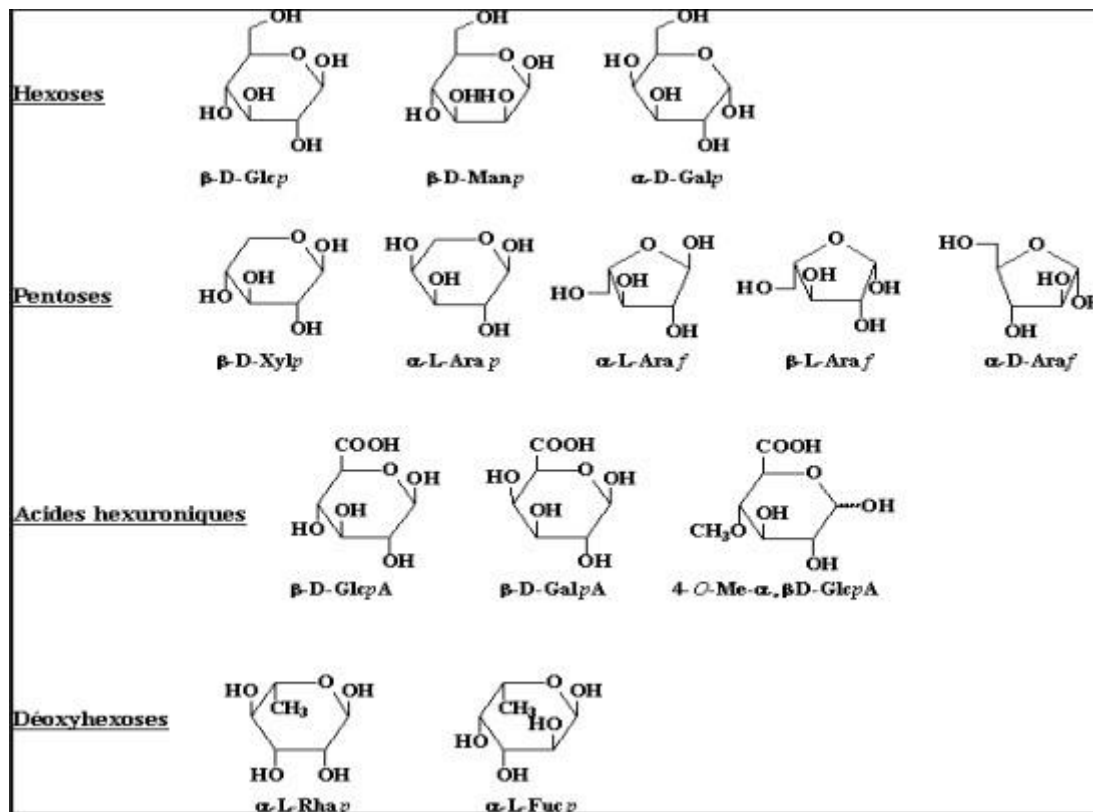


Figure. I.5. Principaux glucides constituant les hémicelluloses [15].

➤ Utilisations

Les hémicelluloses sont utilisées comme additifs alimentaires, épaississants, émulsifiants, agents gélifiants et adsorbants dans des domaines comme la médecine, l'agroalimentaire, la cosmétique et la pharmacie. Les hémicelluloses sont aussi utilisées pour l'obtention de dérivés esters ou éthers [16].

I.5.3 Pectines

Les pectines jouent un rôle dans l'architecture de la paroi végétale. Ces substances pectiques sont présentes avec des proportions variées dans la plupart des végétaux (environ 1% dans le bois). Elles jouent le rôle de ciment intercellulaire et contribuent à la cohésion des tissus végétaux [17].

Sur le plan structural, les pectines sont une famille de polysaccharides complexes qui contiennent un enchaînement d'unités d'acide α -D-galacturonique liées entre elles par des liaisons α (1-4), interrompu par la présence d'unités L-rhamnopyranose.

Les pectines portent aussi des substances non sucrées, essentiellement le méthanol, l'acide acétique l'acide phénolique et parfois des groupes d'amide [18].

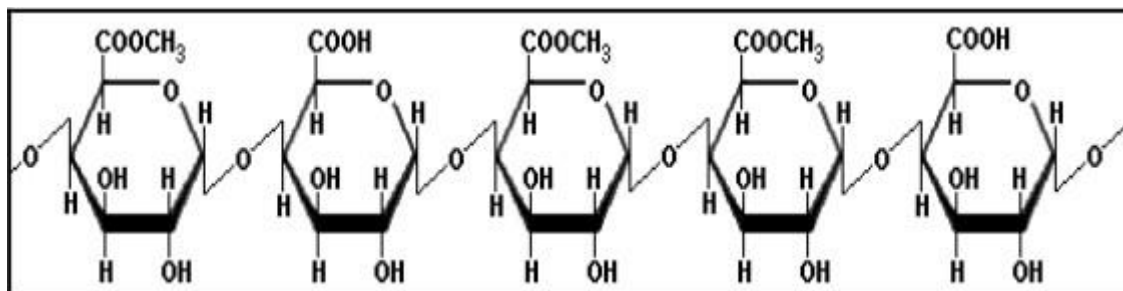


Figure. I.6. Structure de la pectine [18].

I.5.4 Lignine

Après la cellulose, la matière organique la plus abondante sur terre est la lignine. Ce sont trois alcools (phénylpropane) : coumaryliques, sinapyls et coniféryls qui forment un polymère tridimensionnel : la lignine, sa structure est différente selon l'origine des fibres. La lignine joue un rôle d'agent de maintien pour la cellulose. Elle en conditionne grandement la dureté, rigidité et la résistance à la compression du bois [10].

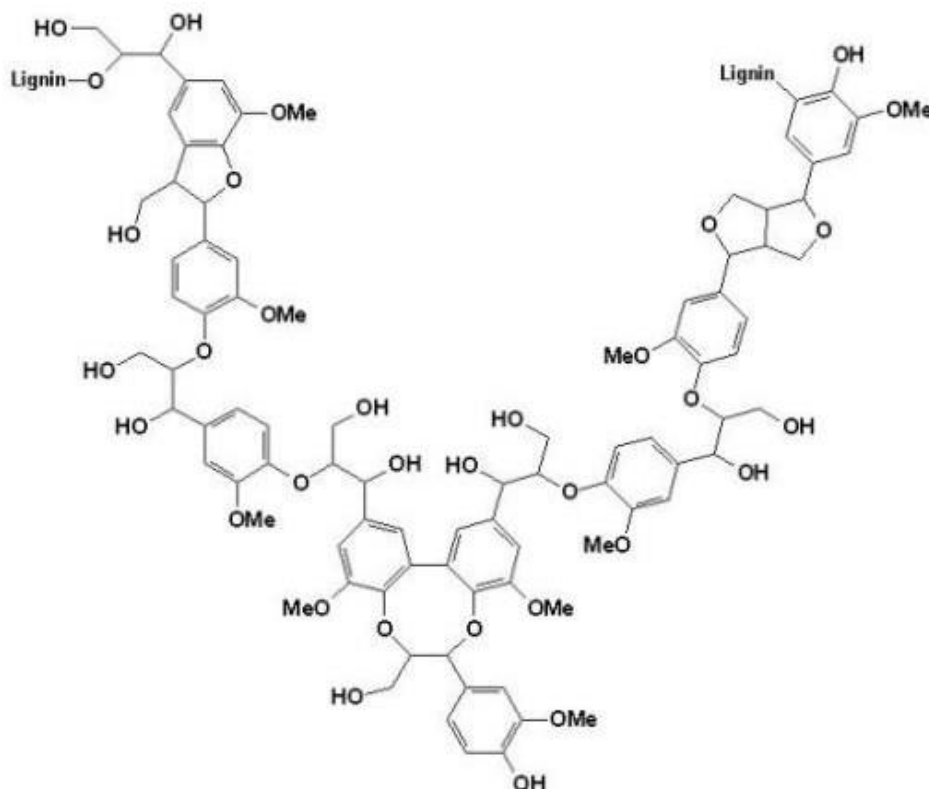


Figure. I.7. Structure de la lignine

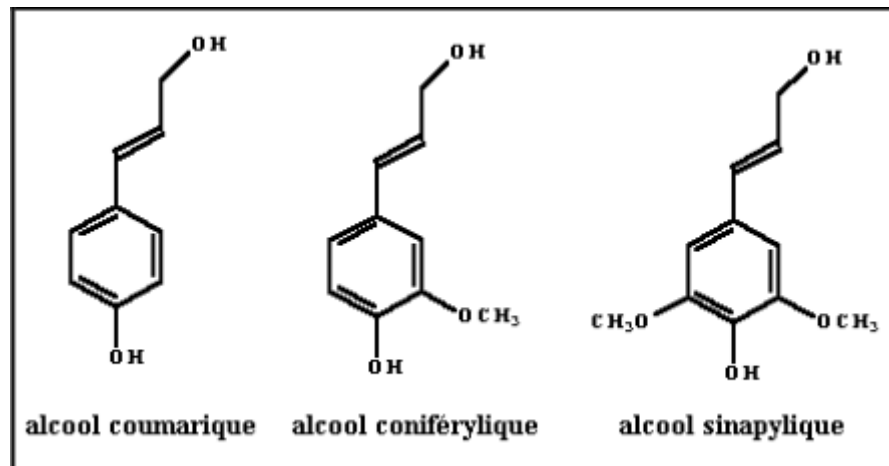


Figure. I.8. Motifs élémentaires de la lignine [9].

I.6 Applications des fibres végétales

L'utilisation des fibres végétales dans les matériaux composites est de plus en plus courante, notamment dans l'industrie d'automobile. Ces principales applications sont les suivantes :

- Garnissage des coffres
- Revêtement pour plancher
- Revêtement pour parois intérieurs
- Revêtement pour passage des roues
- Habillage des sièges
- Garnitures
- Rembourrages en mousse
- Filtre à huile (pour transmission)
- Moquette de garnissage des panneaux de portières
- Capitonnage des panneaux de portières routières et ferroviaires
- Tableaux de bord (injection de granulés)
- La firme Mercedes-Benz utilise des composites renforcés par des fibres de lin et de sisal pour les garnitures intérieurs des portières de la Mercedes classe A [19].

I.7 Propriétés mécaniques de la fibre végétale

Il est très difficile de présenter un tableau qui répertorie toutes les propriétés des fibres lignocellulosiques. La grande variabilité constitutive et anatomique de la fibre végétale implique une variabilité de leurs propriétés mécaniques.

La faiblesse de la masse volumique des fibres végétales (1,2 à 1,5 g/cm³) confère à ces matériaux des propriétés mécaniques spécifiques intéressantes. Les fibres longues ont des contraintes en traction plus faibles que les fibres courtes, du fait que les premières ont de plus grandes probabilités de contenir des défauts de formation.

La cellulose cristalline est l'un des polymères ayant un module d'élasticité relativement plus élevé (90-137GPa), comparé à celui de la fibre de verre qui est de 75Gpa. Ainsi un index de cristallinité de la cellulose d'une fibre élevé est indicateur de propriétés mécaniques élevés.

Les fréquents défauts structuraux observés de la surface des fibres sont des conséquences de la grande variabilité de morphologie, de composition chimique, de structure et de comportement mécanique spécifique de ces fibres.

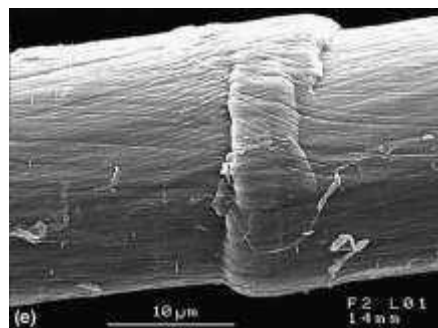


Figure. I.9. Exemple de défaut structural sur une fibre de lin [4].

L'angle micro fibrillaire explique en partie la déformation élastique de la fibre végétale et des lors son allongement à la rupture en traction. En effet, sous l'action de forces de traction relativement faibles, la fibre lignocellulosique subit une déformation réversible du fait l'alignement progressif des micros fibrilles cellulosiques avec l'axe de la fibre et une déformation élasto-viscoplastique des polymères amorphes [4].

Si la sollicitation de la fibre est plus forte, la déformation de celle-ci entre dans une phase irréversible qui peut se poursuivre jusqu'à la rupture. Un angle micro fibrillaire élevé suppose

une déformation élastique plus importante pour une sollicitation de la fibre en traction faible [20].

Le tableau ci-dessous présente les propriétés mécaniques des fibres naturelles en comparaison avec certaines fibres de renforcement conventionnelles.

Tableau I : Propriétés mécaniques des fibres naturelles en comparaison avec des fibres de renforcements conventionnels [6].

Fibre	Densité (g/cm ³)	Allongement(%)	Résistance à la traction (Mpa)	Module de Young (Gpa)
Coton	1.5-1.6	7.0 - 8.0	287–597	5.5-12.6
Jute	1.3	1.5 - 1.8	393–773	26.5
Lin	1.5	2.7 - 3.2	345–1035	27.6
Chanvre	–	1.6	690	–
Ramie	–	3.6-3.8	400–938	61.4-128
Sisal	1.5	2.0 - 2.5	511–635	6.4-22.0
Coco	1.2	30.0	175	4.0-6.0
Verre E	2.5	2.5	2000–3500	70.0
Verre S	2.5	2.8	4570	86.0
Aramide	1.4	3.3 - 3.7	3000–3150	63.0-67.0
Carbone	1.4	1.4 - 1.8	4000	230.0-240.0

I.8 Méthodes de modification de la surface des fibres végétales

Il existe plusieurs méthodes de traitements des fibres végétales comme les modifications chimiques, physico-chimiques...etc. Parmi les méthodes de traitements chimiques de surface qui modifient les performances des fibres végétales : le traitement alcalin, le traitement aux iso cyanates, le traitement au permanganate et l’acétal.

Références :

- [1] C. Magniont, « Contribution à la formulation et à la caractérisation d'un écomatériau de construction à base d'agroressources », Thèse de doctorat, Université de Toulouse, France, 2010, p343.
- [2] F. Michaud, « Rhéologie de panneaux composites bois/thermoplastiques sous chargement thermomécanique : Aptitude post formage », Thèse Phd, univ Laval, 2003, p256.
- [3] A. Y. Nenonene, "Elaboration et caractérisation mécanique de panneaux de particules de tige de kénaf et de bioadhésifs à base de colle d'os, de tannin ou de mucilage", thèse de doctorat de l'université de Toulouse, Institut National Polytechnique de Toulouse, Sciences des Agroressources, 2009.
- [4] K.Charle, C.morvan, J.Bréard, JP.Jernot, M.Gomina, "Etude morphologique d'un composite naturel la fibre de lin" revue des composites et des matériaux avancées, Vol16, pp11-24,2006.
- [5] C.Ververis, K.Georghiou, N.Christodoulakis, P. Santas, R.Santas. " Fiber dimensions, lignin and cellulose content of various plant materials and their Suitability for paper production. Industrial Crops and Products 19: 245–254, 2004.
- [6] A.K. Bledzki, J. Gassan, "Composites reinforced with cellulose based fibres", Prog. Polym. Sci. 24 221–274, 1999.
- [7] F.Laurans, A.Déjardin, J.Pilate, "Physiologie de la formation des parois de fibres de bois", composites et matériaux avancés, Vol.16, pp.27-39,2006.
- [8] L. Yahiaoui, « Caractérisation d'un composite à la rupture à base des fibres végétales (Diss) », Mémoire de magister, Université Ferhat Abbas Sétif, Algérie, 2011, p96.
- [9] C Couhert. Pyrolyse flash à haute température de la biomasse ligno-cellulosique et de ses composés - production de gaz de synthèse", Thèse de pour obtenir le de Doctorat de l'Ecole des Mines de Paris Energétique.2007.
- [10] N. Bouhamed, « Elaboration et caractérisation d'un matériau composite à base de farine de bois d'olivier», Thèse pour obtenir de Doctorat, Université Le Havre Normandie, France, 2020, p157.

- [11] G. B. Mitra and P. S. Mukherjee, "X-ray diffraction study of fibrous polymers. I. Degree of paracrystallinity - A new parameter for characterizing fibrous polymers", *Polymer*, vol. 21, n° 12, pp. 1403-1409, 1980.
- [12] Eichhorn, S., Young, R. "The Young's modulus of a microcrystalline cellulose", *Cellulose*, vol. 8, pp. 197-207, 2001.
- [13] N.Joly, "synthèse et caractérisation de nouveaux films plastiques obtenues par acylation et réticulation de la cellulose", thèse doctorat de l'université de Limoges, chimie des substances Naturelles, 2003.
- [14] S. Binet, S. Malard, M. Ricaud, A. Romero-Hariot et B. Savary, « Fibres de cellulose », Institut National de Recherche et de Sécurité (INRS), Fiche Toxicologique, 2011, p9.
- [15] D, Hatsch, "Interaction hôte/pathogène : étude du modèle *Cumulus lupulus Fusarium graminearum*. Identification, génomique et transcriptomique du pathogène," thèse de doctorat de l'université de Louis Pasteur Strasbourg I, Sciences du Vivant – Aspects moléculaires et cellulaires de la biologie.2004.
- [16] A. Gandini et M. N. Belgacem, « La chimie des substances renouvelables », *L'actualité chimique*, 2002, p6-14.
- [17] B.Montiès, "Les polymères végétaux - Polymères pariétaux et alimentaires non azotés, Gauthier Villars (ed), Paris (1980).
- [18] B.R. Sharma, Naresh L., N.C. Dhuldhoya, S.U. Merchant and U.C. Merchant Lucid "Colloids Limited Jodhpur"-342005, Rajasthan, India,2006.
- [19] S. Nekkaa, « Etude des propriétés d'un nouveau matériau composite à base de polypropylène renforcé par une fibre végétale locale », Thèse de doctorat, Université Ferhat Abbas Sétif, Algérie, 2007, p148.
- [20] R.M. Rowell' Composite Materials from Agricultural Resources" Olsen, Ole; Rexen, Finn; Larsen, Jorgen, eds. Research in industrial application of non food crops, I: plant fibers: Proceedings of a seminar; 1995 May; Copenhagen, Denmark.Linkboy, Denmark Academy of Technical Science: 27-41

Chapitre II

Généralités sur

Les matériaux composites

Introduction

De nombreux travaux se sont intéressés à l'incorporation de fibres de cellulose (lin, jute, chanvre, ...) dans des composites à base d'acide poly lactique (PLA) [1,2]. De manière générale, il en ressort que l'ajout de fibres permet d'augmenter significativement la rigidité du composite, ainsi que sa résistance mécanique. Ces composites commencent à être utilisés dans le domaine automobile pour réaliser entre autres des tapis de sol et des toits en toile [3].

Le nombre de matériaux composites est infini et en perpétuelle augmentation avec les nouveaux matériaux élaborés à chaque nouveau jour, qui ont pour but d'apporter un meilleur confort, une meilleure durabilité, des propriétés optimales, répondre aux normes et exigences...etc.

Dans ce chapitre nous allons détailler les composants d'un matériau composite ainsi que leurs classifications et domaines d'application. Mais également leurs avantages et inconvénients.

II.1 Définition d'un matériau composite

Un matériau composite est un assemblage d'au moins deux matériaux non miscibles, mais ayant une forte capacité d'adhésion. Il est composé d'un renfort (sous forme d'éléments fragmentés, de poudre ou de liquide) dont le rôle est d'assurer la tenue mécanique, et d'une matrice qui garantit la cohésion de la structure et le transfert de charges entre les renforts. Le nouveau matériau élaboré possède des performances supérieures à celles des éléments pris séparément. A ces deux composants peuvent s'ajouter des additifs qui permettent de modifier l'aspect, ou les caractéristiques du matériau. [4-6].

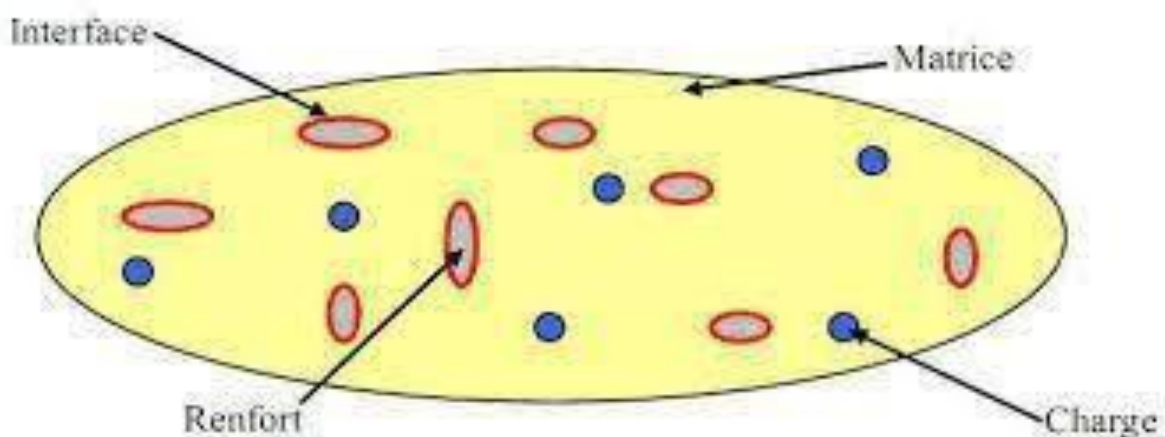


Figure. II.1. Schéma représentatif d'un matériau composite. [6].

II.2 Domaine d'application des matériaux composites

Les matériaux composites ont pris le dessus dans divers domaines et ce grâce à toutes les améliorations qu'ils ont apportées, et parmi leurs utilisations on peut citer :

- La construction navale
- Le domaine militaire
- L'aéronautique et l'aérospatial
- L'électricité : éolienne
- Pièces industrielles
- Bâtiment...

II.3 Classification des matériaux composites

Il y a plusieurs types de matériaux composites qui sont classés soit selon la forme des composés matrice/renfort utilisés, soit selon la nature des composants.

II.3.1 Classification suivant la forme des constituants

Les composites sont classés en deux catégories en fonction de la forme des constituants.

II.3.1.1 Composites à fibres

Pour les matériaux à fibres les charges sont sous formes de fibres courtes ou longues, continues ou discontinues. L'arrangement et l'orientation des fibres a son importance dans l'évaluation des propriétés mécaniques du matériau. [7,8].

Et parmi les renforts fibreux les plus utilisés on a :

- Les fibres de verres, qui d'ailleurs sont les plus utilisées [9].
- Les fibres de carbone [10].
- Les fibres d'aramide pour des utilisations plus précises tel que la balistique (secteur militaire) et la haute technologie dans l'aéronautique [11].
- Les fibres naturelles (végétales) qui sont en phase de forte croissance grâce à leur faible coût et leur effets positifs sur l'environnement [12].

II.3.1.2 Composites à particules

Dans les matériaux à particules généralement les charges ou renforts se trouvent sous forme de particules qui n'ont pas de forme ou de géométrie précise, elles sont souvent utilisées pour réduire le coût du matériau sans réduire les caractéristiques ou bien dans le but d'apporter de meilleures propriétés physico-chimiques. [7,8].

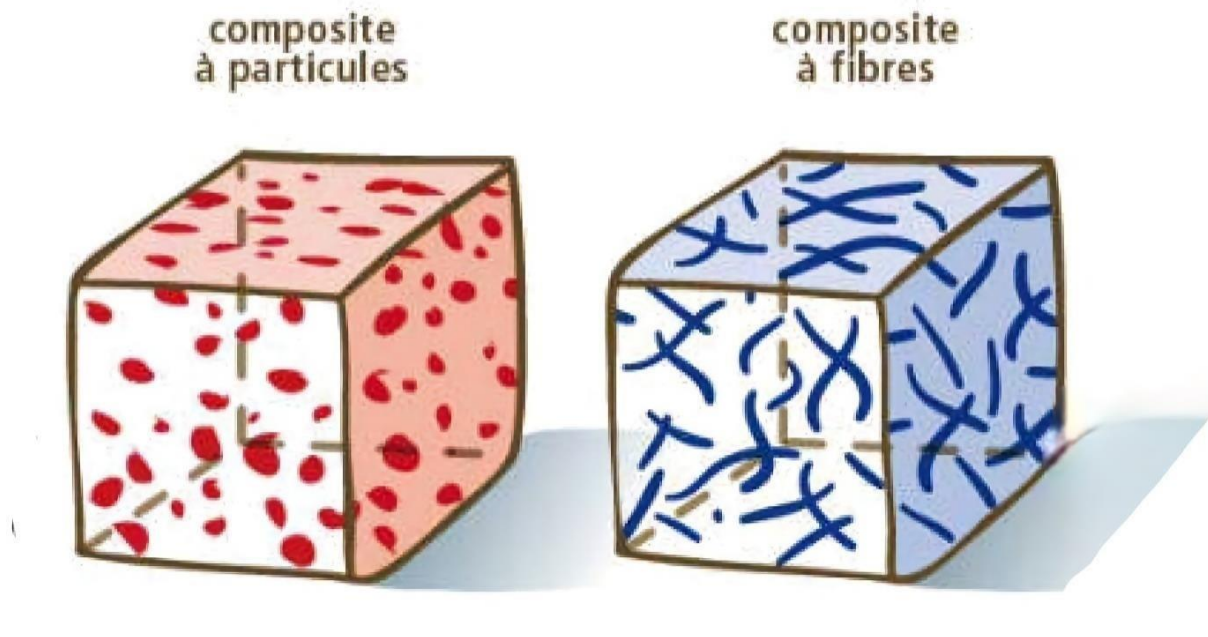


Figure. II.2. Classification des matériaux composites suivant la forme des constituants [13].

II.3.2 Classification suivant la nature des composites (matrice)

Il existe trois grandes familles de types de matrices qui sont :

- Les composites à matrice organique (CMO)
- Les composites à matrice céramique (CMC)
- Les composites à matrice métallique (CMM) [13,14].

Et les composites à matrice organiques sont divisés en trois catégories par rapport aux polymères utilisés :

- Les polymères thermoplastiques
- Les polymères thermodurcissables
- Les élastomères

La grande diversité des renforts et des matrices permet de concevoir des matériaux composites qui répondent aux besoins, et de ce fait améliorer les propriétés mécaniques de ces matériaux emmènent au développement industriel.

II.3.2.1 Matrices thermoplastiques

Les matrices thermoplastiques sont les plus utilisées, car elles sont faciles à mettre en œuvre et elles ont un faible cout. Présentent sous forme semi cristallines, ces macromolécules sont formées à partir de monomères de fonctionnalité moyenne. Leur recyclabilité et leur thermo-réversibilité constituent des avantages très importants. Il existe aussi des thermoplastiques à usage spécifique qui peuvent résister à des températures de l'ordre de 200C°.

Les principales familles des thermoplastiques sont les polyoléfines (les polyéthylènes, les polypropylènes), les plastiques à basse de polychlorure de vinyle, les acryliques et les polystyrènes.

II.3.2.2 Matrices thermodurcissables

Les matrices thermodurcissables sont des polymères qui ne peuvent être mis en forme qu'une seule fois, mais possèdent des propriétés mécaniques et thermomécaniques meilleures par rapport aux thermoplastiques.

On distingue principalement les polyesters insaturés, les résines époxydes, les phénoliques, les aminoplastes... etc. Ces polymères se présentent toujours sous forme amorphe.

II.4 Les principales qualités et défauts des matériaux composites

- Les composites sont très résistants à la corrosion
- La possibilité d'orienter le renfort en fonction des contraintes imposées à l'objet
- Une masse volumique faible ce qui permet d'avoir une bonne rigidité et une résistance élevée [15].
- Une forte anisotropie
- Absence de domaine plastique (limite élastique égale à la limite à rupture)
- Bonne résistance à la fatigue (durée de vie élevée)
- L'humidité et la chaleur premiers facteurs qui engendrent un vieillissement
- Insensibles à certains produits chimiques tels que les peintures, les huiles, les solvants) [16].

II.5 Les matériaux bio-composites

Ces dernières années, le coût élevé des matériaux et les normes environnementales ont poussé les chercheurs à développer de nouveaux matériaux ayant des performances élevées avec un faible coût [17]. Et cela n'est réalisable uniquement si on se focalise sur des matériaux sains pour l'environnement, et les termes qui définissent ce matériau sont "durable" "biodégradable" "recyclable".

Un matériau est bio-composite si l'un de ses composés (matrice ou renfort) est biodégradable. Dans le cas où la matrice et le renfort sont biodégradables le matériau est dit bio composite entièrement biodégradable, par contre si l'un des éléments n'est pas biodégradable on parlera de biodégradabilité partielle. Pour répondre aux exigences actuelles le but est de concevoir des matériaux 100 % biodégradables. L'élaboration d'un tel matériau peut se faire en utilisant des fibres de cellulose comme renfort avec comme matrices des polymères biodégradables tels que l'acide poly lactique PLA ou le poly hydrox-butyrate PHB [18]. Ces matériaux composites sont des matériaux non toxiques, totalement biodégradables, répondent aux normes environnementales et surtout peuvent être recyclés.

En fin de cycle il sera possible de recycler ces composites avec zéro toxicité et là est l'intérêt accordé aux bio-composites.

Grace aux avantages que procurent les fibres de cellulose celles-ci ont suscités beaucoup d'attention pour remplacer les renforts synthétiques issues du pétrole, très coûteux et polluants pour l'environnement. Les fibres de cellulose ont un coût plus bas (200-1000 \$/tonne) et une énergie de production plus faible (4 GJ/tonne) que les fibres de verre (1200-1800 \$/tonne, 30 GJ/tonne) ou les fibres de carbone (1250 \$/tonne, 130 GJ/tonne) [19]. Ce qui pousse les chercheurs à prendre cette voie, comme le démontre le nombre élevé de publication sur les différents thèmes basés sur les composites à fibres naturelles (Figure. II.3)

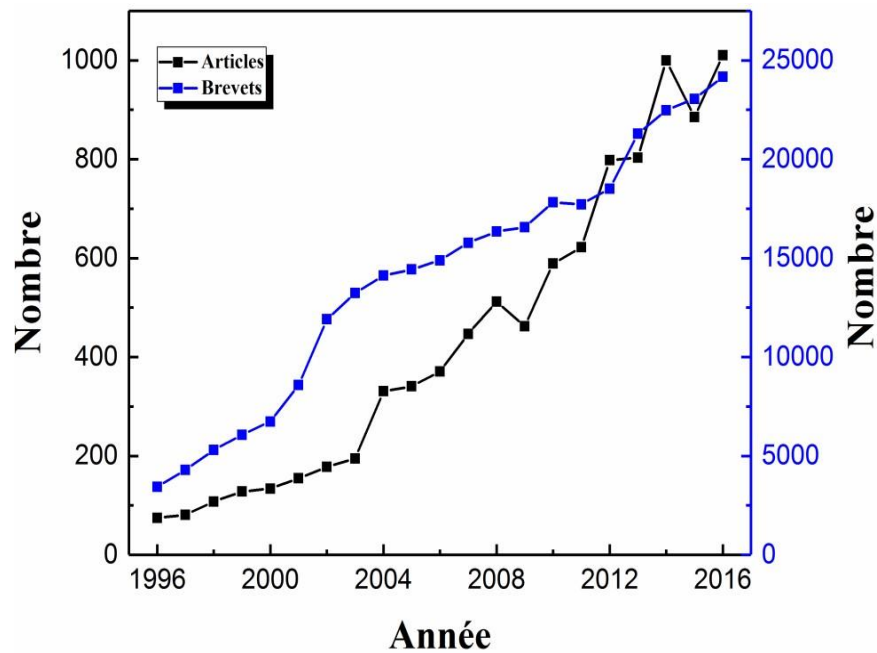


Figure. II.3. Évolution du nombre d'articles et brevets dans le domaine des matériaux composites à renfort de fibres naturelles au cours des 20 dernières années.

II.6 Les paramètres influençant les propriétés des matériaux composites à fibres de cellulose

Les composites à base de fibres de cellulose ont des propriétés qui sont affectées par différents paramètres : l'orientation des fibres, leur dispersion ainsi que leur taille, l'adhésion entre fibre/matrice. Chacun de ces paramètres aura un impact direct sur les propriétés du composite, du coup il est nécessaire de comprendre chacun d'eux pour maximiser les résultats.

II.6.1 La taille des fibres

La taille ou la longueur des fibres est un facteur important dans les composites. Les composites à fibres longues possèdent d'excellentes propriétés grâce à leur pouvoir de transmettre les contraintes. Une étude qui a été faite par D. González et al [18] sur un composite à matrice PLA (l'acide poly lactique) renforcé par des fibres de bambou, a démontré le rôle de la taille des fibres sur les propriétés mécaniques ainsi que l'absorption en eau. Différentes tailles de fibres ont été utilisées : farine, fibres courtes et fibres longues. L'observation a révélé qu'en passant de la farine aux fibres il y a augmentation de la contrainte et de la déformation, alors que la résistance au choc augmente avec l'augmentation de la taille des fibres. Par contre

l'augmentation de la longueur des fibres engendre une reprise en eau plus importante, ce qui explique que la longueur des fibres favorise la pénétration d'eau dans un composite.

II.6.2 L'orientation des fibres

L'orientation des fibres est un élément important qui influence sur les propriétés du composite. Il est dit que le module de Young, le coefficient de poisson ainsi que la résistance à la traction du matériau diminuent en fonction du degré d'orientation des fibres [20]. Il est important de préciser que les fibres de cellulose ont une importante résistance dans le sens de la longueur mais elles sont trop faibles dans les autres directions.

L. Victor et al [2] ont étudié l'effet de l'orientation et de la longueur de fibres de nylon et de polypropylène (PP) sur la charge maximale et l'énergie de rupture, pour un angle d'inclinaison variant entre 0° et 75° . Les résultats de leurs essais montrent que la force et l'énergie augmentent avec la croissance de l'angle d'inclinaison jusqu'à atteindre un maximum de 45° et elles diminuent ensuite pour les plus grands angles.

II.6.3 Adhésion fibre/matrice

Les propriétés mécaniques des composites à renfort de fibres de cellulose dépendent intimement de l'adhésion à l'interface fibre/matrice [21,22]. Plus l'interface fibre/matrice est bonne plus la gestion des flux d'efforts dans le composite est améliorée. On rencontre des problèmes de compatibilité entre la matrice et les fibres c'est pour cela qu'il est courant de recourir à des traitements qui visent à améliorer l'adhésion.

S. Mouhoubi et al [23] ont étudié l'effet de traitement chimique des fibres Alfa sur les propriétés mécaniques et physiques du matériau composites Alfa / Polyester. Les fibres ont subi un traitement alcalin d'une concentration de 5% de NaOH pendant 6 heures. Les résultats obtenus ont montré que le traitement chimique a un effet très notable sur les propriétés physiques et mécaniques des composites et sur la nature de l'interface fibre matrice, et provoque une légère chute de la contrainte à la rupture. Même effet est observé pour les valeurs du module de Young.

A. Bezazi et al [24] ont été trempé les fibres des bras de grappe du palmier dattier dans une solution de NaOH de 1 et 2% de concentration pendant des durées d'immersions de 48 et 72h. Le traitement par le NaOH permet d'améliorer les propriétés mécaniques. Le meilleur cas est obtenu suite à un traitement par le NaOH avec une concentration de 2% pendant 48h

qui permet une augmentation de 131% de la contrainte à la rupture et de 98% de la valeur du module de Young par rapport aux fibres non traitées, et augmentation du taux de cristallinité de 32,43% par rapport à la fibre non traitée.

II.6.4 Influence du taux de renfort

La hausse du pourcentage du renfort engendre une amélioration de la rigidité du composite. Par contre un pourcentage très élevé du renfort peut causer une mauvaise adhésion et par conséquence réduction des performances et des propriétés mécaniques. Adeosun et Al [43] ont observé, quand le taux de fibres dépasse 50% la surface du matériau montre des ruptures, de la rugosité et des porosités.

II.7 Procédés de mise en forme des matériaux composites

La maîtrise de mise en œuvre des matériaux composites nous permet d'assembler plusieurs phases pour obtenir un matériau plus homogène. Au cours de l'élaboration d'un composite à base de fibres de cellulose comme renfort, la faible dispersion de ces fibres dans la matrice empêche d'obtenir un matériau parfaitement homogène [25]. Donc il est nécessaire de choisir le meilleur procédé pour avoir des propriétés mécaniques élevées. Les trois procédés les plus utilisés pour les thermoplastiques sont les suivants :

- **Mise en œuvre par extrusion** : c'est un procédé en continu durant lequel le polymère est fondu ensuite entraîné par une ou plusieurs vis qui passe dans une filière. Selon la filière choisie et le polymère sous forme de granulés, il sera transformé en jonc, gaine, films, tubes ...etc.

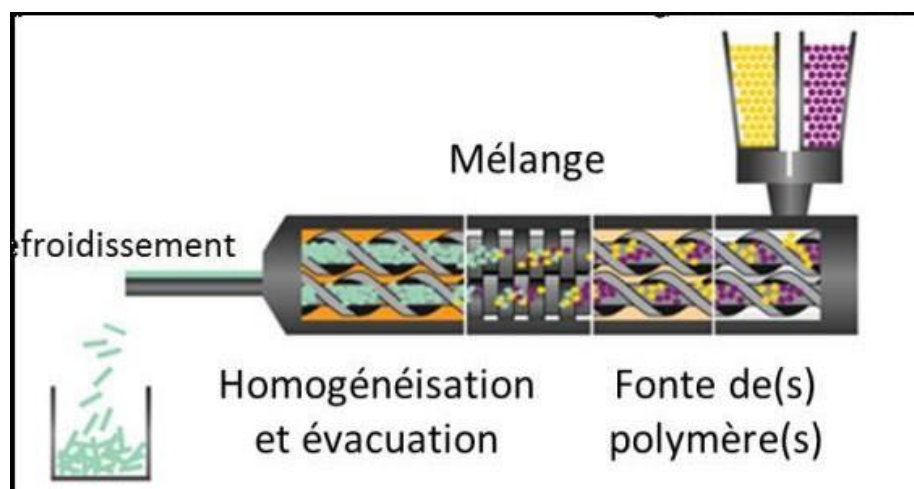


Figure. II.4. Schéma de la mise en œuvre par extrusion bi-vis [26].

Il est peut-être le procédé le plus utilisé car cette technique permet d'améliorer la dispersion des renforts dans le polymère. Pour les micros composites cette technique est très efficace, par contre pour les particules nanométriques la dispersion reste très compliquée [27], [28]. Il faut prendre en considération la température d'extrusion et la vitesse de rotation de la vis pour obtenir un matériau homogène [29].

- **Mise en œuvre par injection** : un procédé très répandu, il consiste à ramollir le plastique par exemple qui sera ensuite injecté sous forte pression dans un moule froid avec un piston ou une vis, et une fois que la matière liquide rentre en contact avec les parois froides du moule, elles se solidifient pour obtenir la forme voulue après démoulage.

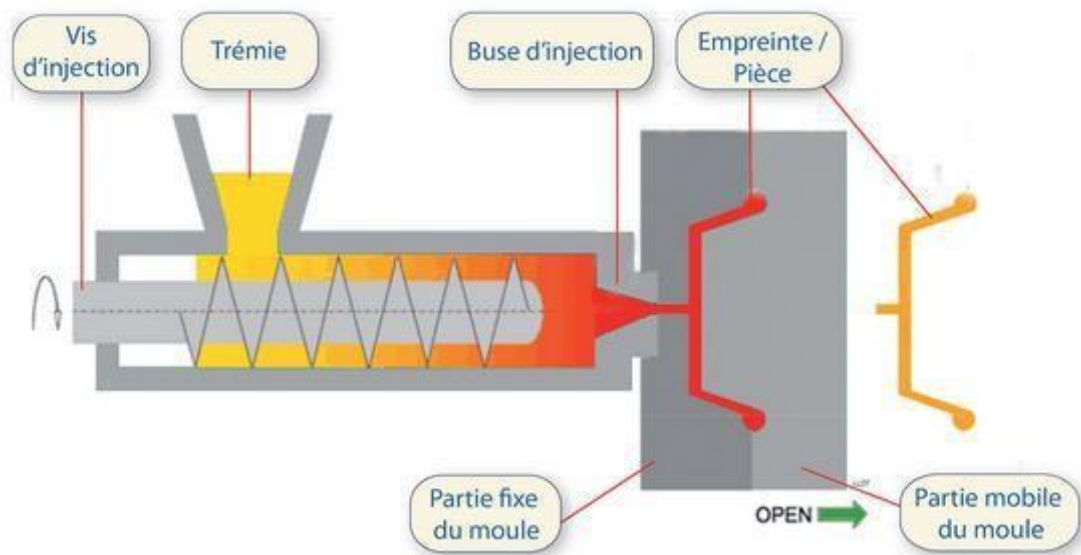


Figure. II.5. Schéma de la mise en œuvre en forme par injection [30].

- **Le moulage par compression** : c'est le processus de fabrication qui consiste à comprimer un matériau de base, tel que le plastique ou la résine, dans un moule préalablement chauffé. Le matériau est placé dans le moule, qui sera ensuite fermé et pressé avec une force élevée pour lui faire prendre la forme désirée. La chaleur et la pression appliquées pendant le processus de moulage permettent au matériau de se solidifier et de prendre la forme du moule. Le moulage par compression est souvent utilisé pour produire des pièces en grande quantité, car il est rapide et efficace [31].

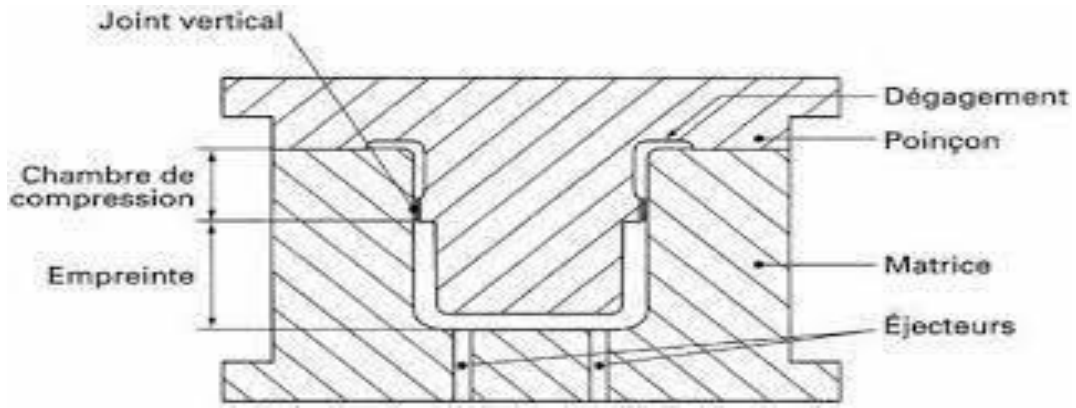


Figure. II.6. Schéma de la mise en forme par compression [31].

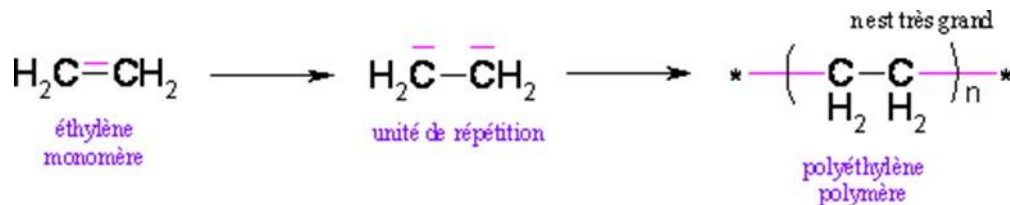
Il existe bien d'autres procédés mais les plus utilisés sont les trois cités car ils conviennent à l'élaboration des matériaux composites.

Dans le cadre de ce projet, nous nous sommes particulièrement intéressés aux matrices thermoplastiques et plus spécifiquement à l'acide poly lactique (PLA).

II.8 Définition des polymères

Un polymère est soit une molécule organique ou inorganique composé de n chaînes identiques qui se répètent appelées monomères liées avec des liaisons covalentes

Exemple :



II.8.1 Polymères biodégradables

Les matériaux biodégradables sont des matériaux qui ont la possibilité de se décomposer naturellement en dioxyde de carbone, en méthane, en eau et biomasse.

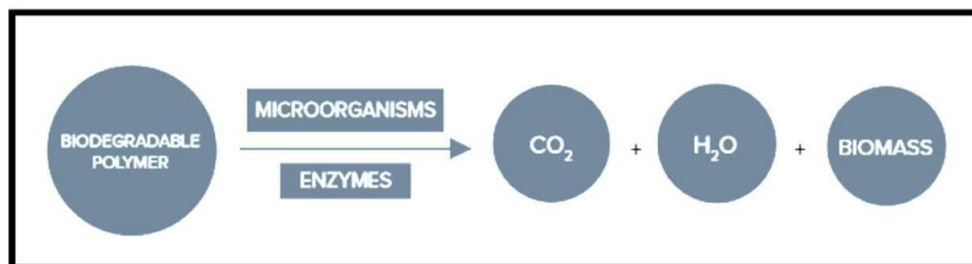


Figure. II.7. Le processus de dégradation biologique des polymères biodégradables

La dégradation d'un polymère commence déjà dès le processus de conception et se poursuit durant son utilisation. Cette dégradation en d'autres termes destructive peut être soit chimique par contact avec un milieu agressif ce qui engendre perte de propriétés mécaniques soit physique c'est-à-dire au niveau de l'apparence du polymère.

II.8.2 Les biopolymères

Les bio polymères pourraient avoir la même définition que les bio sources ou les biodégradables puisqu'ils sont tous issus de la biomasse.

Il est possible de les classer en 3 types selon la matière première utilisée :

1^{re} génération : ce sont les matières premières obtenues grâce aux cultures (maïs, betterave, canne à sucre...)

2^e génération : toutes les matières premières obtenues de déchets végétaux, alimentaires ...etc. (déchets de bois, déchets de grignons d'olives, déchets ménagers ...)

3^e : toutes les matières premières issues de la culture d'algues et micro algues.

II.9 Définition de l'acide poly lactique (PLA)

L'acide poly lactique (PLA) est un bio polymère thermoplastique entièrement organique de nature végétale, il est obtenu à partir de la fermentation de sucres alimentaires essentiellement ceux du maïs, betterave, canne à sucre ...etc.

Il possède quatre avantages très attractifs qui sont : renouvelabilité, biocompatibilité, ouvrabilité, et économie d'énergie.

Le PLA est un polyester aliphatique résultant de la polymérisation de monomères d'acides lactiques.

Le PLA peut cristalliser sous trois formes (α , β , and γ) selon sa composition en différentes formes d'énantiomères.

Il est facile de mettre en œuvre le PLA par les techniques classiques comme l'extrusion, l'injection ou encore le soufflage. Toutefois il nécessite un séchage important vu sa fragilité.

II.9.1 Vieillessement et dégradation du PLA

Les matériaux conçus en PLA sont souvent exposés à de rudes conditions environnementales durant leur cycle de vie, ce qui engendre un vieillissement et une

dégradation de ces matériaux qui conduit en général à une perte de leurs propriétés ; des dégradations qui peuvent être soit : hydrolytique, microbienne, photochimique, thermique ou enzymatique selon le milieu auquel le matériau est exposé. [35]

Ce vieillissement peut impacter les propriétés physico-chimiques du matériau, il est donc important pour nous d'évaluer l'influence du vieillissement sur le PLA.

Plusieurs thèses ont traité le sujet d'exposer le PLA vierge ou contenant des additifs à différentes contraintes de vieillissement tel que la température, l'humidité, les rayons UV...etc; et ont déduit que le PLA est très sensible à l'hydrolyse et aux UV, ce qui cause la rupture des chaînes du polymère entraînant diminution de la masse, baisse de la température de transition vitreuse et des propriétés mécaniques jusqu'à la dégradation complète du matériau, il a été noté également que la présence d'additifs comme charges peut accélérer la dégradation à cause de l'affinité de celles-ci avec l'eau et les UV. [35]

II.9.2 Incorporation de nano charges au PLA

Les nano composites à base de PLA présentent un avenir prometteur dans le domaine des nano composites de bio polymère, en accord avec le développement de la technologie "verte" utilisant des ressources durables et renouvelables. L'incorporation de nano charges organiques et inorganiques dans la conception des nano composites a considérablement amélioré les performances du PLA. [32]

C'est pour cela que dans le cadre de notre étude on s'intéresse à incorporer des nano charges organiques qui sont les nano particules de farine de grignon d'olive au PLA.

II.10 Grignon d'olive

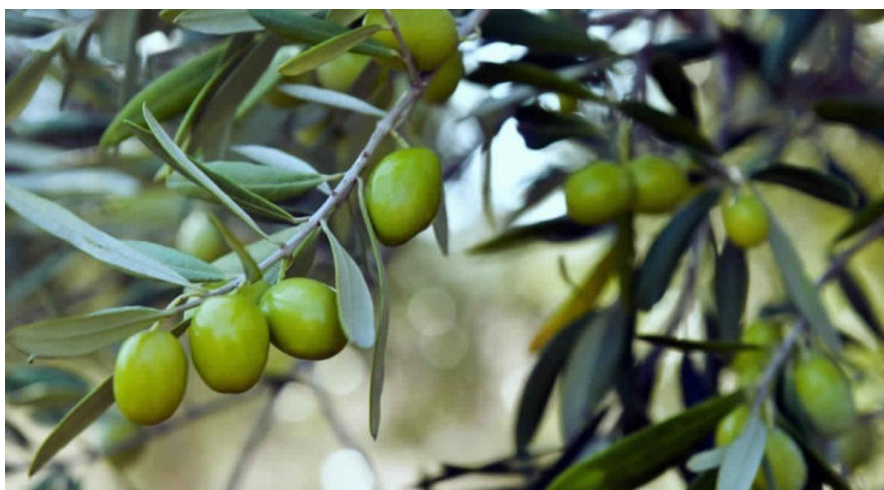


Figure. II.8. Grignon d'olive

Vanté depuis l'antiquité pour ses bienfaits, on dit que l'olivier a le pouvoir de soigner et nourrir les hommes, mais il est également un allié écologique contre le réchauffement climatique. [33]

Outre l'huile comme produit principal, l'industrie oléicole génère d'importantes quantités de sous-produits. En moyenne, 100 kg d'olives produisent 35 kg de grignons d'olives et 100 litres de margine. [34]

Le grignon d'olive, produit lors de l'extraction de l'huile d'olive, représente une menace écologique réelle. Bien qu'il puisse être utilisé de diverses manières, telles que l'alimentation des chaudières, le chauffage des maisons, l'alimentation animale ou encore comme combustible, la plupart est rejeté dans l'environnement et pose de sérieux problèmes en raison de sa teneur nocive en polyphénols qui sont des composés difficiles à dégrader.

Cependant, en raison de leur composition lignocellulosique, les grignons d'olives sous forme de farine pourraient être utilisés comme renfort dans les matériaux composites.

II.10.1 Définition du grignon d'olive

Le grignon d'olive est constitué des restes solides issus de l'extraction de l'huile d'olive. Il représente environ un quart des olives traitées et est composé de la coque du noyau réduite en petits morceaux, ainsi que de la peau et de la pulpe de l'olive broyées.

II.10.2 Types de grignons d'olive

On peut identifier trois variétés de grignons selon le traitement qu'ils ont subi :

- ❖ **Grignon brut** : Il s'agit du reste de la première extraction d'huile à partir de l'olive entière, qui contient une quantité importante d'eau (24%) et d'huile (9%). Si laissé à l'air libre, il se détériore rapidement.
- ❖ **Le grignon épuisé** : Il s'agit du résidu qui reste après avoir retiré l'huile du grignon brut à l'aide d'un solvant (l'hexane). Il se distingue principalement par sa faible teneur en huile et sa teneur en eau réduite, car il a été déshydraté pendant le processus d'extraction.
- ❖ **Le grignon partiellement dénoyauté** : Obtenu par tamisage ou ventilation qui permet une séparation partielle du noyau de la pulpe, ce produit est qualifié de "gras" s'il n'a pas été traité avec un solvant pour extraire son huile, et de "dégraissé ou épuisé" s'il a subi un traitement avec un solvant pour extraire son huile.

II.10.3 Propriétés du grignon d'olive

La composition des résidus d'olives dépend du procédé utilisé pour produire l'huile d'olive ainsi que de la variété d'olive utilisée. Et vu qu'il est considéré comme un déchet il y a moyen de l'exploiter et l'incorporer dans différents domaines tel que le bâtiment, les composites ... etc.

Le tableau ci-dessous présente une analyse physico-chimique des résidus d'olives obtenus à partir de trois méthodes d'extraction d'huile d'olive. [36]

Tableau. II.1. Caractéristiques physico chimiques des grignons obtenus par les différents systèmes d'extraction d'huile. [36].

Déterminations	Décanteur à deux phases	Décanteur à trois phases	Système super presse
Quantité (kg/100kg d'olive)	75.5	57.5	45.5
Humidité (%)	57.5	55.4	35.5
Huile (%)	3.5	3.6	6.8

Il est possible de voir le grignon comme étant constitué de deux parties distinctes : l'une riche en lignine provenant des morceaux de noyaux, et l'autre principalement composée de glucides tels que la cellulose et l'hémicellulose, ainsi que de faibles quantités de protéines et d'huile résiduelle qui varient selon la méthode d'extraction utilisée. [37]

Tableau. II.2. Composition des grignons d'olives en hémicellulose, cellulose et lignine dans la littérature [38-39].

Auteur	Hémicellulose (%)	Cellulose (%)	Lignine (%)
Demirbas, 2004 [61]	23.6	24	48.4
Jauhiainen et al. 2005 [62]	44	44	45

II.10.4 Valorisation des grignons d'olives

Les grignons d'olives sont abondamment produits dans toute la région méditerranéenne, et leur rejet dans la nature représente une source majeure de pollution environnementale, affectant les cours d'eau, les nappes phréatiques, les sols, et bien d'autres éléments. En valorisant ces sous-produits, il serait possible de réduire l'impact de cette industrie sur l'environnement.

L'étude a été menée dans le but de valoriser les déchets en créant un matériau bio-composite à base de PLA et de farine de grignons d'olive. L'objectif principal était de réduire les coûts tout en obtenant des matériaux ayant des propriétés satisfaisantes.

L'incorporation de charges lignocellulosiques dans les polymères (biodégradables ou non) pour la production de matériaux composites soulève plusieurs difficultés, dont :

- Le manque d'adhésion entre la matrice et les charges.
- La non homogénéisation de la dispersion des charges dans la matrice.
- L'absorption d'eau.

Les matériaux lignocellulosiques sont réputés pour leur grande hydrophilie et leur capacité à absorber l'eau facilement en raison de la présence de nombreux groupes hydroxyle sur leurs molécules constitutives. En effet, la FGO contient une quantité significative d'eau dans sa composition. Le principal inconvénient de l'utilisation de charges lignocellulosiques dans les bio-composites est leur forte sensibilité à l'eau, ce qui nuit à leur stabilité dimensionnelle et à leurs performances mécaniques. [40,41]

Une étude a été faite et a rapporté que l'incorporation de la farine de grignon d'olive dans un thermoplastique (PHBV) augmente considérablement le taux d'eau absorbé, ce qui signifie que plus le taux de charge est élevé dans le composite plus il absorbe en eau [42]

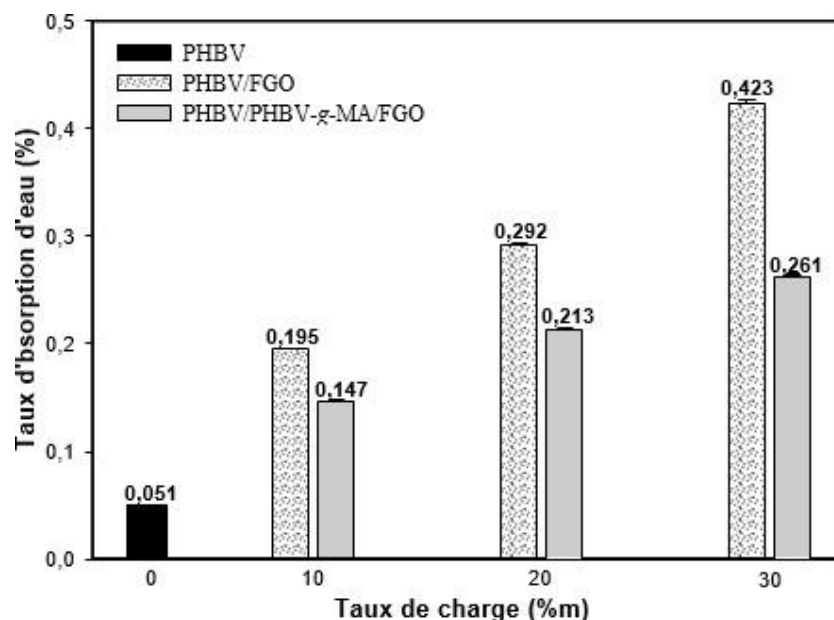


Figure. II.9. Taux d'absorption d'eau du PHBV et des composites PHBV/FGO en fonction de la teneur en charge, i.e. 10, 20 et 30% massique. [42]

Suite à ce phénomène il a été décidé que l'ajout d'un agent comptabilisant est primordial, qui est le PHBV-g-MA, qui va agir comme un pont entre la matrice et la charge par l'établissement de liaisons covalentes à l'interface [42]

Les résultats ont bien démontré qu'il y a une différence d'absorption d'eau entre les composites de bases et ceux qui ont subi un traitement. Le comptabilisant a aussi une influence sur la reprise d'eau et conduit à une diminution de la sensibilité à l'eau du bio composite par rapport au même bio composite sans le PHBV-g-MA

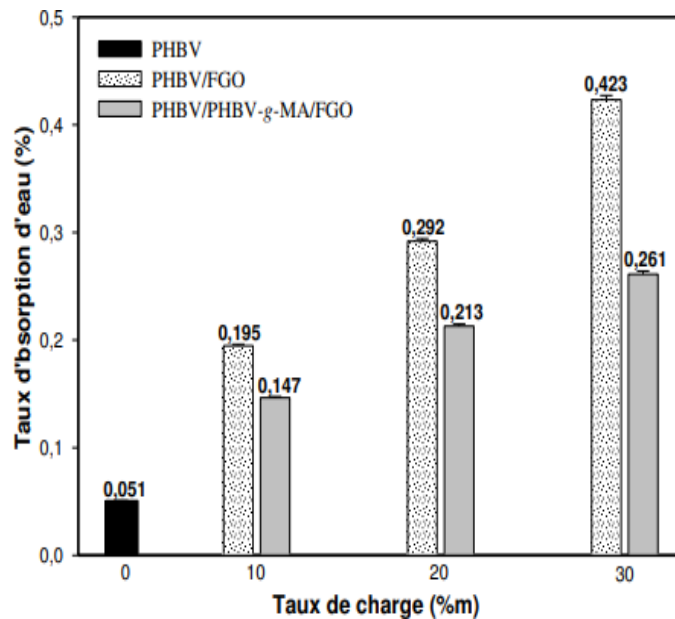


Figure. II.10. Taux d'absorption d'eau du PHBV/FGO en fonction de la teneur en charge, i.e. 10, 20 et 30% massique, en absence et en présence du PHBV-gMA. [42]

Les résultats de l'étude montrent que l'ajout de 5% de PHBV-g-MA a un effet positif sur la résistance à la rupture du matériau (8-14% en fonction du taux de charge), mais réduit la déformation à la rupture, ce qui limite la zone de plasticité du matériau. Cela entraîne une augmentation de la rigidité du matériau en raison de la réduction du volume libre dans la matrice. Cette amélioration est probablement due à une meilleure adhésion interfaciale entre la charge et la matrice. [42]

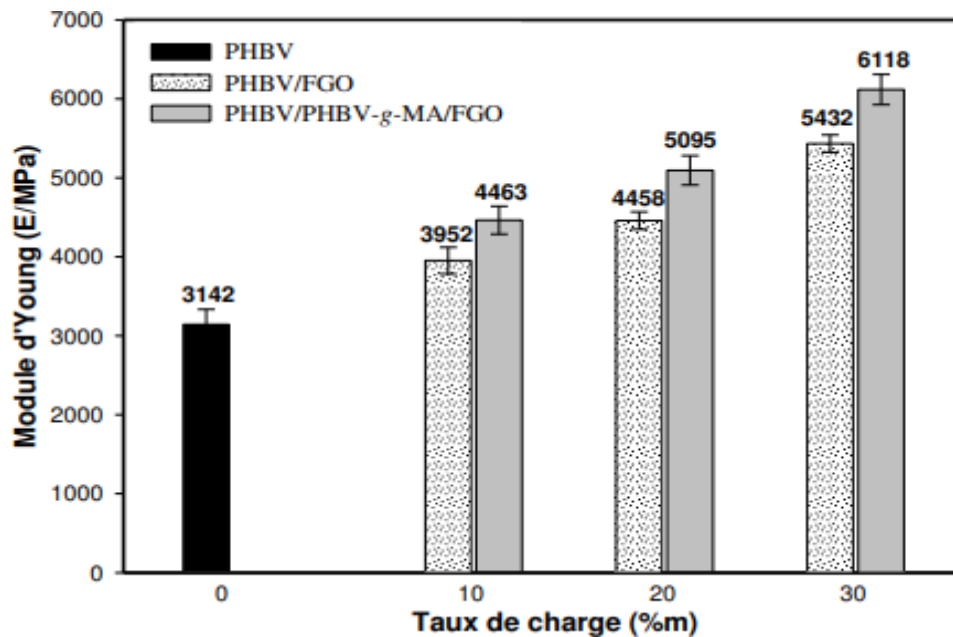


Figure. II.11. Évolution du module d'Young du PHBV et des bio-composites PHBV/FGO en fonction de la teneur en charge, i.e. 10, 20 et 30% massique, en absence et en présence du PHBV-g-MA. [42]

Il a été conclu que les propriétés finales des bio-composites sont grandement influencées par l'interface charge/matrice. Afin d'optimiser cette interface, des méthodes physiques et chimiques peuvent être utilisées pour rendre compatible la charge polaire avec la matrice apolaire. Ces méthodes impliquent la modification de surface de la charge et/ou de la matrice pour créer de nouvelles propriétés interfaciales. Une autre approche pour améliorer la compatibilité entre la charge FGO et la matrice PHBV est la modification chimique de la surface de la FGO avec des organos-silanes, ce qui la rend moins hydrophile et donc compatible avec la matrice hydrophobe. [42]

Une étude récente a été faite sur les matériaux composites à base d'acide poly-lactique et de farine de grignon d'olive pour évaluer l'effet de la farine de grignon d'olive à différents pourcentages sur les propriétés du PLA. A. F. Koutsomitopoulou et al [44] ont conclu que les traitements thermiques appliqués sur la FGO n'affectent pas le comportement thermique et ça grâce à l'analyse thermique qui a été faite sur la FGO qui démontre l'inexistence de changements sur les températures de dégradations de ces matériaux composites. Avec une augmentation du module de traction pour le composite PLA/FGO.

H, Boussehel [45] a réalisé une étude sur les moyens de stabilisation des composites à base de polystyrène comme matrice polymérique renforcé par la farine de grignon d'olive.

L'analyse IRTF de la FGO non traitée est représentée sur la figure II.12.

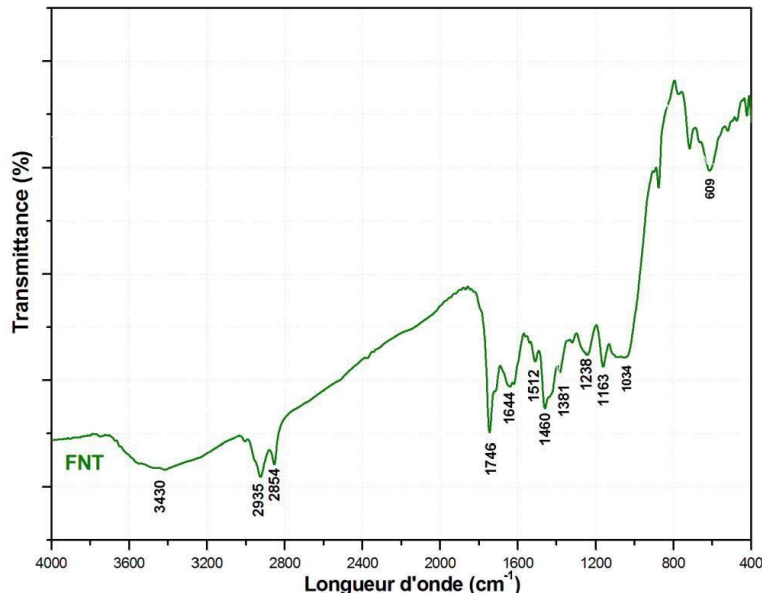


Figure. II.12. Spectre FTIR en transmittance de la farine de grignon d'olive non traitée (FNT). [45]

Pour le spectre de la farine de grignon d'olive traitée avec le (3-triméthoxysilyl)propyl méthacrylate (Figure II.13), il a été observé clairement l'apparition des mêmes pics enregistrés pour la FNT mais à l'exception l'apparition de nouveaux groupes dans la région entre 1050 et 1100 cm^{-1} . [45]

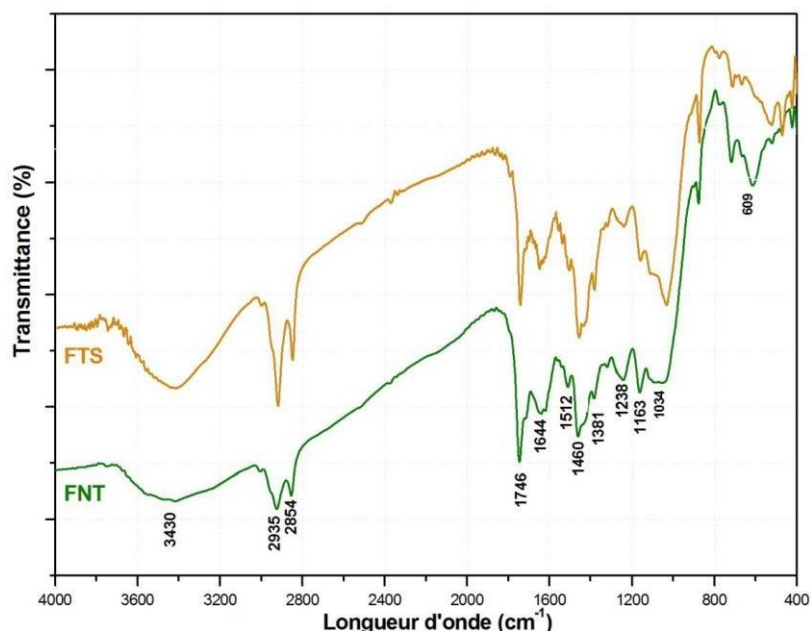


Figure. II.13. Spectres IRTF des fibres de grignon d'olive non traitée (FNT) et traitée par le (3-triméthoxysilyl) propyl méthacrylate (FTS). [45]

Les résultats sont en accord avec ceux de **Boufiet *al* [46]** La réaction de salinisation de la farine de grignon d'olive avec le silane comme agent modifiant a bien été confirmée par l'analyse spectroscopique IRTF.

En ce qui concerne l'évolution à la résistance en traction H, Boussehel [45] a observé une diminution de la contrainte à la rupture des composites chargés avec les fibres de grignon d'olive non traités comparé au polystyrène vierge à cause de la baisse de la force des liaisons entre les fibres et la matrice, c'est-à-dire que la FGO forme des agglomérats une hétérogénéité par conséquence la fragilisation du matériau.

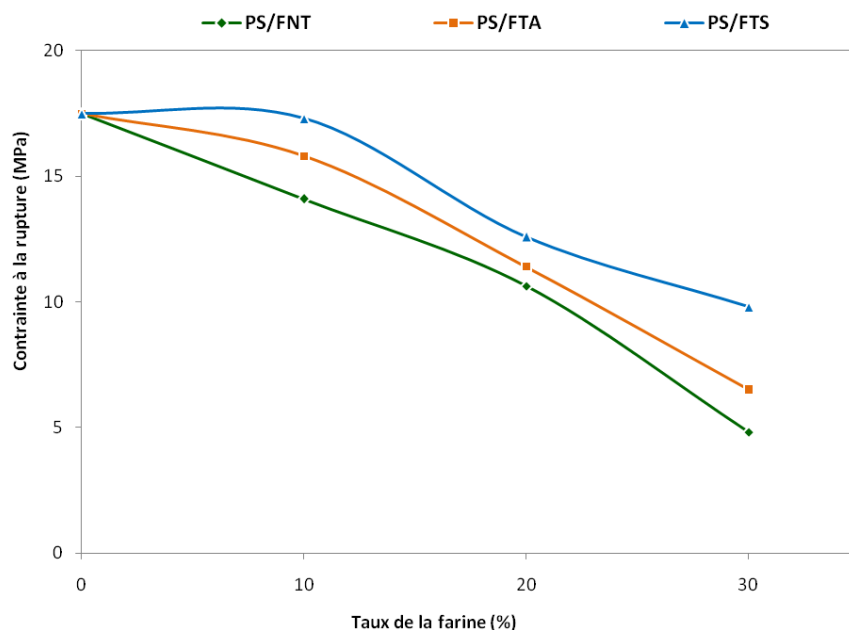


Figure. II.14. Évolution de la contrainte à la rupture des composites PS/FGO en fonction du taux de la farine du grignon d'olive traitée et non traitée. [45]

Alors après traitement chimique H, Boussehel [45] a conclu une légère amélioration des contraintes à ruptures pour les composites traités (soit avec la soude PS/FTA ou bien avec du silane pour le PS/FTS) et ce grâce à la meilleure dispersion qu'ont apporté ces traitements.

S. Perinovic et al (2010) [47], se sont intéressés aux composites biodégradables acides poly-lactiques (PLA) renforcés par la farine de grignon d'olive (FGO).

L'ajout de FGO influence directement sur la forme cristallographique et la morphologie de la matrice de PLA ainsi que sur son taux de cristallinité. Les fibres de grignon d'olive agissent comme un agent de nucléation à des concentrations plus faibles, mais aussi un obstacle pour les chaînes de polymère.

Le renforcement de la matrice de PLA par la FGO a un effet négligeable sur la transition vitreuse du PLA vierge, due à la faible adhérence interfaciale entre fibre-matrice. Les vides et les agglomérats des renforts sont plus visibles avec l'augmentation du taux de FGO dans le composite.

Alors que **A. Boukerrou et al (2011) [48]** ont étudié le comportement mécanique des composites à base de polypropylène (PP) renforcé par la farine de grignons d'olive (FGO). Les résultats obtenus ont montré que les propriétés mécaniques (résistance à la traction, allongement à la rupture et la résistance aux chocs) diminuent à mesure que l'augmentation de taux de FGO non traitée, à cause de la mauvaise dispersion de la farine dans la matrice, formant ainsi des agrégats qui affaiblissent le matériau.

A. F. Koutsomitopoulou et al (2013) [49] ont étudié les matériaux composites contenant de la farine de grignon d'olive (FGO) dispersées dans la matrice de l'acide poly lactique (PLA). Le but de leur étude est d'étudier l'effet de la farine de grignon d'olive à différents taux de renforcement sur les propriétés physiques et mécaniques de (PLA).

L'analyse thermique de la farine de grignon d'olive montre qu'aucun changement significatif sur la température de dégradation des composites. Cela signifie que le traitement appliqué sur la farine des noyaux d'olivier n'affecte pas sur le comportement thermique.

References:

[1] N. Graupner, A.S. Herrmann, J. Müssig, Natural and man-made cellulose fibre-reinforced poly (lactic acid) (PLA) composites: An overview about mechanical characteristics and application areas, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 40 (2009) 810–821.

[2] K. Oksman, M. Skrifvars, J.F. Selin, Natural fibres as reinforcement in polylactic acid (PLA) composites, *Compos. Sci. Technol.* 63 (2003) 1317–1324.

[3] D. Rusu, S.A.E. Boyer, M.-F. Lacrampe, P. Krawczak, *Bioplastics in Automotive Applications*, *Bioplastic magazine* 01 (2012) 1-3.

[4] R.M. Jones, « *Mechanics of composite materials*, Mc Graw-Hill Company », 1975, p270.

[5] J. Aucher, « étude comparative du comportement composite à matrice thermoplastique ou thermodurcissable », Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Rouen, France, 2009, p220.

[6] Centre d’animation régional en matériaux avancés, « glossaire des matériaux composite », Document, Actualisation décembre 2004, p33.

[7] J. M. Berthelot, « *Matériaux composites comportement mécanique et analyse des structures* », Tec & Doc, livre 4^{ème} édition 2005, p641.

[8] M. Kharoubi, « *Etude du comportement mécanique de matériaux composite sous chargement cyclique et dynamique* », Thèse de doctorat, Université 08 mai 45 Guelma, 2009, p107.

[9] GFRP Composites market by resin type, <http://www.marketsandmarkets.com/Market-Reports/glass-fiber-reinforced-plastic-composites-market-142751329.html>.

[10] Fibres de carbone,
http://www.societechimiquedefrance.fr/extras/Donnees/mater/fibres/te_xfib.htm.

[11] I.N. de recherche et de Sécurité, *Fibres d’aramide : éléments pour l’évaluation des risques*, (2003) 295–306.

- [12] D. Nabi Saheb, J.P. Jog, Natural fiber polymer composites: A review, *Adv. Polym. Technol.* 18 (1999) 351–363.
- [13] P. Pongtorn, «caractérisation de la propagation de délaminage des stratifiés composites multidirectionnels», Thèse de Doctorat, Université Toulouse III, 2007, p318.
- [14] A.Bounadja, « Etude expérimentale du comportement mécanique des stratifiés à renfort métallique sollicités en flexion 3 points », Mémoire de Magister, Université M'hamedBouguerra Boumerdès, 2006, p84.
- [15]. Plastiques et composites technique de l'ingénieur Auteur(s) : Michel CHATAIN. Date de publication : 10 oct. 2001
- [16] Ch.Belkacemi, « étude expérimentale du comportement mécanique des stratifiés à renforts en matière végétale », Thèse de doctorat, Université M'Hamed Boguera Boumerdes, 2006, p57.
- [17] O. Faruk, A.K. Bledzki, H.P. Fink, M. Sain, Bio-composites reinforced with natural fibers : 2000-2010, *Prog. Polym. Sci.* 37 (2012) 1552–1596.
- [18] N.M. Barkoula , S.K. Garkhail , T. Peijs, Biodegradable composites based on flax/ polyhydroxybutyrate and its copolymer with hydroxyvalerate, *Ind. Crops Prod.* 31 (2010) 34–42.
- [19] A. Shalwan, B.F. Yousif, In State of Art: Mechanical and tribological behaviour of polymeric composites based on natural fibres, *Mater. Des.* 48 (2013) 14–24.
- [20] S. Ben Brahim, R. Ben Cheikh, Influence of fibre orientation and volume fraction on the tensile properties of unidirectional Alfa-polyester composite, *Compos. Sci. Technol.* 67 (2007) 140–147.
- [21] J.M. Felix, P. Gatenholm, Nature of adhesion in composites of modified cellulose fibers and polypropylene, *J. Appl. Polym. Sci.* 42 (1991) 609–620.
- [22] A. Alawar, A.M. Hamed, K. Al-Kaabi, Characterization of treated date palm tree fiber as composite reinforcement, *Compos. Part B Eng.* 40 (2009) 601–606.

[23] S. Mouhoubi, H. Osmani, T. Bali, S. Abdeslam, « Elaboration et étude des propriétés des composites polyester/Alfa traitée et non traitée, Verres, Céramiques & Composites », Vol.2, Institut d'Optique et Mécanique de Précision, Université Sétif 1, 2012, p34-40.

[24] A.Bezazi , S.Amroune ,F.Scarpa, « Analyse statistique et effet des traitements chimique sur le comportement physico-mécanique des fibres des bras de grappe des palmiers dattier », Article, 2015, p108-120.

[25] R. Sengupta , S. Chakraborty , S. Bandyopadhyay , S. Dasgupta , R. Mukhopadhyay , K. Auddy, et al., A Short Review on Rubber / Clay Nanocomposites With Emphasis on Mechanical

[26] Thermo-Fisher, “Extrusion à chaud.” [Online]. Available: <https://www.thermofisher.com/fr/fr/home/industrial/pharma-biopharma/drug-formulation-manufacturing/hot-melt-extrusion.html#>. [Accessed: 21-Dec-2017].

[27] X-L. Xie, Y. Mai, X-P. Zhou, “Dispersion and alignment of carbon nanotubes in polymer matrix: A review”, Materials Science and Engineering, R 49, pp. 89–112, 2005.

[28] A.P. Mathew , A. Chakraborty , K. Oksman , M. Sain, “The Structure and Mechanical Properties of Cellulose Nanocomposites Prepared by Twin Screw Extrusion ”, Symposium Series; American Chemical Society: Washington, DC , Cellulose Nanocomposites, Chapter 9, pp. 114–131, 2006.

[29] G.R. Kasaliwal, S. Pegel, A. Gödel, P. Pötschke, G. Heinrich, “Analysis of agglomerate dispersion mechanisms of multiwalled carbon nanotubes during melt mixing in polycarbonate” Polymer, vol. 51, No.12, pp 2708-2720, 2010.

[30] TIAG Industrie, “Injection.” [Online]. Available: <http://www.tiag-industries.com/>. [Accessed: 21-Dec-2017].

[31] <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/materiaux-th11/essais-normalises-developpement-et-securite-des-plastiques-42145210/securite-dans-la-transformation-des-plastiques-am3748/moulage-par-compression-am3748niv10002.html>

[32] S. Bandyopadhyay, R. Chen, E. P. Giannelis. Polym Mater Sci Eng. Vol 81(1997) 159.

[33] <https://cuvée-privee.com/blog/les-bienfaits-%C3%A9cologiques-de-l'olivier-et-de-son-huile>

[34] 22A.Nefzaoui. Contribution à la rentabilité de l'oléiculture par la valorisation optimale des sous-produits. Tunisie. (1987, Janvier).

[35] <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/materiaux-th11/plastiques-et-environnement-42657210/acide-poly lactique-pla-am3317/vieillissement-degradation-et-stabilite-am3317niv10006.html>

[36] LAKHTAR , H. Thèse de doctorat , culture du *Lentinula edodes* (Berk) peglerssur résidus oléicoles en fermentation en milieu solide ; transformation des polyphénols des margines. Saint Jérôme, 2009.

[37] Nefzaoui A. Valorisation des sous-produits de l'olivier. Options Méditerranéennes. Série A. Séminaires Méditerranéens. 1991: 16: 101–108.

[38] Demirbas A. Effects of temperature and particle size on bio-char yield from pyrolysis of agricultural residues. J. Anal. Appl. Pyrol. 2004; 72: 243–251.

[39] Jauhainen J, Martin-Gullon I, Conesa Juan A, Font R. Emissions from pyrolysis and combustion of olives oil solid waste. J. Anal. Appl. Pyrol. 2005; 74: 512–517.

[40] Kaci M, Cimmino S, Silvestre C, Duraccio D, Benhamida A, Zaidi L. Ethylene butyl acrylate glycidyl methacrylate terpolymer as an interfacial agent for isotactic poly(propylene)/wood flour composites. Macromol. Mater. Eng. 2006; 291:869 –876.

[41] Rosa SML, Santos EF, Ferreira CA. Studies on the properties of rice-husk-filled-PP composites: effect of maleated PP. Mater. Res. 2009; 12: 333–338

[42] Leila Hassaini. Étude de la Morphologie et des Propriétés de Biocomposites Poly(3-Hydroxybutyrate-co- 3-Hydroxyvalerate) (PHBV)/Farine de Grignons d'Olive. Matériaux. Université

de Bretagne Sud; Université Abderrahmane Mira - Bejaïa (Bejaïa, Algérie), 2016.

[43] S.O. Adeosun, E.I. Akpan, H.A. Akanegbu, *Thermo-Mechanical Properties of Unsaturated Polyester Reinforced with Coconut and Snail Shells*, International Journal of Composite Materials, 2015; 5: 52-64.

[44] A. F. Koutsomitopoulou, J. C. Bénézet, A. Bergeret, G. C. Papanicolaou, *Preparation and characterization of olive pit powder as a filler to PLA-matrix bio-composites*, Powder Technology, 2014; 255 : 10–16.

[45] H, Boussehel. Etude des moyens de stabilisation des composites à base de polystyrène. Biskra, 2018.

[46] S. Boufi, M. Abdelmouleh, M. N. Belgacem, A. Dufrense, Short natural-fibre reinforced polyethylene and natural rubber composites: Effect of silane coupling agents and fibres loading, Composites Science and Technology, 2007;67: 1627-1639

[47] S. Perinović, B. Andrić, M. Erceg, *properties of poly(l-lactide)/olive stone flour composites*, Thermochimica Acta, 2010; 5: 97–102.

[48] A. Boukerrou, S. Krim, H. Djidjelli, C. Ihamouchen, J. J. Martinez, *Study and Characterization of Composites Materials Based on Polypropylene Loaded with Olive Husk Flour*, Journal of Applied Polymer Science, 2011; 122: 1382–1394.

[49] A. F. Koutsomitopoulou, J. C. Bénézet, A. Bergeret, G. C. Papanicolaou, *Preparation and characterization of olive pit powder as a filler to PLA-matrix bio-composites*, Powder Technology, 2014; 255 : 10–16.

CHAPITRE III

Partie expérimentale

Introduction

Cette partie est consacré aux moyens expérimentaux utilisés pour la réalisation de ce travail et présentera les différents matériaux qui ont servi à l'élaboration du composite, à savoir la charge (farine de grignon d'olive), la matrice utilisée (PLA), ainsi que les caractéristiques de chacune d'elles ; le procédé utilisé pour la préparation des composites et les différentes techniques de caractérisations de ces derniers.

III.1. Matériaux utilisés pour l'élaboration des matériaux composites :

Les matériaux composites élaborés pour notre étude sont constitués d'une matrice acide poly Lactique (PLA) renforcée par une fibre végétale (farine de grignon d'olive).



Figure. III.1. Photo représentative du filament de PLA avant et après sa découpe

III.1.1. Propriétés de l'acide poly lactique :

Le PLA se distingue par sa grande rigidité et sa faible élasticité à la rupture, ce qui le rend très cassant à l'état pur, comme le polystyrène. Semi-cristallin, il fond à environ 175°C en phase cristalline et présente une température de transition vitreuse de l'ordre de 60°C en phase amorphe. Ses propriétés optiques sont remarquables, avec une faible turbidité et une brillance élevée, ce qui en fait un matériau transparent et lumineux. Cependant la perméabilité à la vapeur d'eau limite son utilisation dans les emballages étanches. Il est en revanche idéal pour les textiles ou les emballages de légumes frais. Il est nécessaire de sécher le PLA avant l'utiliser afin d'éviter les défauts sur le produit final causés par l'évaporation de l'eau et la dégradation hydrolytique pendant l'extrusion [1].

Parmi les autres propriétés du PLA on a son module élastique compris entre 3000 et 3500 MPA, une contrainte a rupture 40-60Mpa, à l'encontre de son faible allongement à la rupture qui limité son utilisation.

Tableau. III.1. Propriétés mécaniques et physiques du PLA

Caractéristiques physiques	
Masse volumique (g.cm-3)	1,25
Clarté	Transparent
Caractéristiques mécaniques	
Module de Young	Entre 3 et 3,5 GPa
Résistance à la traction	Entre 50 et 70 MPa
Allongement (%)	2,5
Résistance en flexion	83

III.1.2. Préparation de la farine du grignon d'olive :

III.1.2.1. Récolte du grignon d'olive :

Nous avons utilisé le grignon d'olive récolté au mois de janvier 2023 dans la région « Draa el Mizan » située à 50 km au sud-ouest de Tizi-Ouzou.



Figure. III.2. Grignon d'olive

Afin d'obtenir de la farine de grignon d'olive, nous avons suivi différentes étapes à savoir : le lavage, séchage, broyage et tamisage.

III.1.2.2. Lavage :

Le lavage du grignon d'olive a été réalisé avec l'eau froide et l'eau chaude à différentes reprises pour le séparer de la margine.



Figure. III.3. Lavage du grignon d'olive

III.1.2.3. Séchage :

Après avoir bien lavé de différentes sortes le grignon, il a été laissé à l'air libre pendant trois jours à une température de 18°C afin de réduire le taux d'humidité (séchage)

III.1.2.4. Broyage :

Pour obtenir la farine de grignon d'olive nous avons broyé le grignon en utilisant deux types d'outils différents à savoir le moulin traditionnel et un moulin à café pour le rendre plus fin.

**Figure. III.4.** Moulin traditionnel**Figure. III.5.** Moulin à café**III.1.2.5. Tamisage :**

Après broyage, nous sommes passé à l'étape du tamisage qui s'est effectué à la maison. Le tamisage a été fait à l'aide d'un tamis traditionnel pour obtenir la farine de grignon d'olive.

**Figure. III.6.** Photo avant tamisage**Figure. III.7.** Photo après tamisage

III.2. Procédures expérimentales :**III.2.1. Traitement de la farine de grignon d'olive :**

La farine de grignon d'olive a été traitée suivant les méthodes présentées ci-dessous :

- Traitement thermique
- Traitement par ultra-violet

III.2.1.1. Traitement thermique :

Nos farines ont subi des traitements thermiques avec un temps de maintien d'une heure dans une étuve à quatre différentes températures (100°C, 120°C, 135°C et 150°C), avec une vitesse de chauffage de 50% et d'un refroidissement au four.



Figure. III.8. Etuve de traitement thermique



Figure. III.9. La farine de grignon dans l'étuve

III.2.1.2. Traitement par ultra-violet :

Des échantillons de notre farine de grignon d'olive ont été exposés à des rayonnements ultra-violet au sein d'une enceinte spéciale pendant des temps de maintiens différents : 12minutes, 30minutes, 60minutes et 120minutes.

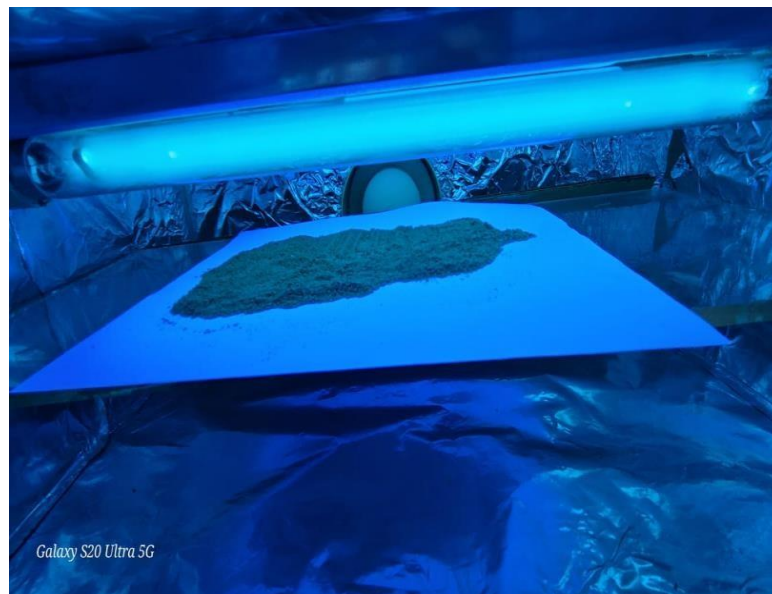


Figure. III.10. Traitement de la farine de grignon d'olive par l'ultra-violet

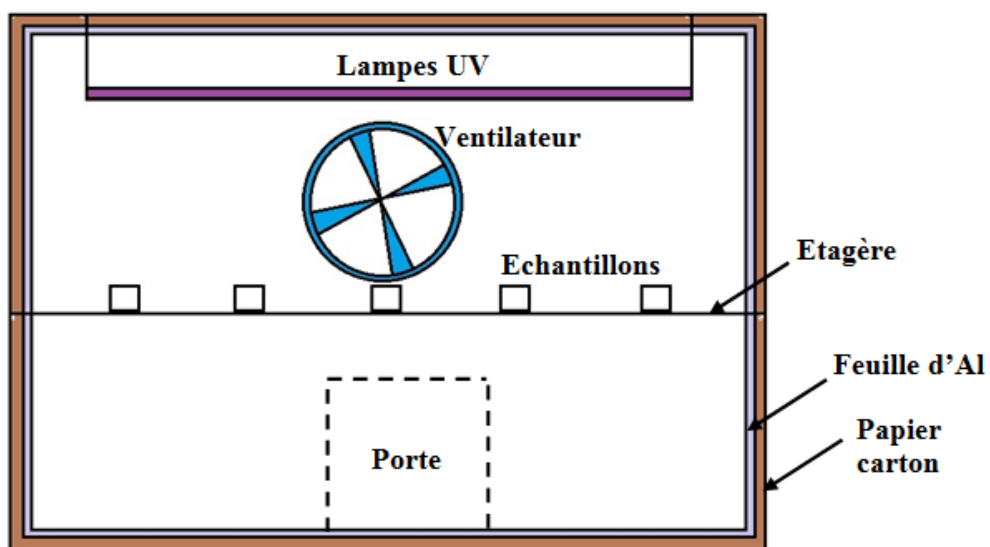


Figure. III.11. Schéma de l'enceinte UV

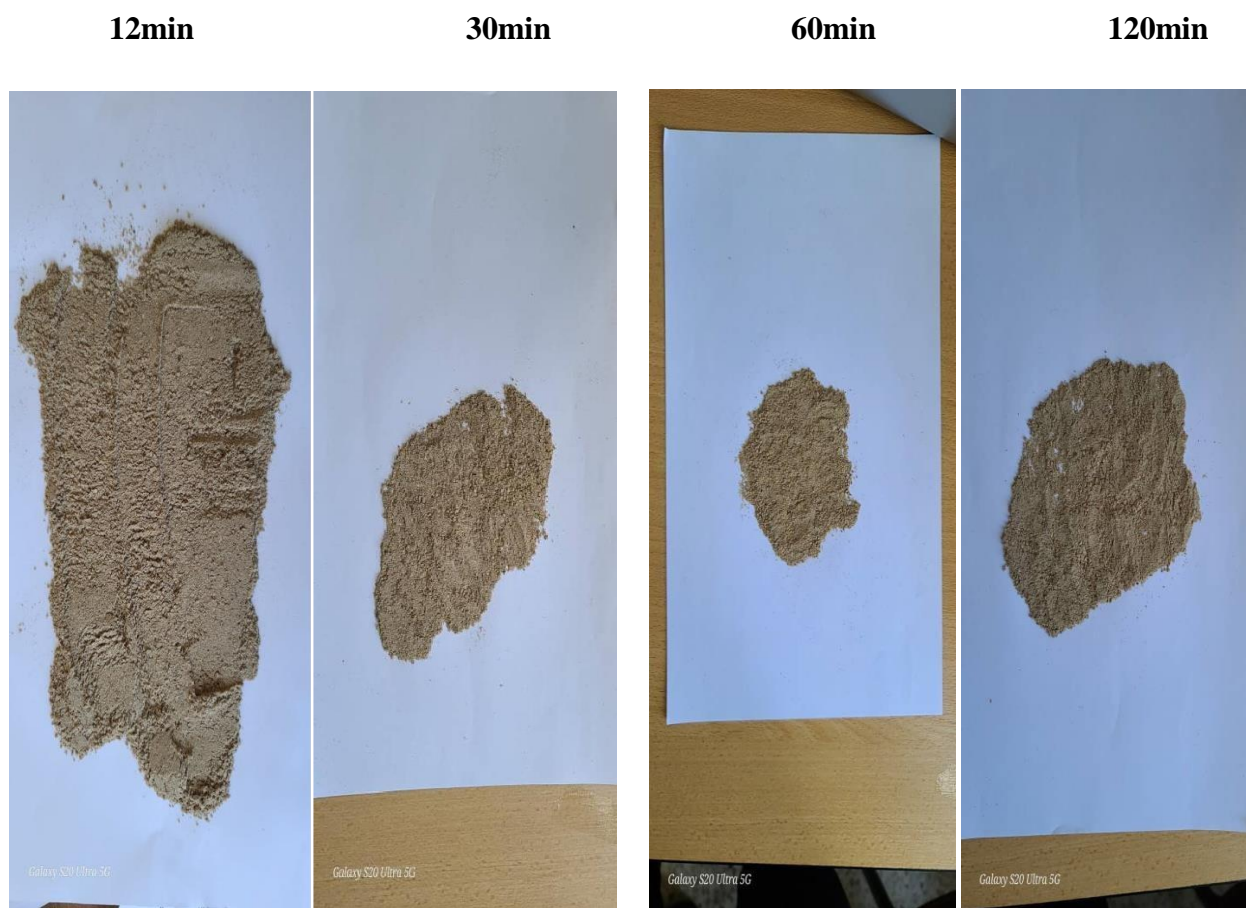


Figure. III.12. La farine du GO après traitement par UV

III.2.2 Analyse spectrale par infrarouge à transformée de Fourier IRTF :

La spectroscopie IRTF est une méthode efficace pour identifier les molécules organiques et inorganiques à partir de leurs propriétés vibrationnelles. Cette méthode utilise le rayonnement infrarouge pour exciter des modes de vibration spécifiques de liaisons chimiques. La comparaison entre le rayonnement incident et transmis à travers l'échantillon permet de déterminer les principales fonctions chimiques présentes dans l'échantillon.

Les échantillons ont été soumis à des mesures de spectroscopie infrarouge à l'aide d'un spectrophotomètre infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) de modèle SHIMADZU IRaffinity-1s, qui est utilisé au laboratoire de chimie de l'université de Mouloud Mammeri (Figure. III.14). Les données spectrales en absorbance ont été enregistrées à partir de cet appareil. Les échantillons à analyser sont préparés sous forme de poudre (traitée, ou non traitée). La plage de balayage du spectre s'étend de 4000 à 500 cm^{-1} en absorbance, avec une résolution de 8 cm^{-1} .



Figure. III.13. Photo représentative de l'appareil IRTF

III.2.3. Élaboration des composites PLA/Grignon d'olive

III.2.3.1. Préparation des mélanges

Cette partie expérimentale a été réalisée au niveau du laboratoire mécanique à Amiens en France où nous avons préparé nos éprouvettes. Le tableau suivant présente les pourcentages de grignon d'olive et le PLA afin de réaliser les mélanges. (Et on a réalisé des éprouvettes PLA à l'état vierge.)

Tableau. III.1. Les mélanges du PLA et farine de grignon d'olive

Type de traitement	Farine de grignon d'olive%	PLA%
Traitement UV 12min	2,5%	97,5%
	5%	95%
	10%	90%
	30%	70%

III.2.3.2. Extrusion :

Les mélanges précédents vont alimenter une extrudeuse de type Fila-bot FOEX2- 110 EX2. Celle-ci comporte une vis fabriquée en acier haute résistance qui peut résister aux matériaux abrasifs et aux forces pendant le processus d'extrusion.

La principale fonction de l'extrudeuse est de transformer les mélanges ou bien déchets de plastique en filament utilisables.

Les étapes de fabrication lors de l'extrusion sont :

- La zone d'alimentation, dans laquelle le mélange est entièrement solide.
- Broyage : l'extrudeuse est équipée d'un broyeur qui réduit les morceaux de plastique en petites particules. Cela facilite le processus de fusion ultérieur.
- Fusion et extrusion : le mélange est chauffé dans un cylindre à une température de 170C° et à un temps de maintien de 10min pour le faire fondre. Une fois il est fondu, il sera extrudé à travers une filière pour former un filament continu.
- Refroidissement et bobinage : le filament extrudé passe par un système de refroidissement pour le solidifier rapidement. Ensuite il est enroulé sur une bobine prête à être utilisée.



Figure. III.14. Extrudeuse Fila-bot EX2



Figure. III.15. L'extrudeuse Fila-bot lors de l'extrusion

III.2.3.3. L'injection :

Pour mouler nos échantillons, nous utilisons une presse de l'injection manuelle de marque HoliPressV1.3 (figure. III.17). Elle est constituée d'un boîtier de gestion de la température.



Figure. III.16. Presse à injection HoliPress V1.3

Le moulage des composites s'effectue alors de la façon suivante : les filaments obtenus par extrusion sont chargés dans l'unité d'alimentation de la presse HoliPress, les filaments de

plastique sont chauffés et fondus à l'intérieur d'un cylindre chauffé de la presse HoliPress, à une température de 200C° pendant un temps de maintien de 10min. une fois que le plastique est suffisamment fondu, la vis de l'unité d'injection est activée pour pousser le plastique fondu à travers une buse dans l'empreinte de l'éprouvette de traction (figure III.18).

Une fois le plastique injecté dans le moule, est laissé refroidir et se solidifier en ouvre le moule et l'éprouvette est éjectée.

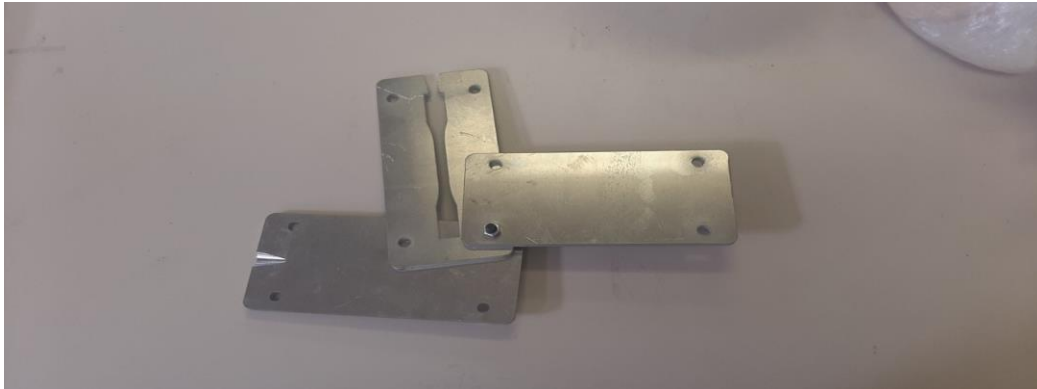


Figure. III.17. L'empreinte de l'éprouvette de traction



Figure. III.18. Epreuve PLA à l'état vierge



Figure. III.19. Epreuve PLA vierge 2,5%,5%,10%,30% de FGO

III.2.4. Les tests mécaniques :

Les tests mécaniques effectués sont : les tests de traction

III.2.4.1 Test de traction

C'est l'essai mécanique le plus fréquemment utilisé, cette méthode consiste à soumettre une éprouvette en forme d'altère, dans les mâchoires d'un dynamomètre. La mesure des propriétés mécaniques des éprouvettes a été réalisé au niveau du laboratoire mécanique à Amiens en France à l'aide d'une machine de traction de type LLOYD LR 50 K Plus (Figure. III.21), à une vitesse de 5mm/min et à une température ambiante.

La machine est reliée à un micro-ordinateur qui effectue tous les calculs nécessaires et trace les courbes.

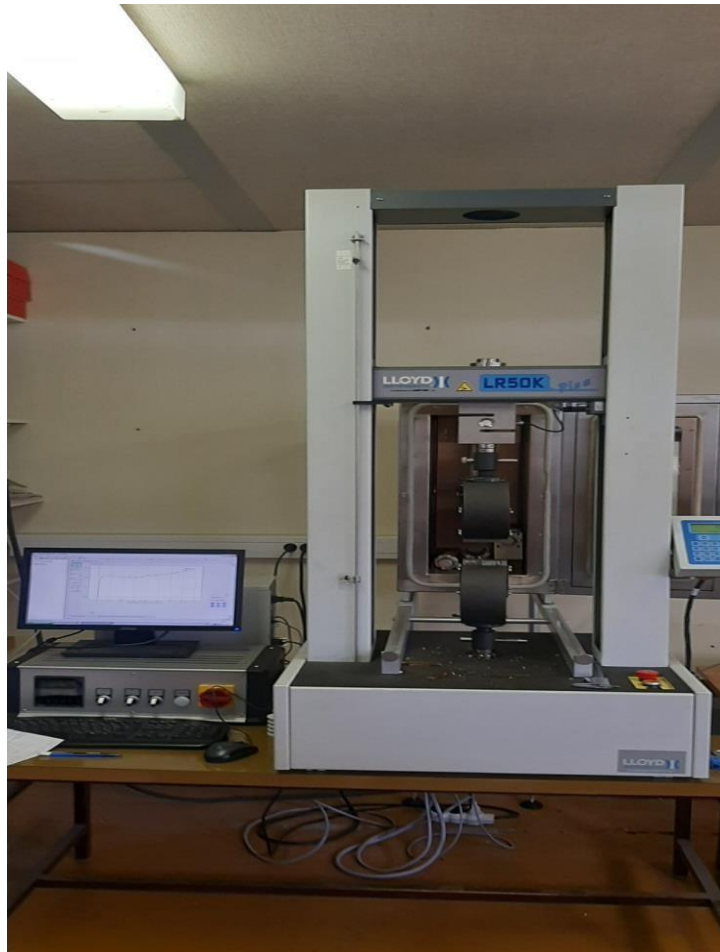


Figure. III.20. La machine de traction utilisée

Référence :

- [1] <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/materiaux-th11/plastiques-et-environnement-42657210/acide-poly lactique-pla-am3317/proprietes-am3317niv10003.html#biblio-nv1737410758119>

CHAPITRE IV

Résultats et Discussions

Introduction

Pour tout matériau destiné à l'industrie il est nécessaire de le caractériser et le contrôler pour savoir s'il répond aux exigences souhaitées à obtenir. C'est pour cela qu'il est nécessaire de connaître ses propriétés mécaniques et physiques.

VI.1. Caractérisation de la farine de grignon d'olive par Analyse spectrale IRTF

VI.1.1. Analyse spectrale par IRTF de la farine du GO traité thermiquement

Les résultats de l'analyse spectrale par l'IRTF sont présentés ci-dessous :

Le spectre représenté sur la **figure. VI.1** est le spectre IRTF du PLA, elle montre d'ailleurs l'existence d'une bande à 1750 cm^{-1} qui correspond aux vibrations groupements carbonyles C=O.

Un pic apparaît dans la région 2950 cm^{-1} qui est dû aux vibrations d'élongation asymétrique des liaisons C-H du groupe CH₂. Une large bande observée à 3500 cm^{-1} attribuée aux vibrations d'élongation des hydroxyles O-H. Un dernier pic dans la région 1034 cm^{-1} qui correspond aux vibrations de déformation des liaisons C-O-C de la cellulose et de l'hémicellulose [1].

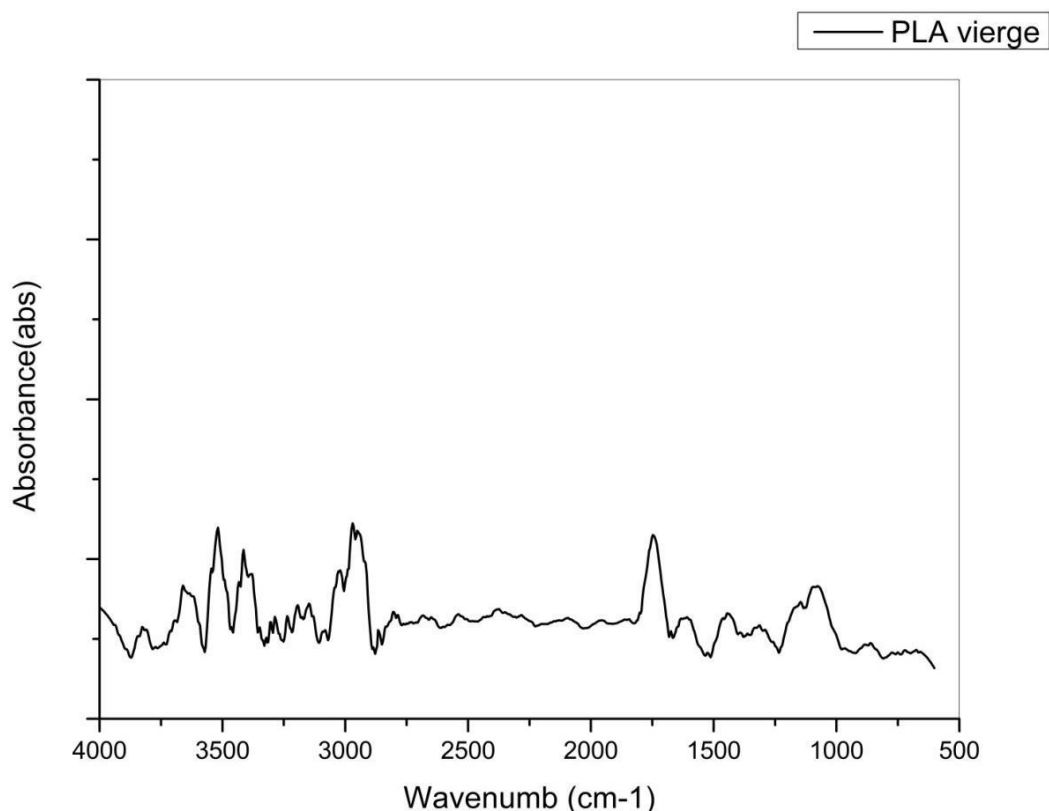


Figure. VI.1. Spectre IRTF de PLA vierge

La figure VI.2 montre le spectre IRTF de la farine de grignon d'olive non traitée. Chaque bande d'absorption qui figure dans les spectres IRTF de la fibre cellulosique est attribuée à une fonction chimique précise selon **Panayiotou et al [1]** et qui sont listées dans le **tableau .VI.1**

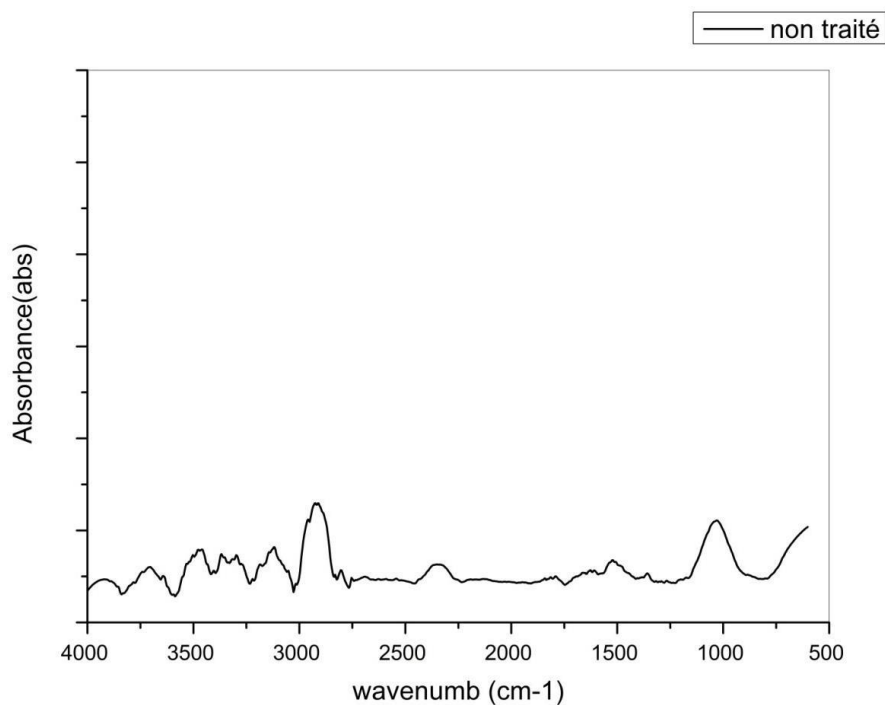


Figure .VI.2. Spectre IRTF de la farine du GO non traité

Tableau .VI.1 les bandes d'absorption pour la fibre cellulosique [1]

Nombre d'onde (cm-1)	Types 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 carbonyles C=O
1644	Vibration d'élongation des hydroxyles O-H de l'eau
1460	Vibration de déformation asymétrique des liaisons C-H du cycle aromatique
1381	Vibration de déformation symétrique des liaisons C-H dans le plan des polysaccharides
1238	Vibration d'élongation des groupements C-O
1163	Vibration d'élongation antisymétrique des liaisons C-O-C de la cellulose et de l'hémicellulose
1034	Vibration de déformation des liaisons C-O-C de la cellulose et de l'hémicellulose
609	Vibration de déformation des hydroxyles O-H des polysaccharides.

La bande qui s'étend entre 3600 et 3200 cm-1 est assignée aux vibrations d'élongation des groupements hydroxyles (-OH), avec l'aire de ce pic qui est plus grande. Pour la bande se trouvant entre 2935 et 2854 cm-1 elle représente les vibrations d'élongation symétrique et asymétrique des liaisons C-H du groupe -CH₂ des segments de la cellulose et de la lignine [2, 3].

Les bandes d'absorption à 1746 et 1238 cm-1 associées aux vibrations d'élongation des groupements carbonyles C=O et C-O présentent dans les hémicelluloses et lignine extractives [4].

L'intensité des pics à 1034 cm-1 attribués aux vibrations de déformation des liaisons C-O-C de la cellulose et de l'hémicellulose [9].

A la fin un pic autour de 609 cm^{-1} assigné à la déformation du groupement (-OH). Ces résultats sont en accord avec ceux trouvés par **Zhou et al [6]** et **Lu et al [7]**.

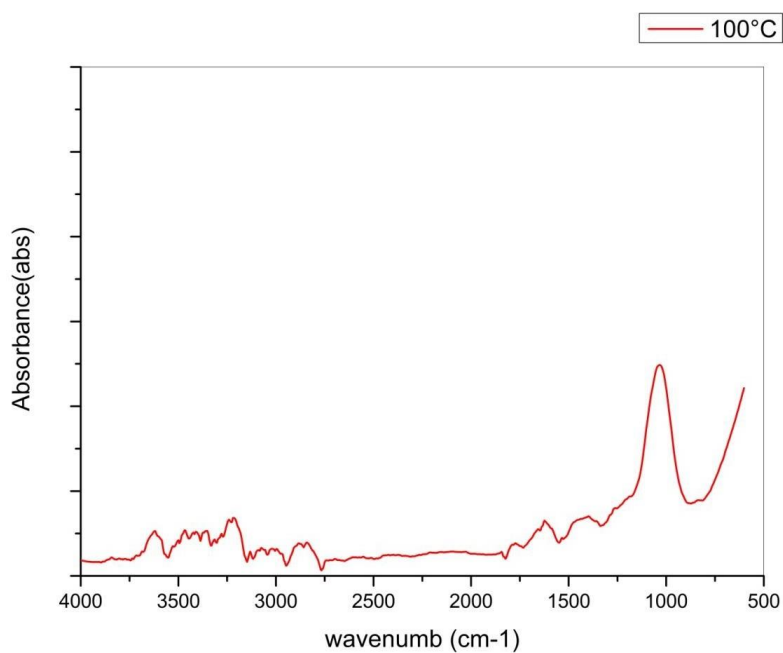


Figure .VI.3. Spectre IRTF de la farine du GO traité thermiquement à 100C°

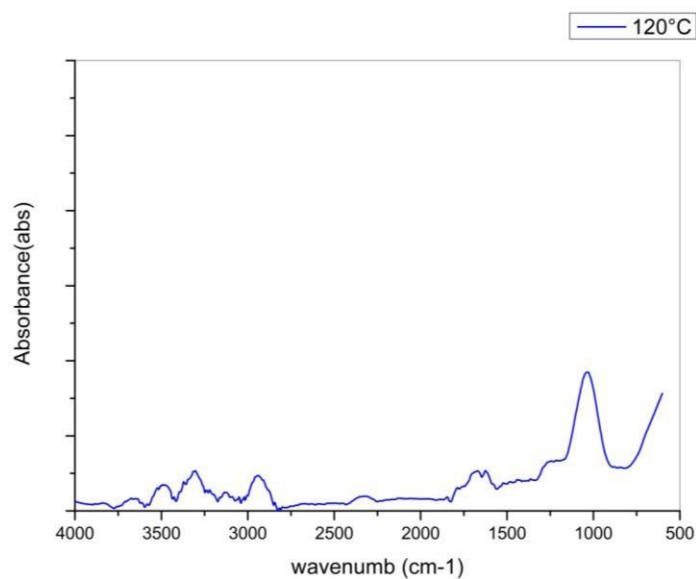


Figure .VI.4. Spectre IRTF de la farine du GO traité thermiquement à 120C°

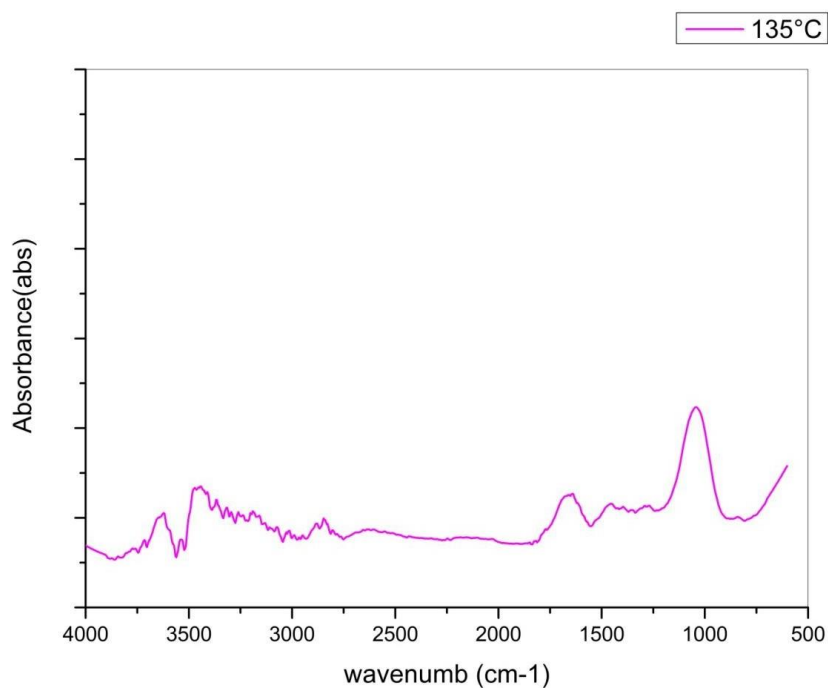


Figure .VI.5. Spectre IRTF de la farine du GO traité thermiquement à 135°C°

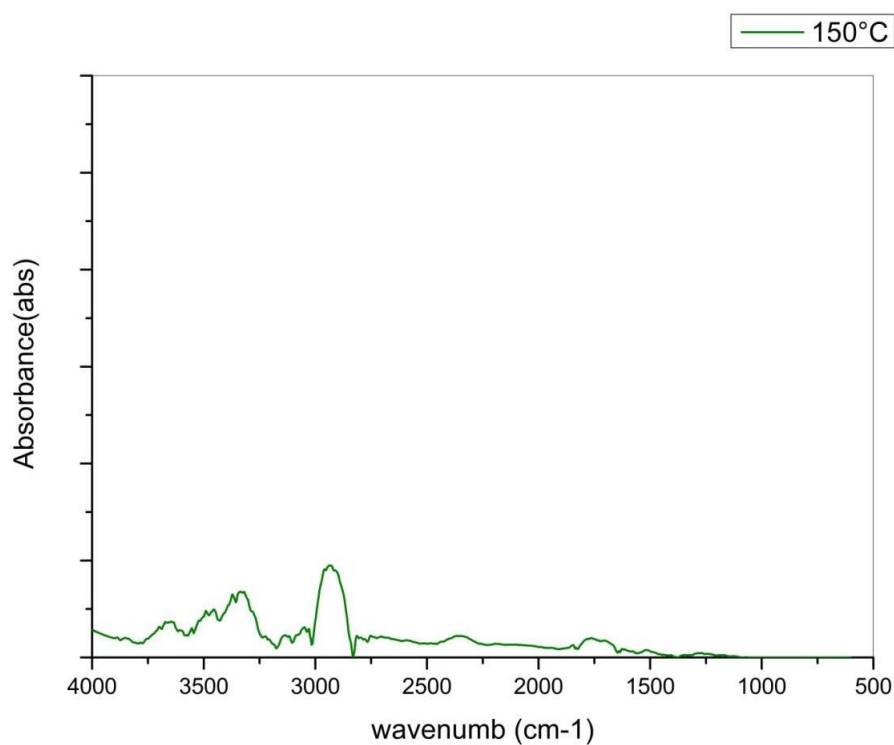


Figure .VI.6. Spectre IRTF de la farine du GO traité thermiquement à 150°C°

Pour la farine de grignon d'olive traitée thermiquement les **Figures. (VI.3 -VI.6)** montrent plusieurs changements dans les bandes caractéristiques. Et comme on peut clairement

observer les différences des pics pour chaque traitement sur la **Figure .VI.7** qui est une superposition des spectres IRTF aux différents traitements : on remarque une élévation du pic 1034 cm^{-1} par rapport au pic obtenu pour la FGO non traitée, par contre plus la température de traitement est augmentée plus l'intensité de ce pic baisse, ce pic est attribué aux vibrations d'étirement des groupes hydroxyles O-H de la cellulose et de l'hémicellulose.

Une large bande est observée entre 3200 et 3600 cm^{-1} qui correspond à l'élongation des liaisons OH, elle peut être attribuée aux vibrations des OH dans des groupes carboxyliques, des alcools ou des phénols. On observe que ce pic se déplace vers des nombres d'ondes plus faibles dans les échantillons traités à 100C° , 120C° , 135C° et 150C° par rapport à l'échantillon non traité. Ce qui indique que la structure des molécules portant le groupe -OH est différent.

Le pic aigu autour de 2935 cm^{-1} est dû aux élongations asymétrique et symétrique des C-H dans les chaînes aliphatiques, qui est d'ailleurs observé dans tous les échantillons mais qui sont de plus faible intensité dans les échantillons traité à 100C° , 120C° et 135C° .

Un autre pic a été observé entre 1500 et 1750cm^{-1} qui peut être attribué à l'élongation C=C dans des alcènes et des composés aromatiques, avec contribution de l'élongation de C=O dans les cétones. On remarque que ce pic s'est déplacé vers des nombres d'ondes plus élevées pour les échantillons traité à 100C° , 120C° et 135C° .

Pour l'échantillon traité à 150C° on a remarqué une disparition quasi-totale des pics se trouvant entre 600 et 2750cm^{-1} , cela pourrait être expliqué par la dégradation de l'échantillon.

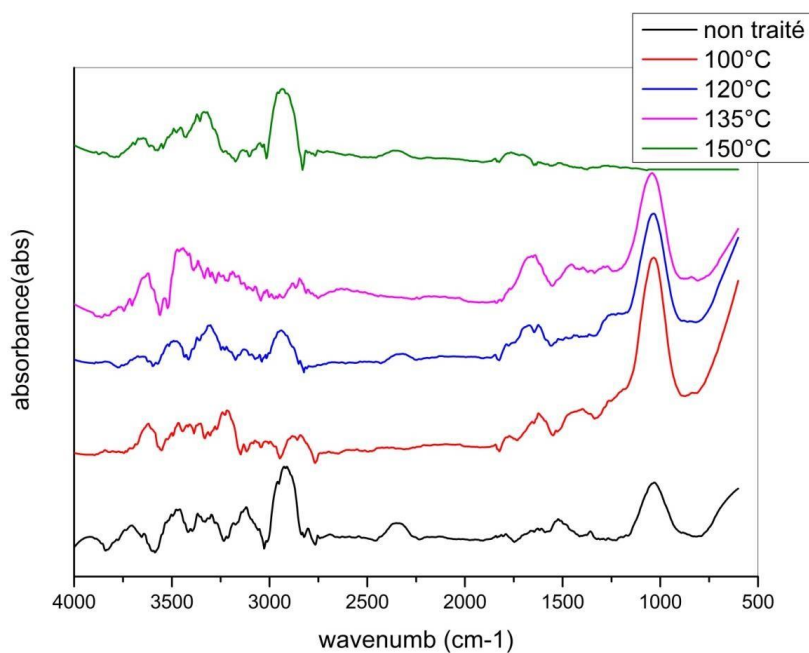


Figure .VI.7. Spectres IRTF de la farine du GO superposés traité thermiquement

VI.1.2. Analyse spectrale par IRTF de la farine du GO traité par UV

Les résultats de l'analyse spectrale par l'IRTF sont présentés ci-dessous :

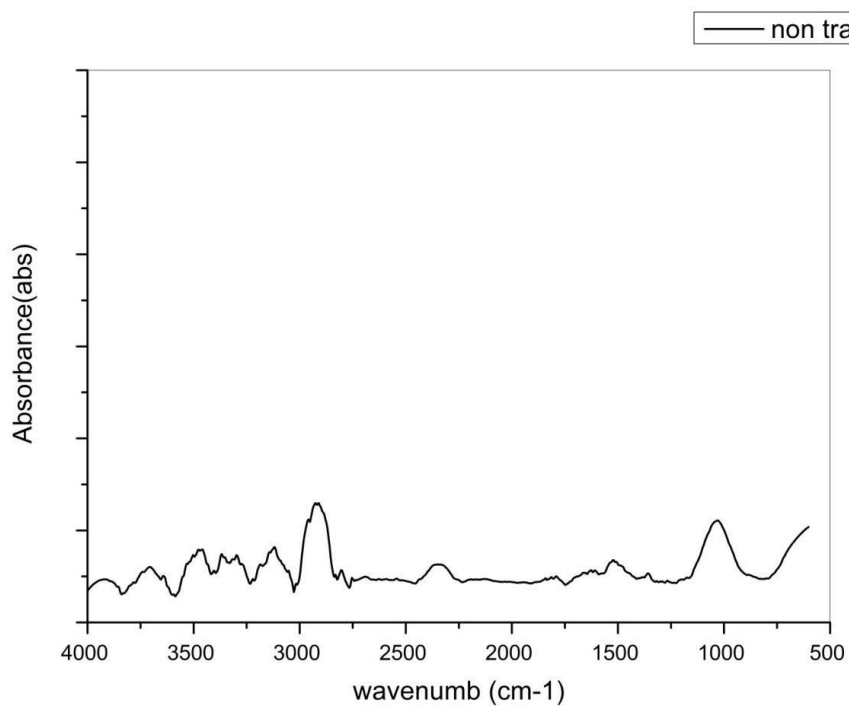


Figure .VI.8. Spectre IRTF de la farine du GO non traité

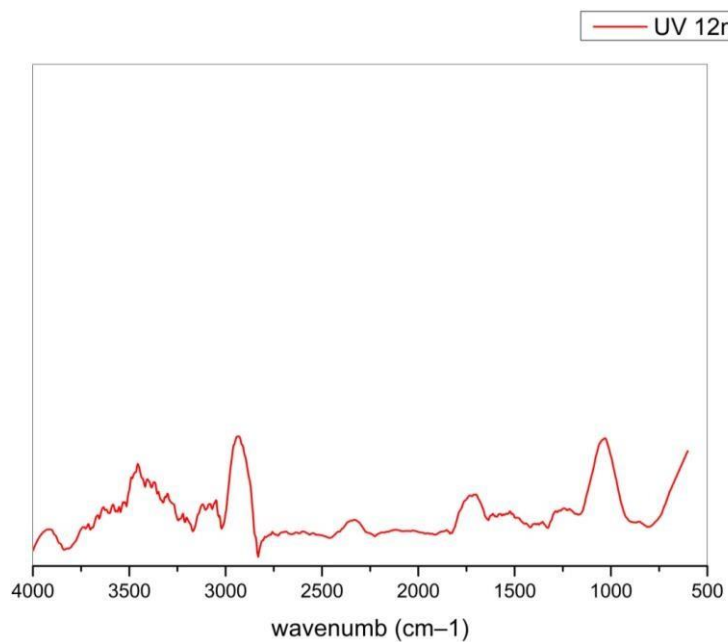


Figure .VI.9. Spectre IRTF de la farine du GO traité par UV pendant 12min

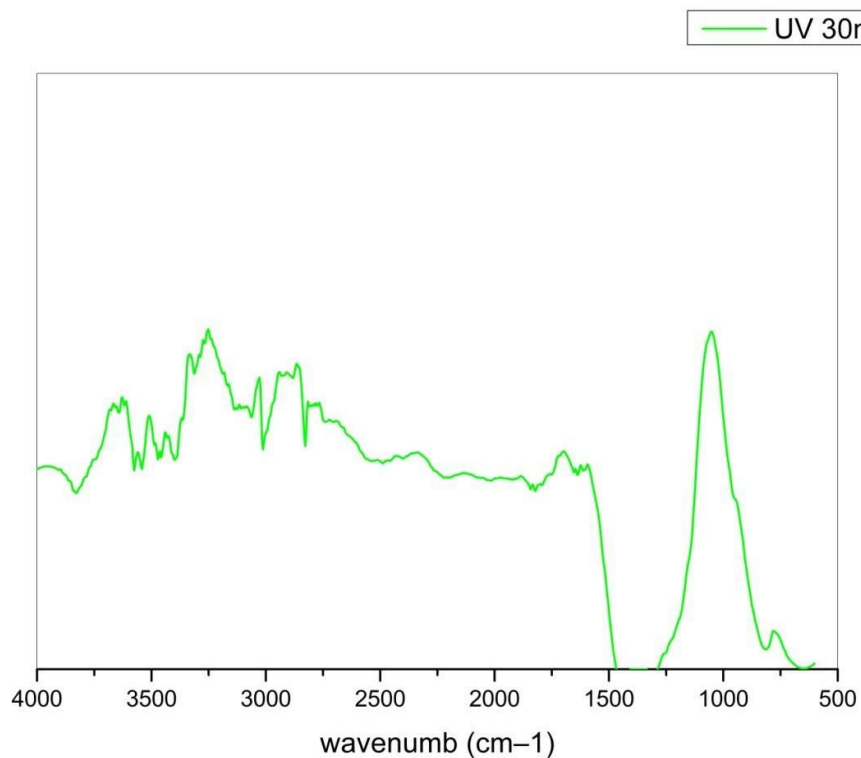


Figure .VI.10. Spectre IRTF de la farine du GO traité par UV pendant 30min

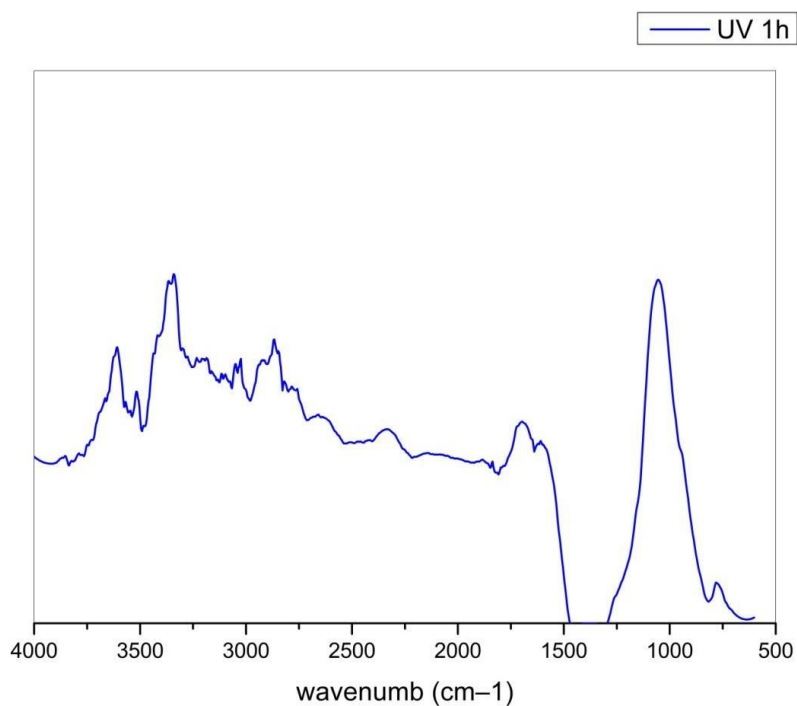


Figure .VI.11. Spectre IRTF de la farine du GO traité par UV pendant 1h

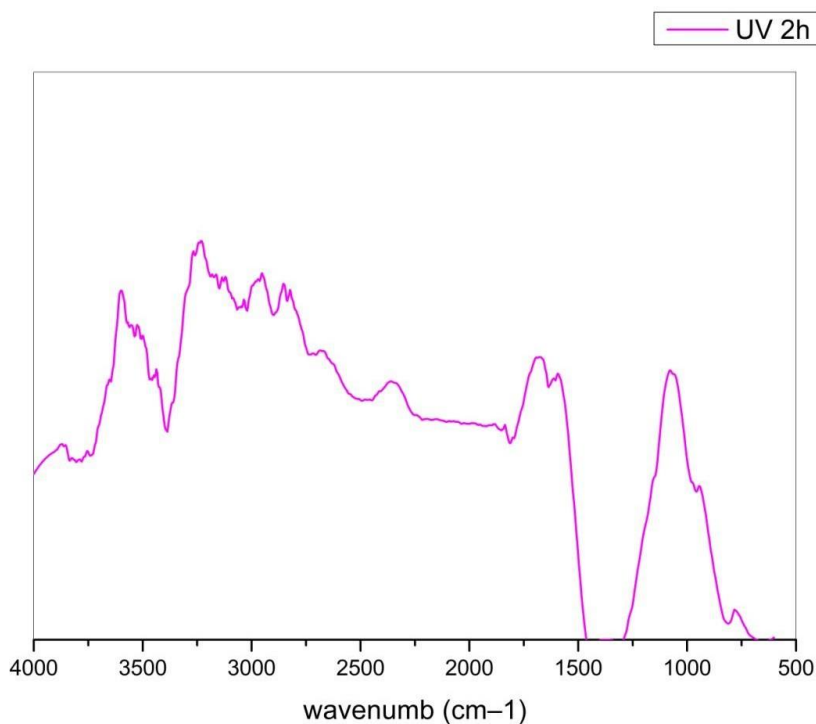


Figure .VI.12. Spectre IRTF de la farine du GO traité par UV pendant 2h

Pour la farine de grignon d'olive traitée par les ultra-violets les **Figures. (VI.9 -VI.12)** montrent différents changements dans les bandes caractéristiques. On peut observer les

différences des pics pour chaque traitement sur la **Figure .VI.13** qui est une superposition des spectres IRTF de l'échantillon non traité et aux différents traitements par UV.

On remarque une élévation du pic observé dans les échantillons traités par rapport au non traité entre la bande 3200 et 3600cm^{-1} qui correspond à l'élongation des liaisons OH, elle peut être attribuée aux vibrations des OH dans des groupes carboxyliques, des alcools ou des phénols. On remarque que ce pic se déplace vers des nombres d'ondes plus élevées dans les échantillons traités aux UV pendant 12min, 30min, 1h et 2h par rapport à l'échantillon non traité ; accompagnés de pics plus importants comparés à celui-ci. Ce qui indique que la structure des molécules portant le groupe $-\text{OH}$ a changé.

On observe que le pic aigu à 2935cm^{-1} qui apparaît dans l'échantillon non traité est dû aux élongations asymétrique et symétrique des $-\text{C}-\text{H}$ dans les chaînes aliphatiques, qui est d'ailleurs observé dans tous les échantillons mais qui sont de plus faible intensité dans les échantillons traité aux UV pendant : 12min, 30min, 1h et 2h.

Le pic observé entre 1500 et 1750cm^{-1} qui peut être attribué à l'élongation $\text{C}=\text{C}$ dans des alcènes et des composés aromatiques, avec contribution de l'élongation de $\text{C}=\text{O}$ dans les cétones. On remarque que ce pic s'est déplacé vers des nombres d'ondes plus élevées pour les échantillons traité aux UV pendant 12min, 30min, 1h et 2h avec une légère élévation de l'intensité du pic.

Par contre pour le pic 1034cm^{-1} qui est attribué aux vibrations d'étirement des groupes hydroxyyles O-H de la cellulose et de l'hémicellulose, on remarque que pour l'échantillon traité aux UV pendant 12min l'intensité du pic est similaire voir légèrement inférieure à celle de l'échantillon de FGO non traité, alors que pour les échantillons traités aux UV pendant 30min, 1h et 2h l'intensité de ce pic a augmenté considérablement.

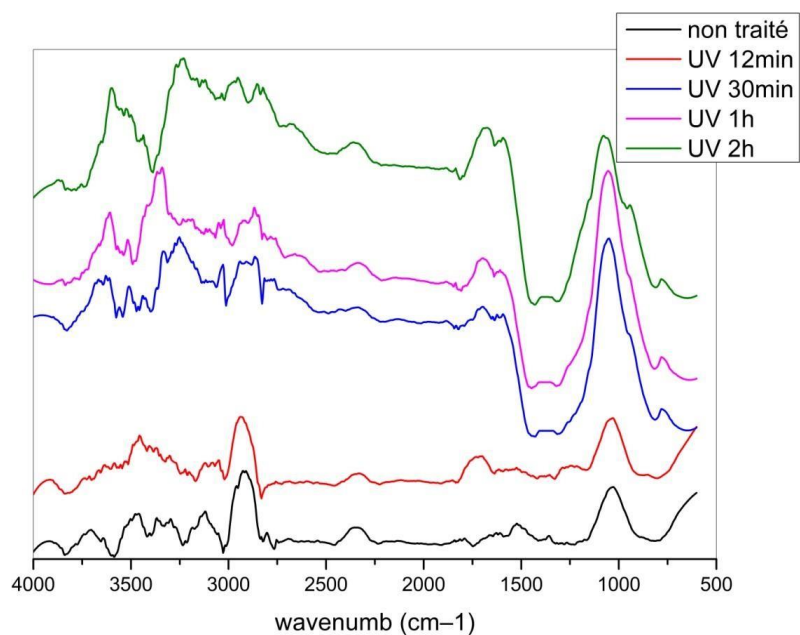


Figure .VI.13. Spectres IRTF de la farine du GO superposé traité par UV

Ces résultats laissent penser que le traitement ultra-violet de la farine de grignon d'olive apporte des modifications qui vont freiner son absorbance en eau, et parmi les études menées il est à conclure que le temps d'exposition aux UV qui a donné de meilleurs résultats est celui dont la durée a été de 12min.

VI.2. Résultat des tests de traction

Les résultats de traction sont présentés ci-dessous, les courbes représentent l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation.

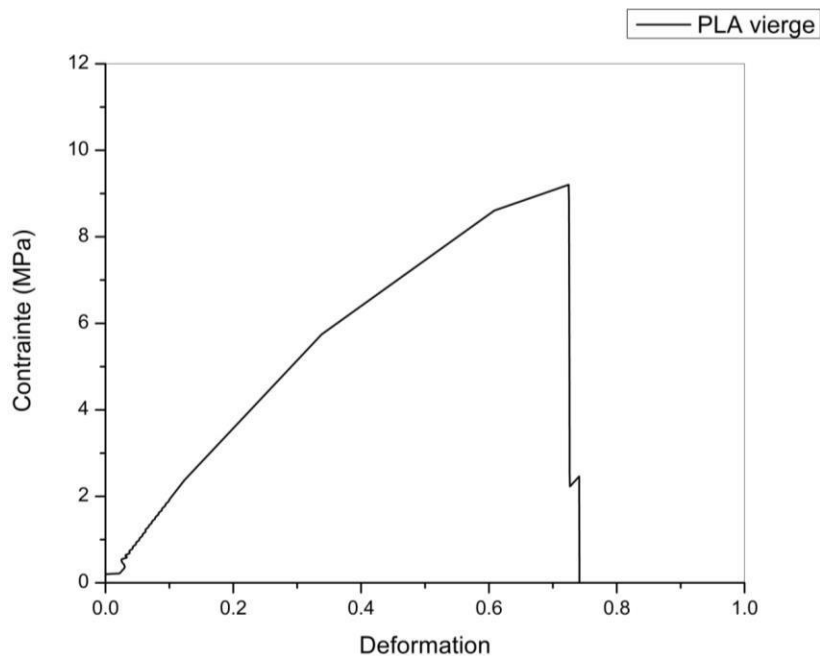


Figure .VI.14. Courbe de traction du l'éprouvette PLA vierge

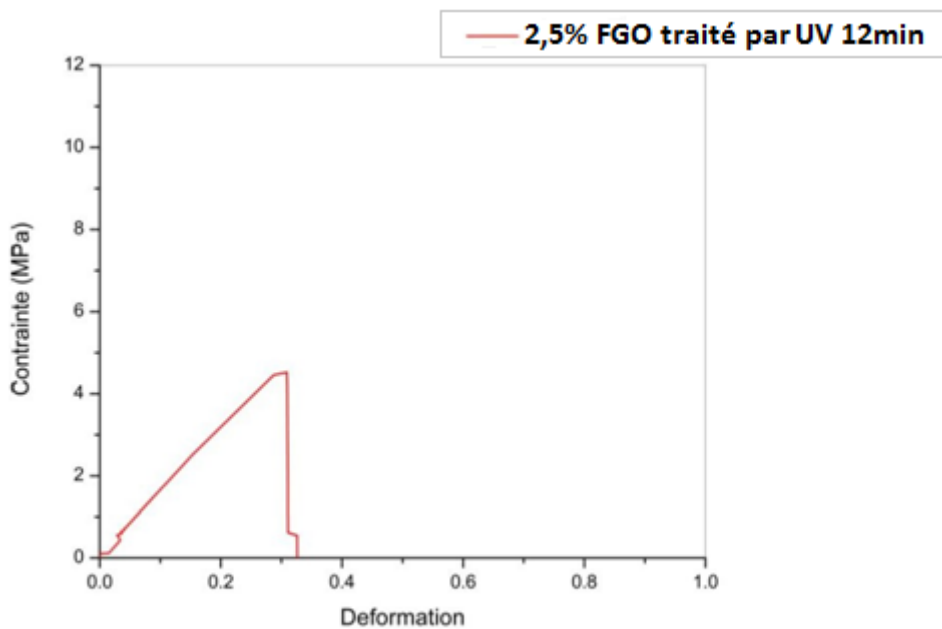


Figure .VI.15. Courbe de traction du l'éprouvette (97,5% du PLA/2,5% de FGO)

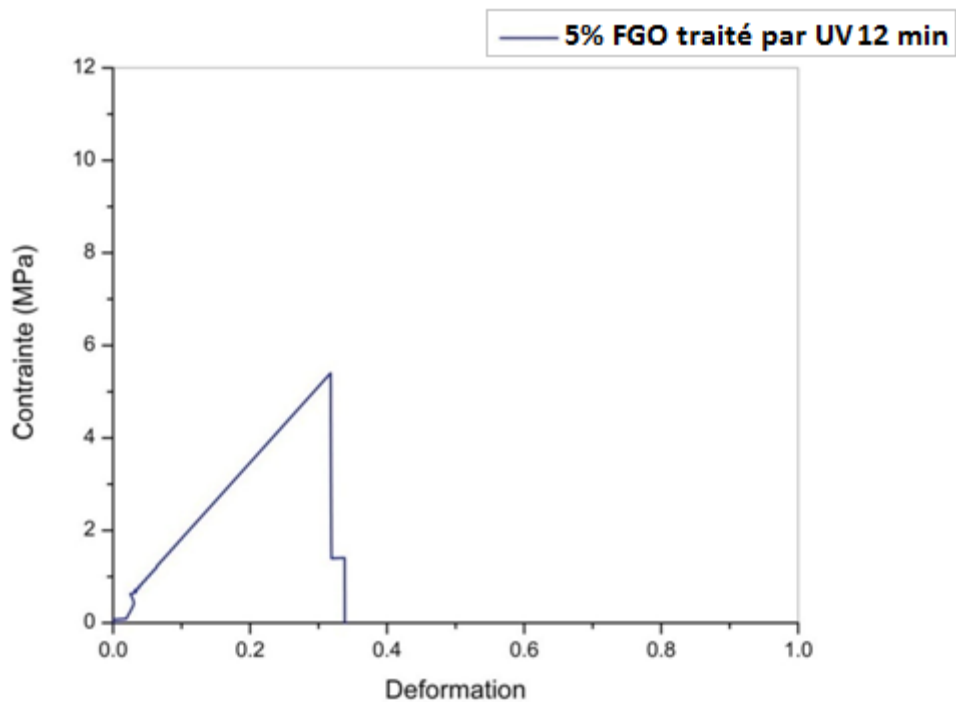


Figure .VI.16. Courbe de traction du l'éprouvette (95% du PLA/5% de FGO)

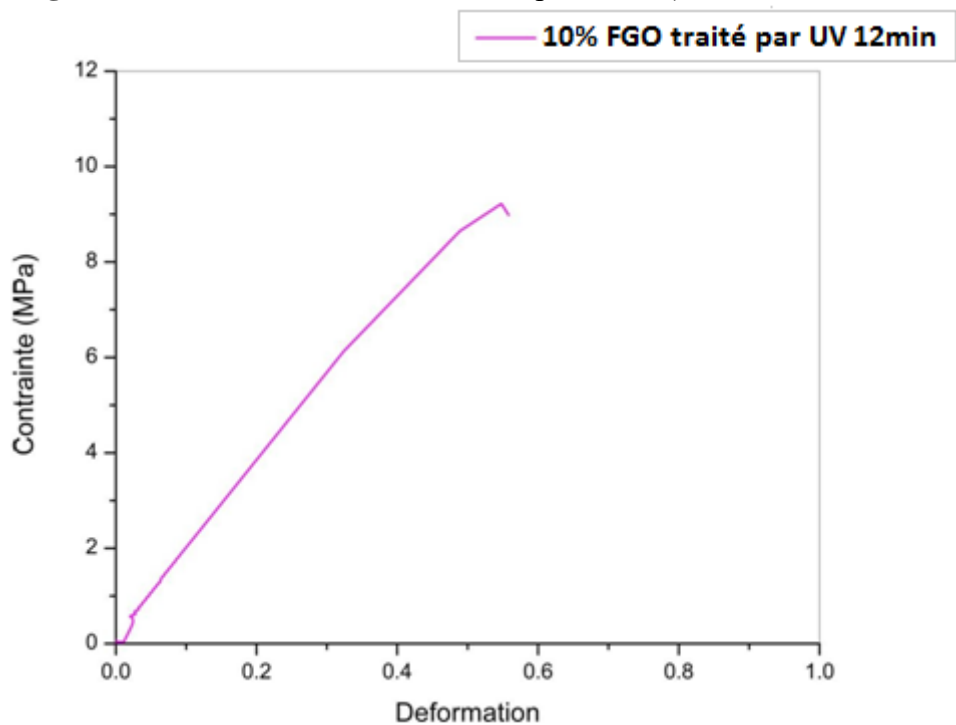


Figure .VI.17. Courbe de traction du l'éprouvette (90% du PLA/10% de FGO)

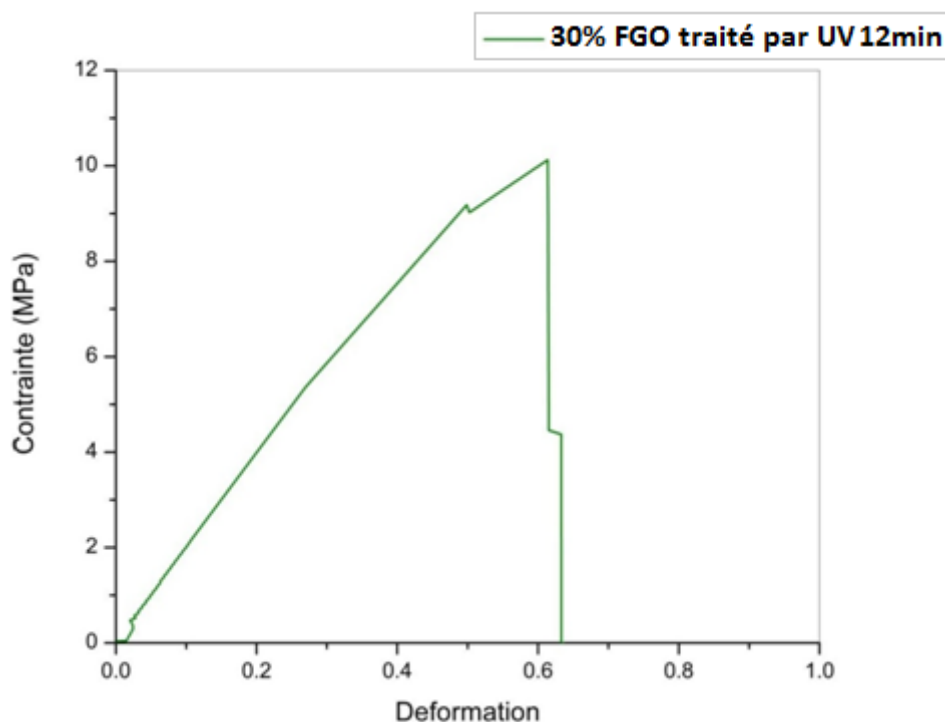


Figure .VI.18. Courbe de traction de l'éprouvette (70% du PLA/30% de FGO)

L'évolution de la résistance à la traction des composites en fonction du taux de charge ainsi que du PLA vierge est illustré sur les figures (VI.14-VI.18). Nous constatons depuis la figure VI.19 qui est la superposition des courbes de traction des 5 échantillons, une diminution importante de la contrainte à la rupture pour le composite chargé à 2,5% et 5% de FGO traité aux UV comparé au PLA vierge. Cette baisse est évaluée à 4,3 MPa et 5,2 MPa. Ces résultats sont en accord avec ceux de **S.M.B et al [8]**, qui ont associé cette baisse à la diminution de la force de liaison entre la matrice et le renfort, ce qui peut s'expliquer par les particules de la farine de grignon d'olive qui ont tendance à former des agglomérats qui causent une hétérogénéité ainsi qu'un transfert de contrainte non uniforme et par conséquent un matériau composite fragile.

Mais on constate aussi une évolution continue de la résistance à la rupture des composites au fur et à mesure que le taux de charge augmente dans le matériau, jusqu'à obtention d'un composite dont la résistance à la rupture est plus élevée que celle du PLA vierge, on passe donc 4,3 MPa, 5,2MPa, 9,1MPa et 10MPa pour les composites à 2,5%GO, 5%GO, 10%GO et 30%GO respectivement, comparé au PLA vierge avec une résistance à la rupture de 9MPa.

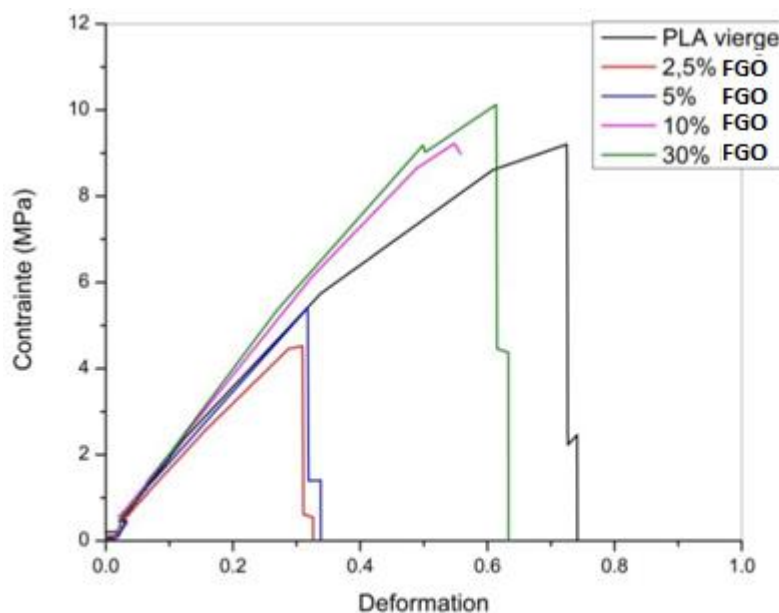


Figure .VI.19. Courbes de traction des éprouvettes PLA/FGO superposé

VI.3. Effet du taux de charge sur l'évolution du module de Young des composites

La figure VI.20 met évidence l'évolution du module de Young des composites chargé en farine de grignon d'olive traitée aux UV. Nous remarquons que l'introduction de la farine de grignon d'olive traitée dans le PLA a réduit la rigidité du matériau, on passe d'un module de Young de 16,85 MPa pour le PLA vierge à 14,96MPa pour le composite à 2,5%GO ; mais toutes fois on constate que plus le taux de charge augmente et plus le matériau gagne en rigidité jusqu'à atteindre un module de Young avec une valeur de 19,66MPa pour le composite à 30%GO qui est une valeur bien supérieure à celle du PLA vierge. **Djidjeli et al [9] et Sapuana et al [10]** ont apporté des résultats similaires, ils ont d'ailleurs attribué ce comportement de rigidité à la farine de grignon d'olive dispersée qui attribue une grande rigidité à la matrice du polymère.

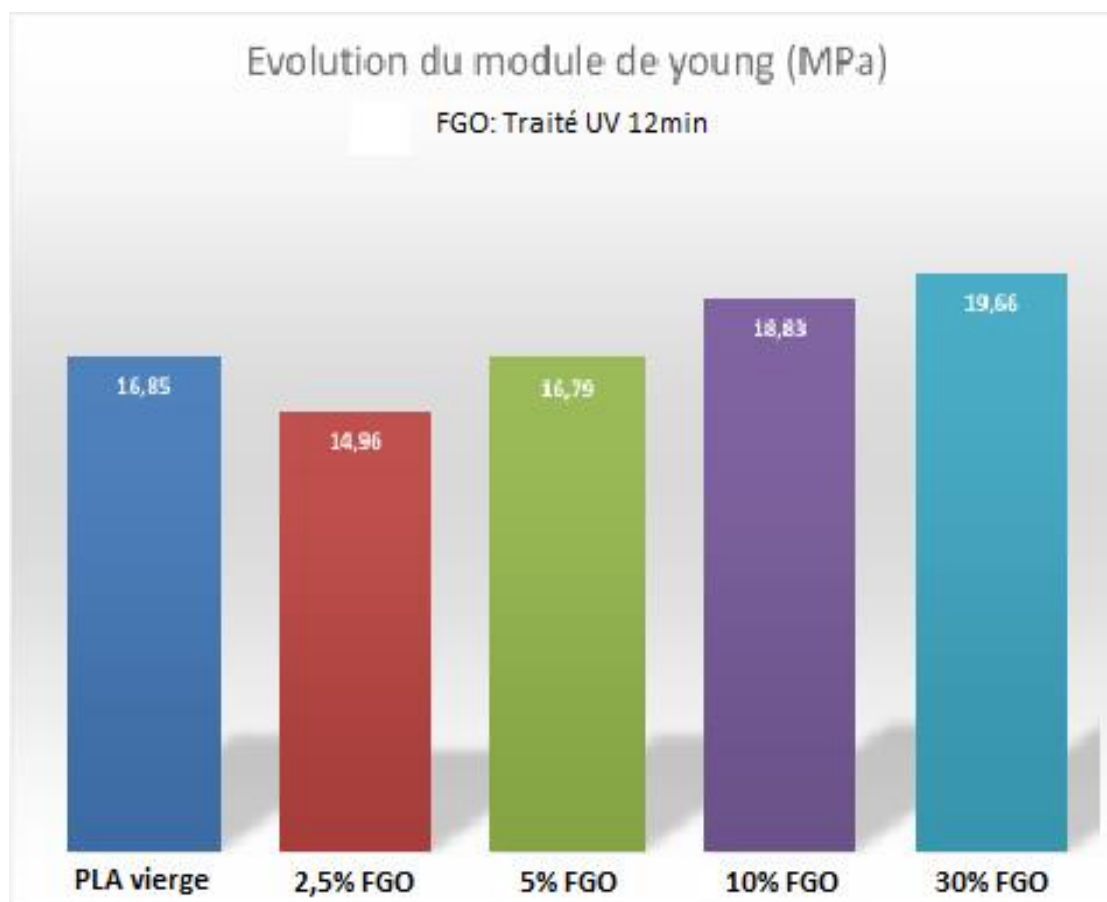


Figure .VI.20. Évolution du module de Young en fonction du taux de charge.

Conclusion

Les résultats démontrent que le traitement ultra-violet de la farine de grignon d'olive apporte des modifications qui vont freiner son absorbance en eau. On conclue qu'il y a une évolution continue de la résistance à la rupture des composites au fur et à mesure que le taux de charge augmente dans le matériau élaboré, jusqu'à obtention d'un composite dont la résistance à la rupture est plus élevée que celle du PLA vierge. On constate aussi que plus le taux de charge augmente dans le matériau plus il gagne en rigidité jusqu'à atteindre un module de Young avec une valeur supérieure à celle du PLA vierge.

Références :

- [1] V. Tserki, P. Matzinos, S. Kokkou, C. Panayiotou, *Novel biodegradable composites based on treated lignocellulosic waste flour as filler. Part I. Surface chemical modification and characterization of waste flour*, Composites. Part A, 2005; 36: 965-974.
- [2] A.C.H. Barreto, D.S. Rosa, P.B.A. Fechine, S.E. Mazzetto, *Properties of sisal fibers treated by alkali solution and their application into cardanol-based biocomposites*, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2011; 42: 492–500.
- [3] M. Kazayawoko, J.J. Balatinecz, L.M. Matuana, *Surface modification and adhesion mechanisms in wood fiber-polypropylene composites*, Journal of Materials Science, 1999; 34: 6189-6199.
- [4] H. Djidjelli, A. Boukerrou, R. Founas, A. Rabouhi, M. Kaci, J. Farenc, J.J. Martinez-Vega, D. Benachour, *Preparation and characterization of poly(vinyl chloride)/virgin and treated sisal fiber composites*, Journal of Applied Polymer Science, 2007; 103: 3630-3636.
- [5] K. Bledzki Gassan, *Composites reinforced with cellulose based fibres, Review*, J Progress in Polymer Science, 1999; 24: 221-274.
- [6] F. Zhou, G. Cheng, B. Jiang, *Effect of silane treatment on microstructure of sisal fibers*, Applied Surface Science, 2014 ;292 : 806- 812.
- [7] N. Lu, S. Oza, *Thermal stability and thermo-mechanical properties of hemp-high density polyethylene composites: Effect of two different chemical modifications*, Composites Part B: Engineering, 2013; 44: 484- 490.
- [8] S.M.B. Nachtigall, G.S. Cerveira, S.M.L. Rosa, *New polymeric-coupling agent for polypropylene/wood-flour composites*, Polymer Testing, 2007; 26: 619–628.
- [9] H. Djidjelli, D. Benachour, A. Boukerrou, O. Zefouni, J. Martinez-Véga, J. Farenc, M. Kaci, *Thermal, dielectric and mechanical study of poly(vinyl chloride)/olive pomace composites*, Express Polymer Letters, 2007; 1: 846-852.
- [10] S.M. Sapuana, D. Bachtiar, *Mechanical Properties of Sugar Palm Fibre Reinforced High Impact Polystyrene Composites*, Procedia Chemistry, 2012; 4: 101-106.

Conclusion générale

Au cours de cette étude, nous avons travaillé sur l'élaboration d'un matériau composite entièrement biodégradable à base d'un polymère et de cellulose, un matériau qui doit respecter certaines propriétés mécaniques mais aussi environnementales. C'est pour cela que notre choix s'est penché sur l'acide poly-lactique (PLA) un polymère thermoplastique, bio source comme matrice et la farine de grignon d'olive (FGO) qui est un renfort végétal très abondant et peu coûteux dans la région de Kabylie.

Nous nous sommes intéressés au grand problème qui se présente lors de l'élaboration des matériaux composites qui est l'adhérence entre la matrice/renfort ; c'est pour cela qu'on a fait le choix de deux méthodes de traitements pour la farine de grignon d'olive qui consistent à les traiter soit thermiquement ou par ultra-violet afin de déterminer les modifications que peuvent apporter celles-ci au matériau élaboré. Par ailleurs différentes techniques de caractérisation nous ont permis d'amasser le maximum d'informations sur les farines de grignon d'olive traitées qui ont été incorporées comme renforts dans les composites mit au point.

Les résultats de la spectroscopie IRTF de la farine de grignon d'olive traitée et non traitée ont révélé la diminution de la bande d'absorption des groupements -OH qui se situent entre 3200 et 3600 cm⁻¹ surtout lors du traitement thermique à 100 C° et le traitement ultra-violet pendant 12min. Suivi d'une diminution du pic 2935 cm⁻¹ attribué aux vibrations d'élongation asymétrique des liaisons C-H du groupe CH₂ pour les deux traitements. Pour la farine de grignon d'olive traitée les résultats de l'analyse IRTF ont démontré l'apparition d'une bande d'absorption vers 1034 cm⁻¹ due aux vibrations des liaisons C-O-C de la cellulose et de l'hémicellulose.

Le comportement mécanique des composites PLA/FGO traités aux UV pendant 12min a montré que la contrainte, la résistance à rupture et la déformation croient progressivement avec l'augmentation du taux de charge dans le composite. Le même résultat a été aperçu pour le module de Young jusqu'à obtention d'un module de Young plus élevé que celui du PLA vierge.

A l'aide des résultats obtenus nous considérons que le matériau élaboré peut être utilisé comme matériau biodégradable dans différents secteurs vu qu'il répond aux exigences souhaitées. Des études plus détaillées mériteraient d'être investies dans cette recherche afin d'optimiser les paramètres d'élaboration qui permettraient d'améliorer ce travail.