

N° d'ordre :

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE**  
**MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR**  
**ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE**

**Université de Saida- Dr. Moulay Tahar**  
**Faculté des Sciences**

**Thèse**

Présentée pour obtenir le diplôme de

**Doctorat en Sciences**

**Spécialité : Physique**

**Par :**

**ATIG KHADIDJA**

**Thème :**

**Investigation et modélisation de l'endommagement  
d'interface des bionanocomposites**



Thèse soutenue le .... / .... / 2020 devant le jury composé de :

N°	Nom et prénom	Grade	Etablissement	Qualité
01	LASRI Boumediene	Pr.	Université de Saida – Dr. Moulay Tahar	Président
02	MOKADDEM Allel	M.C.A	Centre universitaire Nour Bachir El Bayadh	Rapporteur
03	DOUMI Bendouma	M.C.A	Université de Saida – Dr. Moulay Tahar	Co-rapporteur
04	AMARA Kada	M.C.A	Université de Saida – Dr. Moulay Tahar	Examineur
05	BENSAID Djillali	M.C.A	Centre universitaire Ain Témouchent	Examineur
06	BOUDIA Keltouma	M.C.A	Centre universitaire Tissemsilt	Examineur

**Année Universitaire 2019-2020**

# *Dédicaces*

*A la mémoire de mon père.*

*Khadidja*

# Remerciement

*Je remercie Dieu de m'avoir donné le courage, la volonté, et la patience de pouvoir terminer cette thèse.*

*Ce travail a été effectué au sein du laboratoire des études physico-chimiques à l'université de Saïda, Ce document reprend l'essentiel des idées et des arguments que j'ai développés pendant les années de ma thèse. Je veux ici remercier tous ceux qui m'ont offert la possibilité de mener à bien ce travail et de soutenir son résultat.*

*Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à M. Mokkadem Allel rapporteur de ma thèse, maître de conférences au centre universitaire Nour Bachir d'El Bayadh et M. Doumi Bendouma, co-rapporteur de ma thèse, maître de conférences à l'université Dr. Tahar Moulay de Saïda, qui ont accepté de rapporter ma thèse. Ils ont fait l'effort d'entrer dans les détails des raisonnements de ce document et d'émettre des critiques constructives qui m'aideront dans la suite de ma recherche. Je les en remercie, et j'espère pouvoir leur démontrer par la suite que je suis digne de la confiance qu'ils m'ont manifestée.*

*Je tiens à remercier M. Lasri Boumediene, professeur à l'université Dr. Tahar Moulay de Saïda d'avoir accepté de présider le jury ma thèse.*

*J'adresse également mes remerciements à Messieurs les membres de jury, M. Amara Kadda, maître de conférences à l'université de Saïda M. Bensaïd Djillali, maître de conférences au centre universitaire Belhadj Bouchaïb Aïn Témouchent et Mme. Boudia Keltouma, maître de conférences au centre universitaire Tissemsilt, qui ont accepté d'examiner ma thèse et de participer au jury de ma soutenance.*

*Je remercie aussi M. Ilias Abdelkader mon oncle Doumi Nouredine pour leur aide et surtout leurs encouragements.*

*La fin d'une thèse constitue une étape dans la vie de son auteur. Il est naturel que ma pensée la plus forte aille vers ma Mère et mon père malgré qu'il ne soit plus avec nous..? Et mon frère Mokhtar, à qui je dois la vie et une part essentielle de ma personnalité. Qu'ils sachent que l'amour qu'ils me donnent continue à m'animer et me permet d'envisager l'avenir comme un défi.*

*A tout ce qui mon aider de près ou de loin.*

## **Sommaire**

Dédicace .....	i
Remerciements .....	ii
Sommaire .....	iii
Liste des figures .....	xi
Liste des tableaux .....	x
Liste d'abréviations .....	ix
<b>INTRODUCTION GENERALE .....</b>	<b>01</b>
<b>CHAPITRE I : ELEMENTS BIBLIOGRAPHIQUES SUR LES BIONANOCOMPOSITES</b>	
<b>I.1. Introduction.....</b>	<b>07</b>
<b>I.2. Les matériaux composites .....</b>	<b>07</b>
<b>I.3. Classification des matériaux composites .....</b>	<b>08</b>
I.3. 1. Classification selon le taux d'utilisation .....	08
I.3. 1. 1. Composites de Grande Diffusion (GD) .....	08
I.3. 1. 2. Les composites hautes performances (HP) .....	08
I. 3. 2. Classification suivant la forme des constituants .....	08
I. 3. 2. 1. Composites à particules.....	09
I. 3. 2. 2. Composites à fibre.....	10
I.3. 3. Classification suivant la nature des constituants .....	10
<b>I.4. Les biocomposites .....</b>	<b>12</b>
I.4 .1 Les fibres naturelles .....	13
I.4 .1.1. Définition des fibres végétales .....	15
I. 4 .1.2. Composition chimique des Fibres Végétales .....	15
I.4 .1.2 .1. La cellulose .....	16

I.4 .1.2.2. L' Hémicelluloses .....	17
I.4 .1.2 .3. Lignine .....	18
I.4 .1.2.4. Pectines .....	19
I.4 .1.3. Structure d'une fibre végétale .....	20
I.4 .1.4. Propriétés chimiques, physiques et mécaniques des fibres végétales .....	21
I.4 .1.5. Avantages et inconvénients des fibres végétales .....	22
I.4 .2. Les matrices polymères .....	23
I.4 .2 .1. Les matrices thermodurcissables .....	24
I.4 .2 .2 les matrices thermoplastiques .....	25
I.4.3. Facteurs influant sur les propriétés des matériaux composites à renfort naturel .....	26
I.4.3.1. Dispersion des fibres .....	26
I.4.3.2. L'orientation des fibres .....	26
I.4.3.3. Concentration des fibres .....	27
I.4.3.4. Adhésion fibre/matrice .....	28
<b>I.5. Les bionanocomposites .....</b>	<b>29</b>
I.5.1. Définition .....	30
I.5.2. Classification des bionanocomposites .....	30
I.5.2.1.Bionanocomposites renforcés par des particules .....	30
I.5.2 .2. Bionanocomposites renforcés par des particules allongées .....	31
I.5.2.3.Bionanocomposites renforcés par des particules en couches .....	31
I.5.3. Propriétés des bionanocomposites .....	32
I.5.4. Méthodes de préparation des bionanocomposites .....	33

I.5.4.1. Réaction "In Situ" .....	33
I.5.4.2. La technique de coulée en solution .....	34
I.5.4.3. Technique de mélange à l'état fondu .....	34
<b>Références .....</b>	<b>36</b>

## **CHAPITRE II : CELLULOSE :FIBERS /BIOPOLYMERES**

<b>II.1. Introduction .....</b>	<b>45</b>
<b>II.2. Les fibres de cellulose .....</b>	<b>46</b>
II.2.1. Les fibres de Coton .....	46
II.2.2. Les fibres de Lin .....	48
II.2.3. Les fibres de Jute .....	50
II.2.4. Les fibres de Sisal .....	51
II.2.5. Les fibres de Ramie .....	53
<b>II.3. Les biopolymères .....</b>	<b>55</b>
II.3. 1. Classification des biopolymères .....	56
II.3. 1. 1. Biopolymères biodégradables issus de ressources naturelles .....	57
II.3. 1. 1. 1. Les Polysaccharides .....	57
II.3. 1. 1. 1. 1 L'amidon .....	58
II.3. 1. 1. 1. 2 La cellulose .....	59
II.3. 1. 1. 1. 3 La chitine et le chitosane .....	61
II.3. 1. 1. 2. Les protéines .....	63
II.3. 1. 1. 2. 1. Collagène et gélatine .....	63
II.3. 1. 2. Biopolymères biodégradables issus d'origine microbienne .....	64
II.3. 1. 3. Biopolymères biodégradables issus des biotechnologies .....	65

II.3. 1. 3. 1. L'acide poly lactique (PLA) .....	65
II.3. 1. 4. Biopolymères biodégradables issus de la pétrochimie .....	66
II.3. 1. 4.1. La polycaprolactone (PCL) .....	66
II.3. 2. Voies principales pour la production des biopolymères cellulosique .....	67
II.3. 3. Propriétés des composites à base de cellulose (fibres et biopolymères) .....	67
II.3. 4. Applications des biopolymères .....	68
II.3. 4. 1. Applications Médicales et Pharmaceutiques .....	69
II.3. 4. 2. Applications des biopolymères en emballage .....	70
II.3. 4. 3. Applications des biopolymères en agriculture et horticulture .....	72
<b>Références .....</b>	<b>74</b>

### **CHAPITRE III : MODELISATION DE L'ENDOMMAGEMENT DE L'INTERFACE.**

<b>III.1. Introduction .....</b>	<b>83</b>
<b>III.2. Mécanismes de liaison .....</b>	<b>84</b>
III.2. 1. L'interface .....	84
III.2. 2. L'interphase .....	85
<b>III.3. Importance et rôle de l'interface fibre / matrice .....</b>	<b>86</b>
<b>III.4. Modes de rupture de l'interface .....</b>	<b>87</b>
<b>III. 5. Techniques expérimentales de mesure .....</b>	<b>88</b>
III. 5 . 1. Méthodes directes d'évaluations interfaciales .....	88
III. 5 . 1.1. Essais micromécaniques de caractérisation de l'interface fibre/ matrice .....	88
III. 5 . 1. 1. 1. Test de fragmentation de la fibre .....	88
III. 5 . 1. 1. 2. Essai de déchaussement "pull-out" .....	89

III.5.1.2.Essais nanomécaniques de caractérisation de l'interface fibre/ matrice ..	90
III. 5 . 1. 2. 1. La nanoindentation "push-in" .....	90
III. 5. 2. Méthodes indirectes d'évaluation interfaciale .....	92
III. 5. 2. 1. L'essai de cisaillement à faisceau court " short beam shear " .....	92
<b>III.6. Approche micromécanique (les méthodes analytiques) .....</b>	<b>93</b>
III.6.1. Model de Cox (transfert de charge élastique) .....	96
III.6.2. Modèle de Kelly-Tyson .....	100
III.6.3.Modèle Mixte .....	102
III.6.4. Loi de Weibull .....	103
III.6.4. 1. Statistique à rupture de renforts fibreux fragiles .....	103
<b>III.7. Les modèles de modélisation probabilistes .....</b>	<b>105</b>
III.7.1. Modélisation Monte-Carlo .....	105
III.7.1. 1. Simulations Monte Carlo de modèles micromécaniques .....	107
III.7.1. 2. Quelques applications de la méthode de Monte Carlo .....	109
III.7.2. Modélisation génétique (les algorithmes génétiques (AG)) .....	109
III.7.2.1. La représentation génétique .....	109
III.7.2.2. L'initialisation .....	110
III.7.2.3. La fonction d'évaluation (fitness) .....	110
III.7.2.4. Les opérateurs des algorithmes génétiques .....	110
III.7.2.4.1. La reproduction .....	111
III.7.2.4.2. Le croisement .....	111
III.7.2.4.3. La Mutation .....	111
III.7.2.5. Paramètres génétiques .....	112



III.7.2.5.1 La taille de la population .....	112
III.7.2.5.2 Le taux de croisement .....	112
III.7.2.5.3. Le taux de mutation .....	112
III.7.2.6. L'organigramme de l'algorithme génétique .....	113
III.7.2.7. Inconvénients des algorithmes génétiques .....	114
<b>Références</b> .....	<b>115</b>

## **CHAPITRE IV : RESULTATS ET DISCUSSION.**

<b>IV. 1. Introduction</b> .....	<b>122</b>
<b>IV.2 Les modèles analytiques de simulation</b> .....	<b>122</b>
IV.2.1. Endommagement de l'interface .....	122
IV.2.2. Le Modèle probabiliste de Weibull .....	123
IV.2.3. Modélisation du cisaillement de l'interface .....	124
<b>IV.3. Partie 1 : Etude de l'endommagement de l'interface des matériaux biocomposites</b> .....	<b>125</b>
IV.3.1. Les caractéristiques des matériaux étudiés .....	125
IV.3.1.1. Les Fibres .....	125
IV.3.1.2. La matrice de polypropylène .....	125
IV.3.2. La simulation numérique par AG .....	127
IV.3.2.1. Développement de notre algorithme génétique .....	127
IV.3.3. Les résultats de simulation .....	129
<b>IV.4. Partie 2 : Etude de l'endommagement de l'interface d'un matériau bionanocomposite</b> <b>Ramie/graphite- époxyde</b> .....	<b>133</b>
IV.4.1. Matrice graphite / époxyde .....	133

IV.4.1. 1. L'époxyde .....	133
IV.4.1. 2. Le Graphite .....	134
IV.4.2. Développement de l'algorithme génétique .....	135
IV.4.3 Les résultats de simulation .....	136
<b>IV.5. Discussion des résultats .....</b>	<b>136</b>
<b>IV.6. Conclusion .....</b>	<b>137</b>
<b>Références .....</b>	<b>138</b>
<b>CONCLUSION GENERALE .....</b>	<b>143</b>

## Listes des figures

<b>Figure I.1.</b> Matériau composite.....	07
<b>Figure I.2.</b> Classification schématique des différents types des composites selon Calister .....	08
<b>Figure I.3.</b> Classification des composites selon la matrice .....	10
<b>Figure I.4.</b> Propriétés de traction de la fibre, de la matrice polymère et du composite polymère renforcé par des fibres.....	12
<b>Figure I.5.</b> Classification des fibres naturelles .....	13
<b>Figure I.6.</b> Structure et composition d'une fibre végétale.....	14
<b>Figure I.7.</b> Représentation schématique de la structure de cellulose, structure 3D.....	15
<b>Figure I.8.</b> Représentation des microfibrilles de constituant le fibre de cellulose .....	16
<b>Figure I.9.</b> Structure du xyloglucane ; Composante principale des hémicelluloses. Le bleu : les $\beta$ -D-glucanes, le rouge : l' $\alpha$ -D-xylose, le noir : l' $\alpha$ -D-galactose et le marron : les résidus de $\alpha$ -L-fucose .....	17
<b>Figure I.10.</b> Représentation de la structure de la lignine.....	18
<b>Figure I.11.</b> Structure de la pectine.....	19
<b>Figure I.12.</b> Description schématique de la structure d'une fibre végétale. ....	20
<b>Figure I.13.</b> Variation de la résistance des fibres végétales en fonction de la teneur en cellulose et l'angle microfibrillaire.....	21
<b>Figure I.14.</b> Courbes contrainte - déformation du jute et du polyester avec une fraction volumique de fibres variable.....	27
<b>Figure I.15.</b> Les composites , les nanocomposites et les bionanocomposites.....	29
<b>Figure I.16.</b> Types des bionanocomposites renforcés par des particules en couches.....	32
<b>Figure II.1.</b> Vue longitudinale de la fibre de coton.....	47

<b>Figure II.2.</b> Coupe transversale de la fibre de coton.....	47
<b>Figure II.3.</b> Vue longitudinale de la fibre de lin.....	49
<b>Figure II.4.</b> Coupe transversale de la fibre de lin.....	49
<b>Figure II.5.</b> Photographie de fibre de jute. a) vue macroscopique, b) vue microscopique.....	50
<b>Figure II.6. a)</b> Vue longitudinale (grossissement 5000 ×) et <b>b)</b> Coupe transversale (grossissement 180 ×) de la fibre de jute.....	51
<b>Figure II.7.</b> Vue longitudinale (grossissement 2500 ×) de la fibre de sisal.....	52
<b>Figure II.8.</b> Coupe transversale de la fibre de sisal.....	53
<b>Figure II.9. a)</b> Vue longitudinale et <b>b)</b> Coupe transversale (grossissement 100 ×) de la fibre de ramie.....	54
<b>Figure II.10.</b> Définition et classification des biopolymères.....	55
<b>Figure II.11.</b> Classification des biopolymères.....	57
<b>Figure II.12.</b> Représentation structurale des polysaccharides biopolymères.....	58
<b>Figure II.13.</b> Structure de l'amylose.....	59
<b>Figure II.14.</b> Structure de l'amylopectine.....	59
<b>Figure II.15.</b> Structure de la chitine et le chitosane.....	60
<b>Figure II.16.</b> Structure de la Gélatine.....	62
<b>Figure II.17.</b> Structure de PHA .....	63
<b>Figure II.18.</b> Structure de PLA .....	64
<b>Figure II.19.</b> Publications relatives aux domaines d'applications des biopolymères au cours des 10 dernières années.....	66
<b>Figure II.20.</b> Cycle de vie des matériaux biopolymères utilisés dans l'emballage.....	66
<b>Figure II.21.</b> Paillis agricoles, bandes et rubans de grains en plastique biodégradable.....	71

<b>Figure III.1.</b> Mécanismes de liaison interfaciale fibre-matrice: (a) interdiffusion moléculaire, (b) adhésion électrostatique, (c) liaison chimique et (d) l'ancrage mécanique .....	80
<b>Figure III. 2.</b> Illustration schématique d'une interphase d'un matériau composite.....	81
<b>Figure III.3.</b> Mécanismes d'endommagement.....	82
<b>Figure III.4.</b> Directions de séparation à l'interface pour le mode d'ouverture .....	83
<b>Figure III.5.</b> Schéma d'un essai de fragmentation à une seule fibre . .....	84
<b>Figure III.6.</b> Test de déchaussement d'une micro-éprouvette de matrice (pull-out) .....	85
<b>Figure III.7.</b> Représentation schématique du test de nanoindentation.....	86
<b>Figure III.8.</b> Configuration de l'essai de résistance au cisaillement interlaminaire. ....	88
<b>Figure III.9.</b> Profils de déformation d'une fibre discontinue à haut module dans une matrice polymère à bas module.....	90
<b>Figure III.10.</b> Équilibre des contraintes agissant sur un élément de la fibre d'épaisseur $dx$ dans le composite. ....	91
<b>Figure III.11.</b> Modèle d'une fibre en cours de déformation dans une matrice utilisée dans la théorie du décalage au cisaillement.....	91
<b>Figure III.12.</b> Variation prévue de la contrainte des fibres avec la distance le long de la fibre pour une fibre courte dans une matrice.....	95
<b>Figure III.13.</b> Effet de la longueur des fibres sur la contrainte transférée de la matrice aux fibres dans un composite à fibres courtes selon le modèle de Kelly – Tyson.....	97
<b>Figure III.14.</b> Méthode de Monte Carlo pour la propagation de la variabilité des entrées aux résultats de sortie.....	101
<b>Figure III.15.</b> L'organigramme de la simulation de Monte Carlo.....	104
<b>Figure III.16.</b> Processus de mutation.....	108
<b>Figure III.17.</b> Schéma de l'algorithme génétique.....	109
<b>Figure .IV. 1.</b> Élément endommagé.....	118
<b>Figure .IV. 2.</b> L'organigramme de l'algorithme génétique.....	122
<b>Figure .IV. 3.</b> Les endommagements de l'interface de Aramide / Polypropylène.....	124

**Figure .IV. 4.** Les endommagements de l'interface de Ramie / Polypropylène.....124

**Figure .IV. 5.** Les endommagements de l'interface de Jute / Polypropylène.....125

**Figure .IV. 6.** Les endommagements de l'interface de Lin / Polypropylène.....125

**Figure .IV. 7.** Les endommagements de l'interface de Coton / Polypropylène.....125

## Liste des tableaux

<b>Tableau I.1.</b> Avantages et inconvénients des fibres végétales .....	23
<b>Tableau. I.2.</b> Caractéristiques moyennes des matrices thermodurcissables (TD).....	23
<b>Tableau. I.3.</b> Caractéristiques moyennes des matrices thermoplastiques (TP).....	25
<b>Tableau II.1.</b> Pourcentage d'ingrédients chimiques de la fibre de coton .....	48
<b>Tableau II.2.</b> Pourcentage d'ingrédients chimiques de la fibre de lin .....	48
<b>Tableau II.3.</b> Pourcentage d'ingrédients chimiques de la fibre de jute .....	51
<b>Tableau II.4.</b> Composition chimique de la fibre de sisal .....	53
<b>Tableau II.5.</b> Pourcentage d'ingrédients chimiques de la fibre de ramie .....	54
<b>Tableau II.6.</b> Les applications en médecine des biopolymères .....	69
<b>Tableau IV.1.</b> Composition chimique des fibres végétales .....	125
<b>Tableau IV.2.</b> Propriétés physiques et mécaniques des fibres végétales.....	125
<b>Tableau IV.3.</b> Propriétés mécaniques du polypropylène .....	127
<b>Tableau IV.4.</b> Caractéristiques mécaniques de la matrice d'époxy.....	133

## Listes d'abréviations

### Matériaux

- CMO : Composites à matrices organiques.
- CMC : Composites à matrice céramique.
- CMM : Composites à matrice métallique.
- TD : Matrices thermodurcissables
- TP : Matrices thermoplastiques
- PP : Polypropylène
- PVC : Polychlorure de vinyle
- PE : Polyéthylène
- PS : Polystyrène
- HDPE : polyéthylène à haute densité

### Paramètres expérimentaux

- $\tau_i$  : La contrainte au cisaillement à l'interface,
- $G_m$  : Le module de cisaillement de la matrice
- $d$  : Est le diamètre de la fibre,
- $\sigma_f$  : Est la contrainte de traction à la rupture de la fibre,
- $l_c$  : Est la longueur critique
- $F_{max}$  : Est la charge maximale à la rupture
- $A$  : Est la surface de la section transversale.
- $\sigma_f$  : Est la contrainte de traction de la fibre,
- $a$  : Est le rayon de la fibre,
- $L$  : Est la longueur de la fibre;
- $x$  : Est la variation de la longueur de la fibre.
- $D_m$  : L'endommagement de la matrice
- $D_f$  : L'endommagement de la fibre
- $D$  : L'endommagement de l'interface fibre/matrice
- $V_{eff}$  : Volume de la matrice
- $m, \sigma_0$  et  $f$  : Paramètres de Weibull



- $V_0$ : Volume initiale de la matrice
- $\sigma_{max}^f$ : La contrainte maximale appliquée à la fibre;
- $\sigma_{0f}$ : La contrainte initiale appliquée à la fibre;
- $L_{equi}$ : Longueur des fibre à l'équilibre
- $\varepsilon$ : Déformation;
- $a$ : Rayon de la fibre;
- $r$  : Distance entre les fibres;
- $E_f$  : Module de Young de la fibre;
- $r_f$  : La distance entre la fibre et la matrice

# Introduction générale

---

Les matériaux composites sont largement utilisés dans la vie quotidienne et dans l'industrie, les composites à matrice polymère renforcé par les fibres de verre (PMC) sont les premiers matériaux développés et appliqués à cet effet. Dans les années 1940, les Américains ont combiné les fibres de verre et de la résine polyester insaturée, puis ils ont produit un radar militaire et un réservoir de carburant d'avion [1].

Récemment, il y a eu une demande croissante de produits fabriqués à partir de ressources renouvelables, durables et biodégradables [2]. De nombreux matériaux traditionnels utilisés dans diverses applications sont remplacés par de nouveaux matériaux verts (biocomposites) afin de répondre à certains critères de la réduction de poids, de problèmes environnementaux ainsi que la satisfaction de la clientèle [1,3]. De nouveaux types de composites fabriqués en utilisant des fibres naturelles tels que le jute, la ramie, le lin et le sisal comme matériau de renforcement suscitent un grand intérêt [1]. Les matériaux à base de cellulose et leurs dérivés sont utilisés depuis plus de 150 ans dans une grande variété d'applications telles que la production d'aliments, de papier et de carton, les biomatériaux, les produits pharmaceutiques et la production de biocarburants par pyrolyse. Ils sont également utilisés comme renforts dominants dans les structures composites [4-15] les fibres de cellulose régénérées utilisées comme renfort dans un matériau composite ont des propriétés mécaniques très intéressantes et qui correspondent aux propriétés mécaniques spécifiques du verre [16]. Il est reconnu que le comportement mécanique des matériaux composites dépend fortement de la liaison fibre-matrice qui s'établit entre les constituants lors du développement du composite [15,17]. Ce lien consiste en une ou plusieurs interphases et interfaces [18,19].

Les bionanocomposites constituent une classe importante de matériaux nanométriques dans lesquels la charge et la matrice sont obtenues à partir de ressources biologiques. Il s'agit d'un matériau hybride formé par la combinaison de polymères naturels et de solides inorganiques ayant au moins une dimension nanométrique. Ils ressemblent aux nanocomposites, mais les différences fondamentales sont dans les méthodes de préparation, les propriétés, la biocompatibilité, la biodégradabilité, les fonctionnalités et leur application. Les chercheurs du monde entier, grâce à leurs efforts considérables, ont fait des progrès extraordinaires pour créer un nouveau produit de bionanocomposites [20].

Aujourd'hui, les chercheurs s'intéressent aux polymères biosourcés qui peuvent réduire la dépendance aux combustibles fossiles et utiliser une base matérielle durable. Les

bionanocomposites créent une opportunité pour l'utilisation de nouveaux matériaux nanocomposites verts légers à haute performance pour remplacer les produits pétroliers conventionnels non biodégradables [20].

Dans ce contexte, notre objectif est d'étudier l'effet de la teneur en cellulose de chaque fibre sur les endommagements de l'interface fibre-matrice d'un biocomposite basé sur une matrice de polypropylène (PP) utilisant une modélisation génétique, et de voir l'effet des nano particules de graphites sur l'endommagement de l'interface d'un bionanocomposites ramie/graphite-époxyde.

A cet effet, nous avons fait le choix d'une analyse à l'échelle qui distingue les fibres de la matrice et considère ces deux éléments comme homogènes. L'outil d'analyse est basé sur une analyse probabiliste de Weibull.

Afin d'atteindre cet objectif principal, cette thèse a été organisée comme suit :

Dans le chapitre I, nous présentons des généralités sur les matériaux composites, biocomposites et les bionanocomposites : constituants, classification et procédés de mise en œuvres. Le chapitre II a été consacré à la présentation des fibres de cellulose et les biopolymères. Le chapitre III introduit la notion d'interface fibre-matrice et la modélisation d'endommagement de cette interface et la présentation des différents algorithmes métaheuristiques et leurs applications qui sont indispensables à la compréhension de l'objectif de notre travail. Enfin, le chapitre IV de ce mémoire sera dédié à la présentation et la discussion les résultats de notre modélisation. Nous terminons notre travail par une conclusion générale clôturant cette thèse et les principales perspectives.

**Références**

- [1] İşmal, Ö. E., & Paul, R. (2018). Composite textiles in high-performance apparel. *High-Performance Apparel*, 377–420. doi:10.1016/b978-0-08-100904-8.00019-5
- [2] Fahmy Y, Fahmy TYA, Mobarak F, El-Sakhawy M, Fadl MH (2017) Agricultural Residues (Wastes) for Manufacture of Paper, Board, and Miscellaneous Products: Background Overview and Future Prospects. *International Journal of ChemTech Research* 10(2): 424-448
- [3] AL-Oqla, F. M., Almagableh, A., & Omari, M. A. (2017). Design and Fabrication of Green Biocomposites. *Green Energy and Technology*, 45–67.
- [4] Dungani, R., Aditiawati, P., Nazrul Islam, M., Sri Aprilia, N. A., Hartati, S., Sulaeman, A., ... Sutrisno. (2019). Evaluation of the effects of decay and weathering in cellulose-reinforced fiber composites. *Durability and Life Prediction in Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 173–210. doi:10.1016/b978-0-08-102290-0.00009-x
- [5] Fahmy Y, Ibrahim H. (1970). Rice straw for paper making. *Cell Chem Technol* , 4(3): 339-48.
- [6] Fahmy, T. Y. A., Fahmy, Y., Mobarak, F., El-Sakhawy, M., & Abou-Zeid, R. E. (2018). Biomass pyrolysis: past, present, and future. *Environment, Development and Sustainability*. doi:10.1007/s10668-018-0200-5
- [7] Mobarak, F., Fahmy, Y., & Augustin, H. (1982). Binderless Lignocellulose Composite from Bagasse and Mechanism of Self-Bonding. *Holzforschung*, 36(3), 131–136.
- [8] Fahmy T. Y. A., Mobarak F, Fahmy Y.(2016). Incorporation of never-dried cotton fibers with methylmethacrylate: A gateway to unique transparent board-like nanocomposites. *Int J ChemTech Res* , 9(12): 191-200.
- [9] Borbely E. (2008). Lyocell, the new generation of regenerated cellulose. *Acta Polytechnica Hungarica*, 5(3):11-8.
- [10] Fahmy, T. Y. A., Mobarak, F., Kassem, N., & Abdel-Kader, A. H. (2008). New approach for upgrading pulp & paper quality: Mild potassium permanganate treatment of already bleached pulps. *Carbohydrate Polymers*, 74(4), 892–894. doi:10.1016/j.carbpol.2008.05.008

- [11] Fahmy Y, Fadl NA. (1974). A study of the production of hardboard from some indigenous agricultural residues. *Egyptian J Chem* 17(3): 293-301.
- [12] Fahmy Y, Fadl N A.( 1979). Acetylation in particle board making. *Egyptian J Chem* , 20(4): 397-403.
- [13] Mobarak, F., Nada, A.-A. M., & Fahmy, Y. (2007). Fibreboard from exotic raw materials. I. Hardboard from rice straw pulps. *Journal of Applied Chemistry and Biotechnology*, 25(9), 653–658. doi:10.1002/jctb.5020250903
- [14] Fahmy, T. Y. A., & Mobarak, F. (2013). Advanced binderless board-like green nanocomposites from undebarked cotton stalks and mechanism of self-bonding. *Cellulose*, 20(3), 1453–1457. doi:10.1007/s10570-013-9911-9
- [15] Mader, A., Kondor, A., Schmid, T., Einsiedel, R., & Müssig, J. (2016). Surface properties and fibre-matrix adhesion of man-made cellulose epoxy composites – Influence on impact properties. *Composites Science and Technology*, 123, 163–170. doi:10.1016/j.compscitech.2015.12.007
- [16] Mihaela, D., Nicoleta, A., Ghiurea, M., Ilie, C., Radovici, C., & Doina, M. (2011). Properties of Polymer Composites with Cellulose Microfibrils. *Advances in Composite Materials - Ecodesign and Analysis*. doi:10.5772/14682
- [17] Mader, A., Volkmann, E., Einsiedel, R., & Müssig, J. (2012). Impact and Flexural Properties of Unidirectional Man-Made Cellulose Reinforced Thermoset Composites. *Journal of Biobased Materials and Bioenergy*, 6(4), 481–492. doi:10.1166/jbmb.2012.1229
- [18] Müssig, J., & Graupner, N. (2017). Characterisation of Fibre/Matrix Adhesion in Biobased Fibre-Reinforced Thermoplastic Composites. *Textile Finishing*, 485–555. doi:10.1002/9781119426790.ch13
- [19] Bledzki, A. (1999). Composites reinforced with cellulose based fibres. *Progress in Polymer Science*, 24(2), 221–274. doi:10.1016/s0079-6700(98)00018-5
- [20] Ahmad, N. (2019). Bionanocomposite Materials: Concept, Applications, and Recent Advancements. *Biocomposites*, 199–215. doi:10.1201/9781315110806-8

# *Chapitre I*

---

## *Eléments Bibliographiques sur les Bionanomposites.*

## **I.1. Introduction**

Les matériaux composites sont apparus au milieu du 20ème siècle comme une classe prometteuse de matériaux offrant de nouvelles perspectives pour la technologie moderne [1].

D'une manière générale, tout matériau constitué de deux ou plusieurs composants ayant des propriétés différentes et des limites distinctes entre les composants peut être considéré comme un matériau composite. De plus, l'idée de combiner plusieurs composants pour produire un matériau dont les propriétés ne sont pas atteignables avec les composants individuels a été utilisée par l'homme pendant des milliers d'années [1].

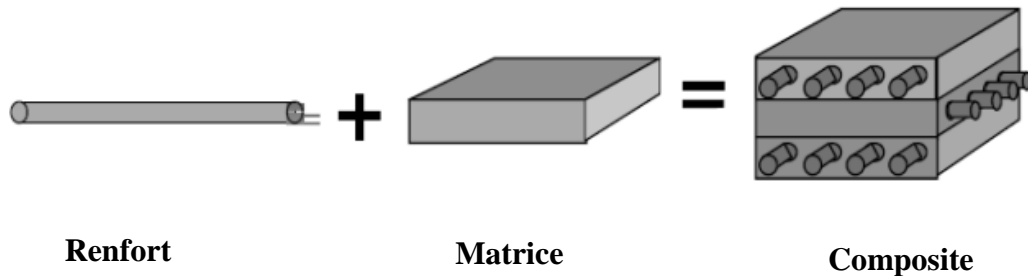
Ces types de matériaux remplacent les matériaux conventionnels en raison de leurs performances intéressantes telles que l'amélioration des propriétés mécaniques, thermiques et électriques et également pour compenser le prix élevé des matrices. Plusieurs études ont montré que les matériaux composites remplis par des charges naturelles ou synthétiques offrent plusieurs avantages par rapport à d'autres matériaux tels qu'une bonne durabilité, une haute résistance à la corrosion et une faible densité [2].

Aujourd'hui, les matériaux composites se développent pratiquement dans tous les domaines et sont à l'origine de formidables challenges dans diverses réalisations de hautes technologies. Ces dernières décennies, sous les exigences environnementales et économiques, l'industrie vise la substitution des matériaux synthétiques par des matériaux naturels. Les composites utilisant des matériaux naturels sont appelés matériaux biocomposites ou biosourcés. Dans ce contexte, nous présentons une étude détaillée sur les biocomposites et les bionanocomposites.

## **I.2. Les matériaux composites**

Un composite est constitué de l'assemblage de deux ou plusieurs matériaux de propriétés différentes et complémentaires. Il s'agit le plus souvent d'un renfort noyé au sein d'une matrice permettant d'obtenir un matériau aux propriétés intermédiaires. Le renfort contribue à améliorer la résistance mécanique du matériau alors que la matrice assure le double rôle d'élément de transfert des charges vers le renfort et de protection de celui-ci [1,2].





**Figure I.1.** Matériau composite

Dans ce chapitre, après rappel de la définition d'un matériau composite, nous décrirons succinctement les différents types des matériaux composites, leurs propriétés physiques et mécaniques.

### **I.3. Classification des matériaux composites**

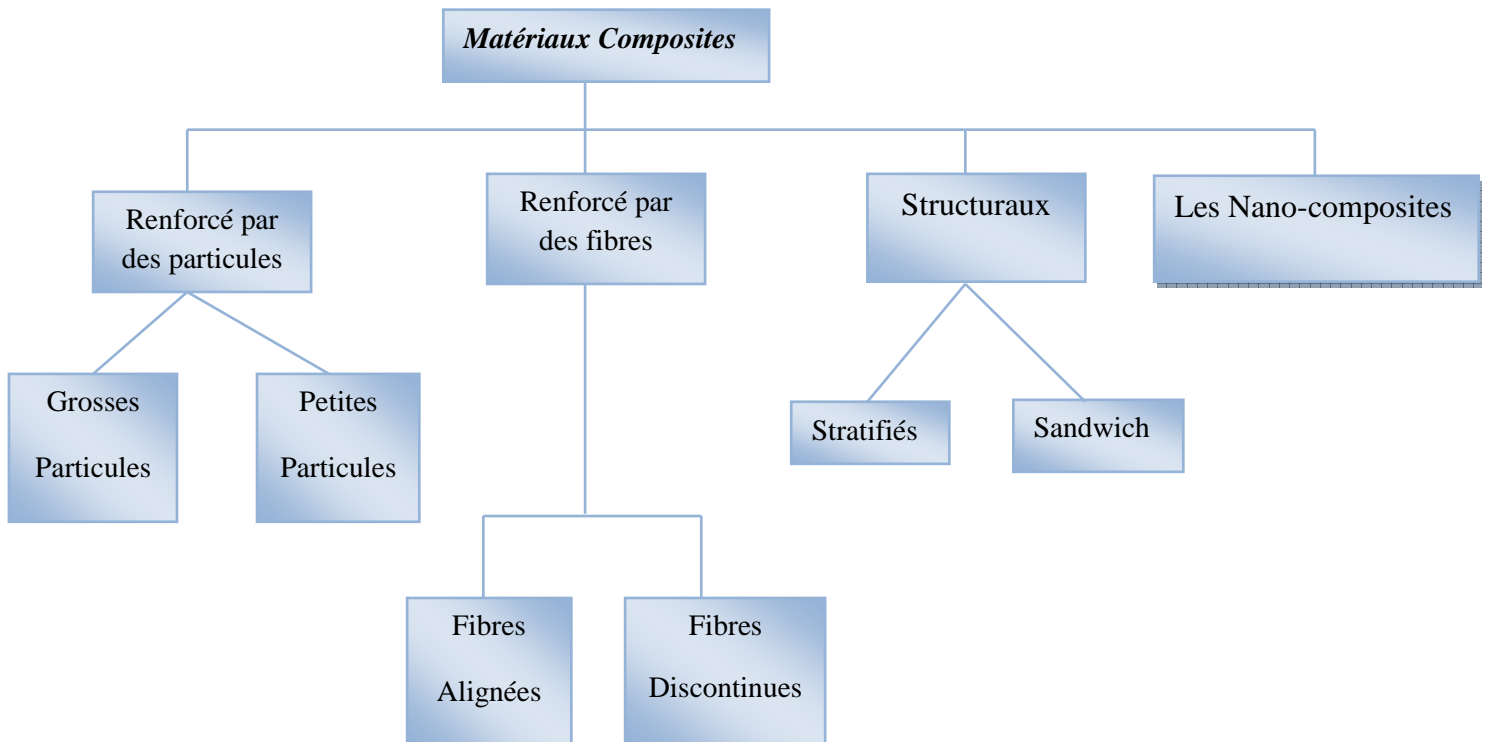
**I.3. 1. Classification selon le taux d'utilisation:** Parmi les composites, on distingue :

**I.3. 1. 1. Composites de Grande Diffusion (GD) :** Ce sont des composites peu coûteux qui occupent une large part de marché. On les trouve dans l'industrie du bâtiment, le transport nautique, les piscines, les équipements électriques,...

**I.3. 1. 2. Les composites hautes performances (HP) :** Ce sont des composites assez onéreux, dont le marché est encore réduit pour les applications aérospatiales, transports, sports de compétition,...

### **I. 3. 2. Classification suivant la forme des constituants**

En fonction de la forme des constituants, Callister [4] a représenté un organigramme de classification **Figure. I.2**, les composites sont classés en deux grandes classes : les matériaux composites à particules et les matériaux composites à fibres ; il est important de noter que sous la famille "structuraux" (matériaux obtenus par assemblage multicouches: sandwich et/ou stratifiés), on peut retrouver les deux premières familles [4].



**Figure I.2.** Classification schématique des différents types de composites selon Callister [4].

### I. 3. 2. 1. Composites à particules

Les particules désignent ici des éléments qui vont renforcer le matériau mais qui n'ont pas la caractéristique principale d'une fibre à savoir une très grande longueur. Les particules sont généralement utilisées pour améliorer certaines propriétés des matériaux ou des matrices, comme la rigidité, la tenue à la température, la résistance à l'abrasion, la diminution du retrait, etc. Dans de nombreux cas, les particules sont simplement utilisées comme charges pour réduire le coût du matériau, sans en diminuer les caractéristiques. Le choix de l'association matrice-particules dépend des propriétés souhaitées. Par exemple, des inclusions de plomb dans des alliages de cuivre augmenteront leur facilité d'usinage. Des particules de métaux fragiles tels le tungstène, le chrome et le molybdène, incorporé dans des métaux ductiles, augmenteront leurs propriétés à températures élevées, tout en conservant le caractère ductile à température ambiante. Les cermets sont également des exemples de composites métal-céramique à particules, adaptés à des utilisations à températures élevées. Par exemple, les cermets à base d'oxydes sont utilisés pour les outils de coupe à vitesse élevée, et pour les

protections à hautes températures. Également, des particules d'élastomère peuvent être incorporées dans des matrices polymères fragiles, de manière à améliorer leurs propriétés à la rupture et au choc, par diminution de la sensibilité à la fissuration. Ainsi, les composites à particules recouvrent un domaine étendu dont le développement s'accroît sans cesse [5].

### I. 3. 2. 2. Composites à fibre

Un matériau composite est un composite à fibres si le renfort se trouve sous forme de fibres. Les fibres utilisées se présentent soit sous forme de fibres continues, soit sous forme de fibres discontinues : fibres coupées, fibres courtes, etc. Pour ce type de composite, il semblerait que la longueur de fibre apporte une nette amélioration sur les performances mécaniques des matériaux [5-7].

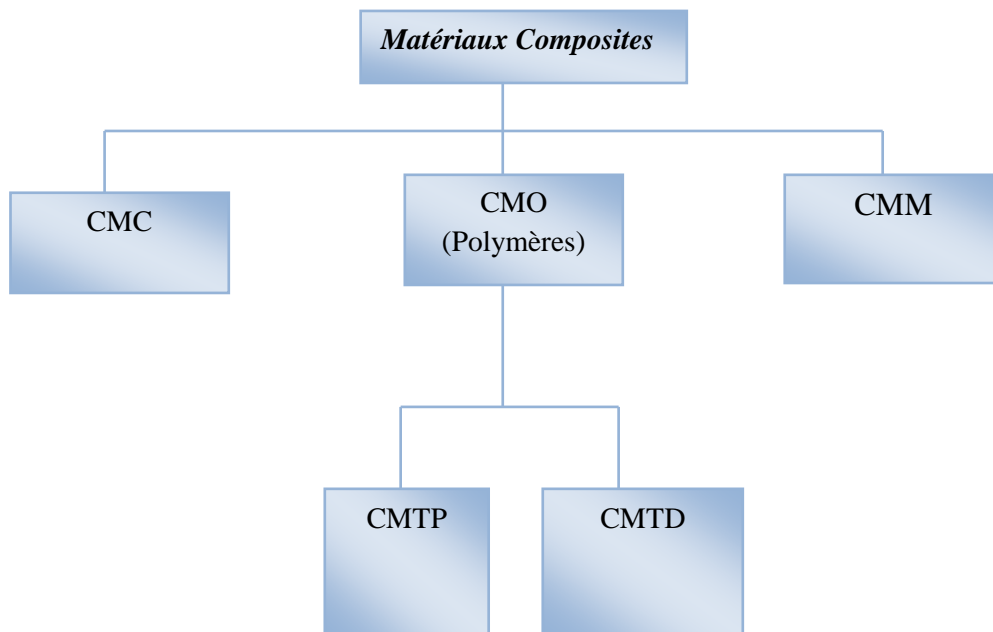
Ensuite, le terme « *Fibres alignées* » va signifier qu'un renfort composite utilisant un placement de fibres de type de tissu ou unidirectionnel. Les matières fibreuses utilisées peuvent être des filaments, des faisceaux de fibres constitués de filaments réunis ou des filés de fibres courtes.

Enfin, le terme « *Fibres discontinues* » désigne un renfort réalisé à partir de fibres courtes. Ces fibres ne sont pas assemblées préalablement les unes aux autres dans un fil. Elles peuvent soit directement mélangées dans une matrice, soit liées un matelas de fibres que l'on nomme « Mat » ou « nontissé ». Des architectures à fibres discontinues sont actuellement utilisées dans des structures non porteuses avec un alignement aléatoire dans les matrices thermodurcissables et thermoplastiques afin de respecter le volume de production, mais avec des propriétés fortement réduites en raison du manque d'alignement [8]. L'arrangement des fibres, leur orientation permettent de moduler les propriétés mécaniques des matériaux composites [9].

### I.3. 3. Classification suivant la nature des constituants

Un troisième type de classification couramment utilisé est la classification selon la matrice. Dans ce cas, on distingue également trois grandes familles de composites [3]:

- a- Les composites à matrices organiques CMO (thermodurcissables et thermoplastiques) [2,3,12].
- b- Les composites à matrice céramique CMC [2,3,12].
- c- Les composites à matrice métallique CMM [2,3,12].



**Figure I.3.** Classification des composites selon la matrice [3].

Le choix du renfort fibres, éventuellement d'une charge et d'une interface, doit être fait en fonction de la matrice et du procédé de fabrication de la pièce.

Les matériaux composites à matrice organique ne peuvent être utilisés que dans le domaine des températures ne dépassant pas 200 à 300 °C, alors que les matériaux composites à matrices métallique ou minérale sont utilisés au-delà : jusqu'à 600 °C pour une matrice métallique, jusqu'à 1000 °C pour une matrice céramique.

Les composites ne cessent d'évoluer vers des produits qui sont, soit les moins coûteux possibles, soit les plus performants, ou bien les deux à la fois. De plus, dans un souci de protection de l'environnement et de la santé publique, les composites tendent à intégrer un caractère écologique [3]. L'utilisation des matériaux naturels dans les composites a créé une nouvelle classe des matériaux composites s'appelée les matériaux biocomposites ou biosourcés. Cette famille des composites dite les "bionanocomposites" est l'objectif de cette thèse.

#### **I.4. Les biocomposites**

Il existe d'autres appellations proches comme "éco-composites" et "agrocomposites" le terme de biocomposite désigne un matériau composite constitué partiellement ou dans sa totalité de matières biosourcées plus ou moins transformées mécaniquement et/ou chimiquement [11], ils peuvent être constitués de fibres naturelles avec des résines synthétiques, de résines naturelles avec des fibres synthétiques ou des deux composants naturels [10].

Les matériaux polymères renforcés par des fibres synthétiques, comme les fibres d'aramide, les fibres de carbone ou les fibres de verres sont utilisés dans divers domaines d'application, comme ceux de l'automobile, de la construction, de l'aéronautique...etc. Les fibres de verres sont les plus utilisées grâce à leur facilité de production et leurs propriétés mécaniques spécifiques importantes. Cependant, le problème rencontré lors de l'utilisation de ces matériaux vient des dangers pour l'homme et de leurs impacts négatifs pour l'environnement (allergie de la peau, cancer pulmonaire...etc.).

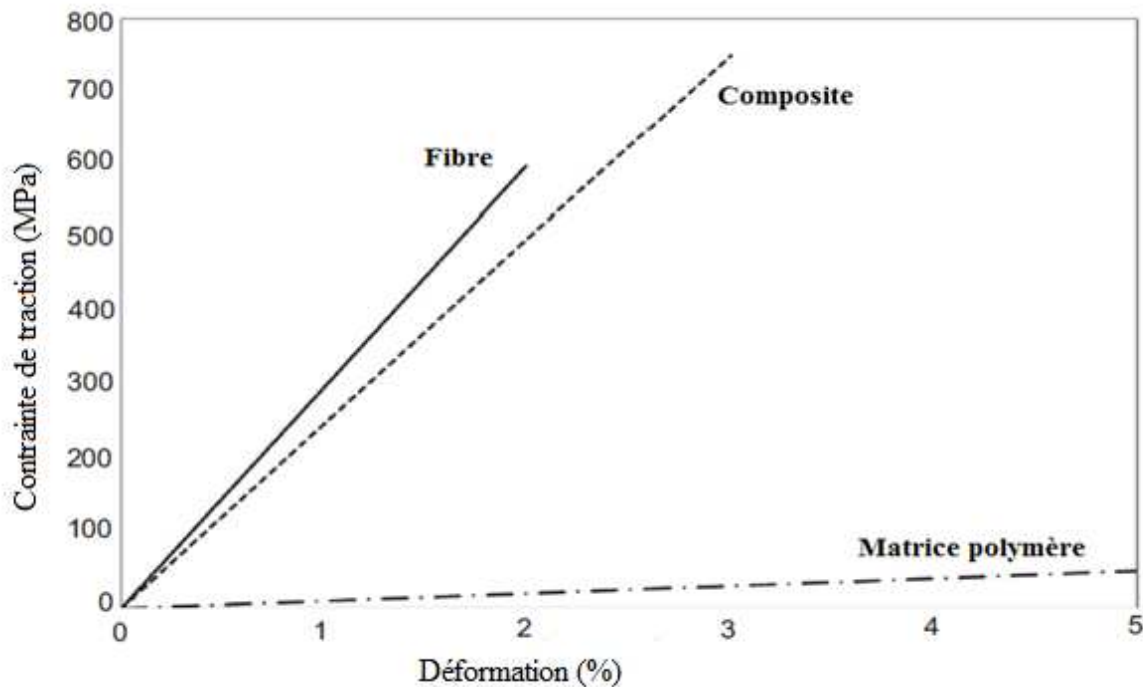
Par contre, l'emploi des fibres naturelles a toujours été encouragé du fait des avantages spécifiques de ces matériaux souvent issus des « agro-ressources » renouvelables par rapport aux fibres de verre et parfois biodégradables. Celles-ci sont également plus légères et présentent des propriétés comparativement acceptables [33].

Enfin, elles consomment moins d'énergie pour être produites. Elles possèdent donc des atouts sérieux pour remplacer les fibres de verre dans la préparation des matériaux composites. Actuellement, les cas les plus courants dans l'industrie et la recherche sont des biocomposites dont les renforts sont des fibres naturelles et la matrice est un polymère thermoplastique ou thermodurcissable [32].

Les performances des composites polymères sont généralement déterminées par [29]:

1. Les propriétés de la fibre,
2. Les propriétés de la matrice polymère,
3. Le rapport entre la fibre et la matrice polymère dans le composite (fraction volumique de la fibre),...
4. La géométrie et l'orientation de la fibre dans le composite.

Dans les composites polymères renforcés par des fibres, les propriétés de traction de la fibre, de la matrice et du composite sont telles que décrites à la **Figure. I.4**. Les fibres ont généralement une résistance et une rigidité supérieures, tandis que la matrice présente un degré d'allongement supérieur. La combinaison de ces deux constituants aboutit à la production d'un composite dont les propriétés de traction se situent entre les deux constituants [29].

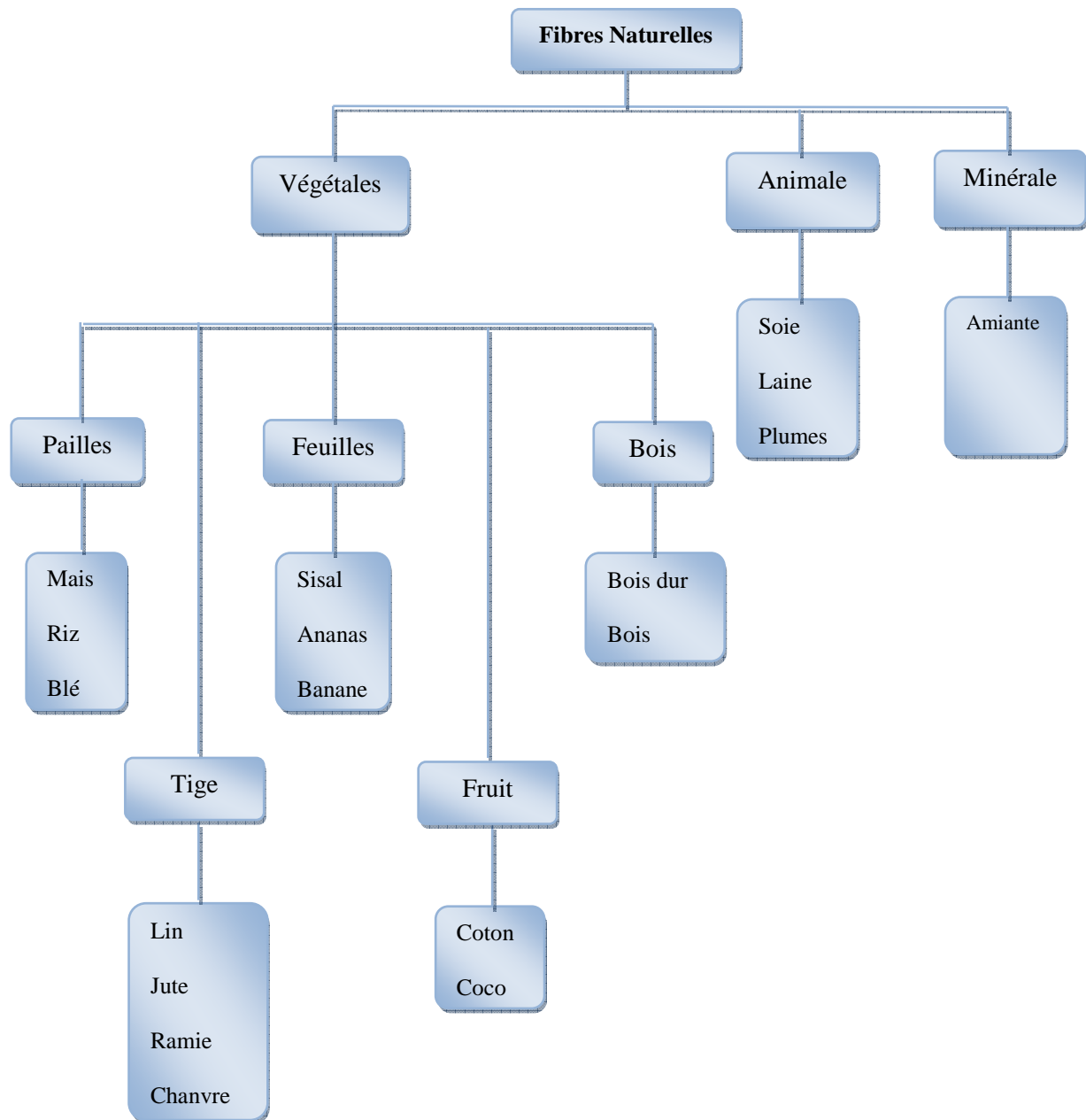


**Figure I.4.** Propriétés de traction de la fibre, de la matrice polymère et du composite polymère renforcé par des fibres [29].

#### I.4 .1. Les fibres naturelles

Les fibres naturelles peuvent être classées selon leur origine. Il est possible de distinguer trois grandes familles [14 ,20, 27], la **Figure. I.5** illustre un schéma qui regroupe les différentes fibres naturelles selon leurs sources :

- Fibre animale: Elle est extraite de la fourrure des animaux. Il contient du laine, de la soie, de la fibre aviaire, poil de chèvre, crin de cheval et plumes.
- Fibres minérales: Les fibres naturelles ou les fibres modifiées à base de minéraux sont appelées fibres minérales.
- Fibre végétale: La cellulose est le constituant principal de la fibre végétale [33,34].

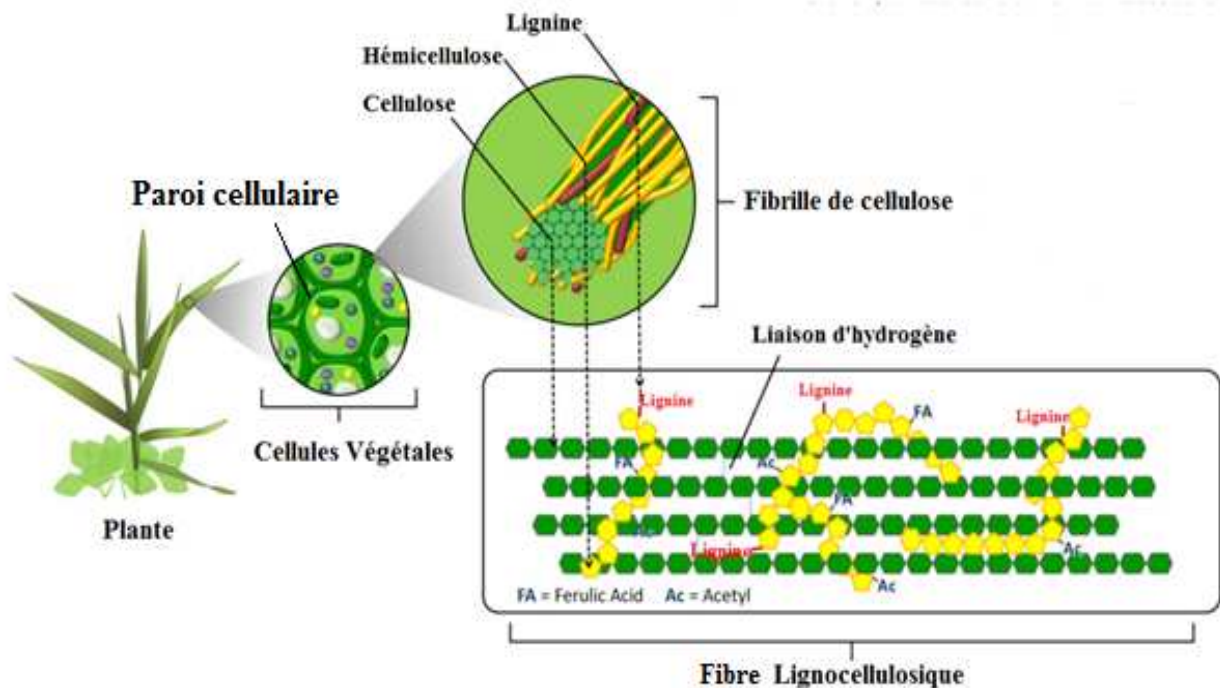


**Figure I.5.** Classification des fibres naturelles  
[27,28,33,35,43].

Les fibres naturelles peuvent être extraites des tiges, des feuilles ou des graines de diverses plantes par des méthodes mécaniques, chimiques ou combinées [32]. Nous serons intéressés dans notre travail aux renforts de types végétaux.

### I.4 .1.1. Définition des fibres végétales

Les fibres végétales sont des composites naturels constituées essentiellement de fibrilles de cellulose, maintenues ensemble par une matrice composée principalement de lignine et d'hémicellulose [15]. Ils peuvent être appelés les fibres lignocellulosiques. Les conditions climatiques, l'âge et le processus de digestion influe non seulement sur la structure des fibres, mais aussi sur la composition chimique [16,30,59].



**Figure I.6.** Structure et composition d'une fibre végétale [49].

### I. 4 .1.2. Composition chimique des Fibres Végétales

La composition chimique des fibres végétales varie selon la nature des fibres, et comporte principalement la cellulose, l'hémicellulose et de la lignine [22,27,30].

Les propriétés de chaque constituant contribuent à la propriété globale de la fibre. L'hémicellulose est responsable de la biodégradation, l'absorption d'humidité, et la dégradation thermique de la fibre. La lignine, thermiquement plus stable, est le responsable de la dégradation par les ultraviolets (UV) [26].

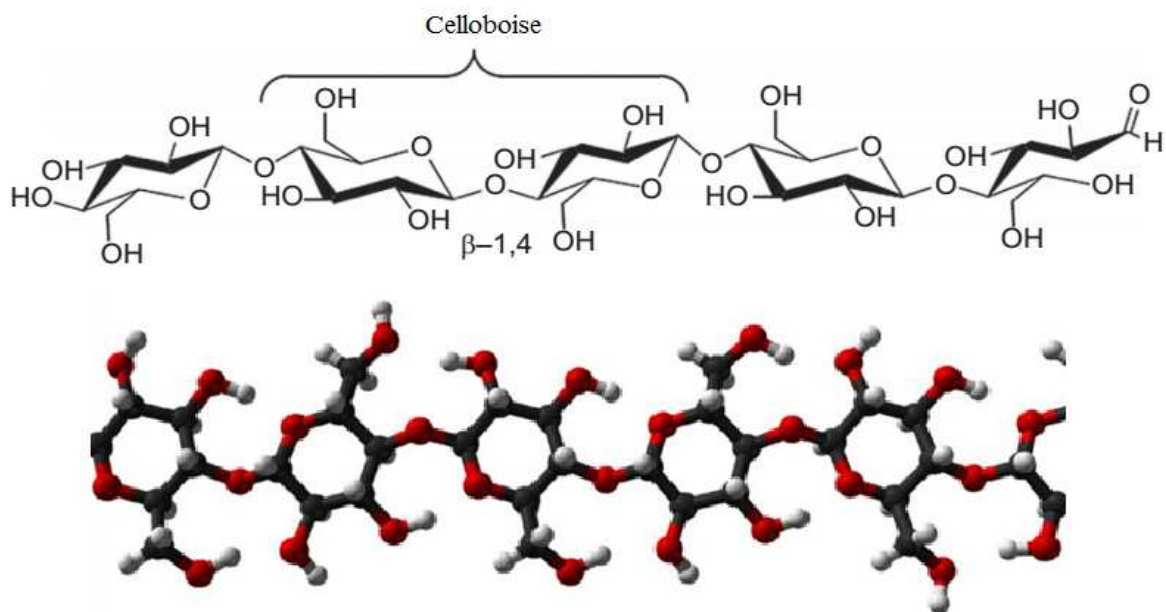


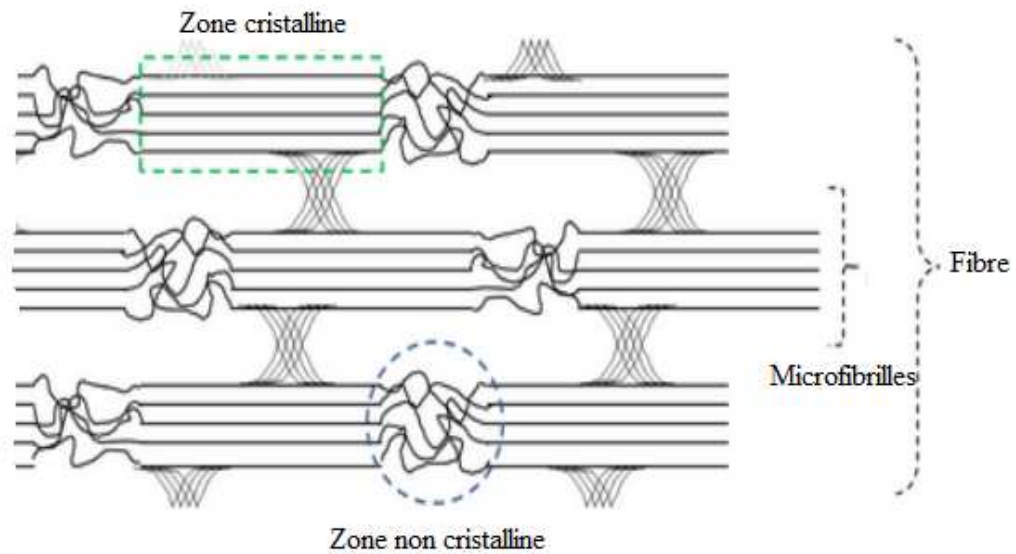
### I.4 .1.2 .1. La cellulose

La cellulose est le constituant qui assure la protection et le soutien dans les organismes végétaux. Elle situe dans la paroi des fibres et représente la molécule biologique la plus abondante sur notre planète [22].

D'un point de vue chimique, la cellulose est un polymère naturel linéaire formé de longues chaînes de glucose reliées entre elles par une liaison glycosidique du type  $\beta 1 - 4$  comme indiqué sur **la Figure I.7** [22, 28, 39,49], le motif de répétition est le cellobiose (deux glucose réunis), le nombre d'unité glucose (n), ou le degré de polymérisation( DP), détermine la longueur de chaîne , et varie suivant l'origine de la cellulose [54].

Dans chaque chaîne de cellulose il y a de nombreux groupement hydroxyyles qui sont à l'origine de la cohésion avec l'autre chaîne par des liaisons appelées pont d'hydrogène [21,22]. L'association des chaînes de cellulose constituer des microfibrilles de taille variable, dans lesquelles certaines régions sont hautement ordonnées (zones cristallines) et d'autres moins (zones amorphes) [38,59]. Le degré de cristallinité des fibres cellulosiques est supérieure à 90% [21]. La réunion de ces fibrilles constitue des fibres, forme sous laquelle se présente la cellulose [37,39], Cette structure particulière confère à la cellulose une rigidité importante. En effet, le module d'élasticité de la cellulose est d'environ 136 GPa, il est très grand par rapport à celui de la fibre de verre qui est de l'ordre de 75 GPa. [30]



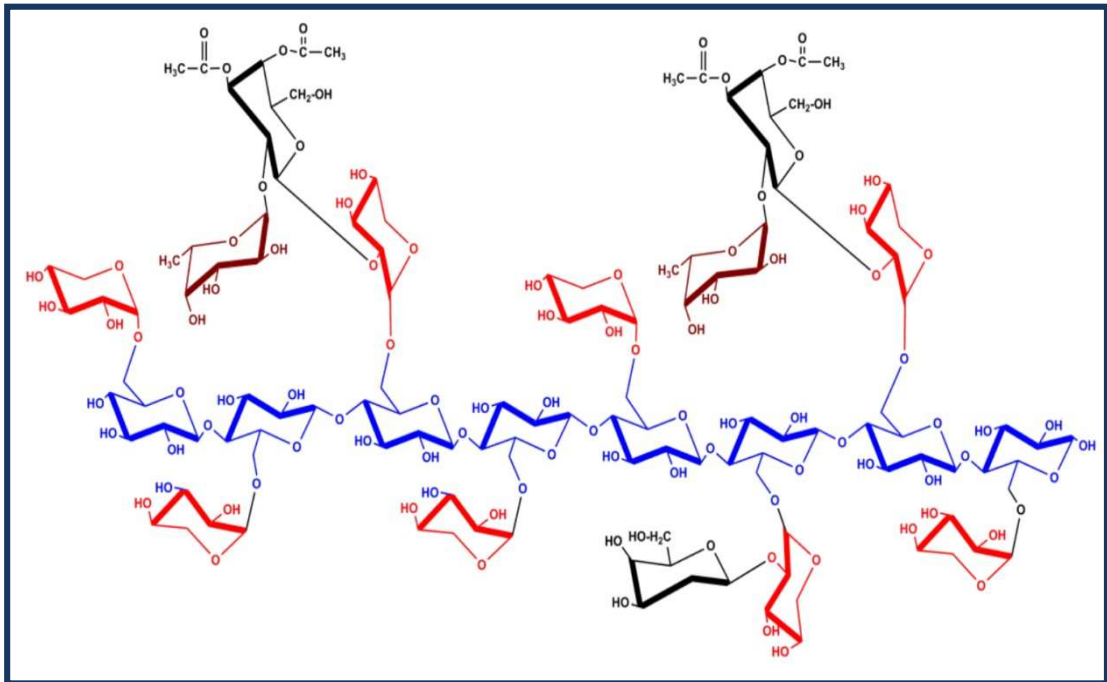


**Figure I.8.** Représentation des microfibrilles de constituant de fibre de cellulose [38,59].

#### I.4 .1.2.2. L' Hémicelluloses

Les hémicelluloses sont par définition les polysaccharides non cellulosiques présents dans les parois cellulaires des végétaux. L'hémicellulose diffère de la cellulose sur trois aspects [39]. Tout d'abord, elle est composée de sucres neutres tel que : xylose, arabinose, galactose, glucose, mannose, et d'acides uroniques alors que la cellulose ne contient que des unités ( $\beta$ 1 – 4 -D-glucopyranose) [54] la **Figure. I.9.** Deuxièmement, elle présente un degré considérable de branchements contenant des groupes latéraux à l'origine de sa nature noncristalline, tandis que la cellulose est un polymère linéaire. Troisièmement, l'hémicellulose a un degré de polymérisation compris entre 50 et 300, alors que le degré de polymérisation de la cellulose native est 10 à 100 fois supérieur à celle de l'hémicellulose [39].

L'hémicellulose forme la matrice de support des microfibrilles de cellulose. L'hémicellulose est très hydrophile, soluble dans les solutions alcalines et facilement hydrolysée dans les acides [39]. L'hémicellulose est responsable de la biodégradation, l'absorption d'humidité et de la dégradation thermique de la fibre [19, 24,36].

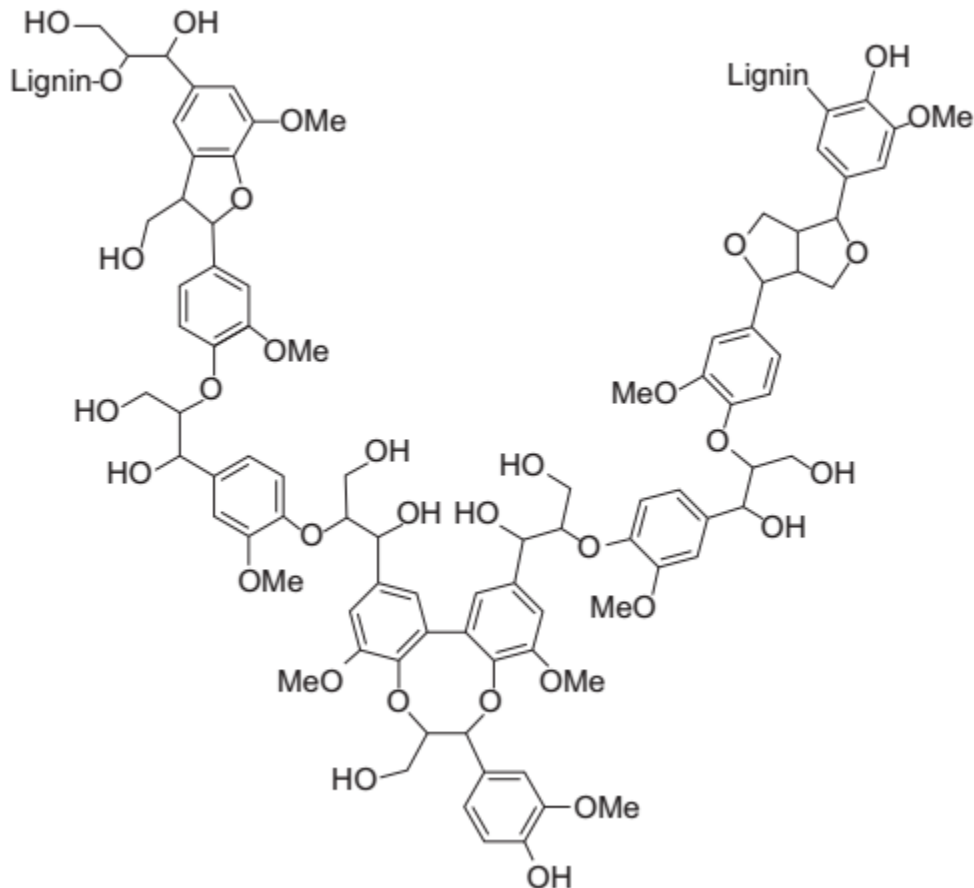


**Figure I.9.** Structure du xyloglucane ; Composante principale des hémicelluloses. Le bleu : les  $\beta$ -D-glucanes, le rouge : l' $\alpha$ -D-xylose, le noir : l' $\alpha$ -D-galactose et le marron : les résidus de  $\alpha$ -L-fucose [20]

### I.4 .1.2 .3. Lignine

Contrairement à la cellulose, la lignine est un polymère tridimensionnel [18]. La lignine est constituée de polymères phénoliques tridimensionnels, amorphes possédant trois unités différentes de type phénylpropane : les alcools p-coumarylique, coniférylique et sinapylique **la Figure. I.10**. Elle est non hydrolysée par des acides ; mais soluble dans une solution alcaline chaude [54].

La lignine est totalement amorphe et de nature hydrophobe. C'est le composé responsable de la rigidité et de la dureté des plantes [39]. Elle est peu sensible à la dégradation biologique, elle crée une barrière morphologique à la pénétration et à la progression des agents pathogènes, et contribue à la protection naturelle des végétaux contre certaines attaques parasitaires [22,36].



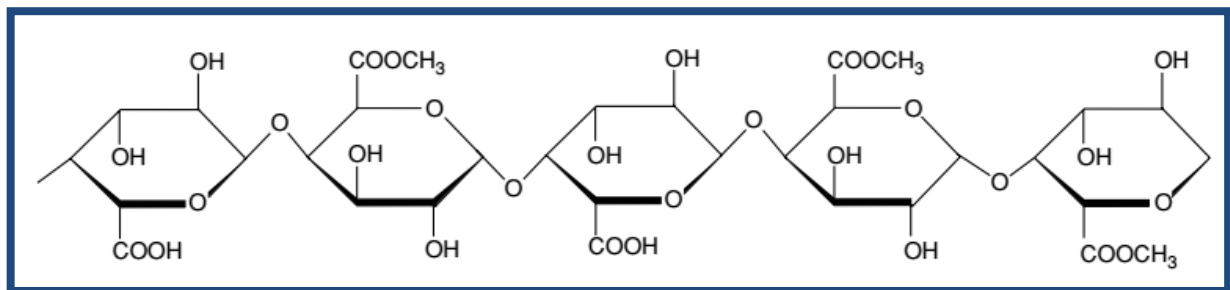
**Figure I.10.** Représentation de la structure de la lignine [54].

#### I.4 .1.2.4. Pectines

Les pectines jouent un rôle capital dans l'architecture de la paroi végétale. Ces substances pectiques sont présentes avec des proportions variées dans la plupart des végétaux. Elles jouent le rôle de ciment intercellulaire et contribuent à la cohésion des tissus végétaux, elle donne aux plantes leur flexibilité [39]

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

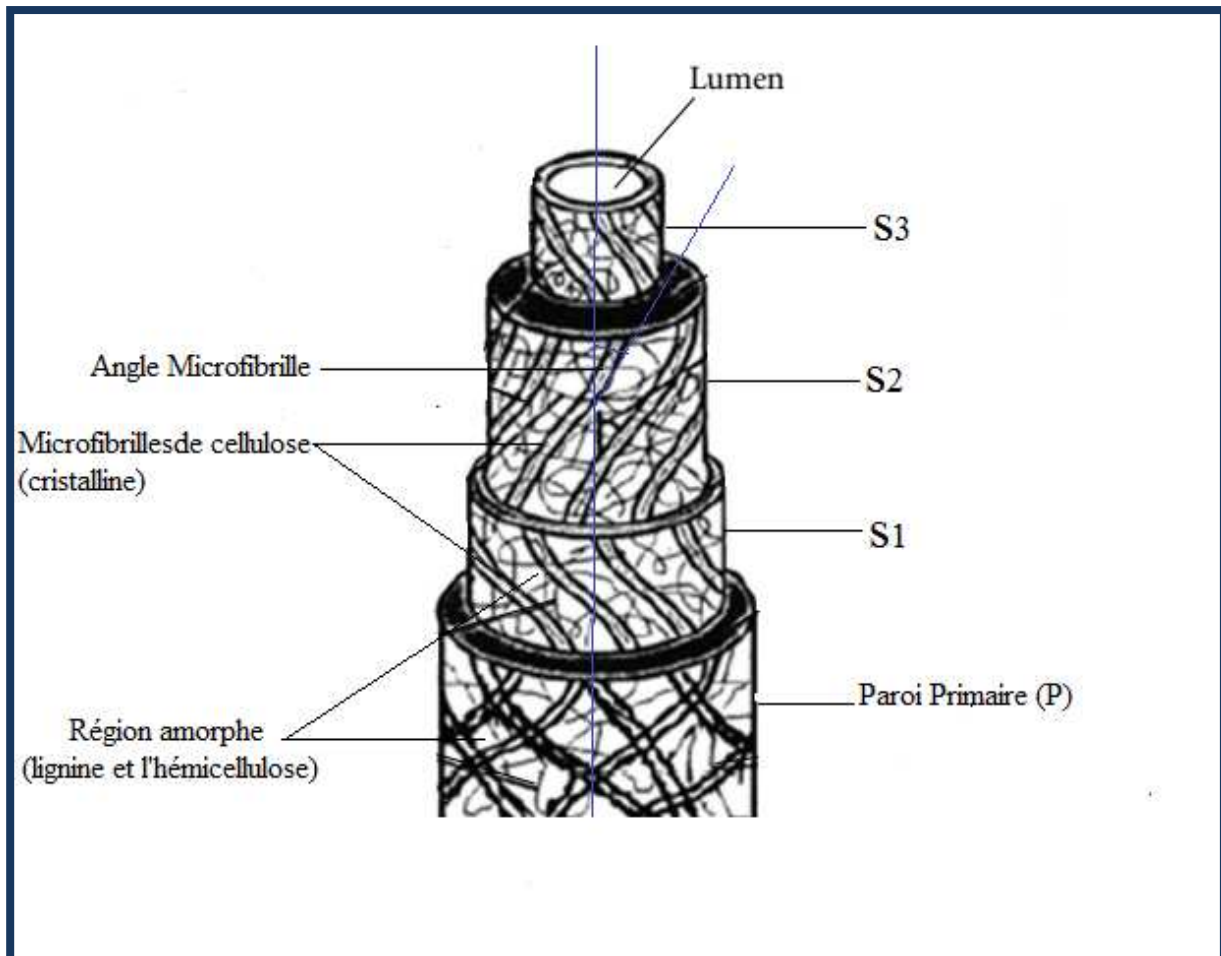
Les pectines portent aussi des substances non sucrées, essentiellement le méthanol, l'acide acétique, l'acide phénolique et parfois des groupes d'amide. L'estérification des résidus d'acide galacturonique avec le méthanol ou l'acide acétique est une caractéristique qui joue un rôle très important sur les propriétés physicochimiques des pectines particulièrement sur la formation de gel [23]. Elle est comme la lignine thermiquement stable ; mais elle est aussi responsable de la dégradation de la fibre par les ultraviolets (UV) [24].



**Figure I.11.** Structure de la pectine [23].

#### I.4 .1.3. Structure d'une fibre végétale

La fibre végétale peut être assimilée à un matériau composite dont le renfort est assuré par fibrilles de cellulose enrobées d'une matrice formée d'hémicellulose et de lignine qui est une structure très rigide [16,25,31]. Les fibrilles sont organisées en hélice et forment un angle avec l'axe de la fibre appelé « angle microfibrillaires »



**Figure I.12.** Description schématique de la structure d'une fibre végétale. [26,41,43,44]

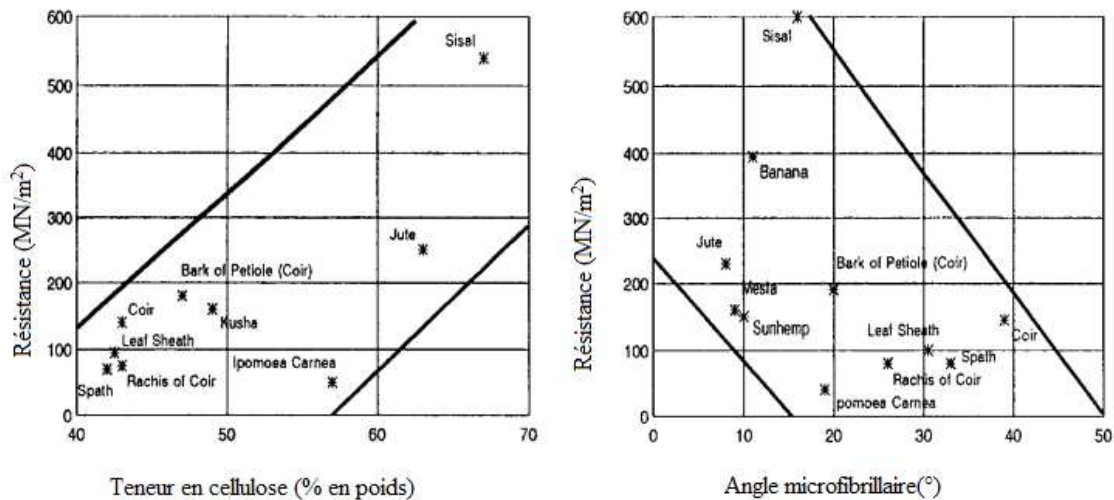
A l'échelle microscopique, chaque fibre végétale se compose de deux parois : une paroi cellulaire primaire et une paroi secondaire (responsable du comportement mécanique) [41,42], elle-même constituée de trois couches repérées S1, S2 et S3. La cavité centrale ouverte au centre est le lumen [26, 30,39] ; le lumen est responsable du transport de l'eau [26,41]. Ces parois cellulaires se différencient par leur composition (rapport entre la cellulose et de la lignine / hémicellulose) et par l'orientation (angle microfibrillaire ) [30].

#### **I.4 .1.4. Propriétés chimiques, physiques et mécaniques des fibres végétales**

Les différentes propriétés exposées par les fibres lignocellulosiques varient selon le type de plante, l'origine des fibres et les conditions de croissance [27,33]. Les performances mécaniques des fibres végétales dépendent de la teneur en cellulose dans la fibre, le degré de polymérisation de la cellulose et de l'angle de microfibrilles [30, 45]. La structure, l'angle microfibrillaire, les dimensions des cellules, les défauts et la composition chimique des fibres sont les variables les plus importantes qui déterminent les propriétés des fibres [39]. D'autre

part; la nature hydrophile des fibres naturelles perturbe ces propriétés [48]. La résistance des fibres augmente avec l'augmentation de la teneur en humidité et diminue avec l'augmentation de la température; le module de Young diminue avec la teneur en humidité [27]. Elle augmente aussi lorsque toutes les microfibrilles sont alignées dans le sens de l'axe de la fibre [59].

En règle générale, la résistance à la traction et le module d'Young des fibres croît avec l'augmentation de la teneur en cellulose **la Figure. I.13** [30]. .



**Figure I.13.** Variation de la résistance des fibres végétales en fonction de la teneur en cellulose et l'angle microfibrillaire [30].

**I.4 .1.5. Avantages et inconvénients des fibres végétales**

Comme tous les matériaux de notre planète les fibres végétales présentent des avantages qui favorisent leurs utilisations dans plusieurs domaines d'applications et montrent aussi des inconvénients qui limitent leur utilisation, les principaux avantages et inconvénients des fibres végétales sont présentés dans le **tableau.I.1**

Avantages	Inconvénients
Faibles coût [43] [51] [54] [32,59,62]	Fort comportement hydrophile [48,54,59,62]
Biodégradabilité et recyclables [43, 54,32,62]	
Propriétés mécaniques spécifiques importantes [54] [32]	Faible stabilité dimensionnelles( gonflement) [51,59]
Faible densité (légère) [43,54, 62]	Faible tenue thermique (200°C) [51] [54]

Bonne isolation thermique et acoustique [54]	Comportement anisotropique [54].
Disponible [54,43,62]	Faible durabilité par rapport aux fibres synthétiques [51,62].
Non toxiques: pas d'allergie ou d'irritation cutanée lors de la manipulation. [43,51,54,62]	Incompatibilité avec certaines matrices polymériques [33].
Consommation d'énergie moins élevée que pour les fibres classiques lors de la production [44,54]	
Pas d'émission de CO <sub>2</sub> , en plus elle absorbe le CO <sub>2</sub> émis par les activités quotidiennes. [51]	
Non abrasif [33]	

**Tableau.I.1.** Avantages et inconvénients des fibres végétales.

Les fibres végétales ne peuvent pas être utilisées directement sous leur forme naturelle. Il nécessite une modification chimique pour améliorer l'adhésion interfaciale entre les fibres et la matrice polymère [33,62]. Le deuxième constituant d'un matériau composite étant une matrice polymère, nous nous proposons de présenter quelques généralités sur ces matériaux.

#### **I.4 .2. Les matrices polymères**

Les matrices polymères (*Les résines*) utilisées dans les matériaux composites ont pour rôle de transférer les sollicitations mécaniques aux fibres et de les protéger de l'environnement extérieur. Les résines doivent donc être assez déformables et présenter une bonne compatibilité avec les fibres. En outre, elles doivent avoir une masse volumique faible de manière à conserver aux matériaux composites des caractéristiques mécaniques spécifiques élevées [5,50].

Deux grandes familles de résines polymères existent : les résines thermoplastiques et les résines thermodurcissables [5,62]. Ces deux types de résine possèdent la faculté de pouvoir être moulés ou mis en forme, pour donner soit un produit fini, soit un produit semi-fini dont la forme peut être modifiée [5]. Les résines thermoplastiques et les résines thermodurcissables ont été utilisées pour fibres naturelles [51].



Il est à noter que dans les résines, des charges et des additifs y sont fréquemment incorporés. Leur rôle est d'améliorer les caractéristiques mécaniques et physiques, de diminuer les coûts et de faciliter leur mise en œuvre ou en forme. Des additifs, de type colorant ou agent de démoulage sont largement utilisés lors de la conception des structures constituées de matériaux composites. Les taux de charges rencontrés dans les résines sont de quelques dizaines de pourcent (~10%) et les additifs de quelques pourcent (~1%) [5].

#### I.4 .2 .1. Les matrices thermodurcissables

Les résines thermodurcissables sont des polymères (macromolécules tridimensionnelles) [36,62]. Ils se présentent sous forme liquide visqueuse [54] qui ne peuvent être mises en forme qu'une seule fois [5,54]. En effet, après polymérisation par apport au chaleur en présence d'un catalyseur, ces résines conduisent à une structure géométrique qui ne peut être détruite que par un apport important d'énergie thermique. Ainsi, les résines thermodurcissables possèdent des propriétés mécaniques et surtout thermomécaniques plus élevées que les résines thermoplastiques [5,54]. Du fait de ces caractéristiques plus élevées, les résines thermodurcissables sont les plus employées actuellement dans la mise en œuvre des matériaux composites. Les principales résines thermodurcissables utilisées dans la mise en œuvre des matériaux composites sont [5,51 ,52,62]:

- Les résines polyesters insaturées : polyesters condensés, vinylesters, dérivés allyliques, etc.,
- Les résines de condensation : phénoliques, aminoplastes, furaniques , etc.,
- Les résines époxydes.

Les propriétés mécaniques des principaux types de matrices thermodurcissables sont résumées dans le tableau suivant :

Matrices	Densité (g/cm <sup>3</sup> )	Resistance à la traction (MPa)	Module D'élasticité (GPa)	Allongement (%)
Phénoliques	1.2	40-50	3	1-2
Polyester	1.2-1.5	50-65	3	2-3
Epoxy	1.1-1.4	50-90	3	2-8
Vinylester	1.2-1.4	70-80	3.5	4-6
Polyimide	1.42	70-150	2.5	8-70

<b>Silicon</b>	2.33	-	-	-
----------------	------	---	---	---

**Tableau.I.2.** Caractéristiques moyennes des matrices thermodurcissables (TD) [52,54].

Ces polymères se présentent toujours sous forme amorphe, Ils ont utilisés (en particulier l'époxy) comme matrices pour les fibres de carbones [53].

#### I.4 .2 .2. Les matrices thermoplastiques

Les polymères thermoplastiques ont une structure linéaire [53 ,62], ils se présentent sous forme solide (granulés, plaques.); ils sont mis en forme par chauffage, et durcissent au cours du refroidissement. La transformation est réversible ; l'intérêt des thermoplastiques réside dans leur faible coût, résultant à la fois de matières premières disponibles et des procédés de fabrication (injection, extrusion). Toutefois, ce faible coût est lié à des propriétés mécaniques et thermomécaniques faibles [5,36]. Parmi les résines thermoplastiques, nous citerons :

- ✓ le polychlorure de vinyle (PVC),
- ✓ le polyéthylène(PE)
- ✓ le polypropylène (PP)
- ✓ le polystyrène (PS)
- ✓ le polyamide (Nylon),
- ✓ le polycarbonate, etc.

Le tableau. I.3. regroupe certaines des propriétés physico mécaniques des résines les plus utilisées. Les propriétés de ces dernières (module d'élasticité) sont nettement inférieures à celles relatives aux résines thermodurcissables.

<b>Matrices</b>	<b>Densité (g/cm<sup>3</sup>)</b>	<b>Resistance à la traction (MPa)</b>	<b>Module D'élasticité (GPa)</b>	<b>Allongement (%)</b>
<b>PP</b>	0.899-0.920	26-41.4	0.95-1.77	15-700
<b>PS</b>	1.04-1.06	25-69	4-5	1-2.5
<b>HDPE</b>	0.94-0.96	14.5-38	0.4-1.5	2-130
<b>Nylon 6</b>	1.12-1.14	43-79	2.9	20-150
<b>Nylon 6.6</b>	1.13-1.15	12.4-94	2.5-3.9	35-300

*PP : polypropylène , HDPE : polyéthylène à haute densité, PS : polystyrène*

**Tableau. I.3.** Caractéristiques moyennes des matrices thermoplastiques (TP) [52].

### **I.4.3. Facteurs influant sur les propriétés des matériaux composites à renfort naturel**

Les propriétés des matériaux composites à fibres végétales sont régies par différents paramètres : la nature des fibres, leur fraction volumique, leur orientation, leur dispersion, ainsi que l'adhésion fibre/matrice [5, 6, 27, 51, 60,62]. Chacun de ces paramètres va avoir un lien direct sur les performances du composite, il est donc important de bien comprendre ces mécanismes afin d'avoir par la suite un composite performant.

#### **I.4.3.1. Dispersion des fibres**

La dispersion des fibres dans la matrice est un facteur majeur influant sur les propriétés des composites à fibres courtes et un défi particulier pour les matériaux biocomposites, qui possèdent généralement des fibres hydrophiles et des matrices hydrophobes [27, 51,62]. L'utilisation des fibres plus longues peut augmenter leur tendance à s'agglomérer. Une bonne dispersion des fibres favorise une bonne liaison interfaciale, réduisant les vides en assurant que les fibres soient complètement entourées par la matrice

La dispersion peut être influencée par des paramètres de traitement tels que la température et la pression; des agents chimiques tels que l'acide stéarique pour augmenter la liaison interfaciale et rendre les fibres naturelles plus compatible avec la matrice. De plus il est possible de mieux séparer les fibres et garantir une bonne dispersion dans la matrice pendant la phase de mise en œuvre par extrusion [27,51].

#### **I.4.3.2. L'orientation des fibres**

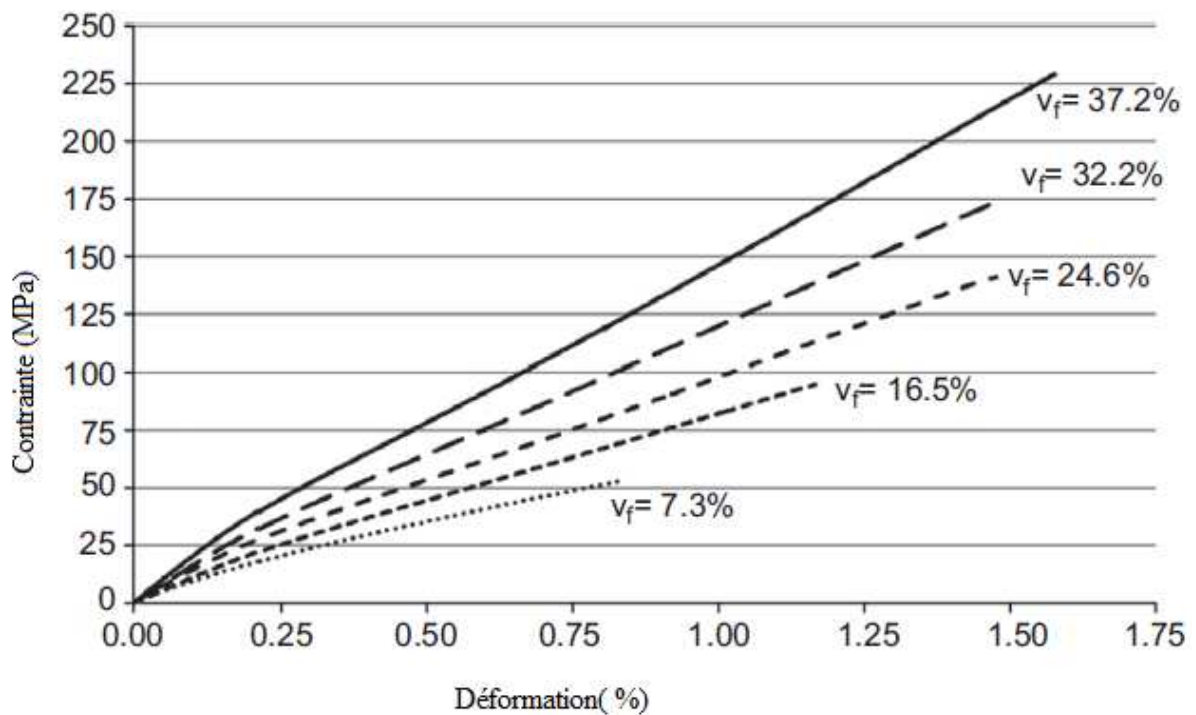
Dans le cas de matériaux composites dont le renfort est constitué de fibres, l'orientation des fibres détermine l'anisotropie du matériau composite. Cet aspect constitue une des caractéristiques fondamentales des composites : la possibilité de contrôler l'anisotropie du produit fini par une conception et une fabrication adaptées aux propriétés souhaitées [5].

Les meilleures propriétés mécaniques des composites peuvent être obtenues lorsque la fibre est alignée parallèlement à la direction de la charge appliquée. Un certain alignement peut être obtenu lors du moulage par injection qui dépend de la viscosité de la matrice polymère et de la forme de l'empreinte du moule. Afin d'obtenir un degré d'alignement des fibres plus élevé, les fibres naturelles sont séparées et placées en feuilles avant l'imprégnation de la matrice [27,51].

### I.4.3.3. Concentration des fibres

La concentration du renfort est habituellement mesurée par la fraction volumique (fraction en volume) ou par la fraction massique (fraction en masse). La concentration du renfort est un paramètre déterminant des propriétés du matériau composite. Pour une concentration donnée, la distribution du renfort dans le volume du composite est également un paramètre important. Une distribution uniforme assurera une "homogénéité" du matériau : les propriétés du composite seront indépendantes du point de mesure. Dans le cas d'une distribution non uniforme du renfort, la rupture du matériau sera initiée dans les zones pauvres en renfort, diminuant ainsi la résistance du composite [5].

Une étude a été réalisée pour un matériau biocomposite jute- polyester [60]. Les résultats ont révélé que la fraction volumique faible (critique) était de 10% et que le maximum était de 45%. Ceci implique que la fraction volumique optimale de la fibre pour des propriétés maximales pour les composites à fibres naturelles se situe entre 35% et 40%, comme indiqué dans la **Figure I.14**.



**Figure I.14.** Courbes contrainte - déformation du jute et du polyester avec une fraction volumique de fibres variable [60].

De meilleures propriétés composites globales sont réalisées lorsque la distribution des fibres est uniforme [4].

#### I.4.3.4. Adhésion fibre/matrice

La liaison d'interface entre la fibre et la matrice joue un rôle important dans la détermination des propriétés mécaniques des composites. L'effort mécanique est transféré entre la matrice et la fibre, une bonne liaison d'interface est nécessaire pour obtenir un renforcement optimal, il est possible d'avoir une interface solide permettant la propagation de fissures pouvant réduire la résistance. Les fibres de cellulose sont riches en groupements hydroxyle, ce qui leur confère une forte polarité et un comportement hydrophile marqué. Alors que les matrices sont hydrophobes [61,62]. Il en résulte des problèmes de compatibilité entre les deux phases et une zone interfaciale affaiblie. Afin d'améliorer l'interface fibre/matrice, il est courant d'avoir recours à des traitements visant à réduire l'énergie de surface des fibres. L'ajout d'un agent ayant des propriétés intermédiaires aux deux constituants peut également être mis en œuvre [27,51].

Le prétraitement de la fibre peut nettoyer sa surface, modifier les propriétés mécaniques de sa surface, arrêter le processus d'absorption d'humidité et augmenter la rugosité de la surface. Les traitements physiques et chimiques peuvent améliorer les propriétés [61,62].

*Le traitement alcalin*, également appelé mercerisation, Le processus d'alcalinisation affecte les fibres naturelles et apporte une nette performance vis à vis la qualité de l'adhérence fibre-matrice. Le traitement alcalin a la capacité de perturber l'incidence des liaisons hydrogène dans la structure du réseau, ce qui favorise la rugosité de la surface et augmente l'interpénétration entre la matrice et la fibre en cas d'interférence. Le traitement alcalin est souvent pratiqué pour extraire la lignine, d'huiles et de cires présentées à la surface externe de la paroi cellulaire des fibres [61,62].

Les propriétés structurelles et de surface de la fibre peuvent être modifiées à l'aide de traitements physiques, influençant ainsi la liaison mécanique aux polymères.

Le Corona est l'un des traitements physiques les plus populaires utilisé pour l'activation de l'oxydation de surface. Cela se fait en modifiant l'énergie de surface des fibres de cellulose par décharge électrique. Une autre technique de charge électrique est le

traitement au plasma froid, qui a les mêmes effets de surface avec une augmentation de l'adhésion de la matrice de fibres [61,62].

### I.5. Les bionanocomposites

Aujourd'hui, l'environnement est principalement pollué par des polymères non dégradables. Il est donc nécessaire de les remplacer par des biopolymères afin de créer des matériaux non toxiques et dégradables par la nature [63]. L'utilisation des biopolymères est actuellement limitée en raison des problèmes de performances, de traitement et de coût [64]. Parallèlement, la présence de biopolymères permet de diminuer les risques environnementaux et de santé publiques. Le matériau composite dépend principalement de taille micrométrique ou nanométrique de particules, car plus la taille est petite, plus son efficacité pour la formation de composites est importante [63]. Les approches nanotechnologiques ont ouvert de nouvelles voies pour l'utilisation des matériaux nanocomposites verts de haute performance, de poids réduit, qui leur permettent de supplanter les matériaux plastique traditionnels non biodégradables issue de pétrochimie [64].

L'inclusion des nanoparticules dans des biopolymères peut améliorer leurs propriétés mécaniques et barrières, ce qui est associé à un facteur de forme élevé et à une surface spécifique élevée des nanoparticules [64].

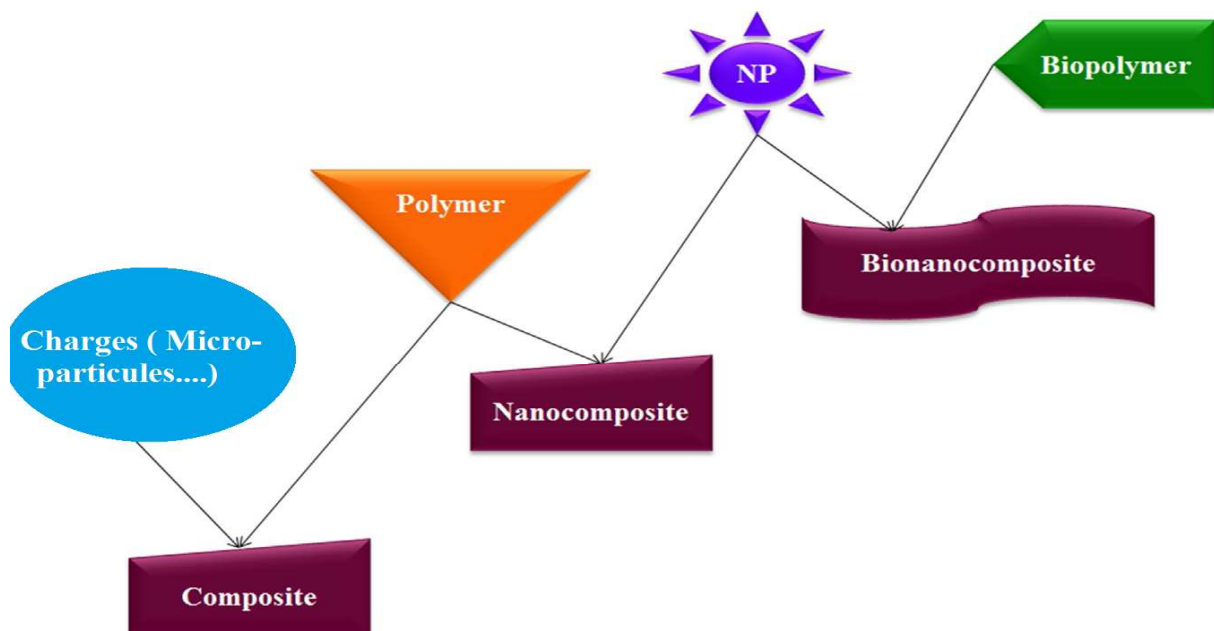


Figure I.15. Les composites, les nanocomposites et les bionanocomposites [65].

### **I.5.1. Définition**

Le terme bionanocomposites (parfois appelé biocomposites, nanocomposites, nanobiocomposites, composites verts, biohybrides ou bioplastiques (bioplastiques)) [65 - 68] a été introduit il y a plusieurs années (la première fois par Theng en 1970) pour définir une classe des matériaux biohybrides présentant des dimensions dans la gamme nanométrique (1 à 100 nm), résultant de la combinaison de biopolymères tels que les polysaccharides, les protéines et les acides nucléiques avec des solides inorganiques à l'échelle nanométrique [65-67]. Ces matériaux peuvent être largement utilisés dans une variété de domaines en raison de leurs propriétés multidimensionnelles telles que la biocompatibilité, l'activité antimicrobienne et la biodégradabilité [66,67] et ils présentent aussi de bonnes propriétés (mécaniques, optiques, barrières, etc.) par rapport aux micro- ou macrocomposites [67,70]. Une large gamme des biopolymères et des nanoparticules inorganiques disponibles permet de développer différents bionanocomposites avec des propriétés structurales, des fonctionnalités et des applications différentes [66].

Au cours de la dernière décennie, la fabrication des nanocomposites à base des biopolymères a fait l'objet de nombreuses études. La plupart des études sur les bionanocomposites ont été basés sur l'acide polylactique (PLA), la polycaprolactone (PCL), les protéines et les polysaccharides, incorporant des couches en silicates (groupe smectite), pour produire des matériaux bionanocomposites largement utilisés en médecine régénérative, fabrication des médicaments, l'ingénierie tissulaire, l'électronique et l'emballage alimentaire [67]. Les bionanocomposites sont devenus des matériaux potentiels et durables pour l'utilisation dans des applications nouvelles et de haute performance [66].

### **I.5.2. Classification des bionanocomposites**

Nous pouvons classer les bionocomposites à base de divers paramètres comme l'origine, la taille, la forme des renforts et le type de matrice utilisé [65, 67,68]. Voici la classification des bionanocomposites suivant la forme des particules [65 ,68].

#### **I.5.2.1. Bionanocomposites renforcés par des particules**

Lorsque les trois dimensions sont de l'ordre des nanomètres, elles sont appelées nanoparticules isodimensionnelles [56, 66, 67,68], telles que les nanoparticules sphériques de silice obtenues par des méthodes in situ de sol-gel ou par la polymérisation promue

directement de leur surface, mais peuvent également inclure nanoclusters semi-conducteurs et autres [67].

L'effet de renforcement est modéré en raison du faible rapport d'aspect. En outre, l'objectif principal de l'utilisation de ces renforts est d'améliorer la résistance à l'inflammabilité, de réduire la perméabilité et le coût des composites [65,68].

Un cas particulier est l'hydroxyapatite ( $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ ). Il s'agit d'une composante minérale majeure des os (jusqu'à 70 % en poids). L'hydroxyapatite nanodimensionnelle comme composant actif des échafaudages et des implants est largement utilisée en chirurgie orthopédique et en dentisterie pour réparer les tissus durs minéralisés du corps vivant en raison de son excellente biocompatibilité et de son effet ostéogénique [66,71].

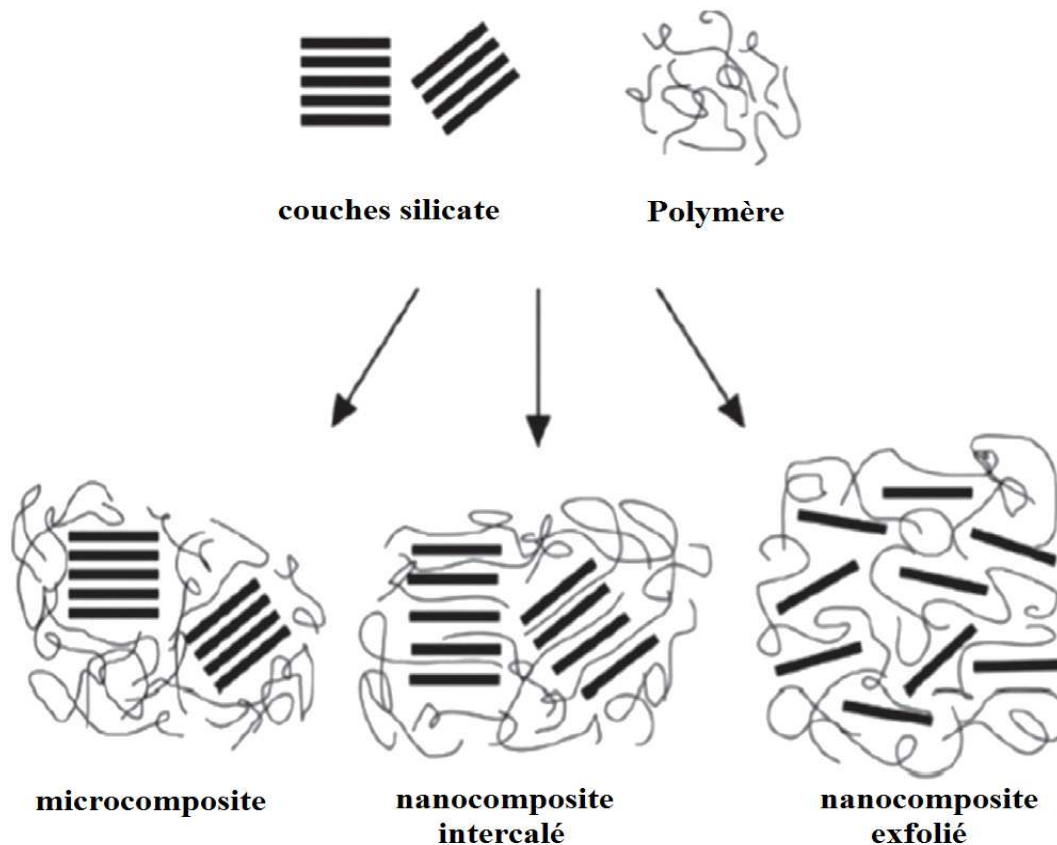
### **I.5.2.2. Bionanocomposites renforcés par des particules allongées : « Elongated particle bionanocomposites »**

Lorsque deux dimensions sont à l'échelle nanométrique et que la troisième est plus grande, elles forment des structures allongées [67]. Ces bionanocomposites utilisent des particules allongées telles que les nanofibrilles de cellulose et les nanotubes de carbone comme renforcement pour former des bionanocomposites à particules étirées/allongées. Ces bio-nanocomposites ont un comportement mécanique supérieur en raison du rapport d'aspect élevé du renforcement [65,68].

### **I.5.2.3. Bionanocomposites renforcés par des particules en couches:**

Lorsqu'une seule dimension est dans l'ordre du nanomètre, le remplissage est sous la forme de feuilles d'un à quelques nanomètres d'épaisseur et de centaines à des milliers de nanomètres de long [67]. Ces bionanocomposites sont également connus sous le nom de nanocomposites polymères en couches. En outre il pourrait y avoir différentes sous-classes (nanocomposites floclés à phases séparées, microcomposites, nanocomposites intercalés et exfoliés) selon le taux de dispersion dans la matrice. Lorsqu'il n'y a pas de partition entre les couches en raison d'interactions particule-particule, il en résulte des nanocomposites floclés ou séparés par phase. Les microcomposites agissent comme des microparticules dispersées dans la matrice polymérique. De plus, les chaînes polymères intercalées entre les feuilles des nanoparticules en couches forment des nanocomposites intercalés. Tandis que la partition des couches individuelles nanocomposites exfoliés voire la **figure I.16**. [65,68].





**Figure I.16.** Types des bionanocomposites renforcés par des particules en couches [57,67].

### I.5.3. Propriétés des bionanocomposites

Les bio-nanocomposites devraient survivre à la contrainte du traitement thermique, au transport et au stockage, une des propriétés importantes des bio-nanocomposites est leur capacité de biodégradabilité [69].

Les nanocomposites offrent l'environnement idéal comme systèmes antimicrobiens en raison du rapport surface-volume élevé et de la réactivité de surface élevée des agents antimicrobiens nanométriques, leur permettant d'inactiver les micro-organismes plus efficacement que leurs équivalents à l'échelle micro ou macro [65,68,72,73].

Un attribut important du biomatériau médical est la biocompatibilité, la capacité à fonctionner correctement dans le corps humain pour générer les résultats cliniques souhaités, sans causer d'effets hostiles. Les bio-nanocomposites offrent d'excellentes propriétés mécaniques, biodégradabilité et biocompatibilité, ce qui en fait les nanocomposites verts les plus appropriés pour des applications biomédicales, comme la vaccination, les systèmes

d'administration de médicaments, génie tissulaire (l'ingénierie tissulaire) et les pansements [65,68]. Le motif de cette affinité est la biocompatibilité de ces substances et la non-toxicité innée [68].

En outre, les films bio-nanocomposites peuvent être utilisés comme un matériau rentable, écologique et renouvelable pour l'emballage des aliments avec une activité antimicrobienne améliorée [56]. Jusqu'à présent, les bio-nanocomposites les plus étudiés pour les appareils d'emballage sont les dérivés de l'amidon et de la cellulose, le polyhydroxybutyrate (PHB), le poly-(succinate de butylène) (PBS), l'acide polylactique (PLA) et le poly-caprolactone (PCL). Les nanocharges les plus performantes sont les nanoargiles de silicates en couches telles que la kaolinite et la montmorillonite [65, 68,72]. Les nano-charges peuvent améliorer les caractéristiques thermiques, mécaniques et barrières [65, 68,69], de sorte que l'incorporation de biopolymères tels que l'amidon et le PLA avec des nano-charges (ZnO, argent, etc.) pour former des bionanocomposites peut présenter de nouvelles propriétés supérieures. L'impact des nanocharges sur les propriétés des bionanocomposites a été largement étudié [65,68].

Les matériaux verts ont sûrement remplacé les produits chimiques à base de pétrole dans divers domaines. Les nouvelles tendances et innovations en biotechnologie et en nanotechnologie créent des matériaux plus écologiques tels que des bionanocomposites pour diverses applications dans différents domaines de recherche [65,69].

#### **I.5.4. Méthodes de préparation des bionanocomposites**

Les bionanocomposites sont préparés par plusieurs méthodes, parmi lesquelles trois méthodes de préparation sont les plus importantes. Ces méthodes sont la réaction in situ, la méthode de coulée en solution, et la technique de mélange à l'état fondu [66, 73,74].

##### **I.5.4.1. Réaction « In Situ »**

Les techniques de polymérisation in situ pour la préparation des bionanocomposites sont principalement exécutées en présence des initiateurs appropriés comme la chaleur, le rayonnement, etc. Dans cette technique, les nanoparticules sont mélangées avec un monomère liquide ou à une solution de monomère [66, 67,73 ,74].

#### **I.5.4.2. La technique de coulée en solution**

La technique de coulée en solution est basée sur le principe de la loi de Stokes. Le moulage en solution signifie que le polymère et le pré-polymère sont également solubles dans la solution. Le polymère se dissout facilement alors que les nanoparticules sont dispersées dans la même solution ou dans une solution différente avant que les deux se mélangent. Pour préparer des bionanocomposites à base d'argile, la solution doit être gonflée en argile, L'argile s'est dispersée en raison d'une faible force telle que la couche s'est remplie une par une. Une fois le gonflement de la solution est terminé, la surface est ensuite mélangée dans l'argile dispersée. La chaîne de polymère se casse lorsqu'elle est mise dans un solvant. De cette façon, le solvant est adsorbé sur la surface du silicate. Dans une solution argile/ biopolymère, l'entropie est obtenue par désorption du solvant. De cette manière, l'entropie diminue pour confiner la chaîne intercalaire. Le solvant s'évapore pour obtenir une structure nanocomposite [73].

#### **I.5.4.3. Technique de mélange à l'état fondu**

Dans la technique de mélange à l'état fondu, Au lieu d'utiliser un solvant comme milieu, les nanoparticules peuvent être mélangées directement avec un polymère fondu [67,73 ,74]. Ce processus élimine l'utilisation de solvant et il est compatible avec les procédés industriels d'extrusion et de mélange de polymères [56, 67,73 ,74]. Il offre un mode économiquement intéressant dans la fabrication de nanocomposites polymères. Le seul inconvénient de ce procédé est que certains biopolymères sont dégradés soit par la force de cisaillement mécanique, soit par la température appliquée lors du traitement [67] ; donc la température et la pression dépendent de la dégradation de biopolymère [73].

- des nanocomposites à base de nanoargile, cellulose peuvent être traités par ces méthodes. En incorporant différentes nanoparticules et nanocharges (par exemple des nanoparticules de ZnO et d'Ag) au biopolymère tel que l'amidon, la cellulose, le PLA, etc [66].
- La nature hydrophile des biopolymères et les faibles propriétés mécaniques des films barrières nécessitent une attention particulière pour leur modification [75]. Une des méthodes de modification est la combinaison de polysaccharides et de molécules protéiques. Une autre méthode efficace pour la préparation de bionanocomposites est la polymérisation par émulsion en incorporant n'importe quel biopolymère dans la matrice comme l'a fait Zuber et al [76]. qui ont préparé des bionanocomposites de

polyuréthane à base de chitine. En ajoutant des nanocharges ou des nanocomposites au biopolymère pour améliorer les propriétés de cette matrice. Cependant, il a parfois été signalé qu'après l'incorporation du polymère bionanocomposite, les propriétés sont légèrement inférieures à celles du biopolymère pur; il est donc nécessaire de modifier complètement la structure. Wang et al. [77] ont étudié les nanocomposites d'argile / chitosane et ont découvert que les propriétés de traction sont légèrement améliorées et les propriétés thermiques sont inférieures à celles du chitosane pur. Zia et al. [58] ont amélioré les propriétés des composites de polyuréthane à base de chitine en incorporant de l'argile de bentonite à la matrice polymère.

**Références**

- [1] Vasiliev, V. V., & Morozov, E. V. (2018). Introduction. *Advanced Mechanics of Composite Materials and Structures*, xvii–xxv. doi:10.1016/b978-0-08-102209-2.00022-0
- [2] Bouhfid, N., Raji, M., Boujmal, R., Essabir, H., Bensalah, M.-O., Bouhfid, R., & Qaiss, A. el kacem. (2019). Numerical modeling of hybrid composite materials. *Modelling of Damage Processes in Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 57–101. doi:10.1016/b978-0-08-102289-4.00005-9
- [3] Ibrahim, I. D., Jamiru, T., Sadiku, R. E., Kupolati, W. K., Agwuncha, S. C., & Ekundayo, G. (2015). The use of polypropylene in bamboo fibre composites and their mechanical properties – A review. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 34(16), 1347–1356. doi:10.1177/0731684415591302
- [4] Callister, W. D. (2006). *Materials science and engineering: An introduction* (6). New York: John Wiley & Sons.
- [5] Jean-Marie Berthelot. (2010). *Mécanique des Matériaux et Structures Composites*.
- [6] Migneault, S., Koubaa, A., Erchiqui, F., Chaala, A., Englund, K., Krause, C., & Wolcott, M. (2008). Effect of fiber length on processing and properties of extruded wood-fiber/HDPE composites. *Journal of Applied Polymer Science*, 110(2), 1085–1092. doi:10.1002/app.28720
- [7] Ashori, A., & Nourbakhsh, A. (2010). Reinforced polypropylene composites: Effects of chemical compositions and particle size. *Bioresource Technology*, 101(7), 2515–2519. doi:10.1016/j.biortech.2009.11.022
- [8] Such, M., Ward, C., & Potter, K. (2014). Aligned Discontinuous Fibre Composites: A Short History. *Journal of Multifunctional Composites*, 2(3), 155–168. doi:10.12783/issn.2168-4286/2/3/4/such
- [9] *Manufacturing Processes for Advanced Composites*. (2004). doi:10.1016/b978-1-85617-415-2.x5000-x
- [10] Campilho, R. D. S. G. (2017). Recent innovations in biocomposite products. *Biocomposites for High-Performance Applications*, 275–306. doi:10.1016/b978-0-08-100793-8.00010-7

- [11] Błędzki A. K, Jaszkiwicz A, Urbaniak M, Stankowska-Walczak D.(2012), Biocomposites in the Past and in the Future ,FIBRES & TEXTILES in Eastern Europe; 20, 6B (96): 15-22
- [12] İşmal, Ö. E., & Paul, R. (2018). Composite textiles in high-performance apparel. High-Performance Apparel, 377–420. doi:10.1016/b978-0-08-100904-8.00019-5
- [13] Ochoa-Villarreal, M., Aispuro-Hernandez, E., Vargas-Arispuro, I., & ngel, M. (2012). Plant Cell Wall Polymers: Function, Structure and Biological Activity of Their Derivatives. Polymerization, 64-86. doi:10.5772/46094
- [14] Zini, E., & Scandola, M. (2011). Green composites: An overview. Polymer Composites, 32(12), 1905–1915. doi:10.1002/pc.21224
- [15] Hassan, A., Salema, A. A., Ani, F. N., & Bakar, A. A. (2010). A review on oil palm empty fruit bunch fiber-reinforced polymer composite materials. Polymer Composites, 31(12), 2079–2101. doi:10.1002/pc.21006
- [16] Loureiro, N. C., & Esteves, J. L. (2019). Green composites in automotive interior parts. Green Composites for Automotive Applications, 81–97. doi:10.1016/b978-0-08-102177-4.00004-5
- [17] Baillie, C. (Ed.). (2005). Green Composites. doi:10.1201/9781439823408
- [18] Ritter S.K. (2008), “Lignocellulose: A Complex Biomaterial”. Chemical & Engineering News, 86(49), 15.
- [19] Jones, D., Ormondroyd, G. O., Curling, S. F., Popescu, C.-M., & Popescu, M.-C. (2017). Chemical compositions of natural fibres. Advanced High Strength Natural Fibre Composites in Construction, 23–58. doi:10.1016/b978-0-08-100411-1.00002-9
- [20] Djafari Petroudy, S. R. (2017). Physical and mechanical properties of natural fibers. Advanced High Strength Natural Fibre Composites in Construction, 59–83. doi:10.1016/b978-0-08-100411-1.00003-0
- [21] Woigk, W., Fuentes, C. A., Rion, J., Hegemann, D., van Vuure, A. W., Dransfeld, C., & Masania, K. (2019). Interface properties and their effect on the mechanical performance

- of flax fibre thermoplastic composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 122, 8-17.
- [22] Sharma, A., Thakur, M., Bhattacharya, M., Mandal, T., & Goswami, S. (2019). Commercial Application of Cellulose Nano-composites - A review. *Biotechnology Reports*, e00316. doi:10.1016/j.btre.2019.e00316
- [23] Welker, C., Balasubramanian, V., Petti, C., Rai, K., DeBolt, S., & Mendu, V. (2015). Engineering Plant Biomass Lignin Content and Composition for Biofuels and Bioproducts. *Energies*, 8(8), 7654–7676. doi:10.3390/en8087654
- [24] Flutto, L. (2003). PECTIN: Properties and Determination. *Encyclopedia of Food Sciences and Nutrition*, 4440–4449. doi:10.1016/b0-12-227055-x/00901-9
- [25] Sedan, D., Pagnoux, C., Smith, A., & Chotard, T. (2008). Mechanical properties of hemp fibre reinforced cement: Influence of the fibre/matrix interaction. *Journal of the European Ceramic Society*, 28(1), 183–192. doi:10.1016/j.jeurceramsoc.2007.05.019
- [26] Agarwal, U. P. (2006). Raman imaging to investigate ultrastructure and composition of plant cell walls: distribution of lignin and cellulose in black spruce wood (*Picea mariana*). *Planta*, 224(5), 1141–1153. doi:10.1007/s00425-006-0295-z
- [27] Pereira, P. H. F., Rosa, M. de F., Cioffi, M. O. H., Benini, K. C. C. de C., Milanese, A. C., Voorwald, H. J. C., & Mulinari, D. R. (2015). Vegetal fibers in polymeric composites: a review. *Polímeros*, 25(1), 9–22. doi:10.1590/0104-1428.1722
- [28] T. Raja, Dr. P. Anand, M. Karthik and M. Sundaraj, (2017), Evaluation of Mechanical Properties of Natural Fibre Reinforced Composites – A Review, *I J M I E T*, 8(7), pp. 915– 924, 8(7),
- [29] Rahman, R., & Zhafer Firdaus Syed Putra, S. (2019). Tensile properties of natural and synthetic fiber-reinforced polymer composites. *Mechanical and Physical Testing of Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 81–102. doi:10.1016/b978-0-08-102292-4.00005-9
- [30] Ticoalu A, Aravinthan T, Cardona F, (2010), A review of current development in natural fiber composites for structural and infrastructure applications. *Proceedings of the Southern region engineering conference (SREC 2010)*. Engineers Australia.

- [31] Bledzki, A. (1999). Composites reinforced with cellulose based fibres. *Progress in Polymer Science*, 24(2), 221–274. doi:10.1016/s0079-6700(98)00018-5
- [32] Liu, W., Chen, T., Fei, M., Qiu, R., Yu, D., Fu, T., & Qiu, J. (2019). Properties of natural fiber-reinforced biobased thermoset biocomposites: Effects of fiber type and resin composition. *Composites Part B: Engineering*. doi:10.1016/j.compositesb.2019.04.048
- [33] Dixit, S., Goel, R., Dubey, A., Shivhare, P. R., & Bhalavi, T. (2017). Natural Fibre Reinforced Polymer Composite Materials - A Review. *Polymers from Renewable Resources*, 8(2), 71–78. doi:10.1177/204124791700800203
- [34] K N Bharath, S. Basavarajappa . (2016). Applications of biocomposite materials based on natural fibers from renewable resources: A review, *Sci Eng Compos Mater*; 23(2), 123–133.
- [35] Mwaikambo LY. (2006) .Properties and application of plant fibers, *African J. Sci. Technol.*, 7(2), 120–133.
- [36] Mohanty, A. K., Misra, M., & Drzal, L. T. (2002). *Journal of Polymers and the Environment*, 10(1/2), 19–26. doi:10.1023/a:1021013921916
- [37] Saheb, D. N., & Jog, J. P. (1999). Natural fiber polymer composites: A review. *Advances in Polymer Technology*, 18(4), 351–363.
- [38] Mitra, G. B., & Mukherjee, P. S. (1980). X-ray diffraction study of fibrous polymers. I. Degree of paracrystallinity—a new parameter for characterizing fibrous polymers. *Polymer*, 21(12), 1403–1409.
- [39] Widya Fatriasari1, Euis Hermiati1. (2016). Lignocellulosic biomass for bioproduct: its potency and technology development . *J. Lignocellulose Technol.* 01, 1-14
- [40] JOHN, M., & THOMAS, S. (2008). Biofibres and biocomposites. *Carbohydrate Polymers*, 71(3), 343–364.
- [41] Surendra Dutt Sharma, Gaurav Singh. (2013). Enantioseparation of Efavirenz by Ultra Performance Liquid Chromatography, *Advances in Analytical Chemistry*, 3(3), 29-33. doi: 10.5923/j.aac.20130303.02



- [42] Latif, R., Wakeel, S., Zaman Khan, N., Noor Siddiquee, A., Lal Verma, S., & Akhtar Khan, Z. (2018). Surface treatments of plant fibers and their effects on mechanical properties of fiber-reinforced composites: A review. *JRPC*, 073168441880202. doi:10.1177/0731684418802022
- [43] Kalia, S., Dufresne, A., Cherian, B. M., Kaith, B. S., Avérous, L., Njuguna, J., & Nassiopoulos, E. (2011). Cellulose-Based Bio- and Nanocomposites: A Review. *IJPS*, 2011, 1–35. doi:10.1155/2011/837875
- [44] Mukhtar, I., Leman, Z., Ishak, M. R., & Zainudin, E. S. (2016). Sugar Palm Fibre and its Composites: A Review of Recent Developments. *BioResources*, 11(4). doi:10.15376/biores.11.4.10756-10782
- [45] Bhattacharyya, D., Subasinghe, A., & Kim, N. K. (2015). Natural fibers. Multi-functionality of Polymer Composites, 102–143. doi:10.1016/b978-0-323-26434-1.00004-0
- [46] Sena Neto, A. R., Araujo, M. A. M., Souza, F. V. D., Mattoso, L. H. C., & Marconcini, J. M. (2013). Characterization and comparative evaluation of thermal, structural, chemical, mechanical and morphological properties of six pineapple leaf fiber varieties for use in composites. *Industrial Crops and Products*, 43, 529–537. doi:10.1016/j.indcrop.2012.08.001
- [47] Mohanty, A.K., Misra, M., and Hinrichsen, G. (2000). Biofibers, biodegradable polymers and biocomposites: An overview. *Macromolecular Materials and Engineering*, 276(277): 1-24.
- [48] Dittenber, D. B., & GangaRao, H. V. S. (2012). Critical review of recent publications on use of natural composites in infrastructure. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 43(8), 1419–1429. doi:10.1016/j.compositesa.2011.11.019
- [49] Faruk, O., Bledzki, A. K., Fink, H.-P., & Sain, M. (2012). Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010. *Progress in Polymer Science*, 37(11), 1552–1596. doi:10.1016/j.progpolymsci.2012.04.003

- [50] Ribeiro, G. O., Gruninger, R. J., Badhan, A., & McAllister, T. A. (2016). Mining the rumen for fibrolytic feed enzymes. *Animal Frontiers*, 6(2), 20–26. doi:10.2527/af.2016-0019
- [51] Seidl, M., Behalek, L., & Habr, J. (2017). Mechanical properties of hybrid composites based on polypropylene matrix. *MM Science Journal*, 2017(05), 1947–1951. doi:10.17973/mmsj.2017\_12\_201737
- [52] Pickering, K. L., Efendy, M. G. A., & Le, T. M. (2016). A review of recent developments in natural fibre composites and their mechanical performance. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 83, 98–112. doi:10.1016/j.compositesa.2015.08.038
- [53] Holbery, J., & Houston, D. (2006). Natural-fiber-reinforced polymer composites in automotive applications. *JOM*, 58(11), 80–86. doi:10.1007/s11837-006-0234-2
- [54] Chung, D. D. L. (2017). *Polymer-Matrix Composites: Structure and Processing*. *Carbon Composites*, 161–217. doi:10.1016/b978-0-12-804459-9.00003-8
- [55] Ouarhim, W., Zari, N., Bouhfid, R., & Qaiss, A. el kacem. (2019). Mechanical performance of natural fibers-based thermosetting composites. *Mechanical and Physical Testing of Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 43–60. doi:10.1016/b978-0-08-102292-4.00003-5
- [56] Maftoonazad, N., & Ramaswamy, H. (2018). Novel techniques in food processing: bionanocomposites. *Current Opinion in Food Science*, 23, 49–56. doi:10.1016/j.cofs.2018.05.010
- [57] Mousa, M. H., Dong, Y., & Davies, I. J. (2016). Recent advances in bionanocomposites: Preparation, properties, and applications. *International Journal of Polymeric Materials and Polymeric Biomaterials*, 65(5), 225–254. doi:10.1080/00914037.2015.1103240
- [58] Zia, K. M., Zuber, M., Barikani, M., Jabbar, A., & Khosa, M. K. (2010). XRD pattern of chitin based polyurethane bio-nanocomposites. *Carbohydrate Polymers*, 80(2), 539–543. doi:10.1016/j.carbpol.2009.12.017

- [59] Lau, K., Hung, P., Zhu, M.-H., & Hui, D. (2018). Properties of natural fibre composites for structural engineering applications. *Composites Part B: Engineering*, 136, 222–233. Doi:10.1016/j.compositesb.2017.10.038
- [60] Sharba, M. J., Leman, Z., & Sultan, M. T. H. (2019). Fatigue life prediction of textile/woven hybrid composites. *Durability and Life Prediction in Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 63–82. doi:10.1016/b978-0-08-102290-0.00004-0
- [61] Sanal, I., & Verma, D. (2017). Construction Materials Reinforced with Natural Products. *Handbook of Ecomaterials*, 1–24. doi:10.1007/978-3-319-48281-1\_75-1
- [62] Halip, J. A., Hua, L. S., Ashaari, Z., Tahir, P. M., Chen, L. W., & Anwar Uyup, M. K. (2019). Effect of treatment on water absorption behavior of natural fiber–reinforced polymer composites. *Mechanical and Physical Testing of Biocomposites, Fibre Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 141–156. doi:10.1016/b978-0-08-102292-4.00008-4
- [63] Thakur, V. K., & Thakur, M. K. (Eds.). (2018). *Functional Biopolymers*. Springer Series on Polymer and Composite Materials. doi:10.1007/978-3-319-66417-0
- [64] Jawaid, M., & Swain, S. K. (Eds.). (2018). *Bionanocomposites for Packaging Applications*. doi:10.1007/978-3-319-67319-6
- [65] Arora, B., Bhatia, R., & Attri, P. (2018). Bionanocomposites: Green materials for a sustainable future. *New Polymer Nanocomposites for Environmental Remediation*, 699–712. doi:10.1016/b978-0-12-811033-1.00027-5
- [66] Ahmed, S. (2018). *Handbook of Bionanocomposites*. doi:10.1201/9781351170680
- [67] Saini, R. K., Bajpai, A. K., & Jain, E. (2018). Fundamentals of bionanocomposites. *Biodegradable and Biocompatible Polymer Composites*, 351–377. doi:10.1016/b978-0-08-100970-3.00012-2
- [68] Zafar, R., Zia, K. M., Tabasum, S., Jabeen, F., Noreen, A., & Zuber, M. (2016). Polysaccharide based bionanocomposites, properties and applications: A review. *International Journal of Biological Macromolecules*, 92, 1012–1024. doi:10.1016/j.ijbiomac.2016.07.102

- [69] Julkapli, N. M., Bagheri, S., & Sapuan, S. M. (2015). Bio-nanocomposites from Natural Fibre Derivatives: Manufacturing and Properties. *Manufacturing of Natural Fibre Reinforced Polymer Composites*, 233–265. doi:10.1007/978-3-319-07944-8\_12
- [70] Nagalakshmaiah, M., Afrin, S., Malladi, R. P., Elkoun, S., Robert, M., Ansari, M. A., ... Karim, Z. (2019). Biocomposites. *Green Composites for Automotive Applications*, 197–215. doi:10.1016/b978-0-08-102177-4.00009-4
- [71] Srivastava, A., Jana, K. K., Maiti, P., Kumar, D., & Parkash, O. (2015). Poly(vinylidene fluoride)/ CaCu<sub>3</sub>Ti<sub>4</sub>O<sub>12</sub> and La doped CaCu<sub>3</sub>Ti<sub>4</sub>O<sub>12</sub> composites with improved dielectric and mechanical properties. *Materials Research Bulletin*, 70, 735–742.
- [72] Rhim, J.-W., Park, H.-M., & Ha, C.-S. (2013). Bio-nanocomposites for food packaging applications. *Progress in Polymer Science*, 38, 1653–1689.
- [73] Thakur, V. K., & Thakur, M. K. (Eds.). (2018). *Functional Biopolymers*. Springer Series on Polymer and Composite Materials. doi:10.1007/978-3-319-66417-0
- [74] Kumar, N., Kaur, P., & Bhatia, S. (2017). Advances in bio-nanocomposite materials for food packaging: a review. *Nutrition & Food Science*, 47(4). doi:10.1108/nfs-11-2016-0176
- [75] Hassannia-Kolae, M., Khodaiyan, F., Pourahmad, R., & Shahabi-Ghahfarrokhi, I. (2016). Development of ecofriendly bionanocomposite: Whey protein isolate/pullulan films with nano-SiO<sub>2</sub>. *International Journal of Biological Macromolecules*, 86, 139–144. doi:10.1016/j.ijbiomac.2016.01.032
- [76] Zuber, M., Zia, K. M., Mahboob, S., Hassan, M., & Bhatti, I. A. (2010). Synthesis of chitin–bentonite clay based polyurethane bio-nanocomposites. *International Journal of Biological Macromolecules*, 47(2), 196–200. doi:10.1016/j.ijbiomac.2010.04.022
- [77] Wang, S., Chen, L., & Tong, Y. (2005). Structure-property relationship in chitosan-based biopolymer/montmorillonite nanocomposites. *Journal of Polymer Science Part A: Polymer Chemistry*, 44(1), 686–696. doi:10.1002/pola.20941

## *Chapitre II*

---

# *Cellulose : Fibres et Biopolymères.*

## II.1. Introduction

Actuellement, les composites verts peuvent être développés à un coût abordable avec des propriétés mécaniques comparables aux composites traditionnels non biodégradables, ces matériaux peuvent maintenir un équilibre entre l'écologie, l'économie et la technologie. Il s'agit d'une combinaison de renforts naturels avec des biopolymères pour le meilleur composite vert durable [1].

Les chercheurs ont trouvé des applications potentielles dans les industries en utilisant des fibres végétales telles que le sisal, la fibre de coco, la banane, le jute, l'ananas, le kénaf et le chanvre. Les propriétés physiques et mécaniques des fibres naturelles dépendent principalement de leur origine, de leur âge et des conditions météorologiques [2]. Toutes les fibres naturelles contiennent de la cellulose, qui est la principale raison de leur nature hydrophile [2]. La cellulose est un composé de structure présent dans la matière végétale et elle peut être obtenue soit sous sa forme de base, soit estérifiée à partir d'arbres, de coton, de canne à sucre ou même de papier recyclé. Des exemples d'esters de cellulose comprennent l'acétate de cellulose et l'acétate-butyraté de cellulose. Pour que l'acétate de cellulose puisse être utilisé comme résine, il est souvent plastifié avec un agent tel que le plastifiant de citrate pour former une matrice polymère efficace [3]. La plupart des déchets cellulosiques tels que la farine de bois, la pulpe et la farine de coquille ont été utilisés comme charges dans les polymères pour réduire les coûts et la perte de rétrécissement après le durcissement [2]. La décomposition de la cellulose, entre 260 et 350 °C, entraîne la formation de matières volatiles et de gaz inflammables, de gaz non combustibles, de goudrons et de certaines quantités de charbon [4]. La cellulose a fait l'objet d'une attention considérable en tant que matière première potentielle la plus forte pour la production des matériaux polymères biosourcés [5].

Au cours de la dernière décennie, des progrès significatifs ont été réalisés dans la production des biopolymères à base de différentes formes cellulosiques [5]. L'utilisation des fibres de cellulose, des nanocellulose et des dérivés de cellulose comme charges ou matrices dans les matériaux biocomposites est une alternative biodurable et efficace pour la production des composites polymères de haute qualité et des matériaux polymères fonctionnels [5]. Le présent chapitre présente les différentes fibres naturelles et les biopolymères et leurs combinaisons.

## II.2. Les fibres de cellulose

Les fibres de cellulose sont celles qui sont produites naturellement à partir de plantes. Les fibres à base de cellulose peuvent être classées selon leur origine en : feuille, liber (bast), graine, tige et herbe. Les fibres provenant du liber, de tige et de feuille sont naturellement organisées en faisceaux et sont donc appelées faisceaux de fibres, alors que les fibres provenant des graines sont des cellules uniques et sont appelées fibres. Les fibres naturelles sont principalement constituées de trois composants principaux : la cellulose, la lignine et l'hémicellulose. La cellulose se trouve dans les plantes sous forme de microfibrilles (diamètre de 2 à 20 nm et longueur de 100 à 40 000 nm) [4], elle est le principal composant responsable de la résistance et de la stabilité inhérentes à la fibre naturelle, tandis que l'hémicellulose contribue à la structure de la fibre naturelle[3]. Certaines des fibres les plus utilisées sont mentionnées ci-dessous:

### II.2.1. Les fibres de Coton

La plus importante de ces fibres est le coton, et c'est la fibre la plus utilisée dans le monde et représente plus de 50% de la production mondiale [6]. Les fibres individuelles de coton sont constituées d'une seule cellule tubulaire longue. Sa longueur est d'environ 1 200 à 1 500 fois supérieure à sa largeur, où elle varie de 12 à 60 mm et une largeur de 15–24  $\mu\text{m}$  selon sa source [4]. La fibre de coton se compose de couches primaires et secondaires, tandis que le lumen est présent au centre. La couche primaire peut contenir jusqu'à 30 % de cellulose et de matériaux non cellulosiques. Cette cellulose est de poids moléculaire inférieur avec le degré de polymérisation (DP) entre 2.000 et 6.000. La paroi secondaire est riche en cellulose de poids plus élevé avec DP de 14.000[4].

Sous un microscope, la fibre de coton apparaît comme une fibre très fine et régulière souvent décrite comme ayant un aspect aplati semblable à un ruban. Dans le sens transversal, le coton ressemble à un tube effondré comme on le voit dans **Figure II.1** et **II.2** [6]

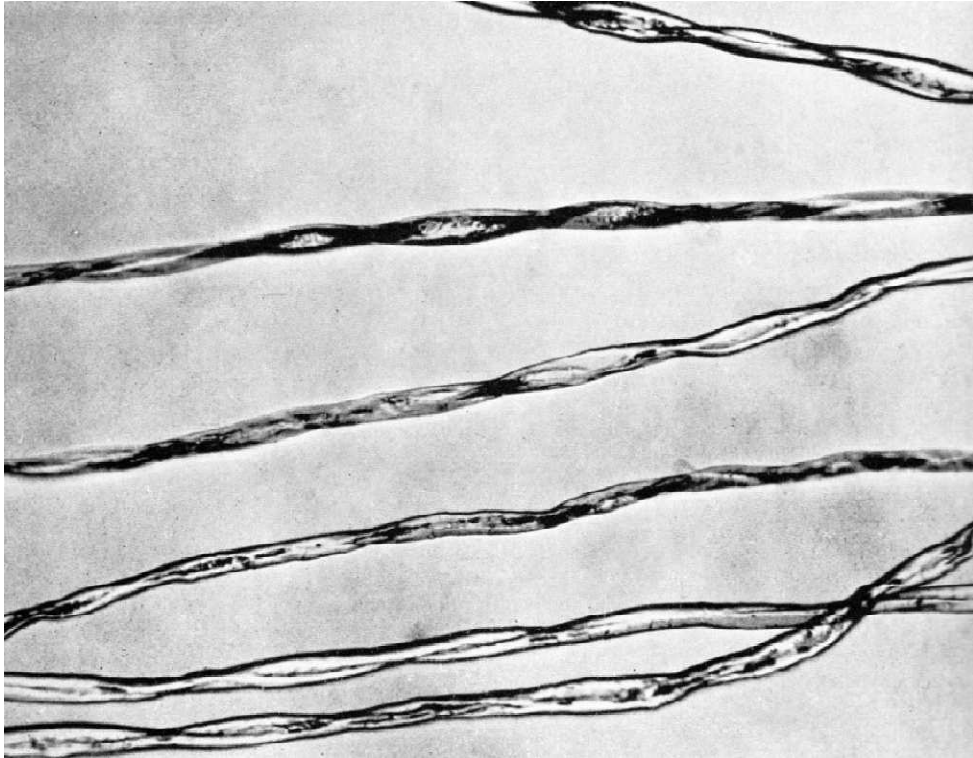


Figure II.1. Vue longitudinale de la fibre de coton [6].

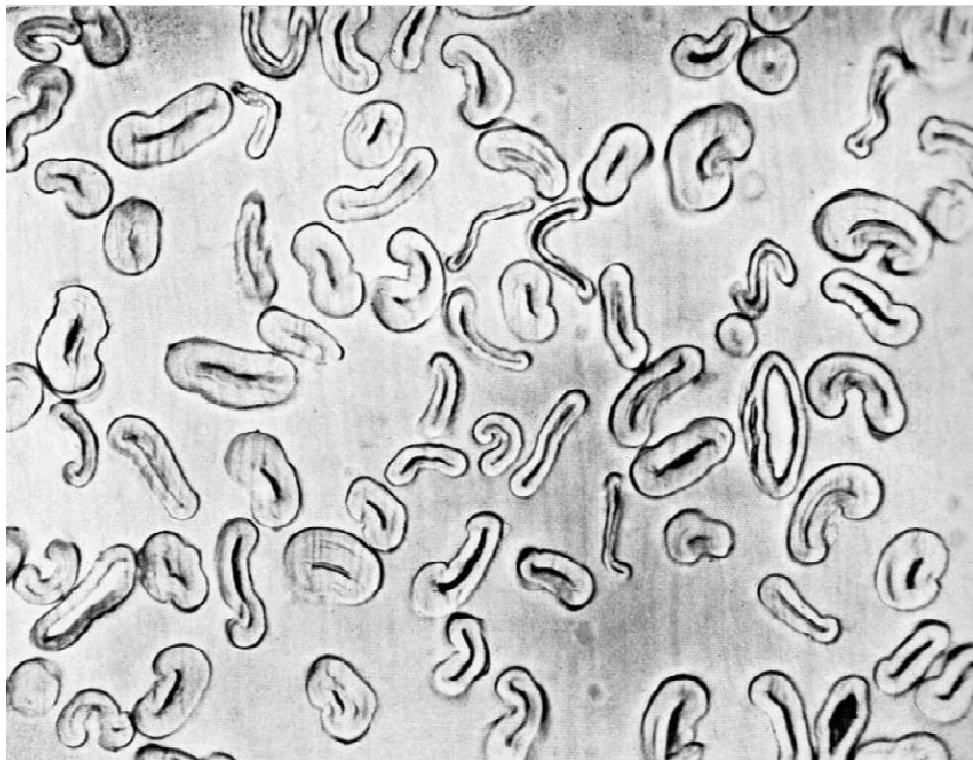


Figure II.2. Coupe transversale de la fibre de coton [6].



La composition chimique de la fibre de coton est présentée comme suit :

<b>Contenu</b>	<b>Pourcentage</b>
Cellulose (% en poids)	88–96[4]
Hémicellulose (% en poids)	4-6 [12]
Lignine (% en poids)	28.2 [1]
Pectine (% en poids)	0.9–1.2 [4]
Cire (% en poids)	0.3–1.00 [4]
Humidité (% en poids)	6-8 [12]
Angle spirale (°)	25 – 30 [12]

**Tableau II.1.** Pourcentage d'ingrédients chimiques de la fibre de coton.

### II.2.2. Les fibres de Lin

Les fibres de lin peuvent être facilement tissées dans différents types de tissus, qui sont ensuite utilisés pour créer des composites avec des propriétés différentes. Le lin est économique et écologique et selon certaines études peuvent rivaliser avec les fibres synthétiques [3]. Chaque fibre de lin est constituée d'une couche externe mince, appelée paroi cellulaire primaire, et d'une paroi cellulaire secondaire épaisse, divisée en trois couches. Les parois cellulaires sont constituées de microfibrils de cellulose disposés en spirales autour de l'axe de la fibre et intégrés dans une matrice pectique. Dans la paroi cellulaire secondaire, l'angle entre les microfibrilles et l'axe longitudinal (appelé «angle des microfibrilles») est d'environ 10 ° [4 ,7].

Les caractéristiques longitudinales des fibres de lin ressemblent à celles du bambou avec des nœuds le long de la surface, tandis que la section transversale est angulaire et regroupée comme on le voit sur les **Figure II.3. et II.4.**[6].

La composition chimique de la fibre de lin est présentée comme suit

<b>Contenu</b>	<b>Pourcentage</b>
Cellulose (% en poids)	65–75[4]
Hémicellulose (% en poids)	18.6-20.6[8]
Lignine (% en poids)	2.2[8]
Pectine (% en poids)	2.3[8]
Cire (% en poids)	-----
Humidité (% en poids)	8–10[4]
Angle spirale (°)	10°[4]

**Tableau II.2.** Pourcentage d'ingrédients chimiques de la fibre de lin.

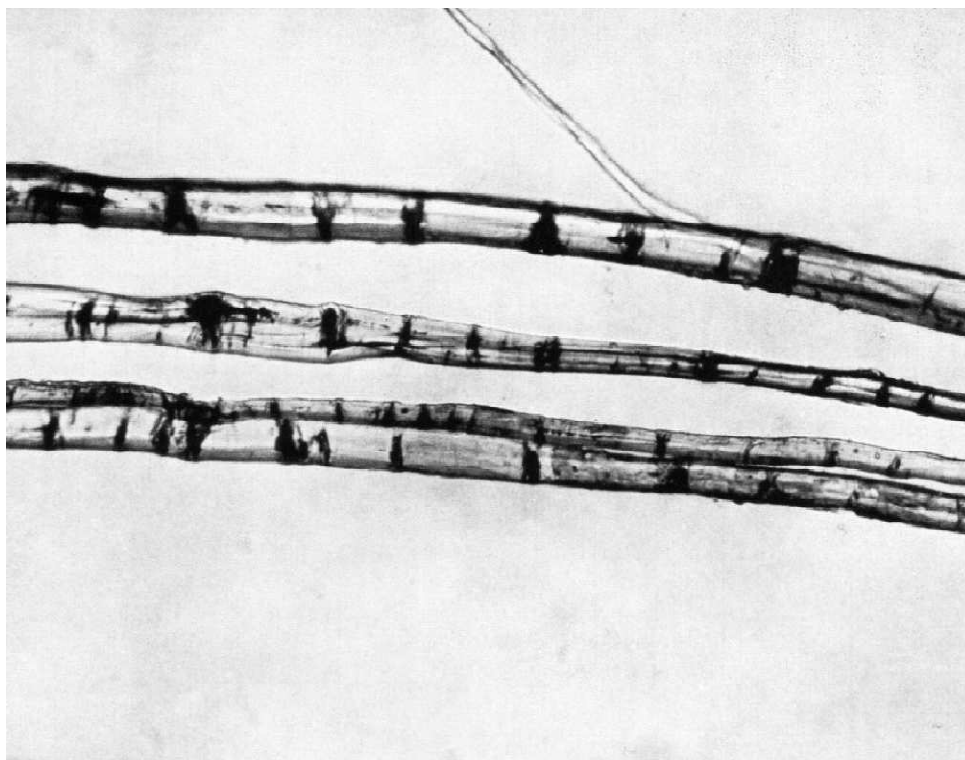


Figure II.3. Vue longitudinale de la fibre de lin [6].

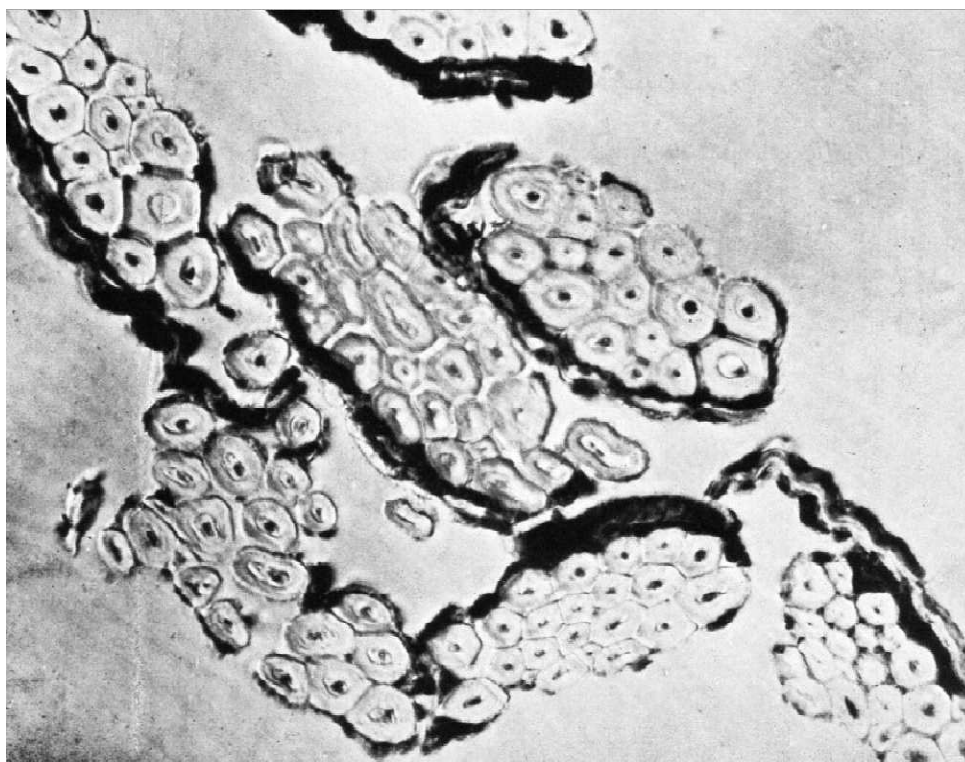
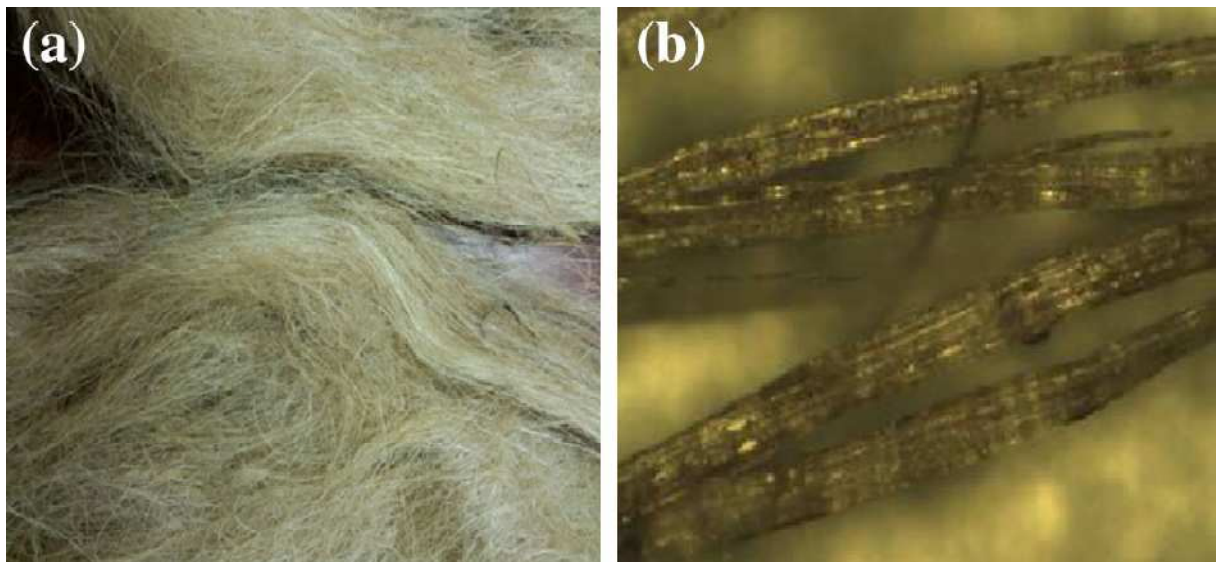


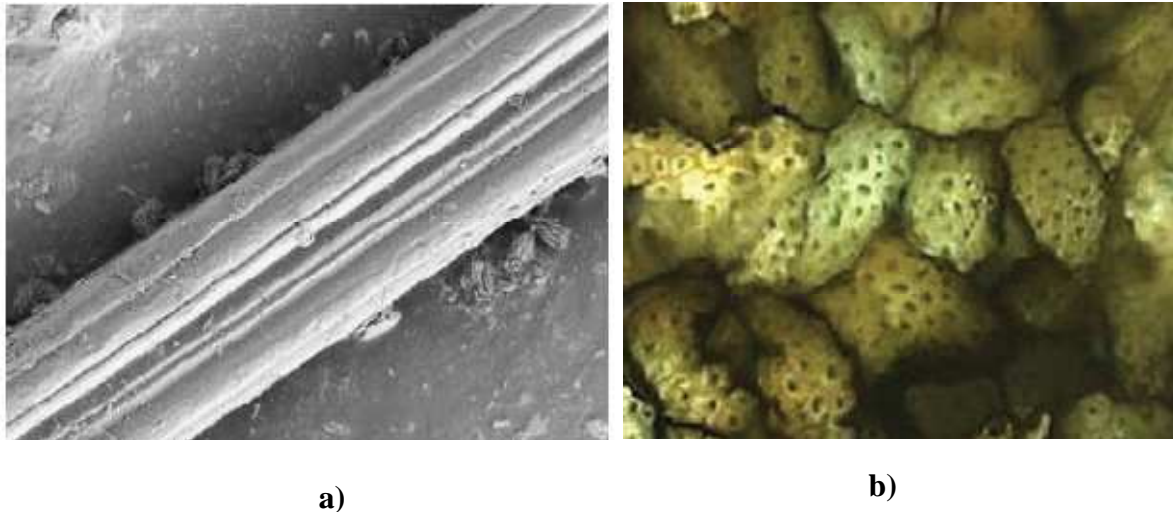
Figure II.4. Coupe transversale de la fibre de lin [6].

### II.2.3. Les fibres de Jute

Le jute est une plante appartenant au genre des *Corchorus*, famille *Tiliaceae* [9]. Le jute est l'une des fibres les moins chères produites en grande quantité en Inde, au Bangladesh et en Chine [3, 9,10]. C'est l'une des fibres naturelles les moins chères. Il entre dans les catégories des fibres libériennes (bast) (produites à partir de la peau de la plante). la fibre de jute, également appelée fibre d'or [9,11], est l'une des fibres les plus longues (entre 1 et 4 m de long) et brillante. Il est préférable de le cultiver dans les basses terres tropicales avec une humidité relative comprise entre 60% et 90% [9,10]. Afin de pouvoir extraire la fibre de la plante libérienne, un processus de rouissage est nécessaire. Les tiges sont récoltées, attachées en faisceaux et immergées dans de l'eau douce pendant environ 20 jours, après quoi elles sont retirées de la tige de la plante pour le rouissage, L'opération d'extraction des fibres sous forme de fillasse peut être mécanique mais reste encore le plus souvent réalisée manuellement et traditionnellement ; même pour les applications industrielles. L'avantage de cette méthode est qu'elle préserve beaucoup plus les qualités mécaniques des fibres [9]. Les modules spécifiques de la fibre de jute se rapprochent de celui de la fibre de verre et elle reste stable jusqu'à une température de 200 ° C sans que ses propriétés ne soient endommagées [3,9].



**Figure II.5.** Photographie de fibre de jute. a) vue macroscopique, b) vue microscopique [11]



**Figure II.6.** a) Vue longitudinale (grossissement 5000 ×) et b) Coupe transversale (grossissement 180 ×) de la fibre de jute [12]

La composition chimique de la fibre de jute est présentée comme suit :

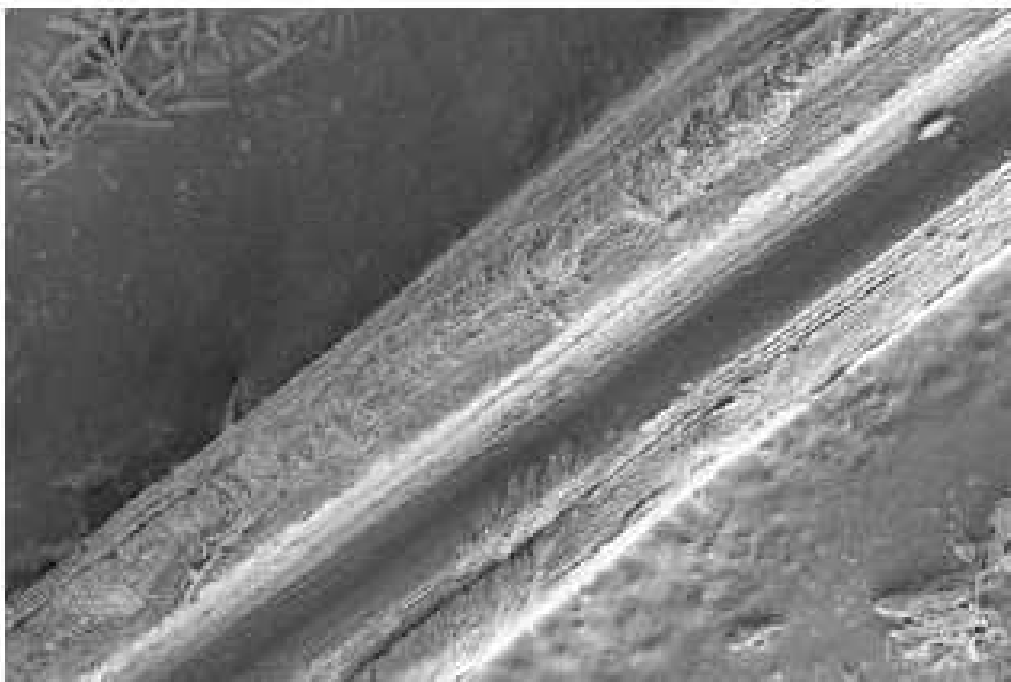
<b>Contenu</b>	<b>Pourcentage</b>
Cellulose (% en poids)	67-71.5
Hémicellulose (% en poids)	13.6-20.4
Lignine (% en poids)	12-13
Pectine (% en poids)	0.2
Cire (% en poids)	0.5
Humidité (% en poids)	12.6
Angle spirale (°)	8.0

**Tableau II.3.** Pourcentage d'ingrédients chimiques de la fibre de jute [9].

#### II.2.4. Les fibres de Sisal

Sisal avec le nom botanique *Agave sisalana*, est une espèce d'Agave originaire du sud du Mexique, mais largement cultivée et naturalisée dans de nombreux autres pays [2,13]. Le diamètre et la longueur de la fibre de sisal sont d'environ 100-300  $\mu\text{m}$  et 1-1,5 m, respectivement, chaque fibre de sisal contient un groupe de minuscules fibres creuses. La paroi cellulaire est constituée de cellulose (orientée en spirale) renforcée dans la matrice naturelle (lignine et hémicellulose). La surface de chaque paroi cellulaire est constituée de substances cireuses et d'une couche de matériau ligneux qui forme un lien fort avec la paroi cellulaire adjacente [2]. Parce qu'il est hydrophile, il est difficile d'obtenir une forte adhésion interfaciale avec la matrice polymérique hydrophobe; cela conduit à une réduction de la résistance à l'humidité [2,14]. Une section transversale de fibres de sisal est constituée d'environ 100 cellules de fibres. La section transversale des fibres de sisal ni circulaire ni

assez uniforme dans sa dimension. Le lumen varie en taille mais est généralement bien défini. La forme longitudinale est approximativement cylindrique. **Figure II.7.** et **II.8.** montrent la vue longitudinale et la section transversale des fibres de sisal. Physiquement, chaque cellule de fibre est composée de quatre parties principales, à savoir la paroi primaire, la paroi secondaire épaisse, la paroi tertiaire et le lumen. Les fibrilles sont à leur tour constituées de microfibrilles d'une épaisseur d'environ 20  $\mu\text{m}$ . Les microfibrilles sont composées de chaînes moléculaires de cellulose d'une épaisseur de 0,7  $\mu\text{m}$  et d'une longueur de quelques  $\mu\text{m}$  [12].



**Figure II.7.** Vue longitudinale (grossissement 2500  $\times$ ) de la fibre de sisal [12]



**Figure II.8.** Coupe transversale de la fibre de sisal [12].

La teneur en humidité et la composition chimique des fibres de sisal sont indiquées au **Tableau II.4.**

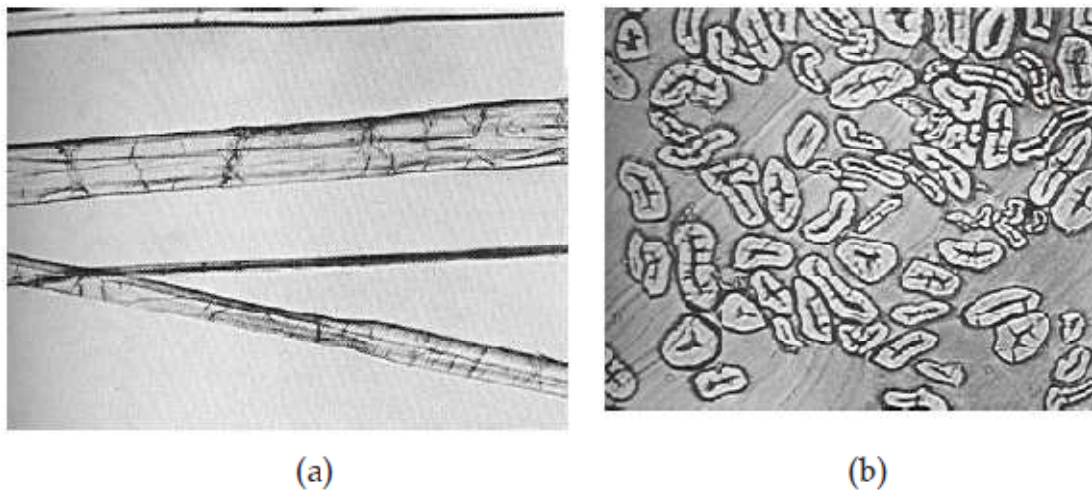
<b>Contenu</b>	<b>Pourcentage</b>
Cellulose (% en poids)	67-78
Hémicellulose (% en poids)	10-14,5
Lignine (% en poids)	8-11
Pectine (% en poids)	10
Cire (% en poids)	2
Humidité (% en poids)	20
Angle spirale (°)	11

**Tableau II.4.** Composition chimique de la fibre de Sisal [9].

### II.2.5. Les fibres de Ramie

La ramie est une plante herbacée vivace de la famille de l'ortie Urticaceae, originaire d'Asie orientale. Les fibres de ramie sont extraites de la tige de la plante *Boehmeria nivea* de la famille des orties. Les cellules de fibre dans les tiges sont reliées entre elles dans des faisceaux de fibres par des cires, des hémicelluloses, de la lignine et des pectines qui sont difficiles à enlever **Figure II.9.** La longueur de la fibre est comprise entre 120 et 150 mm et le diamètre de la fibre est compris entre 40 et 60  $\mu\text{m}$ . Les fibres sont durables et elles ont une

bonne résistance aux bactéries, à la moisissure et aux insectes [12]. Le principal inconvénient du ramie est sa faible élasticité (allongement à la rupture est de 3-7%), ce qui signifie qu'il est rigide et fragile [12,15]. Les fibres ont une forme ovale à cylindrique et leur couleur est blanche et très brillante. La surface des fibres est rugueuse et se caractérise par de petites crêtes, des stries et des fissures profondes. La fibre de Ramie peut être facilement identifiée par sa paroi cellulaire grossière et épaisse, son manque de torsion et ses caractéristiques de surface [12].



**Figure II.9.** a) Vue longitudinale et b) coupe transversale (grossissement 100 ×) de la fibre de Ramie[12].

La composition chimique de la fibre de ramie est présentée comme suit :

<b>Contenu</b>	<b>Pourcentage</b>
Cellulose (% en poids)	68.6-76.2 [8]
Hémicellulose (% en poids)	13.1-16.7[8]
Lignine (% en poids)	0.6-0.7[8]
Pectine (% en poids)	1.9[8]
Cire (% en poids)	-----
Humidité (% en poids)	8[8]
Angle spirale (°)	-----

**Tableau II.5.** Pourcentage d'ingrédients chimiques de la fibre de Ramie.

### II.3. Les biopolymères

Les biopolymères sont des macromolécules produites par des êtres vivants [16, 18, 19,20], tandis que le terme «biopolymère» est utilisé de manière interchangeable avec le terme «Bioplastique» [21], le préfixe bio indique que les biopolymères sont des polymères biodégradables [16,18,22,23]. Les matériaux biodégradables, selon la norme de l'*American Society for Testing and Materials* (ASTM), sont des matériaux qui peuvent subir un processus de décomposition sous forme de dioxyde de carbone, de méthane, d'eau, de composés non organiques ou de biomasse, le tout sous l'action enzymatique des micro-organismes[21,24.25]. La meilleure définition du concept de biopolymère décrit un matériau polymère possédant au moins l'une des propriétés suivantes [17,31] :

- Est constitué (en partie) de matières premières d'origine biologique (renouvelable).
- Est en quelque sorte biodégradable.

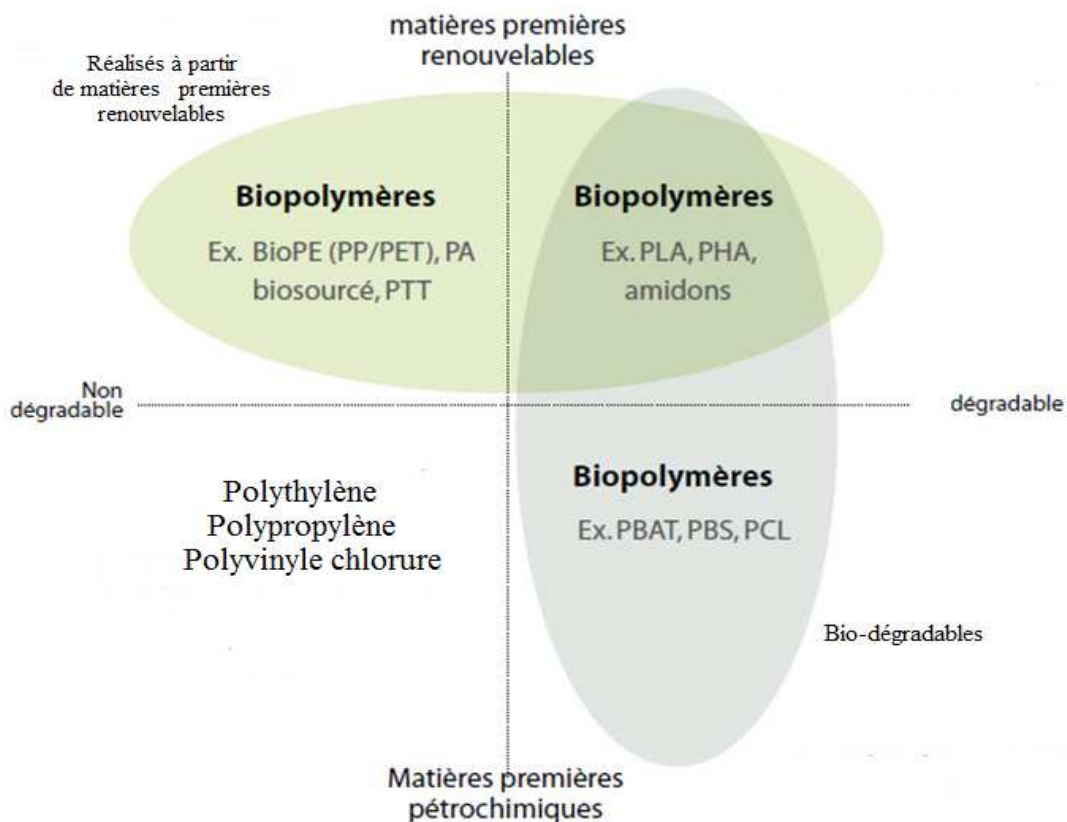


Figure II.10. Définition et classification des biopolymères [32]



En fonction du critère de biodégradabilité et de l'origine des ressources utilisées pour leur production, les biopolymères peuvent être classifiés en trois groupes principaux [17, 23,31] **Figure II.10.:**

- ✓ Les polymères biodégradables issus de ressources renouvelables ;
- ✓ Les polymères biodégradables issus de ressources fossiles ;
- ✓ Les polymères non biodégradables issus de ressources renouvelables.

### II.3. 1. Classification des biopolymères :

Les polymères biodégradables, peuvent être classés en deux groupes suivant leur origine : naturels et synthétiques [20,26] et en plusieurs sous groupes suivant la méthode de synthèse [19]. Karthik et al (2018) [19] ont proposé une classification des polymères biodégradables selon leur mode de synthèse et l'origine et la nature de la matière première

#### Figure II.11. .

- Les polymères naturels issus directement de la biomasse : Agr-polymer tel que les polysaccharides comme l'Amidon(maïs, pomme de terre , blé ,riz) ; la cellulose, les lipides et les protéines [24,28].
- Les polymères issus d'origine bactérienne : se sont des polyesters d'origine microbienne, ces polymères sont issus de fermentation par les bactéries, parmi ces polymères le poly (hydroxyalconate)(PHA) [24,29].
- Les polymères obtenus par synthèse à partir de monomères renouvelable tel que : l'acide polylactic (PLA) [19, 22,24].
- Biopolymères biodégradables issus de ressources fossiles (pétrochimie) : notamment le poly(e-caprolactone) (PCL), le polyéthylène téréphtalate (PET) modifié, le carbonate de polyester (PEC) et d'autres polyesters aliphatiques et des copolyesters aromatiques [22, 24,28].

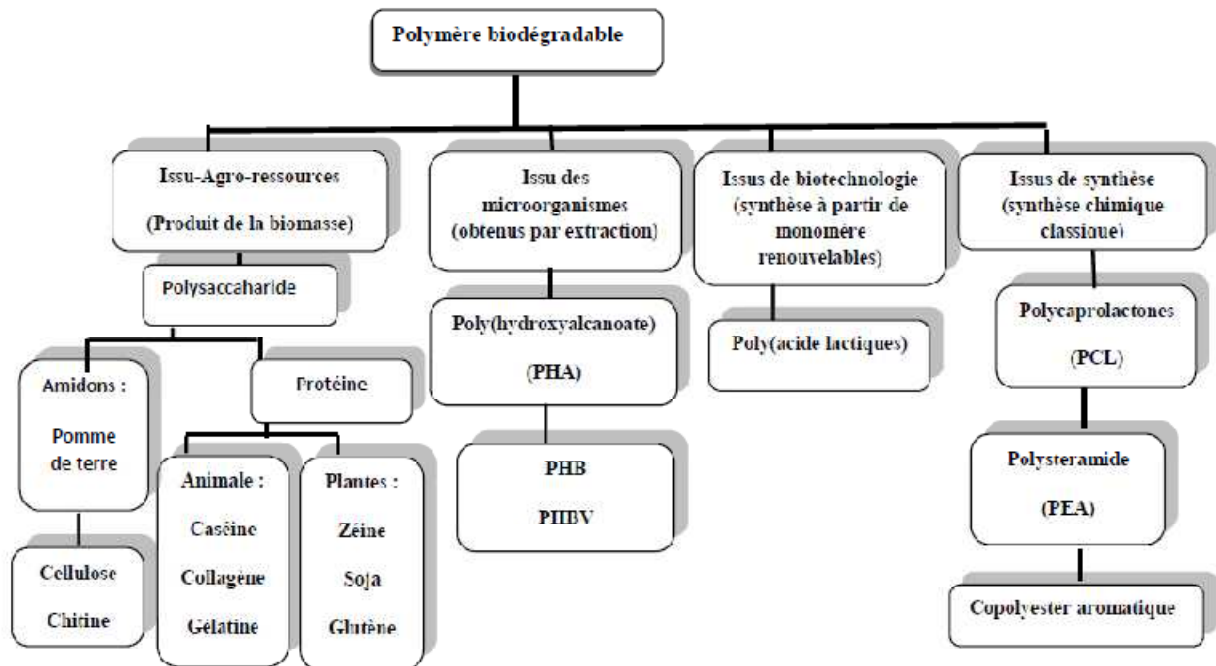


Figure II.11. Classification des biopolymères [19, 22,27]

### II.3. 1. 1. Biopolymères biodégradables issus de ressources naturelles :

#### II.3. 1. 1. 1. Les Polysaccharides

Les polysaccharides sont des polymères dont les constituants, des monomères, sont des monosaccharides, qui sont liés de manière répétée par des liaisons glycosidiques [18,34]. Les polysaccharides sont des biopolymères très abondants et relativement peu coûteux, Ils possèdent également différents groupes réactifs dans leur structure, ce qui facilite l'interaction avec une gamme de composés bioactifs [33], les polysaccharides sont très utilisés en raison de la diversité des structures chimiques, des groupes fonctionnels et des poids moléculaires disponibles, ainsi que de la présence de motifs hydrophiles et hydrophobes le long de leurs chaînes moléculaires [33]. De nombreux polysaccharides sont utilisés dans l'industrie alimentaire car ils sont des molécules non toxiques, biodégradables, biocompatibles et comestibles [34]. les principaux polysaccharides sont: l'amidon, le glycogène, la cellulose et la chitine [18,19].

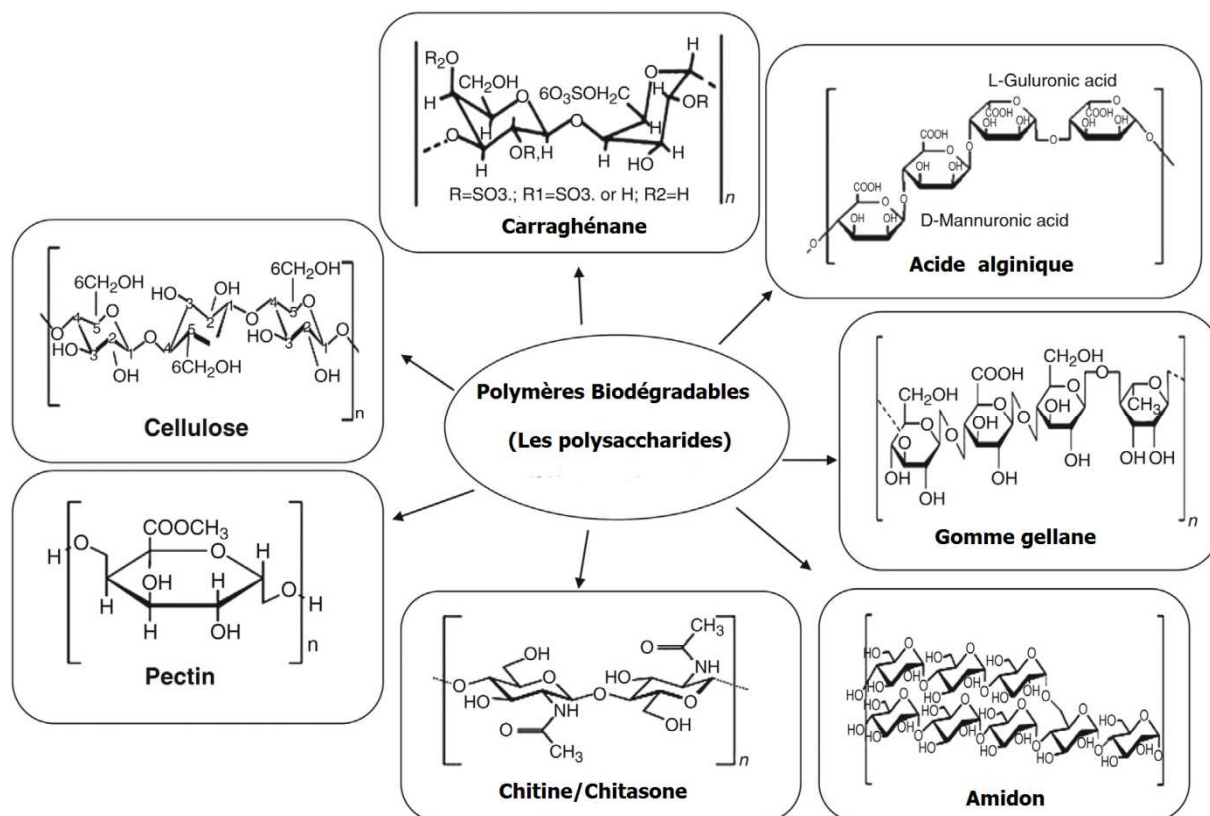


Figure II.12. Représentation structurale des polysaccharides biopolymères [34].

### II.3. 1. 1. 1 L'amidon

L'amidon est un biopolymère d' $\alpha$ -D-glucose [25,34,38]. Les plantes synthétisent et accumulent l'amidon en tant que réserve d'énergie [35,38], il se trouve dans les tubercules, les pommes de terre, les céréales, les graines, les fruits, les rhizomes et dans les racines et les moelles des plantes [34-36] sous forme de granules de différentes tailles et formes (sphérique, ovale, lentille ou irrégulière) selon la source [34]. L'amidon est un polymère semi-cristallin [37] constitué d'un mélange de deux macromolécules, l'une linéaire l'amylose (entre 20%-30%) et l'amylopectine (entre 70%-80%) qui est hautement branchée [35], le principal inconvénient de l'utilisation de l'amidon est sa propriété hydrophile, qui limite son application dans les environnements très humides [19,36]. L'amidon peut être mélangé avec d'autres polymères dégradables (hydrophobes) pour produire des matériaux entièrement biodégradables [19,36]. L'amidon peut être hydrolysé en glucose par des enzymes de microorganismes puis métabolisé en dioxyde de carbone et en eau [36].

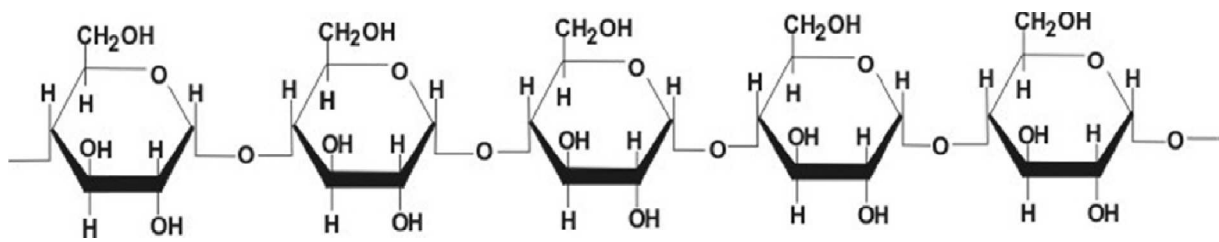


Figure II.13 . Structure de l'amylose[35]

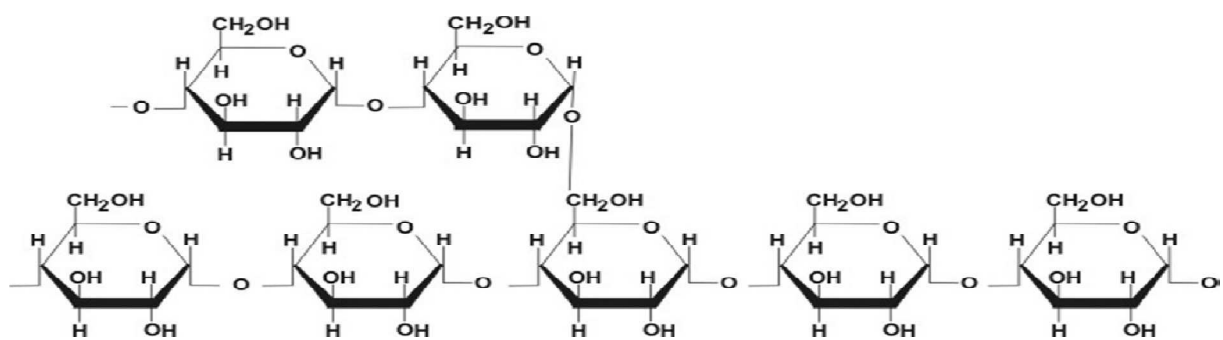


Figure II.14. Structure de l'amylopectine [35]

### II.3. 1. 1. 1. 2 La cellulose

La cellulose est le polymère naturel le plus abondant. La principale source de cellulose est le bois qui contient environ 50% de cellulose. Il a une structure moléculaire similaire à l'amidon. C'est la composante principale de la fibre naturelle (fibre de cellulose) qui se produit dans la nature principalement sous forme cristalline [52]. La cellulose est un biopolymère renouvelable, incolore et non toxique qui possède d'excellentes propriétés, notamment la flexibilité, la biodégradabilité, la biocompatibilité et une résistance mécanique élevée [39]. La liaison d'hydrogène entre les chaînes de cellulose forme une structure 3D qui confère une excellente résistance mécanique à la cellulose [40]. La cellulose et ses dérivés ont été utilisés dans de nombreuses applications telles que les produits pharmaceutiques, les aliments, les textiles, les revêtements et les stratifiés [41-43]. Il a également été utilisé comme un matériau prometteur pour les capteurs flexibles et les applications de dispositifs électroniques en raison de sa légèreté, son faible coût, sa haute stabilité thermique, et de sa biocompatibilité [39]. La cellulose a déjà été utilisée dans les produits de papier et dans le traitement des dérivés cellulosiques. La cellulose peut être produite à l'aide de bactéries, d'algues et de champignons

d'une grande pureté. La cellulose obtenue à partir de ces sources présente un haut degré de cristallinité. Il peut être modifié en esters de cellulose ou en thermoplastiques tels que l'acétate de cellulose (CA), le propionate d'acétate de cellulose (CAP) et le butyrate d'acétate de cellulose (CAB). Ces thermoplastiques sont produits par estérification de la cellulose. [52].

De plus, la fibre de cellulose présente plusieurs inconvénients tels qu'une température de traitement limitée (<200°C), absorption et gonflement élevés de l'humidité, faible résistance microbienne et durabilité [52].

➤ *Les nanocristaux de cellulose (CNCs)*

Les nanocristaux de cellulose (CNCs) sont les dérivés de la cellulose qui peuvent être obtenus par hydrolyse acide de la cellulose, où la cellulose est exposée à l'acide sulfurique sous une température et une période contrôlées. Les (CNCs) présentent d'excellentes propriétés telles qu'une faible densité, une résistance mécanique élevée, une stabilité thermique et une résistance chimique [44]. Les (CNCs) sont des cristaux ressemblant à des tiges d'un diamètre de l'ordre de 10 à 20 nm, de la longueur de quelques centaines de nanomètres [45, 46].

Ces (CNCs) présentent de bonnes propriétés piézoélectriques qui les rendent adaptées aux capteurs, aux actionneurs et aux applications biomédicales [47]. Les propriétés des (CNCs) dépendent de divers facteurs tels que la source de cellulose, le temps de réaction, la température et les types d'acide utilisés pour l'hydrolyse.

En raison de ses propriétés distinctives, les CNCs ont de nombreuses applications utiles dont la plus importante est le renforcement des matrices polymères pour la fabrication de matériaux composites. En raison de leur biodégradabilité, de leur biocompatibilité, de leur légèreté, de leur résistance élevée, de leur rigidité et de leur disponibilité facile, les CNCs peuvent être largement utilisés pour la préparation des composites. De nombreux composites polymères ont été développés en renforçant les CNCs en une large gamme de matrices polymères [46-49].

La cellulose microbienne (BC), est produite par biosynthèse d'un genre différent (*Gluconacetobacter*) de bactéries. La BC possède une très grande pureté avec un haut degré de polymérisation, une cristallinité élevée, une résistance à la traction et une surface spécifiques élevées et une propriété de liaison à l'eau élevée par rapport à d'autres polymères à base de plantes. La BC est obtenue sous forme de réseaux tridimensionnels de fibrilles de

cellulose (nano et micro) et la structure microfibrillaire de la BC est responsable de la plupart de ses propriétés [52]. Certaines études sur la préparation et la caractérisation des composites de la BC ont été rapportées [50-53].

➤ *Les nanofibres de cellulose (CNFs)*

Les nanofibres de cellulose (CNFs) sont des fibres à l'échelle nanométrique extraites des parois cellulaires des plantes. Ils ont de bonnes propriétés mécaniques et ont un grand potentiel d'utilisation comme matériau de renforcement dans les composites [54,55]. La nature renouvelable et l'abondance des (CNFs) les rendent également aptes à une production durable à grand volume. Cependant, le transfert des propriétés nanométriques des fibres aux matériaux composites macroscopiques n'est pas facile à réaliser. La plupart des méthodes de traitement prennent du temps [55-59], limitée à l'échelle du laboratoire [60-62], ou souffrent de problèmes, tels que la difficulté à atteindre une bonne dispersion des fibres [63,64]. Afin d'utiliser les bonnes propriétés mécaniques intrinsèques aux (CNFs) dans les composites, des voies de traitement applicables à l'industrie doivent être développées [55].

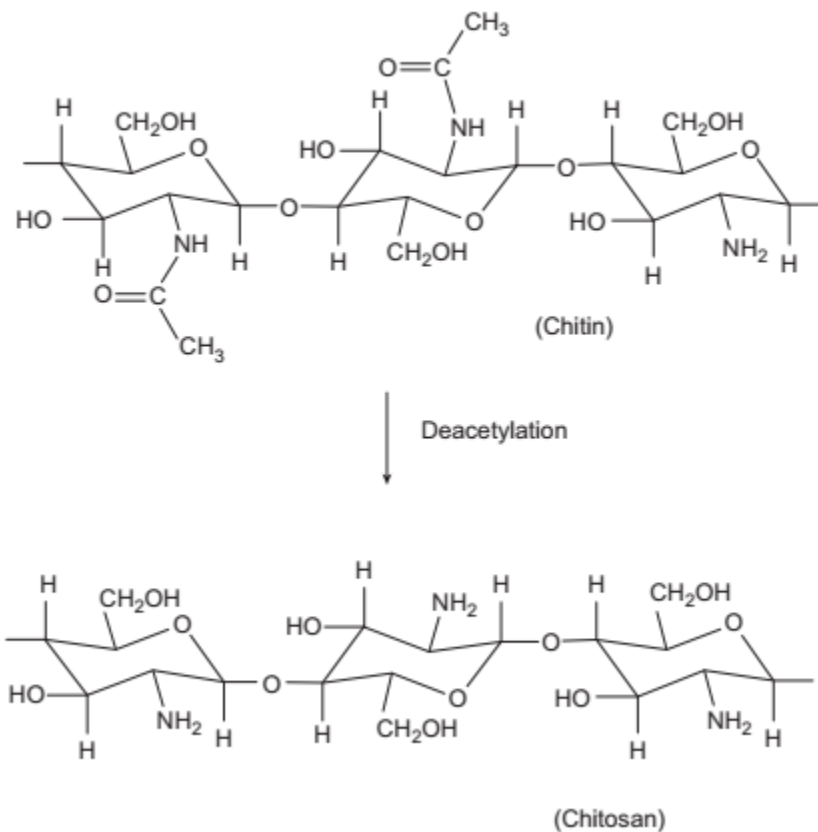
L'utilisation de structures de (CNFs) préformées pouvant être imprégnées de résines thermodurcissables est une approche qui reçoit une attention considérable, car elle permet d'obtenir un contenu élevé du matériau de renforcement, ce qui donne de bonnes propriétés mécaniques [55-59,65-67].

### II.3. 1. 1. 1. 3 La chitine et le chitosane

Une autre famille de polysaccharides très fréquemment utilisée est celle constituée par la chitine et le chitosane, la chitine est le deuxième biopolymère le plus abondant après la cellulose [18,20,25,30,35,69]. La chitine est un polysaccharide azoté [35,69,78] constitué d'unités N-acétylglucosamine reliées entre elles par des liens  $\beta(1-4)$  [18,20,25,69,78], les groupes amine libres et les groupes hydroxyle sont les groupes chimiquement actifs de la chitine [25]. La chitine c'est un polymère dur et inélastique [35], il est très hydrophobe et insoluble dans l'eau et la plupart des solvants organiques [36,78]. C'est un polysaccharide structural du squelette extérieur d'animaux crustacés, comme les crabes, les crevettes, les homards, les insectes et la paroi cellulaire de certains champignons et algues [25,34]. Récemment, il est devenu possible de produire industriellement des cristaux de chitine pure, appelés «nanofibrilles de chitine» pour leur forme semblable à celle de l'aiguille et leur taille nanostructurée de  $(240 \times 5 \times 7 \text{ nm})$ . En raison de leurs caractéristiques chimiques et

physiques spécifiques, ces nanofibrilles de chitine peuvent avoir diverses applications industrielles comme base pour les nanomatériaux [30]. La chitine peut facilement être transformée en gels, perles, poudres, fibres, membranes, coton, flocons, éponges, colloïdes, films [78]

Le chitosane (poly-  $\beta$  (1,4)-2-amino-2-deoxy-D-glucose) [25,38,80] est le dérivé désacétylé de la chitine [19,20,25,69,80], la chitine est convertie en chitosane lorsque son degré de désacétylation (DD) atteint environ 50% [36], Le chitosane est soluble en milieu acide [36].



**Figure II.15.** Structure de la chitine et le chitosane [35,69, 80]

La chitine et sa dérivée la plus importante, le chitosane, possèdent un certain nombre de propriétés physiques et chimiques utiles, notamment une résistance élevée, une biodégradabilité et une non-toxicité [78,80].

### II.3. 1. 1. 2. Les protéines

Les protéines sont des biopolymères naturels qui ont trouvé plusieurs applications sous leur forme native, telles que la laine, la soie et le collagène [20,80]. La structure tridimensionnelle de ces protéines est stabilisée principalement par des interactions non covalentes. La structure unitaire des protéines se forme par des arrangements réguliers de divers types d'acides aminés. L'hétérogénéité structurelle, la sensibilité thermique et le comportement hydrophile des protéines contrôlent les propriétés fonctionnelles de protéines. La dégradation des protéines par les enzymes se produit via une réaction d'hydrolyse d'amide. Diverses protéines végétales et animales sont couramment utilisées comme polymères biodégradables, dont certaines sont les suivantes [20]:

#### II.3. 1. 1. 2. 1. Collagène et gélatine

Le collagène c'est la protéine principale dans les tissus conjonctifs des animaux [20,35], et la protéine la plus abondante chez les mammifères [35], le collagène est le biopolymère le plus abondant et constitue un composant majeur des os, des cartilages, des ligaments, de la peau et des tendons [34]. Le collagène est un polypeptide de motifs répétés de glycine, de proline et d'hydroxylproline, qui former une structure en triple hélice spécifique du collagène [34,68]. En raison de leur structure, de leur biocompatibilité et de leur biodégradabilité, ils se trouvent principalement dans des domaines tels que l'ingénierie tissulaire, la cicatrisation des plaies et la cosmétique [19,34].

La gélatine est une protéine obtenue par hydrolyse partielle du collagène [34, 35,37], en raison de la présence de nombreux groupes fonctionnels **Figure II.16**. Tels que  $-NH_2$ ,  $-SH$  et  $-COOH$ , la gélatine peut être modifiée avec des biomolécules et des nanoparticules pour diverses applications [37], il est hémostatique, pro-angiogénique, non immunogène [37], biodégradable et biocompatible [36,37] ; la gélatine forme facilement des gels thermo-réversibles [36, 68]. Les applications de la gélatine sont principalement basées sur ses propriétés de gélification [35]. La gélatine est utilisée pour perdre du poids et pour traiter l'arthrose, la polyarthrite rhumatoïde et la fragilité osseuse (ostéoporose) [37].

De plus le collagène est résistant aux protéases, alors que la gélatine est sensible à ces enzymes [37].



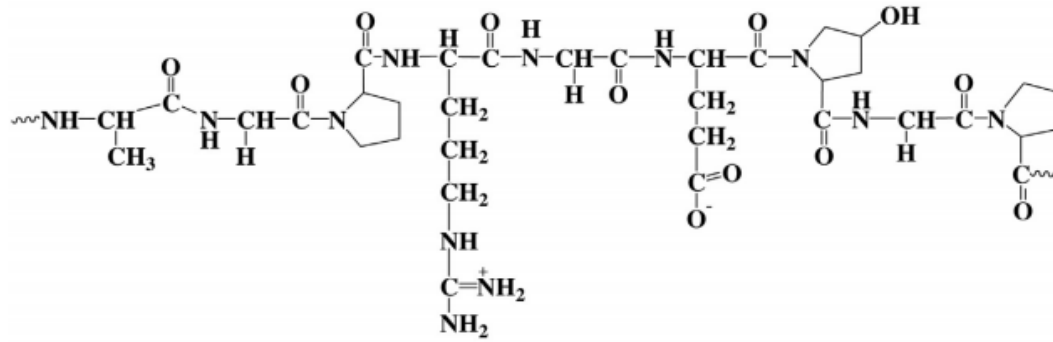


Figure II.16. Structure de la Gélatine [35].

La gélatine est classée en catégories en fonction de sa qualité et de sa résistance, et l'unité est nommée «bloom». Un nombre de bloom plus élevé signifie une qualité supérieure de la gélatine. La couleur du produit en gélatine dépend du type de matière première. Les gélatines de qualité supérieure sont des composés de poids moléculaire élevé et avec une meilleure résistance du gel [35].

### II.3. 1. 2. Biopolymères biodégradables issus d'origine microbienne :

Les polyesters sont les fibres synthétiques et les films les plus largement utilisés dans divers domaines, tandis que la gestion des déchets plastiques est récemment devenue un problème critique de l'environnement mondial. Parmi les divers biomatériaux, les polyhydroxyalcanoates (PHA) jouent un rôle important en tant que biopolymère plastique issu de bactéries [19]. Ces biopolymères représentent une famille de biopolymères intracellulaires synthétisés par des bactéries sous forme de granules de carbone intracellulaire et de stockage d'énergie. Ils sont principalement produits à partir de ressources renouvelables par fermentation [19,25]. Les PHA sont des polymères linéaires de (R) -3-hydroxyacides dans lesquels le groupe carboxyle d'un monomère forme une liaison ester avec le groupe hydroxyle du monomère suivant voire la Figure II.17. [19,68].

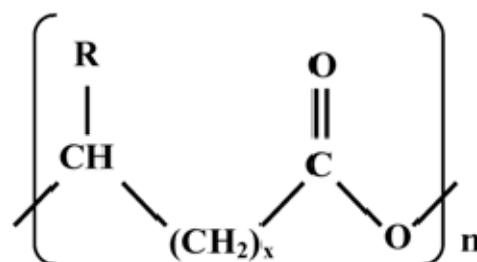


Figure II.17. Structure de PHA [19].

Le polyhydroxybutyrate (PHB) et le poly (hydroxybutyrate cohydroxyvalérate) (PHBV) sont les polymères les plus connus de la famille des polyhydroxyalcanoates[19].

Le polyhydroxybutyrate constitue une réserve de carbone dans bon nombre de bactéries et a attiré l'attention en tant que polyester thermoplastique biodégradable. Il s'agit d'un plastique biodégradable, non toxique et biocompatible pouvant être produit à partir de glucose et de propionate par les souches recombinantes *Escherichia coli* [37]. Les microorganismes dans la nature sont capables de dégrader le PHA par hydrolyse non enzymatique et enzymatique dans les tissus animaux. Cependant, de nombreux facteurs affectent la biodégradabilité et la biocompatibilité du PHA, tels que la stéréorégularité, la masse moléculaire, la composition monomère, la cristallinité et sa surface spécifique du polymère [68].

### II.3. 1. 3. Biopolymères biodégradables issus des biotechnologies :

Le polyester d'origine biologique est dérivé de ressources naturelles grâce à la biotechnologie. Il comprend l'acide poly lactique (PLA) et le poly (triméthylène téréphtalate) (PTT) [19].

#### II.3. 1. 3. 1. L'acide poly lactique (PLA)

Le poly (acide lactique) ou le polylactide [20,37,68] est le polyester thermoplastique biodégradable le plus largement étudié et utilisé, pouvant remplacer les polymères conventionnels [27,68,80,52]. C'est un polyester aliphatique à base d'acide lactique ( $C_3H_6O_3$ ) issu de la fermentation de ressources agricoles[19,24]. Deux voies d'obtention du polylactide peuvent être répertoriées : la polycondensation de l'acide lactique ou la polymérisation d'ouverture de cycle du lactide [24,37,70]. Le PLA est un polymère semi-cristallin hydrophobe [20,36].

Le PLA est considéré comme un biopolymère favorable en raison de ses propriétés de résistance et de biodégradabilité élevées [25,27]. Cependant, certaines de ses propriétés telles que la fragilité et le taux de cristallisation modéré peuvent limiter l'utilisation du PLA dans diverses applications [25].

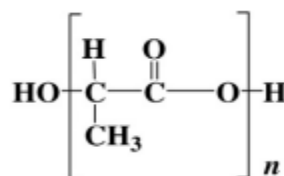


Figure II.18. Structure de PLA [37,52].

### II.3. 1. 4. Biopolymères biodégradables issus de la pétrochimie :

Récemment, une vaste gamme de résines synthétiques biodégradables à base de polyesters aliphatiques et de copolyesters aliphatiques-aromatiques ont été commercialisées et utilisées comme emballages alimentaires. Les polymères tels que la poly (ε-caprolactone) (PCL), les poly (esteramides) (PEA), les copolyesters aliphatiques (par exemple, PBSA) et les copolyesters aromatiques (par exemple, PBAT) contiennent des monomères obtenus par synthèse chimique à partir de ressources fossiles [24].

#### II.3. 1. 4.1. La polycaprolactone (PCL)

La polycaprolactone (PCL) est un polyester biodégradable comportant une faible température de fusion d'environ 60 °C et une température de transition vitreuse d'environ -60 °C [24, 37,52]. La polycaprolactone est utilisée dans la fabrication de polyuréthanes spéciaux. La polycaprolactone confère une bonne résistance à l'eau, à l'huile, aux solvants et au chlore au polyuréthane produit [37]. La PCL peut être utilisé comme additif pour les résines pour améliorer sa résistance aux chocs, PCL est compatible avec une gamme d'autres matériaux qui lui permettent d'être mélangé avec d'autres polymères biodégradables afin de réduire son coût et d'augmenter sa biodégradabilité. L'importance de la PCL dans diverses applications d'ingénierie tissulaire a augmenté car elle est dégradée par hydrolyse de ses liaisons ester dans des conditions physiologiques. Cette propriété le rend utile pour divers biomatériaux implantables. Son taux de dégradation étant inférieur à celui du polylactide, il est proposé de l'utiliser comme dispositif implantable à long terme [37].

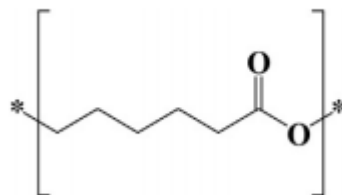


Figure II.19. Structure de PCL [52].

### II.3. 2. Voies principales pour la production des biopolymères cellulosique

Diverses formes de cellulose sont des ressources prometteuses pour la production des biopolymères par trois voies principales.

- ✓ La première voie consiste à déconstruire la cellulose en monomères polymérisables, l'utilisation des monomères dérivés de la cellulose (glucose et autres produits chimiques de plate-forme) dans la synthèse des biopolymères durables et de matériaux polymères fonctionnels fournit non seulement des substituts viables pour la plupart des polymères à base de pétrole mais permet également le développement de nouveaux polymères et de matériaux polymères fonctionnels [5].
- ✓ Les deuxième et troisième voies impliquent l'incorporation de différentes formes de cellulose, y compris les fibres naturelles, les dérivés de la cellulose et la nanocellulose, comme charges ou matrices dans les composites polymères, Les fibres cellulosiques non modifiées, la cellulose chimiquement modifiée comme les dérivés de la cellulose et la nanocellulose ont été traitées pour donner de nombreux types de matériaux polymères biodégradables tels que les films, les composites, les systèmes nanocomposites et les films composites pour diverses applications [5].

Chaque voie conduit aux divers matériaux biopolymères, faisant de la cellulose une matière première dominante biopolymère. L'utilisation de la cellulose réduira la consommation de ressources fossiles [5].

### II.3. 3. Propriétés des composites à base de cellulose (fibres et biopolymères)

Les biopolymères à base de cellulose les plus importants peuvent être regroupés dans les quatre types suivants [5] :

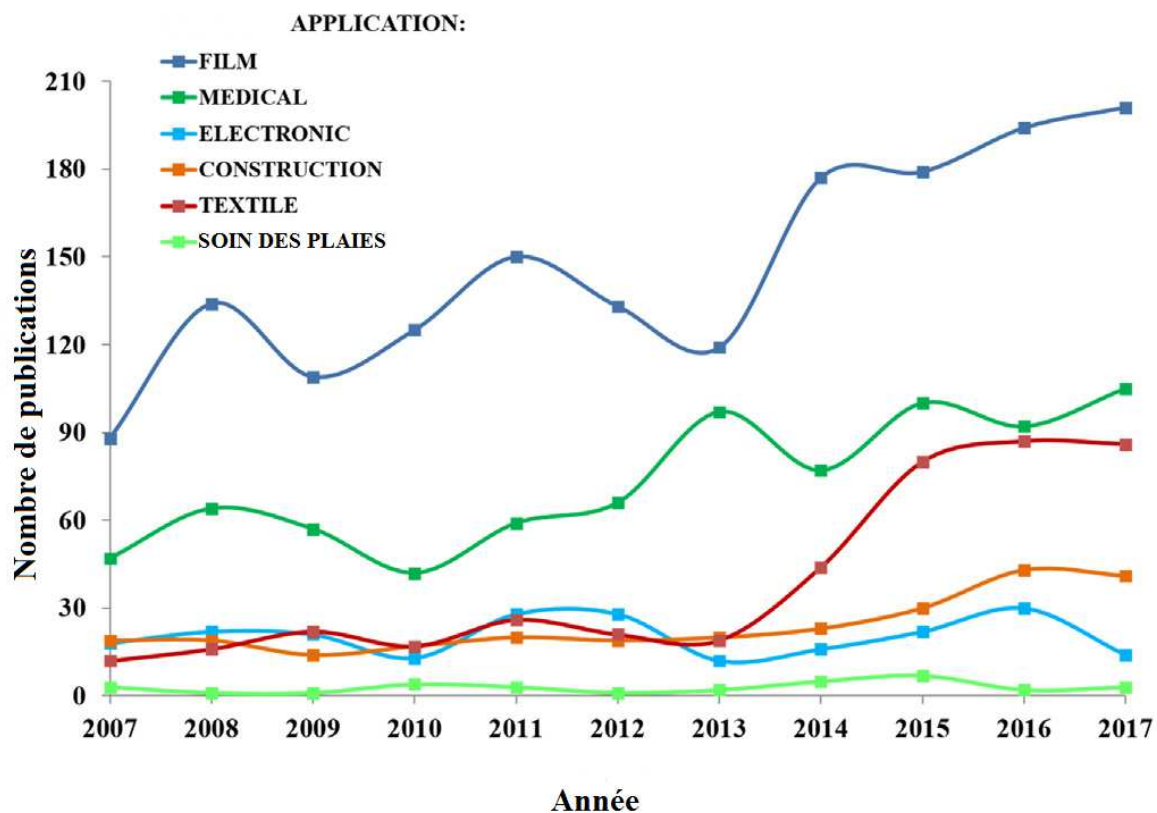
- 1- Les matrices biopolymères PLA, en particulier lorsqu'elles sont remplies de nanocellulose, donnent des nanocomposites hautement biodégradables, résistants et non toxiques avec de bonnes propriétés thermiques et mécaniques. Ce type de composite est entièrement basé sur différentes formes cellulosiques, en deux phases. Ce type de composite a élargi la gamme des applications industrielles des bioplastiques cellulosiques et leur a permis de concurrencer directement de nombreux plastiques traditionnels à base de pétrole.
- 2- Les types (2) et (3) sont constitués de matrices polymères à base de cellulose, de dérivés de la cellulose et de papiers nanocellulosiques, d'aérosols et de films renforcés

par les nanotubes de carbone. Ce sont des composites fonctionnels simples, peu coûteux et solides, aux structures bien mélangées et à conductivité électrique élevée.

- 3- L'incorporation de la cellulose sous ses différentes formes (fibres de cellulose, dérivés de la cellulose et nanocellulose) a élargi l'utilisation des PHA pour donner des matériaux biopolymères. Ces matériaux surmontent les principales difficultés liées à leurs applications à grande échelle, à savoir leurs propriétés et leur coût.

### II.3. 4. Applications des biopolymères

Selon Science Direct **Figure II.20.**, un certain nombre d'applications telles que l'électronique, l'automobile, l'aérospatiale et le biomédical dominant toujours le nombre de publications combinant les mots polymère biosourcé et applications [70].



**Figure II.20.** Publications relatives aux domaines d'applications des biopolymères au cours des 10 dernières années [70].

Les plastiques biodégradables ou les biopolymères confèrent des propriétés particulières à certaines applications et peuvent présenter des avantages spécifiques en termes d'utilisation ou de gestion des déchets. Ils sont déjà utilisés dans certaines applications, notamment dans les secteurs du médical, de l'emballage et de l'agriculture pour lesquels la dégradabilité peut être une qualité souhaitée [18].

### II.3. 4. 1. Applications Médicales et Pharmaceutiques

Ces dernières années, les recherches sur les biopolymères et les composites à base de biopolymères (protéines et de polysaccharides) ont suscité un intérêt considérable pour leur utilisation dans des applications médicales [18,37, 71]. L'utilisation des composites à base de biopolymères augmente considérablement en raison de leurs biocompatibilité, de leurs bonnes propriétés mécaniques, disponibilité à partir des ressources naturelles, faible immunogénicité, non mutagène, non cancérigène, et propriétés non irritantes, biodégradable et comestibles, Et la capacité à adsorber des molécules actives[71,72]. Les biopolymères sont utilisés dans diverses applications médicales en raison de leurs fonctions biomimétiques, similaires aux systèmes à matrice extra-cellulaire (ECM) [71]. Les matériaux biocomposites à base de biopolymères sont préparés en utilisant les caractéristiques bénéfiques de deux biopolymères différents ou plus tout en conservant leurs propriétés physico-chimiques uniques afin d'améliorer les résultats pour les applications médicales [73]. Les composites à base des biopolymères offrent de nombreux avantages dans les applications médicales, tels que la capacité d'agir en tant que molécule porteuse pour la délivrance des composés bioactifs. biocompatibilité avec les tissus; ils possèdent aussi une bonne activité antibactérienne [74].

Les propriétés physicochimiques des biopolymères, telles que la structure, la morphologie, la solubilité, la résistance à la traction et la biomimétisme (ECM) aident à contrôler les propriétés mécaniques des produits à base de biopolymères tels que : les tubes, les éponges poreuses, les fibres électrofilées, les éponges, les pellicules, les microbilles, les membranes, les pansements, les micro-capsules et les hydro-gels [71].

Biopolymers	Applications
Collagène	Feuilles, tubes, éponges, films, membranes et composites
Gélatine	Microcapsules, microsphères, mastic pour prothèses vasculaires, tampons absorbants et pansements
Chitine et Chitosane	Pansements, enduits (antibactériens et stent), membranes, capteurs, molécules porteuses et nanomatériaux
La cellulose et ses Dérivés	Hydrogels
Acide hyaluronique (HA)	Hydrogels, films, fibres électrofilées, mailles non tissées, éponges, feuilles, et fluides nanoparticulaires

PLA	Des supports pour la libération contrôlée de médicaments
-----	--

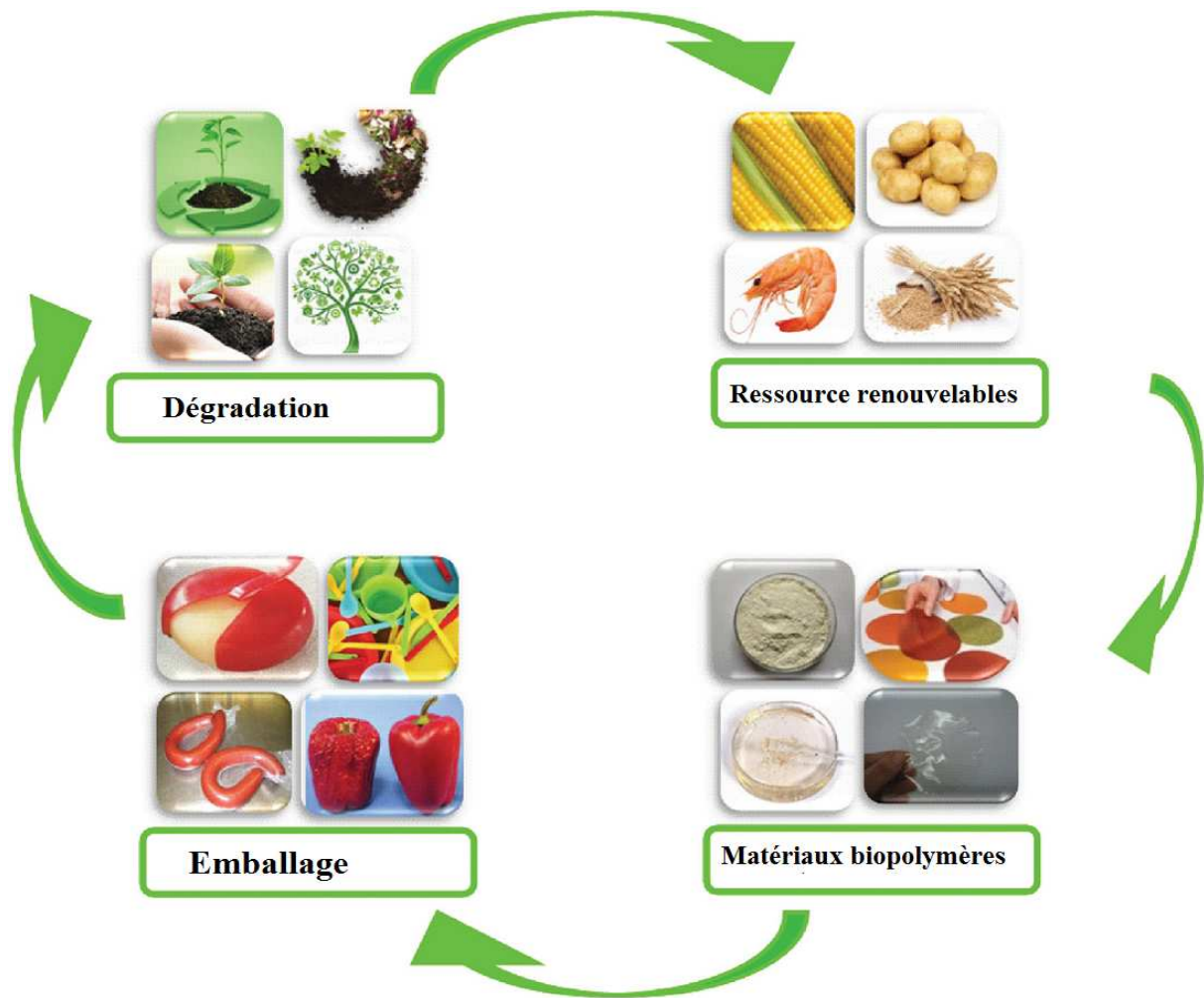
**Tableau II.6.** Les applications en médecine des biopolymères [70,71].

### II.3. 4. 2. Applications des biopolymères en emballage

L'emballage des aliments joue un rôle crucial dans la conservation des aliments tout au long de la chaîne de distribution. L'objectif principal des matériaux d'emballage est de protéger les aliments contre les contaminants et de prolonger leur durée de vie [75,76] , Les polymères dérivés du pétrole sont les matériaux les plus utilisés pour l'emballage des aliments, mais parmi les inconvénients liés à l'utilisation de ces matériaux sont : leur longue durée de vie, l'accumulation croissante de déchets d'emballages [75].

Dans un souci de protection de l'environnement il est la nécessité de créer des matériaux d'emballage biodégradables / compostables [75]. Afin de minimiser les déchets d'emballage et la consommation de dérivés du pétrole, l'une des solutions consiste à utiliser des matériaux d'emballage en biopolymères **Figure II.21.** [75].

L'avènement des biopolymères dans le secteur des emballages alimentaires peut constituer un apport supplémentaire non seulement dans l'amélioration de certaines propriétés fonctionnelles, mais également dans la prise en compte d'autres facteurs liés à la préservation de l'aliment, à l'économie et à l'environnement [34], comme par exemple : L'élimination de toute interaction nuisible avec l'aliment et la santé humaine [34]. La matière première étant une ressource renouvelable, elle peut constituer une alternative aux matières fossiles épuisables et souvent polluantes [34,75,76]. La biodégradabilité [75]. La réduction du volume de déchets dans les décharges [34, 76]. La contribution à la diminution des émissions de CO2 [35, 76,77].



**Figure II.21.** Cycle de vie des matériaux biopolymères utilisés dans l'emballage [75].

Trois types de biopolymères, les polylactides (PLA), les polymères à base d'amidon et les polymères à base de cellulose, connaissent actuellement un développement industriel pour la fabrication des emballages. Ces biopolymères permettent de couvrir une large gamme d'applications dans le secteur emballage. Quelques applications actuelles des biopolymères dans le domaine des emballages sont [77]:

- L'acide poly lactique PLA : Les gobelets, les bols, les bouteilles, les plateaux et sacs rigides, les Sacs, tampons absorbants, les sacs en papier avec fenêtre en PLA.
- L'amidon : Les Plateaux et emballage à base d'amidon
- La cellulose : les Plateaux biosourcés enveloppés d'un film de cellulose, les films de cellulose métallisé ,emballage à base de cellulose.
- Collagen : Les films de collagène présentent de bonnes propriétés antioxydantes et sont utilisés pour l'emballage de viande, de poisson, etc[35].



- Le chitosan et le glutamate de chitosan sont utilisés comme conservateur naturel pour les aliments prédisposés aux altérations fongiques [78] ; il est également utilisé comme matériau d'emballage alimentaire en raison de son action antimicrobienne et comme fibres alimentaires et en tant que médicament potentiel contre l'hypertension [78].

### II.3. 4. 3. Applications des biopolymères en agriculture et horticulture

La production de paillis agricoles, bandes et les rubans de graines à partir des polymères biodégradables **Figure II.22.** constitué un marché à fort demande. Le ruban se biodégrade dans le sol lorsque les graines germent et prennent des racines, les films de paillis en plastique sont ensuite utilisées pour donner aux jeunes plants un bon départ au printemps; le paillis aide à réduire l'évaporation et à conserver l'humidité, augmente la température du sol ; la toile de paillage professionnelle empêche la pénétration de la lumière dans le sol empêchant les mauvaises herbes de pousser. Les feuilles et les filets fabriqués à partir de bioplastiques dégradables sont utilisés en agriculture des champignons et l'enrobage d'arbres et de racines [79].



**Figure II.22.** Paillis agricoles, bandes et rubans de grains en plastique biodégradable [79]

La chitine et le chitosane, généralement appelés «booster de défense», jouent un rôle vital en agriculture, notamment en renforçant le mécanisme de défense des plantes contre les micro-organismes envahisseurs (les parasites, les agents pathogènes) [18]. La chitine et ses dérivés sont utilisés pour réguler croissance et le développement des plantes [78]. La chitine est utilisé comme inducteur pour diverses récoltes telles que le riz, la tomate, l'arachide et la pomme [78].

**Références**

- [1] Lalit, R., Mayank, P., & Ankur, K. (2018). Natural Fibers and Biopolymers Characterization: A Future Potential Composite Material. *Strojnícky Casopis – Journal of Mechanical Engineering*, 68(1), 33–50. doi:10.2478/scjme-2018-0004
- [2] Naveen, J., Jawaid, M., Amuthakkannan, P., & Chandrasekar, M. (2019). Mechanical and physical properties of sisal and hybrid sisal fiber-reinforced polymer composites. *Mechanical and Physical Testing of Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 427–440. doi:10.1016/b978-0-08-102292-4.00021-7
- [3] Shekar, H. S. S., & Ramachandra, M. (2018). Green Composites: A Review. *Materials Today: Proceedings*, 5(1), 2518–2526. doi:10.1016/j.matpr.2017.11.034
- [4] Mohamed, A. L., & Hassabo, A. G. (2015). Flame Retardant of Cellulosic Materials and Their Composites. *Engineering Materials*, 247–314. doi:10.1007/978-3-319-03467-6\_10
- [5] Shaghaleh, H., Xu, X., & Wang, S. (2018). Current progress in production of biopolymeric materials based on cellulose, cellulose nanofibers, and cellulose derivatives. *RSC Advances*, 8(2), 825–842. doi:10.1039/c7ra11157f
- [6] Sabir, T. (2018). Fibers used for high-performance apparel. *High-Performance Apparel*, 7–32. doi:10.1016/b978-0-08-100904-8.00002-x
- [7] Charlet, K., et al. (2007). Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites. *Compos. Appl. Sci. Manuf.* 38(8), 1912–1921.
- [8] Prasad, C. V., Lee, D. W., Sudhakara, P., Jagadeesh, D., Kim, B. S., Bae, S. I., & Song, J. I. (2013). Characteristic Studies of Plasma Treated unidirectional *Hildegardia Populifolia* Fabric. *Composites Research*, 26(1), 54–59. doi:10.7234/kscm.2013.26.1.54
- [9] Ekundayo, G. (2019). Reviewing the Development of Natural Fiber Polymer Composite: A Case Study of Sisal and Jute. *American Journal of Mechanical and Materials Engineering*, 3(1), 1-10. doi:10.11648/j.ajmme.20190301.11
- [10] Ashraf, M. A., Zwawi, M., Taqi Mehran, M., Kanthasamy, R., & Bahadar, A. (2019). Jute Based Bio and Hybrid Composites and Their Applications. *Fibers*, 7(9), 77. doi:10.3390/fib7090077

- [11] Yixian, W., Panpan, G., Shengbiao, S., Haiping, Y., & Binxiang, Y. (2016). Study on Strength Influence Mechanism of Fiber-Reinforced Expansive Soil Using Jute. *Geotechnical and Geological Engineering*, 34(4), 1079–1088. doi:10.1007/s10706-016-0028-4
- [12] Sfiligoj, M., Hribernik, S., Stana, K., & Kree, T. (2013). Plant Fibres for Textile and Technical Applications. *Advances in Agrophysical Research*. 369- 398. doi:10.5772/52372
- [13] Elanchezhian, C., Ramnath, B. V., Ramakrishnan, G., Rajendrakumar, M., Naveenkumar, V., & Saravanakumar, M. K. (2018). Review on mechanical properties of natural fiber composites. *Materials Today: Proceedings*, 5(1), 1785–1790. doi:10.1016/j.matpr.2017.11.276
- [14] Li, Y., Mai, Y.-W., & Ye, L. (2000). Sisal fibre and its composites: a review of recent developments. *Composites Science and Technology*, 60(11), 2037–2055. doi:10.1016/s0266-3538(00)00101-9
- [15] Mather R.R., Wardman R.H. (2011). *The Chemistry of Textile fibres*. Cambridge: RSC Publishing;
- [16] Shankar, S., & Rhim, J.-W. (2018). Bionanocomposite Films for Food Packaging Applications. *Reference Module in Food Science*. doi:10.1016/b978-0-08-100596-5.21875-1
- [17] Endres, H.-J., & Siebert-Raths, A. (2011). *Engineering Biopolymers*. doi:10.3139/9783446430020
- [18] Ahmed, S., Kanchi, S., & Kumar, G. (Eds.). (2018). *Handbook of Biopolymers*. doi:10.1201/9780429024757
- [19] Karthik, T., & Rathinamoorthy, R. (2017). Sustainable Biopolymers in Textiles: An Overview. *Handbook of Ecomaterials*, 1–27. doi:10.1007/978-3-319-48281-1\_53-1
- [20] Ahmed, S. (2018). *Biocomposites*. doi:10.1201/9781315110806
- [21] Niaounakis, M. (2019). Recycling of biopolymers – The patent perspective. *European Polymer Journal*, 114, 464–475. doi:10.1016/j.eurpolymj.2019.02.027
- [22] *Biopolymer Composites in Electronics*. (2017). doi:10.1016/c2014-0-04575-3

- [23] Bajpai, P. (2019). Description of biobased polymers. *Biobased Polymers*, 13–23. doi:10.1016/b978-0-12-818404-2.00002-3
- [24] Jawaid, M., & Swain, S. K. (Eds.). (2018). *Bionanocomposites for Packaging Applications*. doi:10.1007/978-3-319-67319-6
- [25] Verma, D., & Fortunati, E. (2019). Biopolymer processing and its composites. *Biomass, Biopolymer-Based Materials, and Bioenergy*, 3–23. doi:10.1016/b978-0-08-102426-3.00001-1
- [26] Othman, S. H. (2014). Bio-nanocomposite Materials for Food Packaging Applications: Types of Biopolymer and Nano-sized Filler. *Agriculture and Agricultural Science Procedia*, 2, 296–303. doi:10.1016/j.aaspro.2014.11.042
- [27] Elsayy, M. A., Kim, K.-H., Park, J.-W., & Deep, A. (2017). Hydrolytic degradation of polylactic acid (PLA) and its composites. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 79, 1346–1352. doi:10.1016/j.rser.2017.05.143
- [28] Siracusa, V. (2019). Microbial Degradation of Synthetic Biopolymers Waste. *Polymers*, 11(6), 1066. doi:10.3390/polym11061066
- [29] Cirillo, G., Spizzirri, U. G., & Iemma, F. (Eds.). (2015). *Functional Polymers in Food Science*. doi:10.1002/9781119109785
- [30] Aimé, C., & Coradin, T. (Eds.). (2017). *Bionanocomposites*. doi:10.1002/9781118942246
- [31] Pacheco-Torgal, F. (2016). Introduction to biopolymers and biotech admixtures for eco-efficient construction materials. *Biopolymers and Biotech Admixtures for Eco-Efficient Construction Materials*, 1–10. doi:10.1016/b978-0-08-100214-8.00001-4
- [32] Brosda, M., Nguyen, P., Olowinsky, A., & Gillner, A. (2018). Laserwelding of biopolymers. *Procedia CIRP*, 74, 548–552. doi:10.1016/j.procir.2018.08.116
- [33] Gómez-Mascaraque, L. G., Fabra, M. J., Castro-Mayorga, J. L., Sánchez, G., Martínez-Sanz, M., & López-Rubio, A. (2018). Nanostructuring Biopolymers for Improved Food Quality and Safety. *Biopolymers for Food Design*, 33–64. doi:10.1016/b978-0-12-811449-0.00002-5

- [34] Prameela, K., Murali Mohan, C., & Ramakrishna, C. (2018). Biopolymers for Food Design: Consumer-Friendly Natural Ingredients. *Biopolymers for Food Design*, 1–32. doi:10.1016/b978-0-12-811449-0.00001-3
- [35] Bajpai, P. (2019). Properties of biobased packaging material. *Biobased Polymers*, 25–111. doi:10.1016/b978-0-12-818404-2.00003-5
- [36] Park, S.-B., Lih, E., Park, K.-S., Joung, Y. K., & Han, D. K. (2017). Biopolymer-based functional composites for medical applications. *Progress in Polymer Science*, 68, 77–105. doi:10.1016/j.progpolymsci.2016.12.003
- [37] Mohan, S., Oluwafemi, O. S., Kalarikkal, N., Thomas, S., & Songca, S. P. (2016). Biopolymers – Application in Nanoscience and Nanotechnology. *Recent Advances in Biopolymers*. doi:10.5772/62225
- [38] Sonnier, R., Taguet, A., Ferry, L., & Lopez-Cuesta, J.-M. (2018). Towards Bio-based Flame Retardant Polymers. *SpringerBriefs in Molecular Science*. doi:10.1007/978-3-319-67083-6
- [39] Kim, J., Yun, S., & Ounaies, Z. (2006). Discovery of Cellulose as a Smart Material. *Macromolecules*, 39(12), 4202–4206. doi:10.1021/ma060261e
- [40] D. Theander. (1985), Review of straw. Carbohydrate research, in: R.D. Hill, L. Munk (Eds.), *New Approaches to research on Cereal Carbohydrates*, Elsevier science publisher, Amsterdam,217-230.
- [41] Zhang, X., Liu, X., Zheng, W., & Zhu, J. (2012). Regenerated cellulose/graphene nanocomposite films prepared in DMAC/LiCl solution. *Carbohydrate Polymers*, 88(1), 26–30. doi:10.1016/j.carbpol.2011.11.054
- [42] Zhang, Y., Liu, Y., Wang, X., Sun, Z., Ma, J., Wu, T., ... Gao, J. (2014). Porous graphene oxide/carboxymethyl cellulose monoliths, with high metal ion adsorption. *Carbohydrate Polymers*, 101, 392–400. doi:10.1016/j.carbpol.2013.09.066
- [43] Kafy, A., Sadasivuni, K. K., Akther, A., Min, S.-K., & Kim, J. (2015). Cellulose/graphene nanocomposite as multifunctional electronic and solvent sensor material. *Materials Letters*, 159, 20–23. doi:10.1016/j.matlet.2015.05.102

- [44] Mariano, M., El Kissi, N., & Dufresne, A. (2014). Cellulose nanocrystals and related nanocomposites: Review of some properties and challenges. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, 52(12), 791–806. doi:10.1002/polb.23490
- [45] Azizi Samir, M. A. S., Alloin, F., & Dufresne, A. (2005). Review of Recent Research into Cellulosic Whiskers, Their Properties and Their Application in Nanocomposite Field. *Biomacromolecules*, 6(2), 612–626. doi:10.1021/bm0493685
- [46] Favier, V., Chanzy, H., & Cavaille, J. Y. (1995). Polymer Nanocomposites Reinforced by Cellulose Whiskers. *Macromolecules*, 28(18), 6365–6367. doi:10.1021/ma00122a053
- [47] Mangalam, A. P., Simonsen, J., & Benight, A. S. (2009). Cellulose/DNA Hybrid Nanomaterials. *Biomacromolecules*, 10(3), 497–504. doi:10.1021/bm800925x
- [48] Sadasivuni, K. K., Kafy, A., Zhai, L., Ko, H.-U., Mun, S., & Kim, J. (2014). Transparent and Flexible Cellulose Nanocrystal/Reduced Graphene Oxide Film for Proximity Sensing. *Small*, 11(8), 994–1002. doi:10.1002/sml.201402109
- [49] GAO, X., SADASIVUNI, K. K., KIM, H.-C., MIN, S.-K., & KIM, J. (2015). Designing pH-responsive and dielectric hydrogels from cellulose nanocrystals. *Journal of Chemical Sciences*, 127(6), 1119–1125. doi:10.1007/s12039-015-0873-3
- [50] DUBEY, V., PANDEY, L., & SAXENA, C. (2005). Pervaporative separation of ethanol/water azeotrope using a novel chitosan-impregnated bacterial cellulose membrane and chitosan?poly(vinyl alcohol) blends. *Journal of Membrane Science*, 251(1-2), 131–136. doi:10.1016/j.memsci.2004.11.009
- [51] Fernandes, S. C. M., Freire, C. S. R., Silvestre, A. J. D., Pascoal Neto, C., Gandini, A., Berglund, L. A., & Salmén, L. (2010). Transparent chitosan films reinforced with a high content of nanofibrillated cellulose. *Carbohydrate Polymers*, 81(2), 394–401. doi:10.1016/j.carbpol.2010.02.037
- [52] Deshmukh, K., Basheer Ahamed, M., Deshmukh, R. R., Khadheer Pasha, S. K., Bhagat, P. R., & Chidambaram, K. (2017). Biopolymer Composites With High Dielectric Performance: Interface Engineering. *Biopolymer Composites in Electronics*, 27–128. doi:10.1016/b978-0-12-809261-3.00003-6
- [53] Nordqvist, D., Idermark, J., Hedenqvist, M. S., Gällstedt, M., Ankerfors, M., & Lindström, T. (2007). Enhancement of the Wet Properties of Transparent

- Chitosan–Acetic-Acid–Salt Films Using Microfibrillated Cellulose. *Biomacromolecules*, 8(8), 2398–2403. doi:10.1021/bm070246x
- [54] Lee, K.-Y., Aitomäki, Y., Berglund, L. A., Oksman, K., & Bismarck, A. (2014). On the use of nanocellulose as reinforcement in polymer matrix composites. *Composites Science and Technology*, 105, 15–27. doi:10.1016/j.compscitech.2014.08.032
- [55] Nissilä, T., Hietala, M., & Oksman, K. (2019). A method for preparing epoxy-cellulose nanofiber composites with an oriented structure. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 125, 105515. doi:10.1016/j.compositesa.2019.105515
- [56] Nakagaito, A. N., & Yano, H. (2005). Novel high-strength biocomposites based on microfibrillated cellulose having nano-order-unit web-like network structure. *Applied Physics A*, 80(1), 155–159. doi:10.1007/s00339-003-2225-2
- [57] Henriksson, M., Fogelström, L., Berglund, L. A., Johansson, M., & Hult, A. (2011). Novel nanocomposite concept based on cross-linking of hyperbranched polymers in reactive cellulose nanopaper templates. *Composites Science and Technology*, 71(1), 13–17. doi:10.1016/j.compscitech.2010.09.006
- [58] Qing, Y., Sabo, R., Cai, Z., & Wu, Y. (2013). Resin impregnation of cellulose nanofibril films facilitated by water swelling. *Cellulose*, 20(1), 303–313. doi:10.1007/s10570-012-9815-0
- [59] Ansari, F., Galland, S., Johansson, M., Plummer, C. J. G., & Berglund, L. A. (2014). Cellulose nanofiber network for moisture stable, strong and ductile biocomposites and increased epoxy curing rate. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 63, 35–44. doi:10.1016/j.compositesa.2014.03.017
- [60] Zimmermann, T., Pöhler, E., & Geiger, T. (2004). Cellulose Fibrils for Polymer Reinforcement. *Advanced Engineering Materials*, 6(9), 754–761. doi:10.1002/adem.200400097
- [61] Tingaut, P., Zimmermann, T., & Lopez-Suevos, F. (2010). Synthesis and Characterization of Bionanocomposites with Tunable Properties from Poly(lactic acid) and Acetylated Microfibrillated Cellulose. *Biomacromolecules*, 11(2), 454–464. doi:10.1021/bm901186u



- [62] Favier, V., Canova, G. R., Cavaillé, J. Y., Chanzy, H., Dufresne, A., & Gauthier, C. (1995). Nanocomposite materials from latex and cellulose whiskers. *Polymers for Advanced Technologies*, 6(5), 351–355. doi:10.1002/pat.1995.220060514
- [63] Jonoobi, M., Harun, J., Mathew, A. P., & Oksman, K. (2010). Mechanical properties of cellulose nanofiber (CNF) reinforced polylactic acid (PLA) prepared by twin screw extrusion. *Composites Science and Technology*, 70(12), 1742–1747. doi:10.1016/j.compscitech.2010.07.005
- [64] Hietala, M., Mathew, A. P., & Oksman, K. (2013). Bionanocomposites of thermoplastic starch and cellulose nanofibers manufactured using twin-screw extrusion. *European Polymer Journal*, 49(4), 950–956. doi:10.1016/j.eurpolymj.2012.10.016
- [65] Lee, K.-Y., Tammelin, T., Schulfter, K., Kiiskinen, H., Samela, J., & Bismarck, A. (2012). High Performance Cellulose Nanocomposites: Comparing the Reinforcing Ability of Bacterial Cellulose and Nanofibrillated Cellulose. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 4(8), 4078–4086. doi:10.1021/am300852a
- [66] Aitomäki, Y., Moreno-Rodriguez, S., Lundström, T. S., & Oksman, K. (2016). Vacuum infusion of cellulose nanofibre network composites: Influence of porosity on permeability and impregnation. *Materials & Design*, 95, 204–211. doi:10.1016/j.matdes.2016.01.060
- [67] Ansari, F., & Berglund, L. A. (2018). Toward Semistructural Cellulose Nanocomposites: The Need for Scalable Processing and Interface Tailoring. *Biomacromolecules*, 19(7), 2341–2350. doi:10.1021/acs.biomac.8b00142
- [68] Gurunathan, T., Mohanty, S., & Nayak, S. K. (2015). A review of the recent developments in biocomposites based on natural fibres and their application perspectives. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 77, 1–25. doi:10.1016/j.compositesa.2015.06.007
- [69] Thakur, V. K., & Singha, A. S. (Eds.). (2015). *Surface Modification of Biopolymers*. doi:10.1002/9781119044901
- [70] Galiano, F., Briceño, K., Marino, T., Molino, A., Christensen, K. V., & Figoli, A. (2018). Advances in biopolymer-based membrane preparation and applications. *Journal of Membrane Science*, 564, 562–586. doi:10.1016/j.memsci.2018.07.059

- [71] Kumar, S. S. D., Houreld, N. N., & Abrahamse, H. (2019). Biopolymer-Based Composites for Medical Applications. Reference Module in Materials Science and Materials Engineering. doi:10.1016/b978-0-12-803581-8.10557-0
- [72] Jacob, J., Haponiuk, J. T., Thomas, S., & Gopi, S. (2018). Biopolymer based nanomaterials in drug delivery systems: A review. *Materials Today Chemistry*, 9, 43–55. doi:10.1016/j.mtchem.2018.05.002
- [73] Kumar, S. S. D., Rajendran, N. K., Houreld, N. N., & Abrahamse, H. (2018). Recent advances on silver nanoparticle and biopolymer-based biomaterials for wound healing applications. *International Journal of Biological Macromolecules*, 115, 165–175. doi:10.1016/j.ijbiomac.2018.04.003
- [74] Nitta, S., & Numata, K. (2013). Biopolymer-Based Nanoparticles for Drug/Gene Delivery and Tissue Engineering. *International Journal of Molecular Sciences*, 14(1), 1629–1654. doi:10.3390/ijms14011629
- [75] Popović, S. Z., Lazić, V. L., Hromiš, N. M., Šuput, D. Z., & Bulut, S. N. (2018). Biopolymer Packaging Materials for Food Shelf-Life Prolongation. *Biopolymers for Food Design*, 20, 223–277. doi:10.1016/b978-0-12-811449-0.00008-6
- [76] Bajpai, P. (2019). Background and introduction. *Biobased Polymers*, 1–12. doi:10.1016/b978-0-12-818404-2.00001-1
- [77] Kumar, S., & Thakur, K. (2017). Bioplastics - classification, production and their potential food applications. *Journal of Hill Agriculture*, 8(2), 118. doi:10.5958/2230-7338.2017.00024.6
- [78] Sudha, P. N. (Ed.). (2017). *Industrial Applications of Marine Biopolymers*. doi:10.4324/9781315313535
- [79] Ashter, S. A. (2016). Commercial Applications of Bioplastics. *Introduction to Bioplastics Engineering*, 227–249. doi:10.1016/b978-0-323-39396-6.00009-9
- [80] Patachia, S., & Croitoru, C. (2016). Biopolymers for wood preservation. *Biopolymers and Biotech Admixtures for Eco-Efficient Construction Materials*, 305-332. doi:10.1016/b978-0-08-100214-8.00014-2

# *Chapitre III*

---

## *Modélisation de L'endommagement De L'interface.*

L'ENDOMMAGEMENT, COMME LE DIABLE, INVISIBLE MAIS  
REDOUTABLE

*Jean Lemaitre et Chaboche*

### **III.1. Introduction**

Les matériaux composites sont, par conception, constitués de différents matériaux. L'un des principaux objectifs de ces matériaux est d'assurer la liaison entre les constituants pour permettre la transmission des contraintes entre les renforts et la matrice. La liaison entre les renforts et la matrice peut résulter de liaisons covalentes ou d'interactions physico-chimiques. Les liaisons les plus fortes résultent d'une liaison covalente et d'une modification de la chimie de la surface de renfort est souvent utilisée dans les matériaux composites provenant de la pétrochimie pour induire des liaisons covalentes avec des résines réactives comme l'époxy. Ces types de traitements de surface impliquent une augmentation de l'empreinte de dioxyde de carbone du processus globale de fabrication des matériaux composites. Concentrant sur la minimisation de cette empreinte par l'utilisation des renforts biosourcés, l'ajout d'un traitement chimique peut contrebalancer le gain du point de vue environnemental. Plusieurs méthodes ont été explorés pour améliorer la mouillabilité et la liaison des renforts biosourcés par des résines polymères. Le traitement le plus courant qui a été testé sur une grande quantité de fibres est un traitement alcalin pour résoudre certains composants de la surface du renforcement naturel [1].

Les fibres naturelles représentent une réelle opportunité pour remplacer les fibres synthétiques conventionnelles dans les applications composites. Cependant, même s'ils présentent plusieurs avantages par rapport aux fibres synthétiques (légèreté, prix...), leur sensibilité à l'humidité, leur faible compatibilité avec les matrices de polymères et leur faible stabilité thermique et inflammabilité rendent leur modification par des traitements chimiques ou physiques essentielle. Les performances finales de tout système (nano)composite dépendent fortement de la teneur en charges et des propriétés intrinsèques (rigidité, résistance, morphologie...) mais aussi de la région d'interface charge /matrice[2].

L'étude et le contrôle des propriétés interfaciales et de leur impact sur les propriétés macroscopiques constituent donc un enjeu clé pour comprendre et modéliser les relations structure/propriétés fonctionnelles dans les biocomposites et améliorer leurs performances [2].

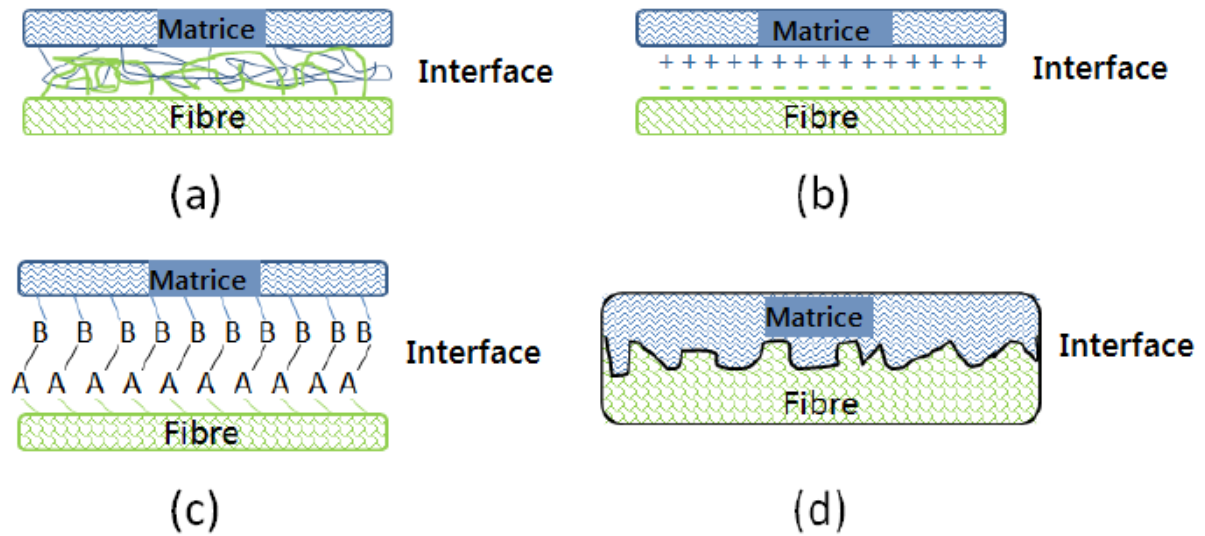
## III.2. Mécanismes de liaison

Dans les composites à fibres végétales, les principaux constituants sont les fibres de renfort et la phase de matrice polymère. Les propriétés et les performances des matériaux composites dépendent de trois paramètres principaux: la matrice, le renforcement et l'interface. La région d'interface entre la fibre et la matrice a été reconnue pour jouer un rôle prédominant dans le comportement général des matériaux composites [3].

### III.2. 1. L'interface

C'est une ligne d'hétérogénéité divisant deux phases ou entités physiquement distinctes et séparables dans un matériau multiphase [4]; souvent considérée comme une région intermédiaire formée en raison de la liaison de la fibre et de la matrice, est en fait une zone de composition, de structure et de propriété, variant généralement en largeur d'une couche d'un seul atome à micromètres. Il existe une relation étroite entre les processus qui se produisent aux niveaux atomique, microscopique et macroscopique à l'interface. En fait, la connaissance des séquences d'événements qui se produisent sur ces différents niveaux est extrêmement important dans la compréhension de la nature des phénomènes interfaciales. La région d'interface contrôle le transfert de contrainte entre la fibre et la matrice et dépend principalement du niveau d'adhésion interfaciale. Une résistance interfaciale raisonnable assure le niveau de stress maximal qui peut être maintenu à travers l'interface fibre/ matrice sans interruption. L'efficacité du transfert de charge est déterminée par l'interaction moléculaire à l'interface, ainsi que par l'épaisseur et la résistance de la région interfaciale formée. Les mécanismes de liaison interfaciale fibre-matrice ont présentés à la **Figure III.1.** en général comprennent [3]:

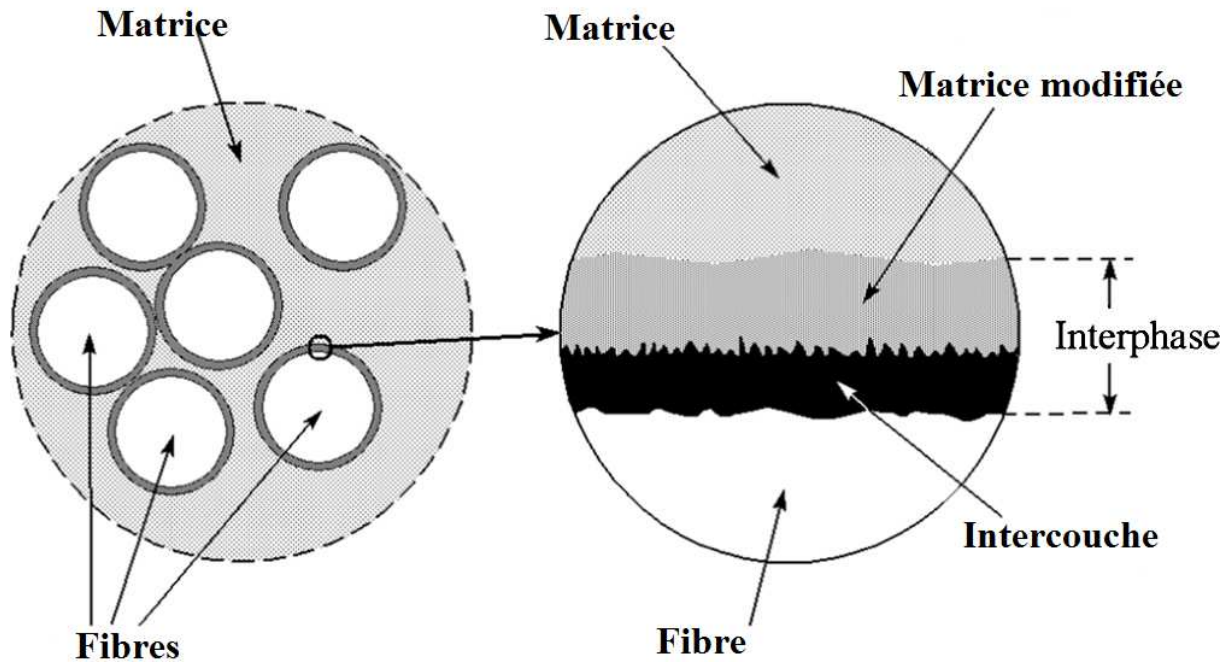
- L'inter-diffusion,
- L'adhérence électrostatique,
- Les réactions chimiques
- L'ancrage mécanique,



**Figure III.1.** Mécanismes de liaison interfaciale fibre-matrice: (a) interdiffusion moléculaire, (b) adhésion électrostatique, (c) liaison chimique et (d) l'ancrage mécanique [3].

### III.2. 2. L'interphase

L'interphase est une région tridimensionnelle entre la fibre et la matrice [4-6]. Il comprend non seulement la zone bidimensionnelle (2D) de contact (interface) entre la fibre et la matrice, mais aussi une région d'une certaine épaisseur finie s'étendant sur les deux côtés de l'interface dans la fibre et la matrice [6]. L'épaisseur d'interphase dans les matériaux composites varie de quelques centaines de nanomètres à quelques microns [2]. Une illustration schématique de l'interphase dans un composite est donnée dans la **Figure III.2.** avec une section transversale d'un composite renforcé par des fibres (à gauche) et un détail de la région située à la surface des fibres (à droite). La couche intermédiaire devrait améliorer la compatibilité entre la fibre et la matrice en formant un lien fort mais solide entre les deux phases. Nous pouvons distinguer trois interfaces dans la région, c'est-à-dire trois zones de contact 2D, entre les phases composites [6].



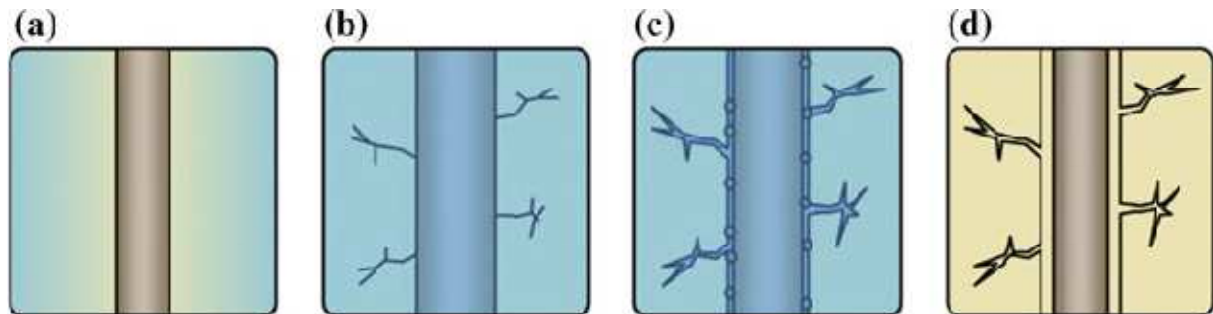
**Figure III. 2.** Illustration schématique d'une interphase d'un matériau composite [6].

L'interphase incorpore des effets de la chimisorption et de la physisorption, des interactions chimiques, des gradients de densité de réticulation ou des modifications de la texture cristalline (transcristallisation), ainsi que des défauts (porosités interfaciales et autres anomalies locales) [2].

### III.3. Importance et rôle de l'interface fibre / matrice

Le mécanisme de transfert de charge entre la fibre et la matrice et le comportement de l'interface fibre-matrice jouent un rôle important dans la détermination des propriétés mécaniques des composites renforcés par des fibres, tels que le module d'élasticité, la résistance à la traction et la résistance à la rupture, ils ont reçu une attention considérable et ont fait l'objet de plusieurs études approfondies. Les contraintes de traction agissant sur les composites peuvent être transférées entre la matrice et les fibres par cisaillement à l'interface fibre-matrice [7].

L'intérêt croissant pour la compréhension de l'interface fibre / matrice (ou interphase) des composites est justifié par le rôle crucial joué par cette zone dans les propriétés des matériaux, en particulier sa contribution essentielle à la transmission des forces mécaniques, ainsi que son rôle protecteur contre le vieillissement des composites, notamment en milieu humide voire la **Figure III.3.** [2].



**Figure III.3.** Mécanismes d'endommagement susceptibles de se produire dans les composites renforcés de fibres lignocellulosiques au cours du vieillissement hydrothermal : *a* : diffusion de l'eau dans le composite, *b* : Gonflement des fibres conduisant à des microfissures au sein de la matrice, *c* : diffusion de l'eau et lessivage possible de substances solubles dans l'eau contenues dans les fibres et la matrice, *d* : Décohésion de l'interface fibre / matrice pendant le séchage [2,8].

Une exigence fondamentale pour l'obtention des matériaux composites à hautes performances est l'efficacité du transfert de contraintes qui a lieu à l'interface fibre/matrice. Les fibres supportent la charge mécanique appliquée tandis que la matrice la transfère et la redistribue d'une fibre à l'autre à travers l'interface, à condition que la liaison fibre / matrice soit forte. En effet, l'un des modes d'endommagement les plus courants dans les composites est la rupture à l'interface [2].

#### III.4. Modes de rupture de l'interface

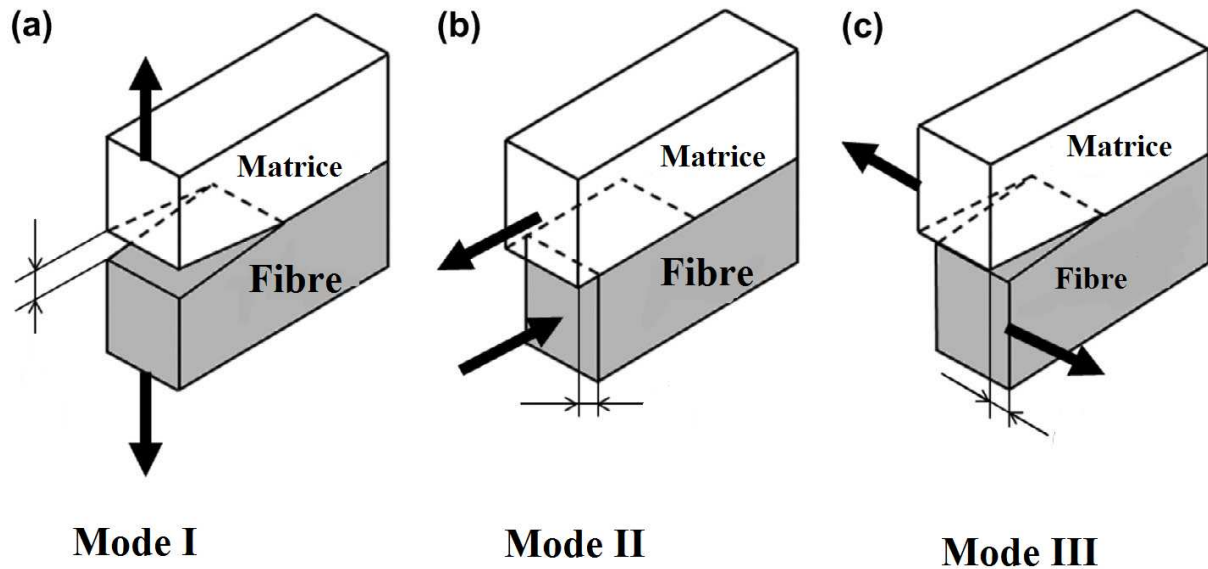
Lorsqu'une charge est appliquée au composite, trois modes de fracture au niveau de l'interface fibre-matrice peuvent apparaître: le mode d'ouverture, le mode de cisaillement et le mode de déchirement. La différence entre ces modes de fracture réside dans la direction de séparation entre la fibre et la matrice, comme illustré dans **Figure III.4.** [9]. Donc les fissures peuvent se propager [10]:

**Mode I** : Les fissures peuvent se propager dans le plan perpendiculaire à la contrainte normale

**Mode II** : Les fissures peuvent se propager dans le plan avec des contraintes de cisaillement et perpendiculaire au front de fissure.



**Mode III** : Les fissures peuvent se propager dans le plan avec la contrainte de cisaillement et parallèlement au front de fissure.



**Figure III.4.** Directions de séparation à l'interface pour le mode d'ouverture (a), le mode de cisaillement (b) et le mode de déchirement (c) [9, 11,12].

### III. 5. Techniques expérimentales de mesure

#### III. 5. 1. Méthodes directes d'évaluations interfaciales

De nombreuses techniques expérimentales ont été proposées dans le passé pour déterminer les propriétés de l'endommagement de l'interface fibre –matrice. Parmi les plus populaires, on peut citer le test push-out, le test pull-out (Le test déchaussement), le test de micro-liaison, le test de micro-indentation et le test de fragmentation sur une seule fibre (SFFT). Tous ces tests sont effectués sur des échantillons d'une seule fibre. Dans les premiers essais, la charge est appliquée directement à la fibre, et donc de faibles charges peuvent être utilisées, ce qui rend difficile la détermination des propriétés de rupture fiables. Par contre, lors du dernier test (le SFFT), la charge est appliquée à l'échantillon, ce qui donne lieu à une procédure d'essai plus répétable [13].

#### III. 5. 1.1. Essais micromécaniques de caractérisation de l'interface fibre/matrice

##### III. 5. 1. 1. 1. Test de fragmentation de la fibre

Le test de fragmentation de fibre (SFFT) est un test micromécanique à fibre unique dans lequel la fibre incorporée dans une matrice (en forme de os de chien) [3, 4, 13], la fibre

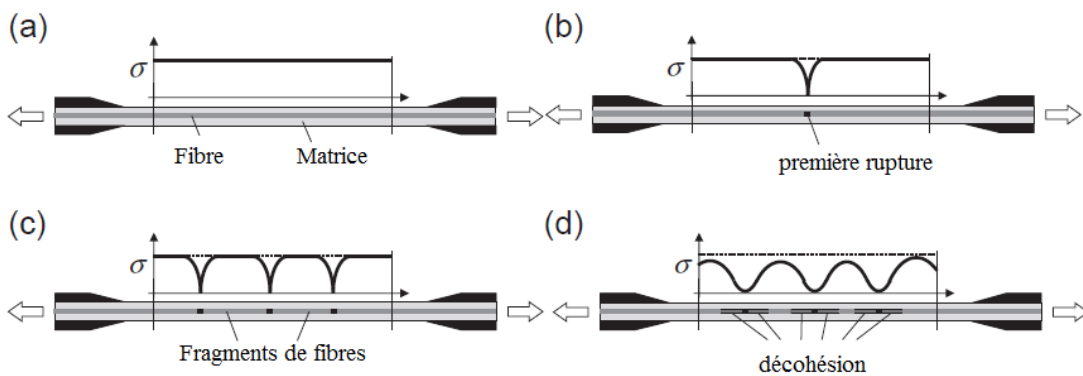
(unique) se brisera plusieurs fois (fracture multiple), et chaque rupture de fibre donne deux extrémités de fibre qui se rétractent dans le trou de la matrice [22]. Ceci est illustré dans la **Figure III.5**, ce phénomène s'arrête lorsque la longueur des fragments atteint une valeur limite (la longueur critique)  $l_c$  [3, 4,13].

La contrainte au cisaillement  $\tau_i$  à l'interface fibre/matrice est donnée par [3, 4]:

$$\tau_i = \frac{\sigma_f d}{2l_c} \quad (\text{III . 01})$$

Où :

- $d$  : Est le diamètre de la fibre,
- $\sigma_f$  : Est la contrainte de traction à la rupture de la fibre,



**Figure III.5.** Schéma d'un essai de fragmentation à une seule fibre. (a) Avant la première rupture de fibre. (b) Après la première rupture de fibre. (c) Pendant la fragmentation. (d) Au cours de la fragmentation avec une croissance simultanée de la décohésion interfaciale [13].

### III. 5. 1. 1. 2. Essai de déchaussement "pull-out"

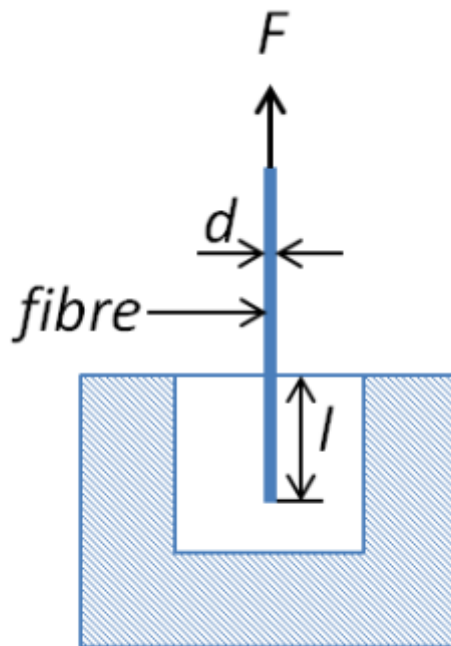
Le test pull-out est le plus ancien des tests sur une seule fibre [14]. La fibre est noyée dans un bloc de matrice, une charge croissante est appliquée lorsque la fibre est retirée de la matrice, alors que la charge et le déplacement sont mesurés. Après avoir atteint la valeur maximale  $F$  la partie insérée de la fibre est totalement décollée [3].

La contrainte moyenne de cisaillement à l'interface fibre/matrice est donnée par la formule suivante [3,4] :

$$\tau_i = \frac{F}{\pi dl} \quad (\text{III. 02})$$

Où :

- $F$  : Est la force maximale mesurée
- $d$  : Est le diamètre de la fibre,
- $l$  : Est la longueur insérée de la fibre dans la matrice (longueur de l'interface).



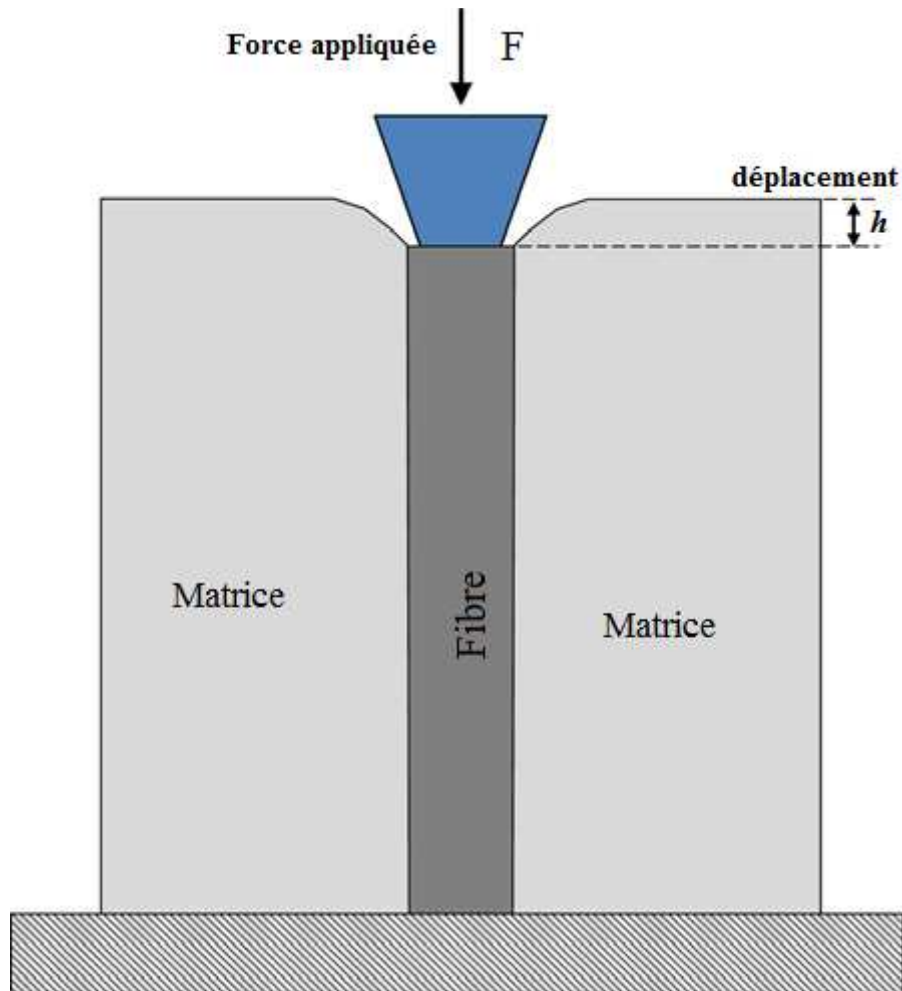
**Figure III.6.** Test de déchaussement d'une micro-épreuve de matrice (pull-out) [3].

### III. 5. 1. 2. Essais nanomécaniques de caractérisation de l'interface fibre/matrice

#### III. 5. 1. 2. 1. La nanoindentation "push-in"

La nanoindentation quasi statique est une technique standard utilisée pour la caractérisation nanomécanique des matériaux [3]. C'est une méthode permettant de mesurer la dureté et la rigidité de très petites particules [15], et a récemment trouvé son application possible sur les plastiques et les fibres naturelles [3]. Le principe de la nanoindentation consiste à mesurer la profondeur d'enfoncement d'un indenteur de géométrie connue dans un matériau dans le but d'obtenir ses propriétés mécaniques [3]. La pointe utilisée sur l'appareillage est une pointe Berkovich (géométrie pyramidale à base triangulaire) [16]. Dans un essai type, une charge comprise entre 10  $\mu\text{N}$  et 500 mN est appliquée à un indenteur en

contact avec la surface de l'éprouvette, une empreinte/impression est faite (généralement 10-500 nm) qui consiste en une déformation plastique et élastique [3].



**Figure III.7.** Représentation schématique du test de nanoindentation [16,17].

La courbe force / déplacement sert à évaluer les propriétés quantitatives des matériaux à l'échelle nanométrique. L'analyse de la courbe de force en fonction du déplacement fournit à l'utilisateur des informations quantitatives sur les propriétés mécaniques de l'éprouvette. Ce test permet de mesurer une gamme de propriétés ; tels que la dureté, la ténacité, la rigidité, le délaminage ou la force de décohésion, et les contraintes d'interface peuvent être évaluées avec une précision raisonnable [4]. Le modèle utilisé pour le calcul du module d'élasticité et de la dureté est celle développée par Oliver et Pharr [3,18]. Il s'agit du modèle le plus largement utilisé dans le domaine de la nanoindentation[3].

### III. 5. 2. Méthodes indirectes d'évaluation interfaciale

#### III. 5. 2. 1. L'essai de cisaillement à faisceau court " short beam shear "

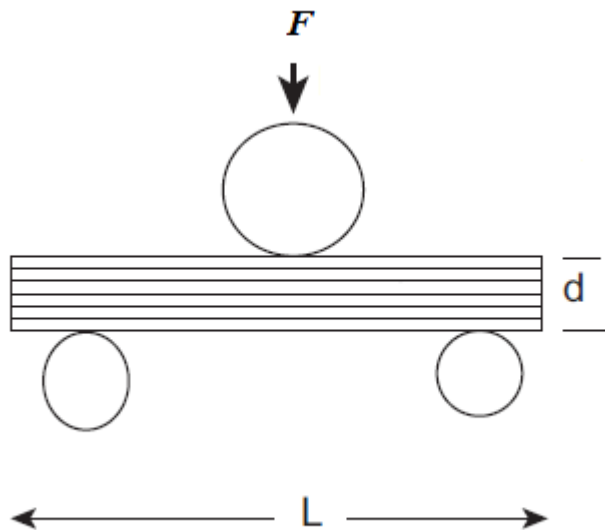
Parmi les méthodes possibles permettant d'évaluer l'ILSS (*La résistance au cisaillement interlaminaire*) des composites [2]. Le test " *short beam shear strength* " est recommandé pour évaluer l'influence de la liaison fibre-matrice sur la résistance au cisaillement interlaminaire au niveau du stratifié, mais en tant que manifestation à l'échelle mésoscopique [4]. Il s'agit d'un simple test effectué avec un échantillon de flexion à trois points [2] **Figure III.8**. Le ILSS ou  $\tau_i$  est donné comme [2, 4]:

$$\tau_i = \frac{3 F_{max}}{4 A} \quad (III . 03 )$$

Où

- $F_{max}$  : Est la charge maximale à la rupture
- $A$  : Est la surface de la section transversale.

Les valeurs *ILSS* sont inexactes lorsque la matrice est endommagée avant la rupture interfaciale [4].



**Figure III.8.** Configuration de l'essai de résistance au cisaillement interlaminaire.

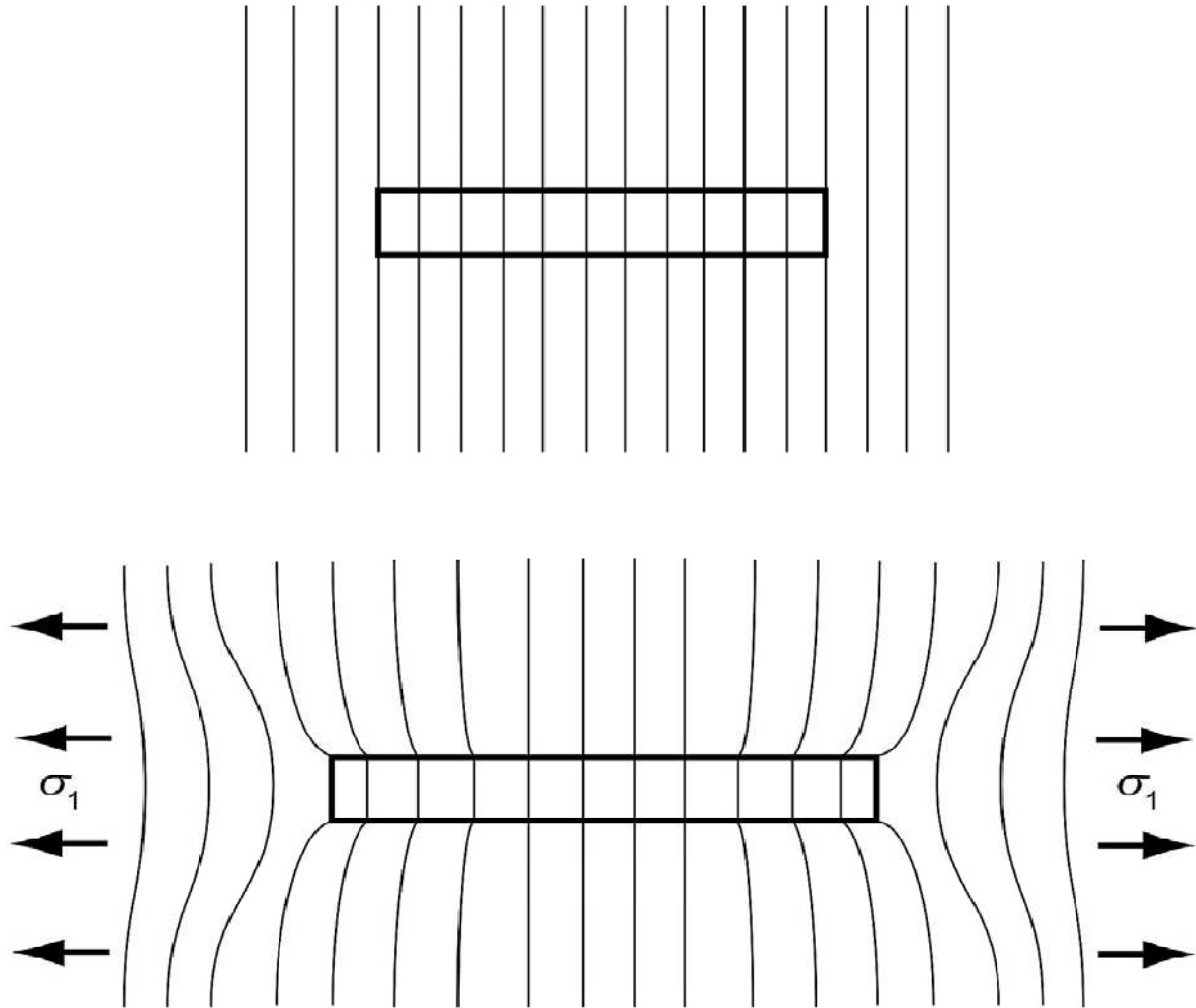
$d$ , l'épaisseur;  $L$ , longueur;  $F$ , charge maximale; [2 ,4]

### III.6. Approche micromécanique (les méthodes analytiques)

Le facteur le plus important dans la prédiction de différents comportements mécaniques est de caractériser la réponse élastique exacte des composites aux charges externes. Il faut donc connaître la répartition des contraintes à l'intérieur du composite et les mécanismes de transfert des contraintes entre les composants. Au cours des dernières décennies, la modélisation analytique a été développée pour analyser le transfert de charge. Au cours de la même période, différents modèles analytiques et numériques ont été développés pour prédire le taux de fluage au deuxième stade ainsi que l'état de contrainte dans les composites à fibres courtes [19]. Ces méthodes analytiques peuvent être classées en quatre catégories, y compris des modèles unidimensionnels généralement basés sur la théorie du décalage en cisaillement (*shear lag*) (Cox 1952 [20]; Hsueh 1994, 2000; Hsueh et al. 1999; Jiang et Peters 2008; Kim 2007, 2008; Kim et Kwac 2009), Modèles analytiques 3D basés sur des analyses axisymétriques (Abedian et al. 2007; Fattahi et Mondali 2013, 2014; Fattahi et al. 2015; Jiang et al. 2004), modèles Eshelby basés sur la méthode d'inclusion équivalente d'Eshelby (Eshelby 1957; Kotha et al. 2000; Tanaka et al. 1973; Taya et Arsenault 1989; Withers et al. 1989) et les méthodes d'éléments finis (Levy et Papazian 2009; Tucker et Liang 1999) [19].

Le problème du transfert de charge de la matrice à la fibre et de la variation de la contrainte le long d'une fibre de longueur finie dans une matrice a été abordé correctement par Kelly [21], le transfert de contrainte de la matrice à la fibre se fait par une contrainte de cisaillement à l'interface matrice -fibre, comme indiqué dans la Figure III.9. il est envisagé que des lignes parallèles perpendiculaires à la fibre puissent être tracées de la matrice à travers la fibre avant la déformation. Lorsque le système est soumis à une contrainte axiale  $\sigma_1$  parallèle à l'axe de la fibre, les lignes se déforment car le module de Young de la matrice est très inférieur à celui de la fibre. Ceci induit une contrainte de cisaillement à l'interface fibre/matrice, et la contrainte axiale dans la fibre s'augmente de zéro aux extrémités de la fibre jusqu'à une valeur maximale au milieu de la fibre. L'hypothèse d'une déformation uniforme signifie qu'au milieu de la fibre, la déformation de la fibre est égale à celle de la matrice, si la fibre est longue. Les fibres ayant généralement un module de Young beaucoup plus élevé que la matrice, elles supportent alors la plus grande partie de la contrainte (et donc de la charge) du composite et c'est essentiellement la façon dont le fonctionnent des composites [19].

Il est maintenant nécessaire d'introduire le concept de contrainte de cisaillement interfaciale Kelly [21]. La relation entre la contrainte de cisaillement interfaciale  $\tau_i$  près des extrémités de la fibre et la contrainte de fibre  $\sigma_f$  peut être déterminée en utilisant un équilibre des forces de cisaillement à l'interface et les forces de traction dans un élément de fibre, comme indiqué dans la **Figure III.10**.



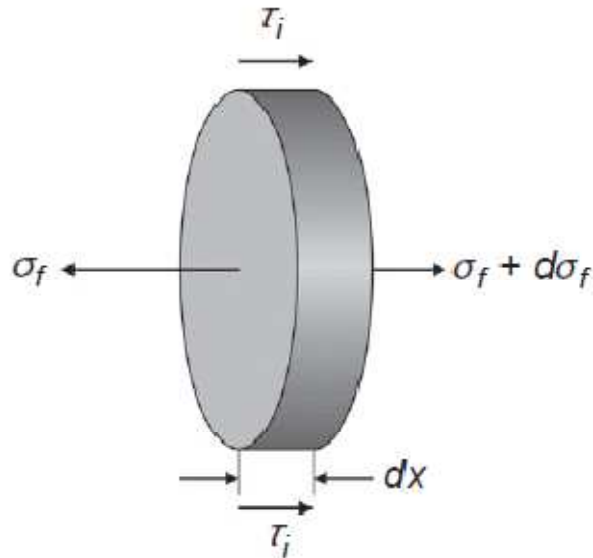
**Figure III.9.** Profils de déformation d'une fibre discontinue à haut module dans une matrice polymère à bas module. Le diagramme supérieur montre la situation avant la déformation et le diagramme inférieur montre l'effet de l'application d'une contrainte de traction,  $\sigma_1$ , parallèlement à la fibre [23-25].

L'hypothèse principale est que la force due à la contrainte de cisaillement  $\tau_i$  à l'interface est équilibré à la force due à la variation de la contrainte axiale  $d\sigma_f$  dans la fibre, de sorte que :

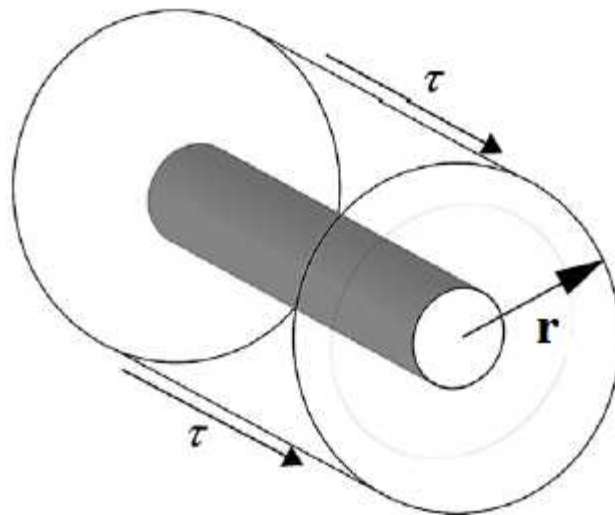
$$2\pi a\tau_i dx = -\pi a^2 d\sigma_f \quad (\text{III.4})$$

et donc

$$\frac{d\sigma_f}{dx} = -\frac{2\tau_i}{a} \quad (\text{III.5})$$



**Figure III.10.** Équilibre des contraintes agissant sur un élément de la fibre d'épaisseur  $dx$  dans le composite [24].



**Figure III.11.** Modèle d'une fibre en cours de déformation dans une matrice utilisée dans la théorie du décalage au cisaillement. La contrainte de cisaillement  $s$  agit dans un rayon  $r$  du centre de la fibre [24]



### III.6.1. Model de Cox (transfert de charge élastique)

Le comportement d'une fibre discontinue dans une matrice peut être modélisé à l'aide de la théorie du cisaillement –décalage (shear-lag), développée initialement par Cox (1952) [20]. Il est supposé dans la théorie que la fibre est entourée d'un cylindre de matrice s'étendant à un rayon  $r$  du centre de fibre, comme indiqué dans la **Figure III.11**. Dans ce modèle, on suppose que la fibre et la matrice se déforment de manière élastique et que l'interface fibre-matrice reste intacte [24].

Si  $u$  est le déplacement de la matrice dans la direction axiale de la fibre selon un rayon  $r$ , la contrainte de cisaillement  $\gamma$  à cette position est donnée par

$$\gamma = \frac{du}{dr} \quad (\text{III . 6})$$

Le module de cisaillement de la matrice est défini par

$$G_m = \frac{\tau}{\gamma} \quad (\text{III . 7})$$

,d'où il résulte que

$$\frac{du}{dr} = \frac{\tau}{G_m} \quad (\text{III . 8})$$

La force de cisaillement par unité de longueur supportée par la surface du cylindre matriciel est  $2\pi r\tau$  et est transmis à la surface de la fibre à travers les couches de résine, et donc la contrainte de cisaillement au rayon  $r$  est donnée par

$$2\pi r\tau = 2\pi a\tau_i \quad (\text{III . 9})$$

et donc

$$\tau = \left(\frac{a}{r}\right) \tau_i \quad (\text{III . 10})$$

Il s'ensuit que l'utilisation de Eqn (III .8),

$$\frac{du}{dr} = \left(\frac{a}{r}\right) \frac{\tau_i}{G_m} \quad (\text{III . 11})$$

Il est possible d'intégrer cette équation en utilisant les limites du déplacement à la surface de la fibre ( $r = a$ ) de  $u = u_f$  et le déplacement ( $r = R$ ) de  $u = u_R$

$$\int_{u_f}^{u_R} du = \left( \frac{a\tau_i}{G_m} \right) \int_a^R \frac{dr}{r} \quad (\text{III . 12})$$

Par conséquent

$$u_R - u_f = \left( \frac{a\tau_i}{G_m} \right) \ln \left( \frac{R}{a} \right) \quad (\text{III . 13})$$

Ces déplacements peuvent être convertis en déformation puisque la déformation de la fibre  $e_f$  et la déformation de la matrice  $e_m$  peuvent être approchées comme  $e_f \approx du_f/dx$  et  $e_m \approx du_R/dx$ . Il convient de noter que cette analyse de décalage au cisaillement n'est pas rigoureuse, comme le montre Nairn (1997) [26], mais elle illustre simplement le processus de transfert de contrainte de la matrice à une fibre dans un composite à fibres courtes.

De plus,  $\tau_i$  est donné par Eqn (III .5), ce qui différencie Eqn (III .13) par rapport à  $x$  conduit à :

$$e_f - e_m = -\frac{a^2}{2G_m} \left( \frac{d^2\sigma_f}{dx^2} \right) \ln \left( \frac{R}{a} \right) \quad (\text{III . 14})$$

De plus, multiplier par  $E_f$  donne

$$\frac{d^2\sigma_f}{dx^2} = -\frac{n^2}{a^2} (\sigma_f - e_m E_f) \quad (\text{III . 15})$$

Avec  $n = \sqrt{\frac{2G_m}{E_f \ln(R/a)}}$

Cette équation différentielle a la solution générale :

$$\sigma_f = E_f e_m + C \sinh \left( \frac{nx}{a} \right) + D \cosh \left( \frac{nx}{a} \right) \quad (\text{III . 16})$$

Où C et D sont des constantes d'intégration. Maintenant, Eqn (III .15) peut être simplifié et résolu par double différenciation de la solution générale, si on suppose que les conditions aux limites sont qu'il n'y a aucune contrainte transmise aux extrémités de la fibre c'est-à-dire si

$x=0$  au milieu de la fibre  $\sigma_f = E_f e_m$  alors  $\sigma_f = 0$  aux extrémités de la fibre  $x = \pm l$  où  $l$  est la longueur de la fibre. Ceci conduit à  $C = 0$  et la comparaison des termes donne :

$$D = - \frac{E_f e_m}{\cosh\left(\frac{nl}{r}\right)} \quad (\text{III .17})$$

Enfin, l'équation de la répartition de la contrainte sur la fibre en fonction de la distance  $x$  sur la fibre est la suivante:

$$\sigma_f = E_f e_m \left[ 1 - \frac{\cosh(nx/r)}{\cosh(nl/r)} \right] \quad (\text{III .18})$$

Il est maintenant possible de déterminer la répartition de la contrainte de cisaillement interfaciale le long de la fibre en utilisant Eqn (III .5), ce qui, par différenciation de Eqn (III .18) conduit à :

$$\tau_i = \frac{n}{2} E_f e_m \frac{\sinh(nx/r)}{\cosh(nl/r)} \quad (\text{III .19})$$

Il est commode d'introduire le concept de facteur de forme des fibres  $s=l/r$ , qui n'a pas de dimensions, de sorte que les deux équations ci-dessus puissent être réécrites comme suit:

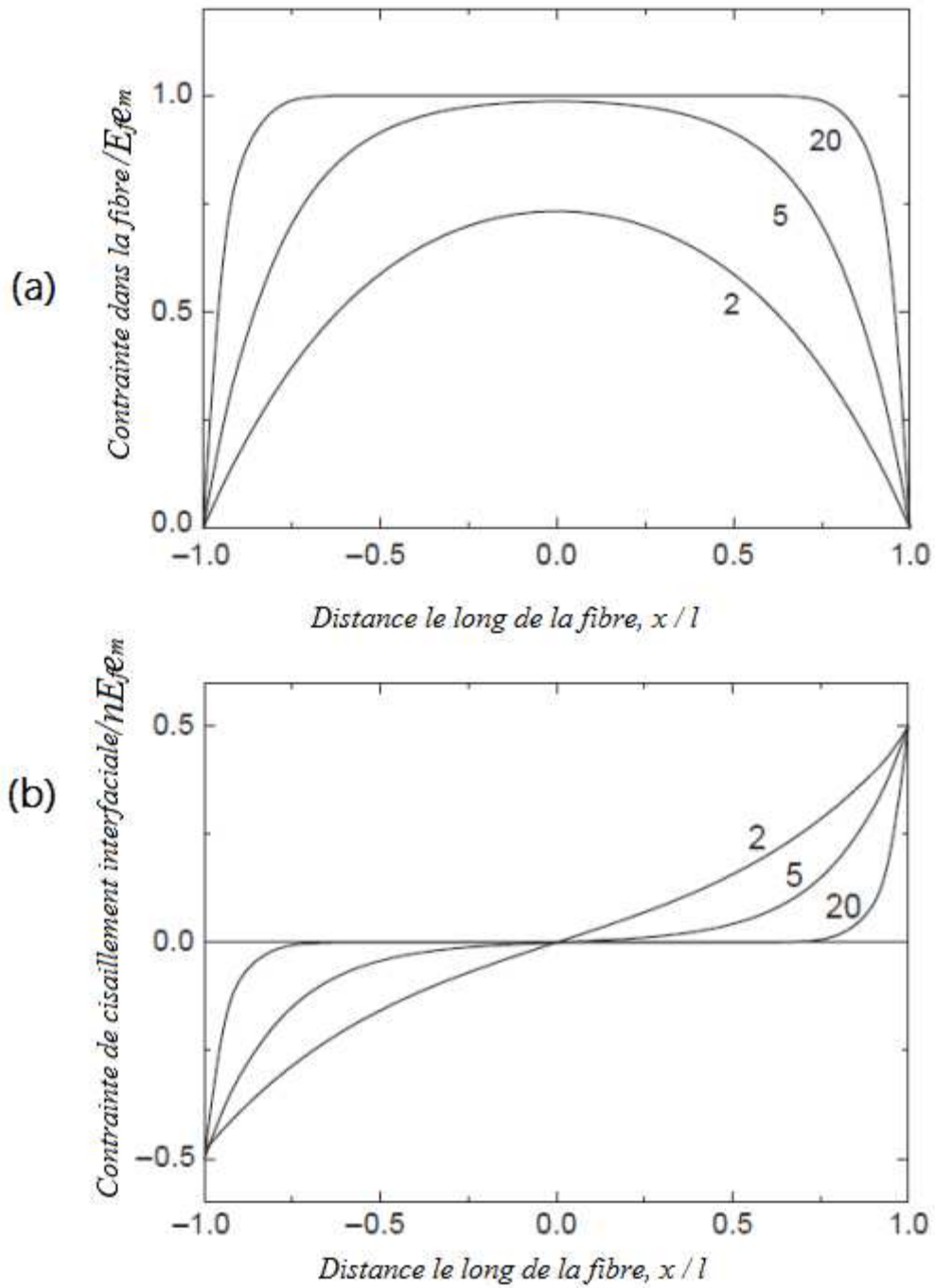
$$\sigma_f = E_f e_m \left[ 1 - \frac{\cosh(nsx/l)}{\cosh(ns)} \right] \quad (\text{III .20})$$

Pour la contrainte axiale dans la fibre et comme :

$$\tau_i = \frac{n}{2} E_f e_m \frac{\sinh(nsx/l)}{\cosh(ns)} \quad (\text{III .21})$$

Pour la contrainte de cisaillement interfacial, l'effet des différents paramètres sur la variation de contrainte dans une fibre est démontré dans la **Figure III.12.** pour différentes valeurs du produit  $ns$ . on peut voir à partir de cette figure que la fibre est la plus fortement stressée c'est-à-dire que le renforcement de fibre le plus efficace est obtenu lorsque le produit  $ns$  est élevé. Cela implique qu'un ratio d'aspect élevé  $s$  est souhaitable avec une valeur élevée de  $n$  pour le meilleur renforcement [24].

Le principal inconvénient du modèle de Cox est son incapacité à fournir des prévisions précises dans les faibles rapports volumétriques de renfort [19].



**Figure III.12.** (a) Variation prévue de la contrainte des fibres avec la distance le long de la fibre pour une fibre courte dans une matrice. (b) Variation prévue de la contrainte de cisaillement interfaciale avec la distance le long de la fibre pour une fibre courte. (Les valeurs du produit  $ns$  sont indiquées dans chaque cas.) [24].

### III.6.2. Modèle de Kelly-Tyson

Le modèle de Kelly-Tyson [21] a initialement été développé dans le contexte de matériaux à matrice métallique pour lesquels des mécanismes de plasticité sont activés au voisinage de l'extrémité des fibres.

Le modèle de Cox [20] montre que le transfert de charge conduit au développement de contraintes interfaciales de cisaillement dont l'amplitude est maximale aux extrémités de la fibre.

Dans la réalité, ces concentrations de contraintes sont limitées par le seuil de plasticité de la matrice ou la mise en glissement de l'interface. Par ailleurs, l'approche élastique n'est plus valable à partir du moment que la contrainte de traction dans la matrice excède sa limite d'élasticité. Ces phénomènes ont été mis initialement en évidence par Kelly et ses collaborateurs dans le cas de composites à matrice de cuivre renforcés par des fibres de Tungstène et de Molybdène. La très faible limite d'élasticité de la matrice se traduit alors, sous chargement de traction, par le développement précoce et progressif d'une zone de déformation plastique à partir des extrémités de la fibre [27].

Il existe deux approches principales pour l'interprétation de la fragmentation de fibre. Dans le modèle Kelly – Tyson la matrice est supposée complètement plastique et ne transmet que la contrainte de cisaillement. En outre, la contrainte au cisaillement interfaciale est considérée comme une constante, qui caractérise l'efficacité de l'interaction adhésive de la matrice avec la fibre [27,28].

$$\sigma_f = \frac{2\tau_i}{a}(L - x) \quad (\text{III} . 22)$$

Où

- $\sigma_f$  : Est la contrainte de traction de la fibre,
- $\tau_i$  : Est la contrainte de cisaillement à l'interface,
- $a$  : Est le rayon de la fibre,
- $L$  : Est la longueur de la fibre;
- $x$  : Est la variation de la longueur de la fibre.

Dans le modèle Kelly - Tyson, une zone de déformation plastique existe près des extrémités de la fibre, dans lequel la contrainte de cisaillement  $\tau_i$  est supposée constante, Ceci conduit à une augmentation linéaire de la contrainte de traction dans la fibre dans la zone de déformation jusqu'à la valeur  $\sigma_{fMax} = E_f \varepsilon_l$  si la fibre est suffisamment longue. En dehors de

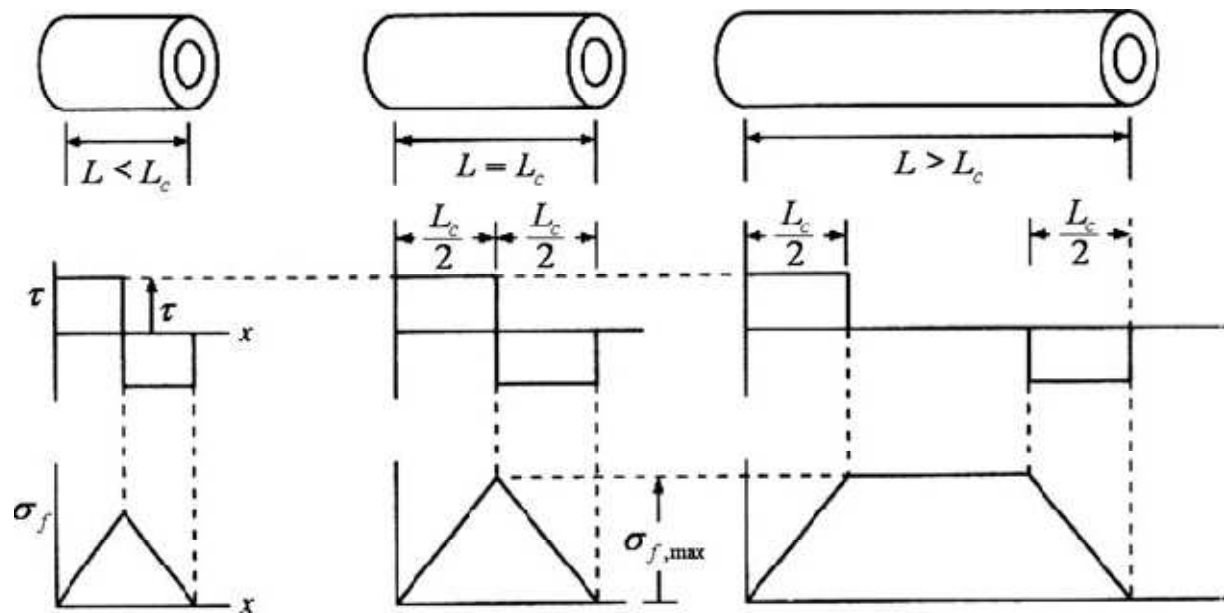
cette zone, dans la partie centrale de la fibre,  $\sigma$  est une constante **Figure III.13**. Cette dernière condition correspond au critère suivant :

$$L_i \geq \frac{\alpha E_f \varepsilon_l}{2\tau_i} \quad (\text{III .23})$$

où  $L_i$  est une longueur dite ineffective correspondant à la portion de fibre dans laquelle la contrainte de traction n'a pas encore atteint sa valeur maximale  $\sigma_{fMax} = E_f \varepsilon_l$

Il est important de noter que ce modèle prend seulement en compte le transfert de charge se produisant dans la zone plastique située aux extrémités de la fibre. Les effets de transfert de charge élastiques dans la portion centrale de la fibre sont par contre totalement négligés ( $\tau_i = 0$ ). Cette approche n'est valable que si le seuil de plasticité de la matrice (où le seuil de glissement à l'interface) est très bas. Dans ce cas, la déformation plastique (où le glissement) intervient dès le début de la mise en charge, sans phase de mise en charge élastique préalable.

L'analyse généralement adoptée est celle de Kelly et Tyson [21] qui considère que la contrainte de traction dans la fibre  $\tau(x)$  augmente linéairement à partir des extrémités du fragment **Figure III.13**. [27] .



**Figure III.13.** Effet de la longueur des fibres sur la contrainte transférée de la matrice aux fibres dans un composite à fibres courtes selon le modèle de Kelly – Tyson [29].

### III.6.3. Modèle Mixte

Dans le modèle de Kelly [21,27], les effets de transfert de charge élastique sont totalement négligés, ce qui revient à considérer que la déformation plastique de la matrice, ou la mise en glissement de l'interface, interviennent à des déformations appliquées très faibles. Dans la réalité, ces processus se produisent souvent après une phase de chargement élastique préalable qu'il convient de prendre en compte.

Dans le cas des composites à matrice polymère, la mise en glissement de l'interface se produit pour une valeur limite de la contrainte de cisaillement interfaciale  $\tau_d$ , qui correspond physiquement à la décohésion fibre/matrice. Dans la zone de fibre décollée, les processus de glissement dépendent de la valeur du coefficient de frottement fibre/matrice et des contraintes radiales appliquées sur la fibre.

Dans une telle situation, la valeur correspondante du cisaillement interfaciale,  $\tau_g$ , est très souvent inférieure à la valeur de la contrainte de décohésion  $\tau_d$ .

Afin de rendre compte de ces processus, on peut alors considérer un VER dans lequel :

- La portion centrale de la fibre est soumise à un chargement élastique, la valeur du cisaillement interfacial étant limitée par la contrainte à décohésion  $\tau_d$ . Dans cette zone, on écrit exactement les mêmes équations d'équilibre élastique que celles introduites dans le modèle de Cox.
- Dès lors que  $\tau_i > \tau_d$ , on considère que se produit un glissement à contrainte constante  $\tau_g$ . Le transfert de charge dans cette zone s'effectue selon les hypothèses du modèle de Kelly.

La résolution des équations d'équilibre avec les conditions aux limites appropriées permet de calculer la relation contrainte/déformation suivante:

$$\sigma_l = [V_f E_f + V_m E_m] \varepsilon_l - \frac{V_f}{S} \left[ \frac{(E_f \varepsilon_l)^2 - (2\tau_D/n)^2}{4\tau_g} + \frac{2\tau_d}{n^2} \right] \quad (\text{III .24})$$

Où

$V_f, E_f$  et  $V_m, E_m$  sont respectivement les fractions de volume et les modules de la fibre et de la matrice,

- $\varepsilon_l$  : Est la déformation appliquée,
- $S = L/a$  : Est le rapport de forme de la fibre,
- $n$  : Est une constante.

Pour les faibles valeurs de  $\sigma$ , le deuxième terme du second membre de l'équation (III .24) induit une non linéarité dans la relation contrainte-déformation [27] .

### III.6.4. Loi de Weibull

Les contraintes de rupture d'une série d'éprouvettes identiques sont-elles distribuées statistiquement. Il en résulte que la contrainte moyenne de rupture diminue lorsque le volume de la zone plastifiée augmente : zone plastifiée, parce que les clivages sont déclenchés par une déformation plastique, et que par conséquent ils n'apparaissent pas en dehors de cette zone. Or, plus cette zone plastifiée est grande plus la probabilité d'y rencontrer un élément critique pour le clivage est élevée [31].

Le traitement quantitatif de la distribution statistique des contraintes de clivage est effectué en considérant que cette distribution suit la loi *de Weibull* (établie en 1939 par W. Weibull en Allemagne) [30]. Celle-ci découle de la théorie du maillon le plus faible : la pièce qui se rompt est considérée comme constituée d'éléments plus ou moins fragiles parfaitement indépendants les uns des autres ; la rupture de l'ensemble intervient lorsque le plus fragile cède (c'est le comportement d'une chaîne constituée de maillons). La loi de Weibull fait intervenir trois paramètres qui dépendent du matériau : une contrainte de rupture moyenne, une contrainte seuil, souvent considérée comme nulle, et l'exposant de Weibull qui caractérise l'étendue de la distribution [31].

#### III.6.4. 1. Statistique à rupture de renforts fibreux fragiles

On considère un solide (la fibre) constitué de la juxtaposition de  $N$  éléments parfaitement indépendants. Ces éléments ont une probabilité de rupture sous une contrainte  $\sigma$  égale à  $P(\sigma)$  .La probabilité de non rupture est donc égale à  $1 - P(\sigma)$ , et pour  $N$  éléments elle vaut  $[1 - P(\sigma)]^N$ . Comme l'hypothèse du maillon le plus faible est que la rupture d'un élément entraîne la rupture de tous les autres, la probabilité de rupture de l'ensemble est égale à [30-32] :

$$P_r(\sigma) = 1 - [1 - P(\sigma)]^N \quad \text{(III .25)}$$

Cette expression peut s'écrire aussi (simple transformation mathématique) :

$$P_r(\sigma) = 1 - \exp[-Nf(\sigma)] \quad \text{(III .26)}$$

En posant :

$$f(\sigma) = \log \left[ \frac{1}{1-P(\sigma)} \right] \quad \text{(III .27)}$$



Le nombre de maillons est supposé proportionnel à la longueur  $L$  de la fibre, ce qui permet d'écrire  $Nf(\sigma) = L \Phi(\sigma)$  où la fonction  $\Phi$  reste à déterminer. Weibull a proposé pour cette fonction la forme empirique suivante :

$$\Phi(\sigma) = \frac{(\sigma - \sigma_u)^m}{\sigma_0} \quad ; \quad \sigma > \sigma_u \quad \text{(III .28)}$$

$$\Phi(\sigma) = 0 \quad ; \quad \sigma \leq \sigma_u \quad \text{(III .29)}$$

Avec

- $\sigma_u$  : contrainte seuil en dessous de laquelle il n'y a pas de rupture possible.
- $\sigma_0$  : facteur d'échelle.
- $m$  : paramètre rendant compte de la largeur de la distribution.

Dans la plupart des cas pratiques, le seuil de rupture est très faible et l'on peut considérer que  $\sigma_u \approx 0$ . La probabilité de rupture d'une fibre subissant une contrainte  $\sigma$  est alors donnée par :

$$P_r(\sigma) = 1 - \exp \left[ -L \left( \frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad \text{(III .30)}$$

La contrainte moyenne à rupture d'une population statistique de fibres peut s'écrire :

$$\bar{\sigma}_r = \int_0^1 \sigma dP_r \quad \text{(III .31)}$$

On peut également l'exprimer sous la forme suivante :

$$\bar{\sigma}_r = \int_0^\infty (1 - P_r) d\sigma \quad \text{(III .32)}$$

Soit à partir de l'équation (III .30):

$$\bar{\sigma}_r = \int_0^\infty \exp \left[ -L \left( \frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m \right] d\sigma \quad \text{(III .33)}$$

On effectue les changements de variable suivants :

$$t = L \left( \frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m$$

$$\sigma = \sigma_0 \left( \frac{t}{L} \right)^{1/m}$$

$$d\sigma = \frac{\sigma_0}{m L^{1/m}} t^{\frac{1-m}{m}} dt$$

L'équation (III .33) devient :

$$\bar{\sigma}_r = \int_0^\infty e^{-t} t^{\frac{1-m}{m}} \frac{\sigma_0}{m L^{1/m}} dt \quad \text{(III .34)}$$

Soit

$$\bar{\sigma}_r = \frac{\sigma_0}{L^{1/m}} \Gamma \left( 1 + \frac{1}{m} \right) \quad (\text{III .35})$$

Où  $\Gamma$  est la fonction Gamma définie comme suit :

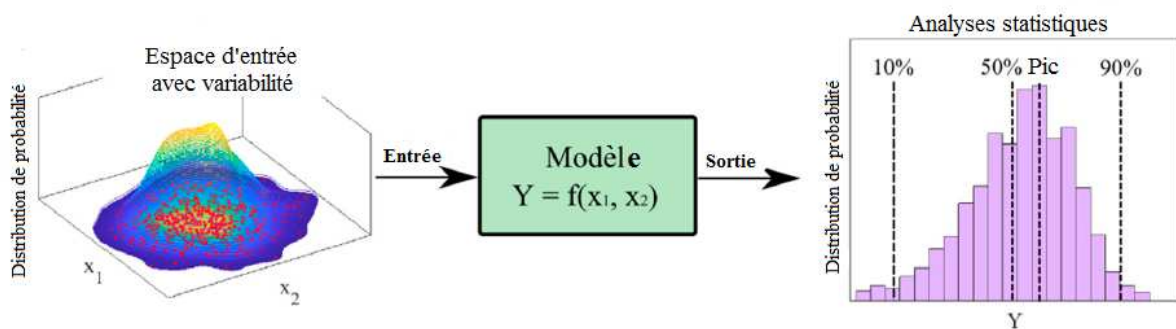
$$\Gamma = \int_0^{\infty} t^{z-1} e^{-t} dt \quad (\text{III .36})$$

### III.7. Les modèles de modélisation probabilistes

#### III.7.1. Modélisation Monte-Carlo

La simulation de Monte Carlo (MCS) est une méthode stochastique simple et fiable pour étudier la variabilité de la réponse d'un modèle dans le cadre de l'analyse probabiliste [33]. Cette technique a évolué comme un outil très puissant pour les ingénieurs avec seulement une connaissance de base de la probabilité et des statistiques pour évaluer le risque ou la fiabilité des systèmes complexes [34,35]. Le véritable développement des méthodes de Monte-Carlo s'est effectué sous l'impulsion de John von Neumann et Stanislaw Ulam notamment, lors de la Seconde Guerre mondiale et des recherches sur la fabrication de la bombe atomique [36].

Cette méthode a la capacité de propager la variabilité des variables d'entrée aux résultats de sortie en répétant l'échantillonnage d'entrée de manière aléatoire [36]. De cette manière, la parallélisation automatique pourrait être appliquée à l'aide de la méthode de Monte Carlo afin de réduire le temps de calcul [37] sans perdre les informations statistiques significatives dans l'espace d'entrée. La **figure III.14** présente une schématisation de l'utilisation de la méthode Monte Carlo pour propager la variabilité de l'espace d'entrée aux résultats de sortie à travers des modèles [38].



**Figure III.14.** Méthode de Monte Carlo pour la propagation de la variabilité des entrées aux résultats de sortie [38].

Les techniques de simulation Monte Carlo sont utilisées pour simuler des systèmes déterministes avec des paramètres ou des entrées stochastiques, elle comporte six éléments essentiels [34] :

- (1) définir le problème en fonction de toutes les variables aléatoires;
- (2) quantifier les caractéristiques probabilistes de toutes les variables aléatoires en fonction de leurs fonction de densité de probabilité ou fonction de masse (probabilité) et les paramètres correspondants;
- (3) générer les valeurs de ces variables aléatoires;
- (4) évaluer le problème de façon déterministe pour chaque ensemble de réalisations de toutes les variables aléatoires, c'est-à-dire l'expérimentation numérique;
- (5) extraire de l'information probabiliste de N réalisations;
- (6) déterminer la précision et l'efficacité de la simulation.

Monte Carlo (MC) fournit une méthode directe pour la simulation et l'intégration. Parce que c'est simple et direct, Monte Carlo est facile à utiliser. Elle est également robuste, car sa précision ne dépend que de la mesure la plus grossière de la complexité du problème [33].

MC est également utilisé pour résoudre les problèmes d'optimisation dans la recherche opérationnelle (ces méthodes d'optimisation sont appelées optimisation de simulation). Dans le contexte de la résolution de problèmes d'intégration, la méthode MC est utilisée pour simuler des systèmes quantiques, ce qui permet une représentation directe de l'effets de plusieurs corps dans le domaine quantique, au taux de l'incertitude statistique qui peut être réduite avec plus de temps de simulation. L'une des premières utilisations les plus célèbres de la simulation MC a été par Enrico Fermi en 1930, quand il a utilisé une méthode aléatoire pour calculer les propriétés du neutron récemment découvert [39].

La méthode de MC consiste à effectuer un grand nombre de tirages N des variables aléatoires du problème étudié. Pour chaque tirage, la fonction d'état est calculée et l'on dénombre les tirages conduisant à la défaillance du système  $N_{def}$ . La probabilité de défaillance  $P_{def}$  est alors estimée par le rapport entre le nombre de tirages conduisant à la défaillance  $N_{def}$  et le nombre total de tirages N, soit [34] :

$$P_{def} = \frac{N_{def}}{N}$$

### III.7.1. 1. Simulations Monte Carlo de modèles micromécaniques

La plupart des efforts récents dans la modélisation du processus de rupture en traction des composites UD utilisent des simulations de Monte Carlo de modèles micromécaniques. Ces modèles représentent explicitement un grand nombre de fibres (chaque fibre étant divisée en éléments avec une réalisation de la résistance stochastique de la fibre), et simuler l'accumulation des ruptures de fibre et la redistribution des contraintes avec une charge progressive ; cette analyse est répétée plusieurs fois avec une nouvelle réalisation des résistances des fibres (généralement dérivé d'une distribution de Weibull) jusqu'à ce qu'il y ait un nombre suffisant de résultats pour caractériser la réponse du matériau [40].

Les principaux défis des simulations de Monte Carlo sont :

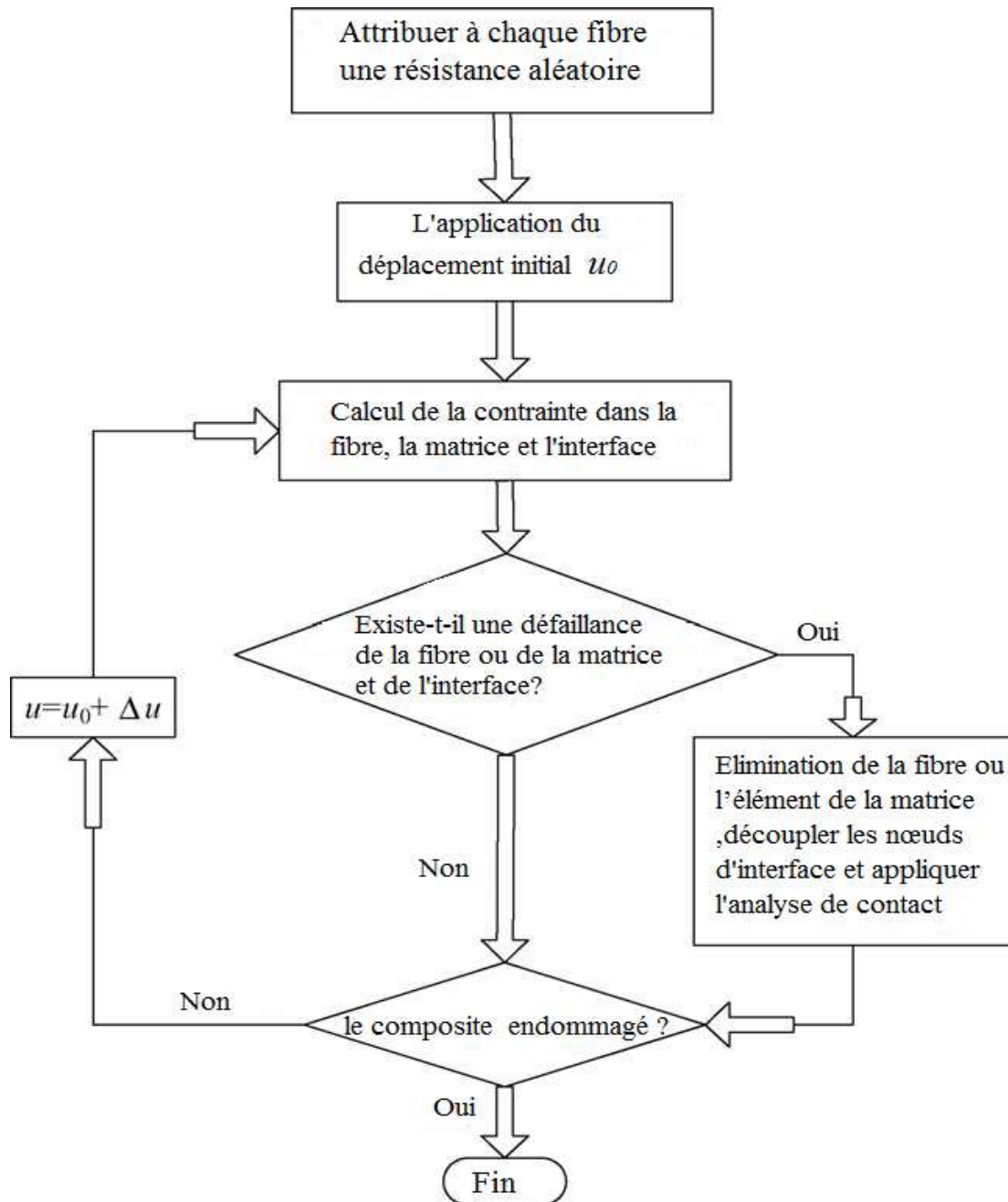
- (i) calculer les champs de contraintes au voisinage des ruptures de fibres,
- (ii) effectuer une analyse progressive de défaillance de Monte Carlo pour l'accumulation de ruptures de fibres.

Parce qu'elle peut représenter efficacement les distributions de résistance des fibres, la méthode de Monte Carlo a été l'approche numérique la plus efficace pour simuler les processus de rupture et d'endommagement des matériaux composites [41]. Zhou et Wagner [42] ont dérivé les facteurs de concentration de contrainte pour une interface partiellement décollée, mais les comportements aléatoires ne sont pas inclus. Ismar et Streicher [43] ont étudié en détail les courbes contrainte-déformation en appliquant la méthode des éléments finis de Monte Carlo, tout en négligeant la rupture des fibres et la concentration en contrainte. Cheng et al. [44] ont considéré l'interface comme un corps élastique parfaitement plastique avec une faible force de liaison pour étudier l'ensemble du processus de défaillance du composite.

L'organigramme détaillé de la simulation de Monte Carlo est présenté à la **Figure III.15**. l'analyse par éléments finis est appliquée en deux étapes [41].

- Dans la première étape, en utilisant la procédure Newton – Raphson, un déplacement croissant est appliqué pour déterminer les courbes de contrainte – déformation avant le point critique de défaillance, où le redémarrage de l'analyse est effectuée après chaque étape de chargement.
- Dans la deuxième étape, le point critique de défaillance et la partie décroissante de la courbe de traction sont obtenus en activant la méthode de la longueur d'arc. Un critère

de convergence contrôlé par le déplacement est utilisé pour contrôler l'analyse et environ 20 étapes de chargement sont appliquées.



**Figure III.15.** L'organigramme de la simulation de Monte Carlo[41]

### III.7.1. 2. Quelques applications de la méthode de Monte Carlo

La méthode de Monte Carlo a été largement utilisée dans de nombreux domaines scientifiques, notamment en génie mécanique [45]. Dao et al. [46] ont propagé la variabilité aléatoire de divers ingrédients pour la prédiction de la résistance à la compression de bétons géopolymères. La déformation en traction et le processus de rupture des composites ont été étudiés par Yuan et al. [47] en utilisant des simulations de Monte Carlo. Guilleminot et al. [48] ont utilisé la méthode Monte Carlo pour tenir compte de la fluctuation des propriétés mécaniques de l'interphase aléatoire dans les matériaux polymères renforcés par des nanoparticules. Diverses autres analyses d'incertitude ont également été effectuées grâce au solveur numérique telles que les mécaniques de contact [49], systèmes dynamiques [50], mesure des propriétés mécaniques [51] ou des structures composites viscoélastiques [52].

### III.7.2. Modélisation génétique (les algorithmes génétiques (AG))

Les algorithmes génétiques sont une version simplifiée de la théorie de l'évolution darwinienne [53-55]. Ils ont été développés par John Holland (1970) [56,60,61]. Ils appartiennent à la famille des algorithmes évolutionnistes [53,54,57,60]. Semblable à l'évolution naturelle de la vie, les algorithmes génétiques ont tendance à faire évoluer un groupe de solutions initiales mal générées à un ensemble de solutions acceptables à travers les générations successives [57]. Cette approche consiste à coder l'ensemble de paramètres plutôt qu'à travailler avec les paramètres eux-mêmes [57]. Les algorithmes génétiques fonctionnent en sélectionnant une population de paramètres codés ayant les valeurs de « fitness » les plus élevés (par exemple, les paramètres donnant les meilleurs résultats) et en effectuant une combinaison des opérations de croisement et de mutation sur eux pour générer un meilleur ensemble de paramètres codés [54,57,61].

Cinq composantes sont nécessaires pour l'exécution d'un algorithme génétique : la représentation, l'initialisation, la fonction d'évaluation, les opérateurs génétiques et les paramètres génétiques [57].

#### III.7.2.1. La représentation génétique

Les algorithmes génétiques sont dérivés d'une étude de systèmes biologiques. Dans les systèmes biologiques, l'évolution se fait sur des composants organiques utilisés pour coder la structure des êtres vivants. Ces composants organiques sont appelés chromosomes. Un être vivant n'est qu'une structure décodée des chromosomes. La sélection naturelle est le lien entre

les chromosomes et la performance de leurs structures décodées. Dans les algorithmes génétiques, les variables ou les caractéristiques de conception qui caractérisent un individu sont représentées dans une liste ordonnée appelée chaîne (**chromosome**) « a string ». Chaque variable de conception correspond à un gène et la chaîne de gènes correspond à un chromosome. Un groupe de chromosomes est appelé une population. Le nombre de chromosomes dans une population est généralement compris entre 30 et 300. Chaque chromosome est une chaîne de codes binaires (gènes) et peut contenir des sous-chaînes.

La qualité d'une chaîne est jugée par la fonction «*fitness* », qui est dérivée de la fonction objective et est utilisée dans les opérations génétiques successives. Au cours de chaque procédure itérative (appelée génération), un nouvel ensemble de chaînes avec des performances améliorées est généré à l'aide de trois opérateurs (reproduction, croisement et mutation) [57, 60,61].

#### III.7.2.2. L'initialisation

Les algorithmes génétiques fonctionnent avec un ensemble de chaînes au lieu d'une seule chaîne. Cet ensemble de chaînes est connu comme une population a subi au processus d'évolution pour produire de nouvelles chaînes individuelles. Pour commencer, la population initiale est tirée aléatoirement (choisies de manière heuristique ou au hasard). Dans les deux cas, la population initiale doit contenir une grande variété de structures afin de couvrir tout l'espace du problème [57].

#### III.7.2.3. La fonction d'évaluation (fitness)

La fonction d'évaluation est une procédure permettant de déterminer l'aptitude de chaque chromosome dans la population, puisque les algorithmes génétiques évoluent dans le sens de l'évolution des chromosomes les plus aptes, et que la valeur de « fitness » est la seule information disponible pour l'algorithme, la performance est très sensible aux valeurs de la « fitness ». Dans le cas de l'optimisation ordinaire, la « fitness » est la valeur de la fonction objective à optimiser [38,57].

#### III.7.2.4. Les opérateurs des algorithmes génétiques

Les opérateurs génétiques sont des règles de transition stochastiques appliquées à chaque chromosome au cours de chaque procédure de génération afin de générer une nouvelle population améliorée à partir de l'ancienne. Un algorithme génétique simple utilise les trois opérateurs suivants : la reproduction, le croisement et la mutation [57,58].

#### **III.7.2.4.1. La reproduction**

C'est aussi ce qu'on appelle le processus de sélection [58]. La reproduction est un processus probabiliste pour la sélection de deux chaînes parent de la population sur la base du mécanisme de la roulette, en utilisant leurs valeurs de fonction « fitness » [38,57], chaque individu est sélectionné proportionnellement à sa fonction « fitness », donc un individu avec une fonction « fitness » plus élevée aura plus de chance d'être sélectionné [57,59].

Dans un sens plus large, nous avons une sélection naturelle qui permet que les chaînes de la nouvelle génération soient plus proches des résultats finaux souhaités. Mathématiquement, cela signifie que la convergence de la population est donnée [59].

#### **III.7.2.4.2. Le croisement**

Le croisement décrit l'échange de fragments entre deux chaînes binaires à un point de croisement choisi au hasard. En d'autres termes, il crée deux nouveaux descendants de deux parents [38,57]. Après recombinaison, deux nouvelles chaînes sont formées et insérées dans la population suivante. En résumé, de nouveaux points d'échantillonnage sont générés en recombinant deux chaînes parentes. Considérez les deux chaînes suivantes 000111000 et 111000111. En utilisant un seul point de croisement choisi au hasard, la recombinaison se produit comme suit :

000|111000  
111|000111

Les progénitures suivantes sont produites en échangeant les fragments entre les deux parents

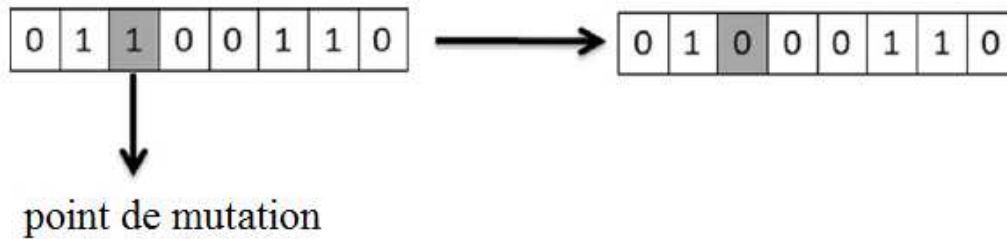
000000111 et 111111000

Cet opérateur garantit aussi la convergence de la population [57].

#### **III.7.2.4.3. La Mutation**

La mutation est la prochaine opération sur les membres de la nouvelle population [58]. Cet opérateur ne représente pas une opération critique pour les AG [59]. La mutation est le processus de modification aléatoire d'une position de chaîne en changeant « 0 » à « 1 » ou vice versa, avec une faible probabilité. Il prévient la perte complète de matériel génétique par la reproduction et le croisement en à ce que la probabilité de rechercher une région dans l'espace de problème ne soit jamais nulle. La probabilité de mutation est généralement supposée faible (par exemple, entre 0,01 et 0,1) [57].





**Figure III.16.** Processus de mutation [56].

La diversité de la population peut être maintenue par le processus de mutation, ce qui pourrait également empêcher la convergence prématurée [38].

### III.7.2.5. Paramètres génétiques

Les paramètres génétiques sont les entités qui aident à réguler et à améliorer la performance d'un algorithme génétique. Voici certains des paramètres qui peuvent caractériser l'espace génétique [57] :

#### III.7.2.5.1 La taille de la population

La taille de la population influe sur l'efficacité et la performance de l'algorithme génétique. Une population plus petite ne couvrirait pas l'ensemble de l'espace problématique, ce qui se traduirait par de mauvaises performances. Une population plus nombreuse couvrirait plus d'espace et empêcherait une convergence prématurée vers des solutions locales; cependant, cela nécessite plus d'évaluations par génération et peut ralentir le taux de convergence [54,57].

#### III.7.2.5.2 Le taux de croisement

Le taux de croisement influe sur le taux auquel le processus de croisement est appliqué. Dans chaque nouvelle population, le nombre de chaînes qui subissent le processus de croisement peut être représenté par une probabilité choisie (taux de croisement). Un taux de croisement plus élevé introduit plus rapidement les nouvelles chaînes dans la population; mais, si le taux est trop élevé, les chaînes de haute performance sont éliminées plus rapidement que la sélection peut produire des améliorations. Un faible taux de croisement peut causer des stagnations en raison du taux d'exploration plus faible, et des problèmes de convergence peuvent se produire [57].

#### III.7.2.5.3 Le taux de mutation

Le taux de mutation est la probabilité avec laquelle chaque position de bit de chaque chaîne dans la nouvelle population subit un changement aléatoire après le processus de

sélection. Un faible taux de mutation aide à empêcher toute position de bit de se coincer à une seule valeur, tandis qu'un taux de mutation élevé peut résulter une recherche essentiellement aléatoire [57].

### III.7.2.6. L'organigramme de l'algorithme génétique

La figure III.17. montre un organigramme simplifié d'un algorithme génétique itératif

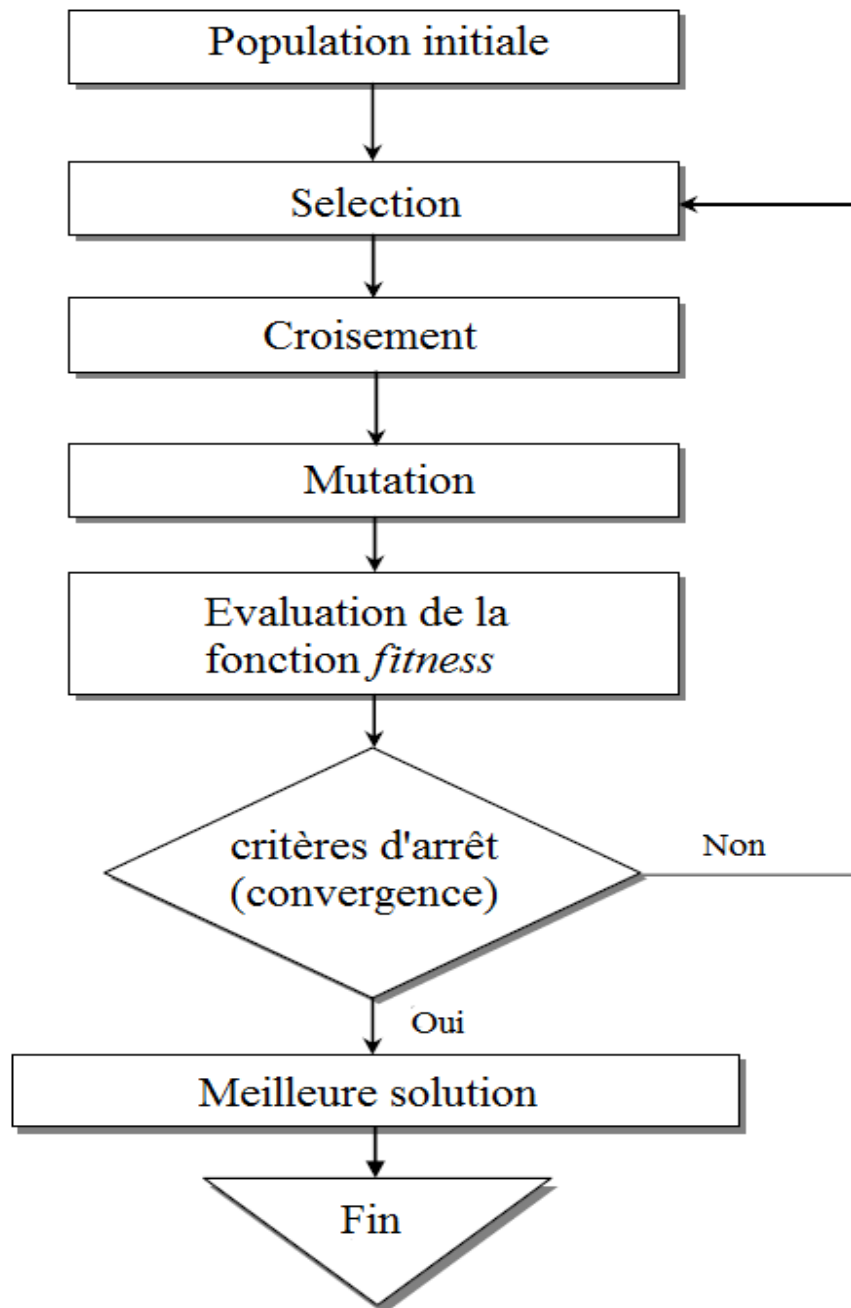


Figure III.17. Schéma de l'algorithme génétique [38,54].

### **III.7.2.7. Inconvénients des algorithmes génétiques**

L'utilisation d'un algorithme génétique présente des inconvénients:

- Il exige un temps et un effort de calcul relativement importants [57] ;
- Il n'y a aucune garantie absolue qu'une solution globale a été obtenue [58].
- Ils nécessitent un grand nombre de calculs, même pour des problèmes de taille raisonnable ou pour des problèmes où l'évaluation des fonctions elle-même nécessite des calculs massifs [58].
- Des problèmes de convergence peuvent se produire, qui peuvent être résolus en résolvant le problème plusieurs fois avec différentes populations initiales et en choisissant la meilleure solution [57].

**Références**

- [1] Liotier, P.-J., Pucci, M. F., & Drapier, S. (2017). Fibre/matrix interface. *Biocomposites for High-Performance Applications*, 165–180. doi:10.1016/b978-0-08-100793-8.00006-5
- [2] Le Moigne, N., Otazaghine, B., Corn, S., Angellier-Coussy, H., & Bergeret, A. (2018). Characterization of the Fibre Modifications and Localization of the Functionalization Molecules. *SpringerBriefs in Molecular Science*, 71–100. doi:10.1007/978-3-319-71410-3\_4
- [3] Zhou, Y., Fan, M., & Chen, L. (2016). Interface and bonding mechanisms of plant fibre composites: An overview. *Composites Part B: Engineering*, 101, 31–45. doi:10.1016/j.compositesb.2016.06.055
- [4] Krishnan, P. (2019). Evaluation and methods of interfacial properties in fiber-reinforced composites. *Mechanical and Physical Testing of Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 343–385. doi:10.1016/b978-0-08-102292-4.00018-7
- [5] Drzal LT, Rich MJ, Lloyd PF. (1983). Adhesion of graphite fibers to epoxy matrices: I. the role of fiber surface treatment. *J Adhes*, 16, 1–30.
- [6] Cech, V., Palesch, E., & Lukes, J. (2013). The glass fiber–polymer matrix interface/interphase characterized by nanoscale imaging techniques. *Composites Science and Technology*, 83, 22–26. doi:10.1016/j.compscitech.2013.04.014
- [7] Chen, Z., & Yan, W. (2015). A shear-lag model with a cohesive fibre–matrix interface for analysis of fibre pull-out. *Mechanics of Materials*, 91, 119–135. doi:10.1016/j.mechmat.2015.07.007
- [8] Regazzi A, Corn S, Jenny P, Bénézet JC, Bergeret A. (2016). Reversible and irreversible changes in physical and mechanical properties of biocomposites during hydrothermal aging. *Ind Crops Prod*, 84, 358–365
- [9] Budiman, B. A., Triawan, F., Adziman, F., & Nurprasetyo, I. P. (2016). Modeling of stress transfer behavior in fiber-matrix composite under axial and transverse loadings. *Composite Interfaces*, 24(7), 677–690. doi:10.1080/09276440.2017.1262666
- [10] Hirn, U., & Schennach, R. (2017). Fiber-Fiber Bond Formation and Failure: Mechanisms and Analytical Techniques. In *Advances in pulp and paper research*, 2, 839 - 863.

- [11] Djebbara, B., Abdelkader, H., Antoine, L. (2014). Delamination Model Using Damage Mechanics Applied to New Composite for Orthopaedic Use, *International Journal of Materials Engineering*, 4 (3), 103-113. doi: 10.5923/j.ijme.20140403.06.
- [12] Rabiee, A., & Ghasemnejad, H. (2017). Progressive Crushing of Polymer Matrix Composite Tubular Structures: Review. *Open Journal of Composite Materials*, 07(01), 14–48. doi:10.4236/ojcm.2017.71002
- [13] Graciani, E., Mantič, V., París, F., & Varna, J. (2016). Fiber–matrix debonding in composite materials. *Modeling Damage, Fatigue and Failure of Composite Materials*, 117–141. doi:10.1016/b978-1-78242-286-0.00007-8
- [14] ZAFEIROPOULOS, N. E. (2008). Engineering the fibre – matrix interface in natural-fibre composites. *Properties and Performance of Natural-Fibre Composites*, 127–162. doi:10.1533/9781845694593.1.127
- [15] Das, O., Kim, N. K., & Bhattacharyya, D. (2017). The mechanics of biocomposites. *Biomedical Composites*, 375–411. doi:10.1016/b978-0-08-100752-5.00017-2
- [16] Chegiani, F., Wang, Z., El Mansori, M., & Bukkapatnam, S. T. S. (2018). Multiscale tribo-mechanical analysis of natural fiber composites for manufacturing applications. *Tribology International*, 122, 143–150. doi:10.1016/j.triboint.2018.02.030
- [17] Rodríguez, M., Molina-Aldareguía, J. M., González, C., & LLorca, J. (2012). A methodology to measure the interface shear strength by means of the fiber push-in test. *Composites Science and Technology*, 72(15), 1924–1932. doi:10.1016/j.compscitech.2012.08.011
- [18] Oliver, WC., Pharr, GM.( 1992). An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments. *J Mater Res*;7(6):1564-1583.
- [19] Safaei, B., Fattahi, A. M., & Chu, F. (2017). Finite element study on elastic transition in platelet reinforced composites. *Microsystem Technologies*, 24(6), 2663–2671. doi:10.1007/s00542-017-3651-y
- [20] Cox, H. L. (1952). The elasticity and strength of paper and other fibrous materials. *British Journal of Applied Physics*, 3(3), 72–79. doi:10.1088/0508-3443/3/3/302
- [21] Kelly, A., Tyson, W.R. (1964). Fiber strengthened materials, in high strength material. V.F, Zackay Ed, J. Wiley & Sons, London. 578-602.

- [22] Lilholt, H., & Sørensen, B. F. (2017). Interfaces between a fibre and its matrix. IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 219, 012030. doi:10.1088/1757-899x/219/1/012030
- [23] Obaid, N., Kortschot, M., & Sain, M. (2017). Understanding the Stress Relaxation Behavior of Polymers Reinforced with Short Elastic Fibers. *Materials*, 10(5), 472. doi:10.3390/ma10050472
- [24] Young, R. J. (2015). Composite micromechanics. *Structural Integrity and Durability of Advanced Composites*, 3–23. doi:10.1016/b978-0-08-100137-0.00001-8
- [25] Kim, H. G., & Kwac, L. K. (2009). Evaluation of elastic modulus for unidirectionally aligned short fiber composites. *Journal of Mechanical Science and Technology*, 23(1), 54–63. doi:10.1007/s12206-008-0810-1
- [26] Nairn, J. A. (1997). On the use of shear-lag methods for analysis of stress transfer unidirectional composites. *Mechanics of Materials*, 26, 63-80.
- [27] Teklal, F., Djebbar, A., Allaoui, S., Hivet, G., Joliff, Y., & Kacimi, B. (2018). A review of analytical models to describe pull-out behavior – Fiber/matrix adhesion. *Composite Structures*, 201, 791–815. doi:10.1016/j.compstruct.2018.06.091
- [28] Zhandarov, S. F., & Pisanova, E. V. (1996). Two interfacial shear strength calculations based on the single fiber composite test. *Mechanics of Composite Materials*, 31(4), 325–336. doi:10.1007/bf00632619
- [29] Migneault, S., Koubaa, A., Erchiqui, F., Chaala, A., Englund, K., & Wolcott, M. P. (2010). Application of micromechanical models to tensile properties of wood–plastic composites. *Wood Science and Technology*, 45(3), 521–532. doi:10.1007/s00226-010-0351-5
- [30] Weibull W. (1939) . Theory of the strength of materials. *Royal Swedish Aca of Eng Sci Proc* 151, 1-45.
- [31] Dominique .F. (2004). *Endommagements et rupture de matériaux* .
- [32] Weibull, W. (1951). A Statistical Distribution Function of Wide Applicability. *Journal of Applied Mechanics*, 18, 293-297.
- [33] Caflisch, R. E. (1998). Monte Carlo and quasi-Monte Carlo methods. *Acta Numerica*, 7, 1–49. doi:10.1017/s0962492900002804

- [34] Probability, Reliability and Statistical Methods in Engineering Design (Haldar, Mahadevan). (2000). Bautechnik, 77(5), 379–379. doi:10.1002/bate.200002930
- [35] Zio, E. (2013). The Monte Carlo Simulation Method for System Reliability and Risk Analysis. Springer Series in Reliability Engineering. doi:10.1007/978-1-4471-4588-2
- [36] Rubinstein, R. Y., & Kroese, D. P. (2016). Simulation and the Monte Carlo Method. Wiley Series in Probability and Statistics. doi:10.1002/9781118631980
- [37] Kalos, M. H., & Whitlock, P. A. (2008). Monte Carlo Methods. doi:10.1002/9783527626212
- [38] Le, L. M., Ly, H.-B., Pham, B. T., Le, V. M., Pham, T. A., Nguyen, D.-H., ... Le, T.-T. (2019). Hybrid Artificial Intelligence Approaches for Predicting Buckling Damage of Steel Columns Under Axial Compression. Materials, 12(10), 1670. doi:10.3390/ma12101670
- [39] Raychaudhuri, S. (2008). Introduction to Monte Carlo simulation. 2008 Winter Simulation Conference. doi:10.1109/wsc.2008.4736059
- [40] Pimenta, S. (2015). Fibre failure modelling. Numerical Modelling of Failure in Advanced Composite Materials, 193–224. doi:10.1016/b978-0-08-100332-9.00008-6
- [41] Liu, P. F., & Zheng, J. Y. (2006). A Monte Carlo finite element simulation of damage and failure in SiC/Ti–Al composites. Materials Science and Engineering: A, 425(1-2), 260–267. doi:10.1016/j.msea.2006.03.053
- [42] Zhou, X.-F., & Wagner, H. D. (1999). Stress concentrations caused by fiber failure in two-dimensional composites. Composites Science and Technology, 59(7), 1063–1071. doi:10.1016/s0266-3538(98)00145-6
- [43] Ismar, H., & Streicher, F. (1999). Modelling and simulation of the mechanical behavior of ceramic matrix composites as shown by the example of SiC/SiC. Computational Materials Science, 16(1-4), 17–24. doi:10.1016/s0927-0256(99)00041-5
- [44] Cheng, T., Qiao, R., & Xia, Y. (2004). A Monte Carlo simulation of damage and failure process with crack saturation for unidirectional fiber reinforced ceramic composites. Composites Science and Technology, 64(13-14), 2251–2260. doi:10.1016/j.compscitech.2004.04.001

- [45] Soize, C. (2017). Uncertainty Quantification. *Interdisciplinary Applied Mathematics*. doi:10.1007/978-3-319-54339-0
- [46] Dao, D., Ly, H.-B., Trinh, S., Le, T.-T., & Pham, B. (2019). Artificial Intelligence Approaches for Prediction of Compressive Strength of Geopolymer Concrete. *Materials*, 12(6), 983. doi:10.3390/ma12060983
- [47] Yuan, J., Xia, Y., & Yang, B. (1994). A note on the Monte Carlo simulation of the tensile deformation and failure process of unidirectional composites. *Composites Science and Technology*, 52(2), 197–204. doi:10.1016/0266-3538(94)90205-4
- [48] Le, T. T., Guillemot, J., & Soize, C. (2016). Stochastic continuum modeling of random interphases from atomistic simulations. Application to a polymer nanocomposite. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 303, 430–449. doi:10.1016/j.cma.2015.10.006
- [49] Rey, V., Krumscheid, S., & Nobile, F. (2019). Quantifying uncertainties in contact mechanics of rough surfaces using the multilevel Monte Carlo method. *International Journal of Engineering Science*, 138, 50–64. doi:10.1016/j.ijengsci.2019.02.003
- [50] Yang, C., & Kumar, M. (2018). On the effectiveness of Monte Carlo for initial uncertainty forecasting in nonlinear dynamical systems. *Automatica*, 87, 301–309. doi:10.1016/j.automatica.2017.09.025
- [51] Motra, H. B., Hildebrand, J., & Wuttke, F. (2016). The Monte Carlo Method for evaluating measurement uncertainty: Application for determining the properties of materials. *Probabilistic Engineering Mechanics*, 45, 220–228. doi:10.1016/j.probengmech.2016.04.005
- [52] Capillon, R., Desceliers, C., & Soize, C. (2016). Uncertainty quantification in computational linear structural dynamics for viscoelastic composite structures. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 305, 154–172. doi:10.1016/j.cma.2016.03.012
- [53] Aguilar-Rivera, R., Valenzuela-Rendón, M., & Rodríguez-Ortiz, J. J. (2015). Genetic algorithms and Darwinian approaches in financial applications: A survey. *Expert Systems with Applications*, 42(21), 7684–7697. doi:10.1016/j.eswa.2015.06.001
- [54] Reddaf, A., Djerfaf, F., Ferroudji, K., Boudjerda, M., Hamdi-Chérif, K., & Bouchachi, I. (2018). Modeling of electromagnetic behavior of composite thin layers using genetic



- algorithm. *Mathematics and Computers in Simulation*, 167, 281–295. doi:10.1016/j.matcom.2018.12.011
- [55] Yang, X.-S. (2013). Optimization and Metaheuristic Algorithms in Engineering. *Metaheuristics in Water, Geotechnical and Transport Engineering*, 1–23. doi:10.1016/b978-0-12-398296-4.00001-5
- [56] Marghany, M. (2019). Principles of genetic algorithm. *Synthetic Aperture Radar Imaging Mechanism for Oil Spills*, 169–185. doi:10.1016/b978-0-12-818111-9.00010-0
- [57] Masoum, M. A. S., & Fuchs, E. F. (2015). Optimal Placement and Sizing of Shunt Capacitor Banks in the Presence of Harmonics. *Power Quality in Power Systems and Electrical Machines*, 887–959. doi:10.1016/b978-0-12-800782-2.00010-5
- [58] Arora, J. S. (2012). Genetic Algorithms for Optimum Design. *Introduction to Optimum Design*, 643–655. doi:10.1016/b978-0-12-381375-6.00016-4
- [59] Meyer-Baese, A., & Schmid, V. (2014). Genetic Algorithms. *Pattern Recognition and Signal Analysis in Medical Imaging*, 135–149. doi:10.1016/b978-0-12-409545-8.00005-4
- [60] Nguyen, H.-L., Le, T.-H., Pham, C.-T., Le, T.-T., Ho, L. S., Le, V. M., ... Ly, H.-B. (2019). Development of Hybrid Artificial Intelligence Approaches and a Support Vector Machine Algorithm for Predicting the Marshall Parameters of Stone Matrix Asphalt. *Applied Sciences*, 9(15), 3172. doi:10.3390/app9153172
- [61] Rozinajová, V., Ezzeddine, A. B., Lóderer, M., Loebli, J., Magyar, R., & Vrablecová, P. (2018). Computational Intelligence in Smart Grid Environment. *Computational Intelligence for Multimedia Big Data on the Cloud with Engineering Applications*, 23–59. doi:10.1016/b978-0-12-813314-9.00002-5

# *Chapitre IV*

---

*Résultats*

*et*

*discussion*

## IV. 1. Introduction

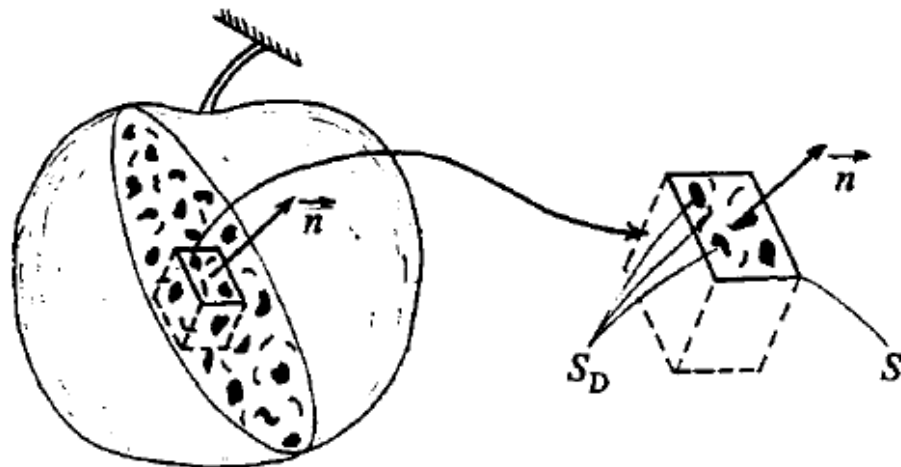
Peu d'études ont décrit l'effet du rapport de cellulose sur l'endommagement de l'interface Fibre/Matrice d'un matériau biocomposite et bionanocomposite ; A cet effet, nous avons mis en œuvre un modèle mathématique qui utilise à la fois un modèle analytique de transfert de charge (Modèle de Cox) et une approche statistique d'endommagement (Weibull) dans une fonction objective d'un algorithme génétique pour prédire l'effet de teneur en cellulose sur l'endommagement de l'interface fibre/matrice sur : les matériaux biocomposites (Coton-Polypropylène, Jute-Polypropylène, Lin- Polypropylène, Ramie-Polypropylène et Aramid- Polypropylène) .

Puis nous avons changé les matériaux biocomposites par des matériaux bionanocomposites (graphite/époxyde) et appliquer le même modèle génétique pour évaluer l'endommagement par cisaillement de l'interface fibre-matrice du matériau bionanocomposite Ramie/graphite-époxyde.

## IV.2 Les modèles analytiques de simulation

### IV.2.1. Endommagement de l'interface

Le maître Chaboche (1988) considère un solide endommagé dans lequel un élément de volume fini d'une entaille suffisamment grande par rapport aux hétérogénéités est défini comme suit [1]:



**Figure .IV. 1.** Élément endommagé [1].

- $S$  : aire de volume élémentaire représentatif repéré par sa norme  $\vec{n}$ ,
- $Se$  : la zone de résistance effective.

Si  $(Se < S)$  et  $S_D$  : aire endommagée

$$S_D = S - Se$$

La mesure mécanique de l'endommagement local par rapport à la direction  $\vec{n}$  est alors donné par :

$$D = S_D / S$$

D'où

- Si  $D = 0$  : le matériau se trouve dans un état vierge ou non endommagé ;
- Si  $D = 1$  : l'élément de volume est rompu en deux parties selon le plan normal  $n$  ;
- Si  $0 < D < 1$  :  $D$  caractérise l'état d'endommagement défini, le comportement élastique macroscopique du matériau endommagé peut être calculé en fonction de  $D$  par l'intermédiaire de la rigidité.

#### IV.2.2. Le Modèle probabiliste de Weibull

Lorsque la contrainte est uniforme, l'endommagement de la matrice, est donné par la formule (1) de Weibull [2]:

$$D_m = 1 - \exp \left\{ - \frac{V_{eff}}{V_0} \left[ \frac{\sigma_f}{\sigma_0} \right]^m \right\} \quad (1)$$

Avec :

$\sigma_f$ : la contrainte appliquée.

$V_{eff}$ : volume de la matrice

$m$  et  $\sigma_0$  : Paramètres de Weibull

$V_0$ : Volume initiale de la matrice

La fibre est supposée être un composant d'un ensemble de maillons ayant chacun leur propre résistance à la rupture. La fracture se produit lorsque le maillon le plus faible se rompt. Cette rupture peut être décrite par une loi similaire à celle de la matrice [3].

$$D_f = 1 - \exp \left\{ -A_f * L_{equi} * \left[ \frac{\sigma_{max}^f}{\sigma_{of}} \right]^{m_f} \right\} \quad (2)$$

Avec :

$\sigma_{max}^f$ : La contrainte maximale appliquée à la fibre;

$\sigma_{0f}$ : La contrainte initiale appliquée à la fibre;

$L_{equi}$ : Longueur des fibre à l'équilibre

$$A_f = \pi * a^2$$

$m, f$ : Paramètres de weibull

Les paramètres de *Weibull* sont déterminés par Sébastien GRANGE et Jean-Loup PRENSIER dans leur travail effectué en 2006 [4].

### IV.2.3. Modélisation du cisaillement de l'interface

Pour un volume élémentaire représentatif, de nombreux modèles analytiques ont été proposés. L'une des premières solutions celle de Cox [5], donne la forme de la contrainte de cisaillement le long de la longueur de la fibre sous la forme :

$$\tau = \frac{E_f a \varepsilon}{2} \left( \frac{2G_m}{E_f r_f^2 \ln\left(\frac{R}{r_f}\right)} \right) th \left( \frac{2G_m}{E_f r_f^2 \ln\left(\frac{R}{r_f}\right)} 1/2 \right) \quad (3)$$

Avec :

$G_m$  : Module de cisaillement de la matrice;

$\varepsilon$ : Déformation;

$a$ : Rayon de la fibre;

$r$  : Distance entre les fibres;

$E_f$  : Module de Young de la fibre;

$\tau$  : Contrainte de cisaillement de l'interface.

$r_f$  : La distance entre la fibre et la matrice

### IV.3. Partie 1 : Etude de l'endommagement de l'interface des matériaux biocomposites :

#### IV.3.1. Les caractéristiques des matériaux étudiés

##### IV.3.1.1. Les Fibres

Nous présenterons dans le tableau IV.1 la teneur en cellulose de certaines fibres naturelles et dans le tableau IV.2 les propriétés mécaniques des fibres font l'objet de cette étude.

	coton	Jute	lin	ramie	Sisal
Cellulose (%)	82.5	64.4	64.1	68.6	65.8
hémicellulose(%)	5.7	12.0	16.7	13.1	12.0
pectine(%)	5.7	0.2	1.8	19	0.8
lignine(%)	/	11.8	2.0	0.6	9.9
cire(%)	0.6	0.5	15	0.3	0.3
Eau (%)	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0

**Tableau IV.1.** Composition chimique des fibres végétales [9,10].

Fibres	Densité (g/cm <sup>3</sup> )	Allongement à la rupture (%)	Résistance à la traction (MPa)	Module de Young (GPa)	Réf
Coton	1.5-1.6	7.0-8.0	0.2-0.8	5.5-12.6	[9-11]
Jute	1.3	1.5-1.8	0.4-0.8	10-30	[9]
Lin	1.5	2.7-3.2	0.3-1.1	12-85	[9,11]
Ramie	1.5	1.2-3.8	0.4-1	61-128	[11]
Sisal	1.45	3.0-7.0	0.4-0.6	9-22	[11]

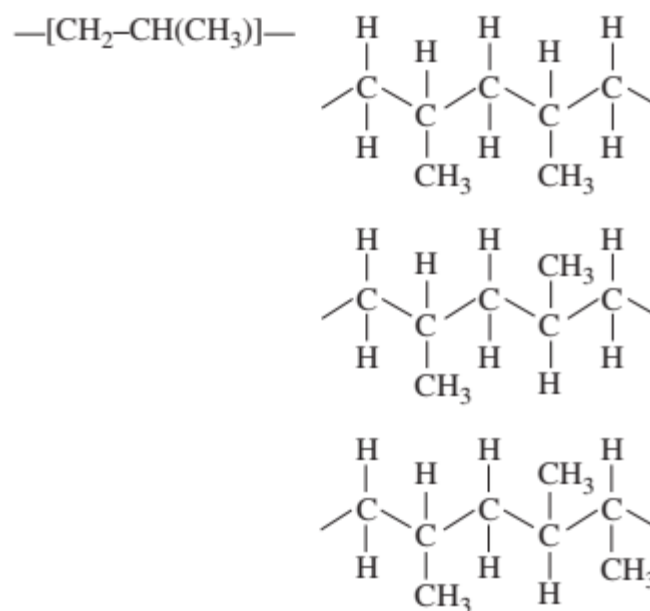
**Tableau.IV.2.** Propriétés physiques et mécaniques des fibres végétales.

##### IV.3.1.2. La matrice de polypropylène

Le polypropylène (PP), également appelé polypropène de formule chimique  $(-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-)_n$  est un polymère ayant des propriétés physico-chimiques et mécaniques intéressantes avec un prix relativement bas. La polymérisation Ziegler Natta ou la catalyse métallocène des monomères de propylène sont les méthodes d'obtention du PP. Il possède différents arrangements préférentiels en fonction de la position du groupe méthyle ( $\text{CH}_3$ ). Cette propriété est appelée tacticité. Il existe trois types de polypropylène selon leurs tacticités **Figure .IV. 2.** [12].

- ✓ Le polypropylène isotactique (iPP) est le plus répandu. Le groupe méthyle est positionné spatialement toujours du même côté.
- ✓ La deuxième forme est le polypropylène syndiotactique (sPP), qui a des groupes méthyles arrangés de façon alternative de part et d'autre de l'axe de la chaîne.
- ✓ Le troisième type de tacticité est l'atacticité ; les groupes méthyles sont aléatoirement répartis sur la longueur de la chaîne principale.

Le polypropylène (PP) est un polymère thermoplastique largement utilisé dans l'industrie de l'emballage et de l'étiquetage. Le polypropylène est un composant vital de l'industrie d'automobile [13-16] et même utilisé dans les billets de banque, il est robuste et exceptionnellement résistant à de nombreux solvants chimiques, bases et acides [19-22]. Le (PP) a été utilisé comme matrice en raison de ses nombreuses propriétés attrayantes, telles que son faible poids, son faible coût, son excellente température de distorsion thermique (supérieure à 100 °C) et sa recyclabilité [17,18]. La surface du polypropylène est glissante et a une très faible énergie, ce qui signifie que de nombreux adhésifs ne formeront pas des joints adéquats. Pour réaliser un assemblage en polypropylène, des méthodes de soudage sont souvent utilisées [20]. La densité de polypropylène est d'environ 0,90 (g/cm<sup>3</sup>) [12]. Le PP devient un plastique de base avec la plus faible densité. Contrairement au polyéthylène, les régions cristallines et amorphes ne diffèrent que légèrement en densité [20-24]. Les propriétés mécaniques du polypropylène sont présentées dans le **tableau.IV.3**.



**Figure .IV. 2.** Structure typique du polypropylène [12].

Matrice	Densité (g/cm <sup>3</sup> )	Resistance à la traction (MPa)	Module de Young (GPa)	Allongement (%)
Polypropylène	0.899-0.920	26-41.4	1.3-1.8	15-700

Tableau. IV.3. Propriétés mécaniques du polypropylène [20-24].

### IV.3.2. La simulation numérique par AG

#### IV.3.2.1. Développement de notre algorithme génétique

Nous avons étudié l'influence de la teneur en cellulose de chaque fibre sur l'endommagement l'interface fibre-matrice des matériaux étudiés (Coton-Polypropylène, Jute-Polypropylène, Lin- Polypropylène, Ramie-Polypropylène et Aramid- Polypropylène). Notre contribution consiste à croiser entre les endommagements de la matrice et de la fibre définis par le modèle Weibull pour générer l'endommagement à l'interface. L'approche génétique est essentiellement basée sur le modèle probabiliste de Weibull et notre fonction objective est définie par le modèle de Cox. [6- 8]. Notre algorithme générera aléatoirement une population initiale de 200 individus [3], ensuite, nous améliorons chaque population initiale par un ensemble d'opérateurs génétiques (sélection, croisement et mutation) et dans chaque cas, nous utilisons le module Young de chaque fibre donné par le tableau .IV.2. Les endommagements de l'interface sont déterminés à chaque itération par le croisement entre les endommagements de la matrice  $Dm$  et les endommagements de la fibre  $Df$ . La population est constituée de gènes chromosomiques représentant les variables suivantes : la contrainte de traction (105 et 125 N / m<sup>2</sup>), le module de Young, le module de cisaillement de la matrice, le diamètre de la fibre et la demi-distance R. L'évaluation de chaque génération est effectuée par une fonction objective dérivé du modèle de Cox, qui comprend toutes les variables définies au début de l'algorithme (propriétés mécaniques de chaque composant du composite, la distance R et le rayon). Pour exploiter les contraintes de traction maximales et voir le progrès de notre algorithme génétique, la sélection utilisée est de type roulette et avec une valeur de mutation sélectionnée égale à 0,34. Les calculs ont été effectués par les valeurs d'itération optimales trouvées des endommagements à l'interface, ce qui a permis l'optimisation des résultats de notre modèle génétique. (Voir la Figure .IV. 3.)



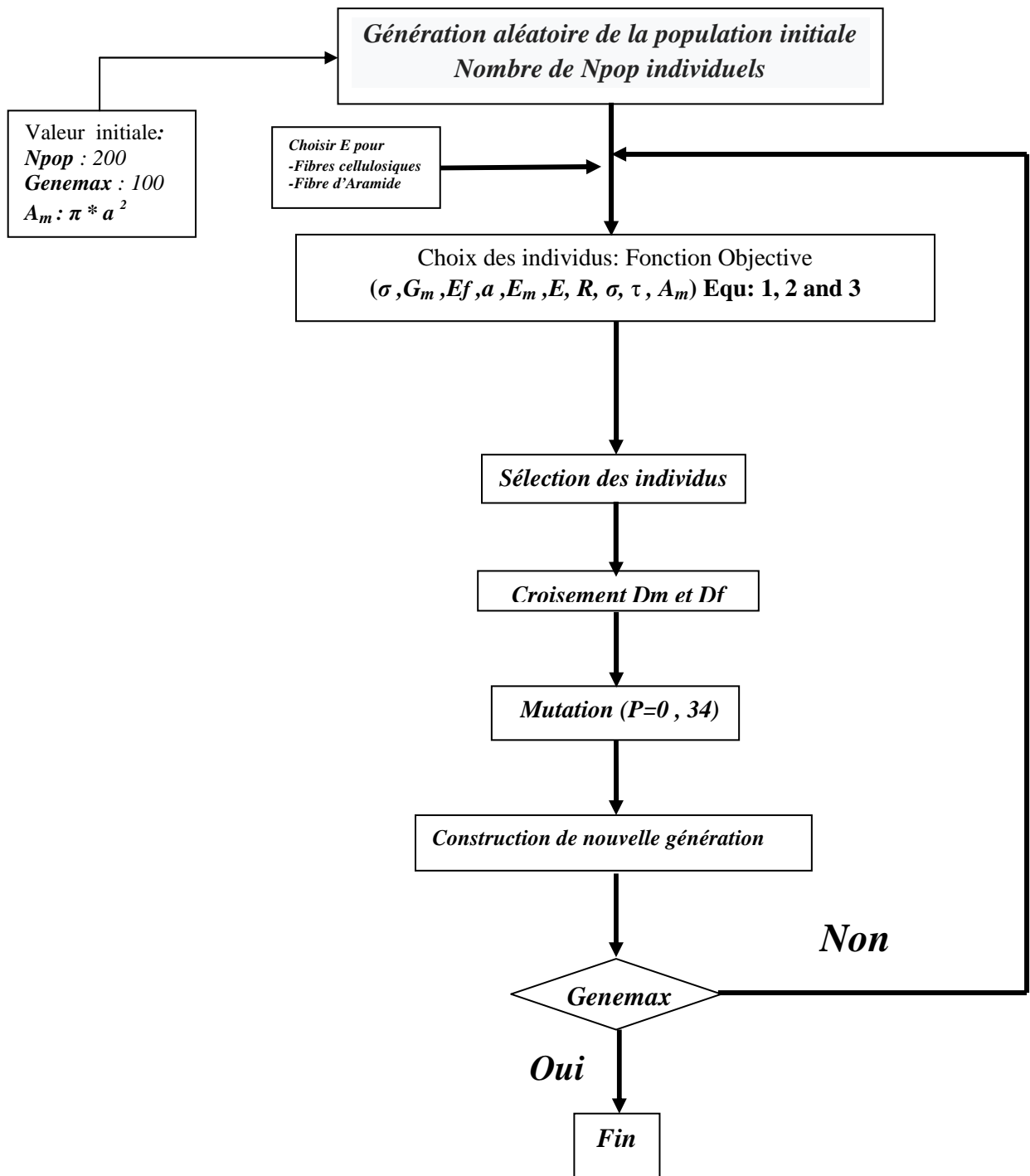


Figure .IV. 3. L'organigramme de l'algorithme génétique.

### IV.3.3. Les résultats de simulation

Pour affirmer notre approche, un calcul a été réalisé sur quatre types de matériaux biocomposites : *Coton/PP* , *Jute/PP*, *lin /PP*, *Ramie /PP*, et un matériau composite *Aramide/PP*.

Nous avons examiné la résistance des matériaux par l'application de différentes contraintes mécaniques:  $\sigma = 105 \text{ N / m}^2$  et  $\sigma = 125 \text{ N / m}^2$  et voir l'influence de teneur en cellulose de chaque fibre sur l'endommagement de l'interface Fibre/ Matrice

#### IV.3.3. 1. Aramide /PP

Les figures montrent que l'endommagement "D" de l'interface commence au niveau de **0,31** pour une contrainte mécanique  $\sigma = 105 \text{ N / m}^2$ , quand la contrainte augmente jusqu'à  $\sigma = 125 \text{ N / m}^2$  l'endommagement augmente jusqu'à une valeur maximale de **0,55**

- On remarque la présence d'une symétrie de l'endommagement de l'interface, dense au milieu et faible aux extrémités.

#### IV.3.3. 2. Ramie /PP

Les figures montrent que l'endommagement "D" de l'interface commence au niveau de **0,28** pour une contrainte mécanique  $\sigma = 105 \text{ N / m}^2$ , quand la contrainte augmente jusqu'à  $\sigma = 125 \text{ N / m}^2$  l'endommagement augmente jusqu'à une valeur maximale de **0,42**

- On remarque la présence d'une symétrie de l'endommagement de l'interface, dense au milieu et faible aux extrémités.

#### IV.3.3. 3. Jute /PP

Les figures montrent que l'endommagement "D" de l'interface commence au niveau de **0,22** pour une contrainte mécanique  $\sigma = 105 \text{ N / m}^2$ , quand la contrainte augmente jusqu'à  $\sigma = 125 \text{ N / m}^2$  l'endommagement augmente jusqu'à une valeur maximale de **0,32**

- On remarque la présence d'une symétrie de l'endommagement de l'interface, dense au milieu et faible aux extrémités.

#### IV.3.3. 4. Lin /PP

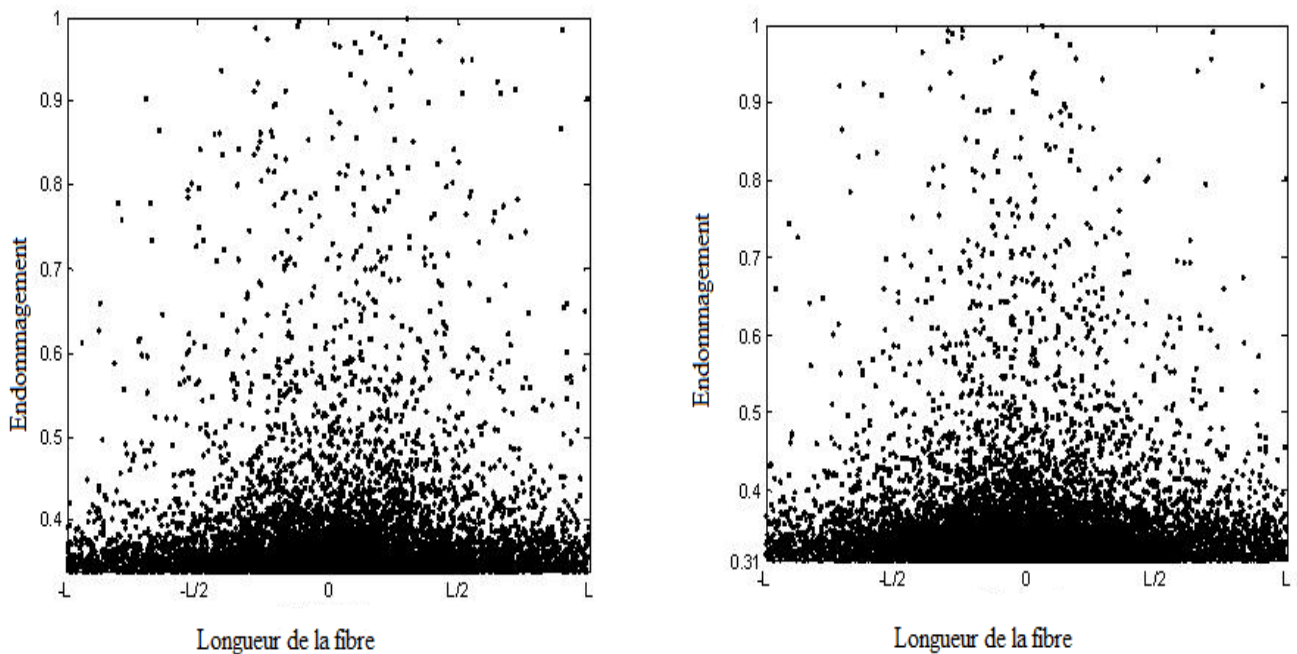
Les figures montrent que l'endommagement "D" de l'interface commence au niveau de **0,15** pour une contrainte mécanique  $\sigma = 105 \text{ N / m}^2$ , quand la contrainte augmente jusqu'à  $\sigma = 125 \text{ N / m}^2$  l'endommagement augmente jusqu'à une valeur maximale de **0,25**

- On remarque la présence d'une symétrie de l'endommagement de l'interface, dense au milieu et faible aux extrémités.

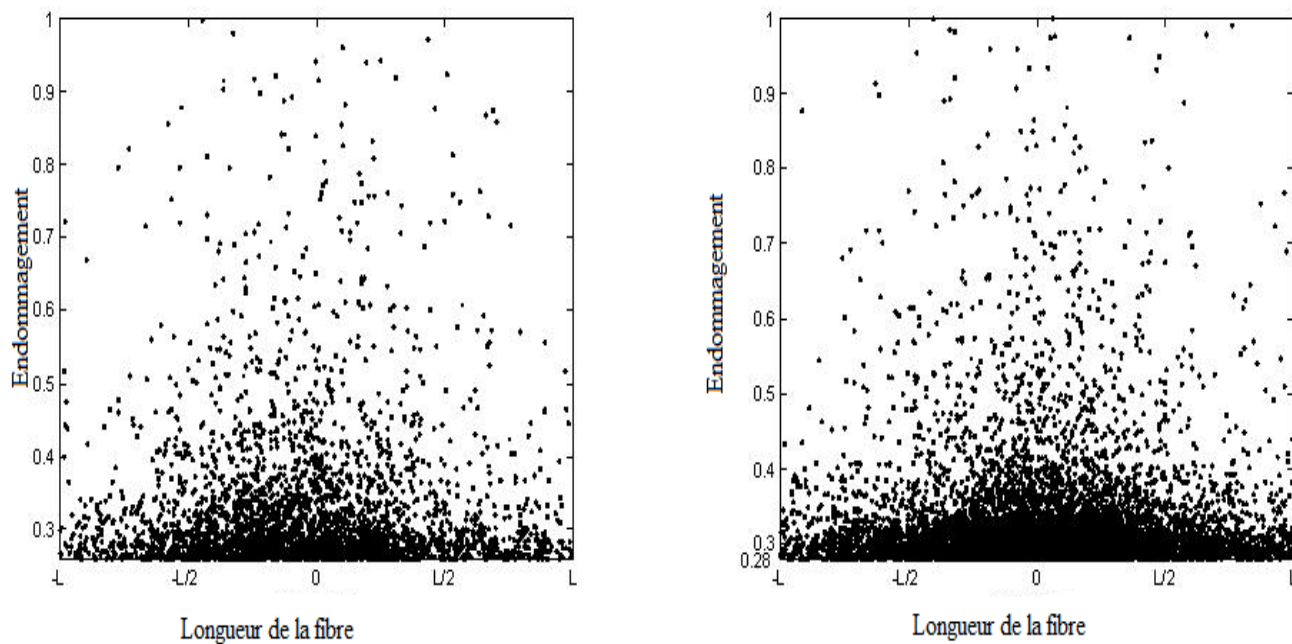
#### IV.3.3. 5. Coton /PP

Les figures montrent que l'endommagement "D" de l'interface commence au niveau de **0,05** pour une contrainte mécanique  $\sigma = 105 \text{ N / m}^2$ , quand la contrainte augmente jusqu'à  $\sigma = 125 \text{ N / m}^2$  l'endommagement augmente jusqu'à une valeur maximale de **0,12**

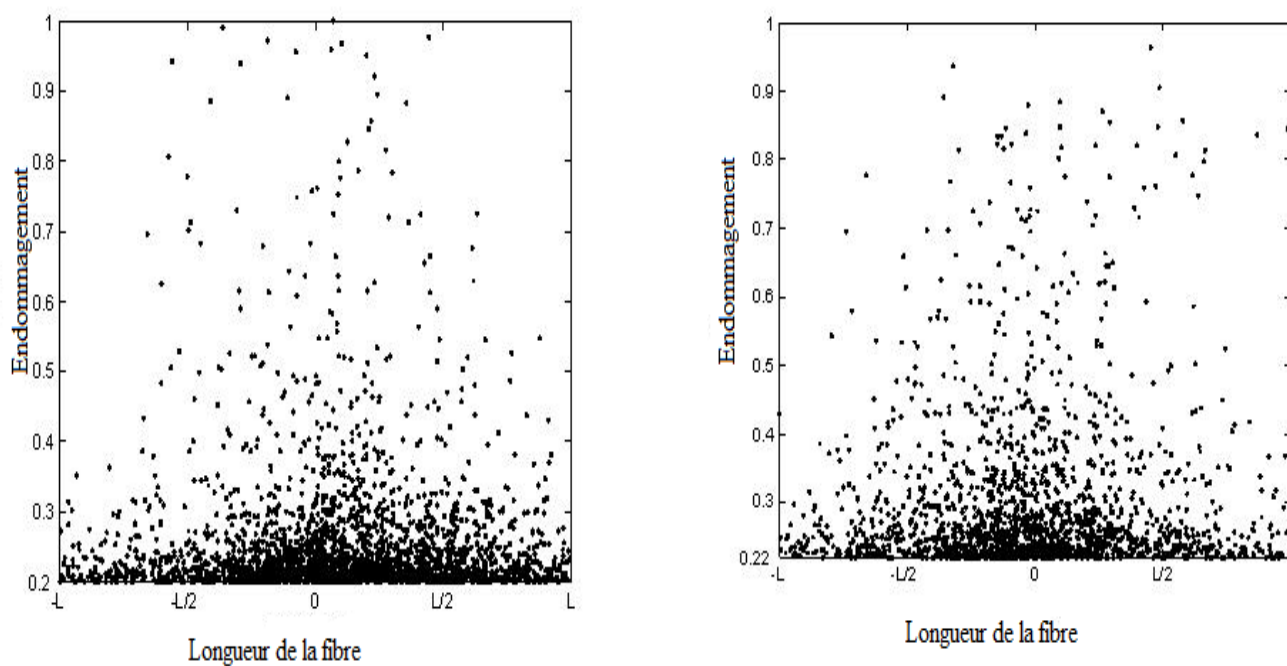
- On remarque la présence d'une symétrie de l'endommagement de l'interface, dense au milieu et faible aux extrémités.



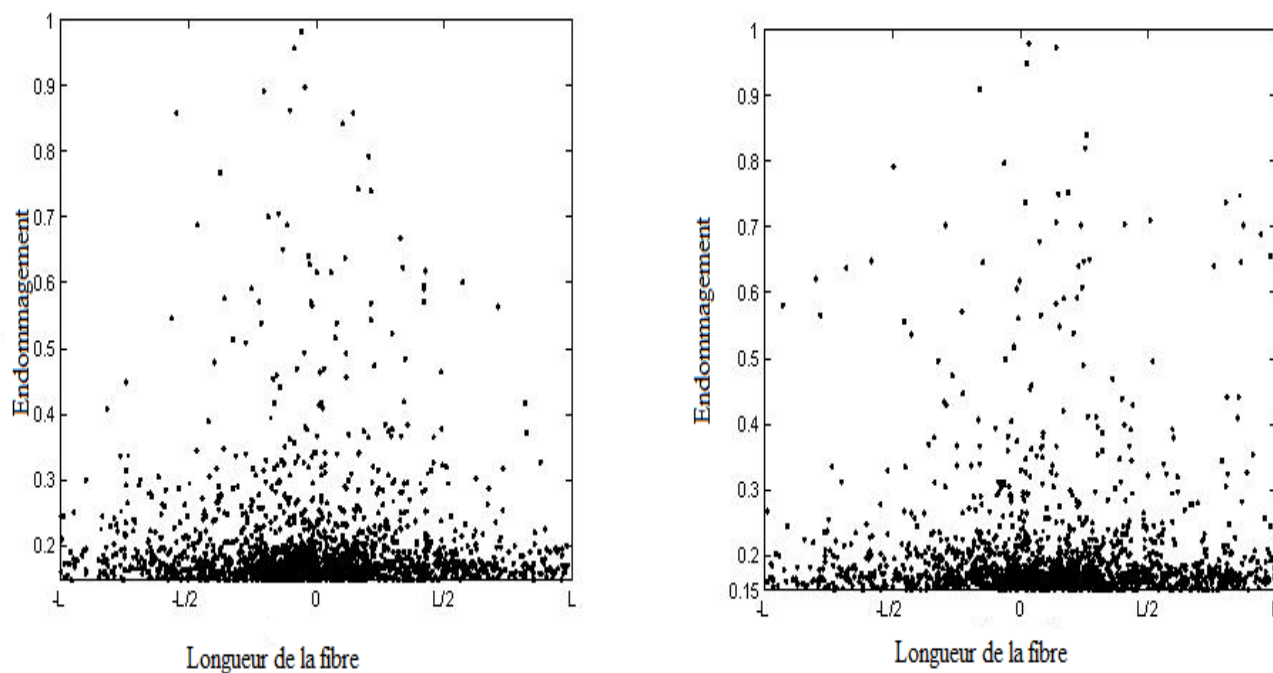
**Figure .IV. 4.** Les endommagements de l'interface de Aramide / Polypropylène.



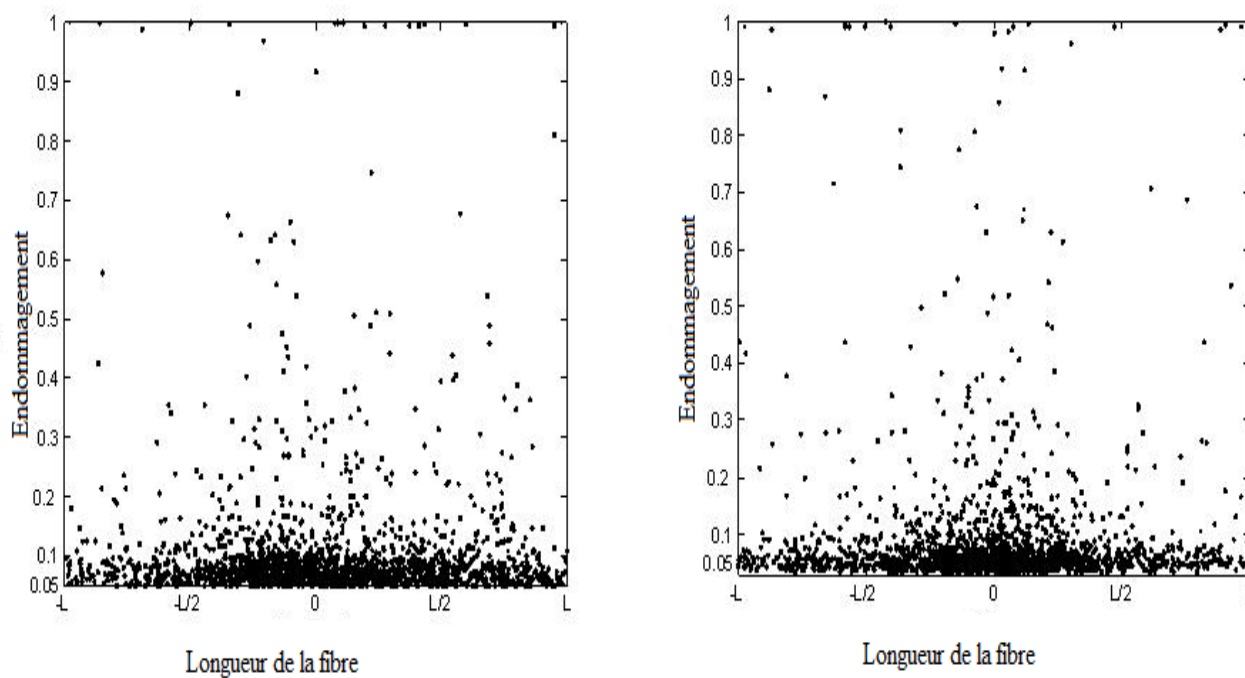
**Figure .IV. 5.** Les endommagements de l'interface de Ramie / Polypropylène.



**Figure .IV. 6.** Les endommagements de l'interface de Jute / Polypropylène.



**Figure .IV. 7.** Les endommagements de l'interface de Lin / Polypropylène.



**Figure .IV. 8.** Les endommagements de l'interface de Coton / Polypropylène.

#### IV.4.Partie 2:Etude de l'endommagement de l'interface d'un matériau bionanocomposite Ramie/graphite- époxyde

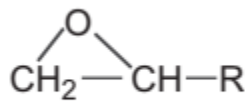
L'objectif de cette partie est de montrer l'effet des nanoparticules sur la résistance de l'interface fibre-matrice des matériaux bio-nanocomposites constitué de la fibre Ramie et de la matrice graphite-époxyde. Les propriétés mécaniques de fibre de ramie sont déjà indiquées dans le **tableau IV.02**.

##### IV.4.1. Matrice graphite / époxyde

###### IV.4.1. 1. L'époxyde

Les matériaux composites à matrice époxy sont de plus en plus utilisés en raison de leurs grandes propriétés spécifiques [27-29]. La résine époxy appartient à la famille des polymères thermodurcissables, qui se compose d'une chaîne covalente tridimensionnelle d'unités moléculaires répétitives [30]. Cette réaction est déclenchée par les durcisseurs et par la température. Les résines époxydes sont composées d'une partie époxy et d'une partie durcissant. Cette dernière contient des extrémités pouvant être ajoutées aux cycles époxy de la résine au cours du traitement ou à des fonctions catalytiques qui éliminent la copolymérisation du système époxy voire la **figure .IV. 9**. [31,32].

Sous l'action de la température, ces résines conservent un comportement solide, les chaînes macromoléculaires étant reliées entre elles par des liaisons de réticulation. À des températures plus élevées, ils se dégradent sans fondre [32].



**Figure .IV. 9.** Chaînes époxy [33,34].

Le rôle principal d'une résine époxy est de transférer les contraintes mécaniques aux fibres et de protéger la structure de l'environnement extérieur. L'époxy présente une certaine déformabilité et une bonne compatibilité avec les fibres [33]. Ces caractéristiques essentielles sont résumées dans le **tableau.IV.4**.

Matrices	Densité (g/cm <sup>3</sup> )	Resistance à la traction (MPa)	Module D'élasticité (GPa)	Allongement (%)
Epoxy	1.2-1.4	50-110	2.5-5	2-5

Tableau.IV.4. Caractéristiques mécaniques de la matrice d'époxy [33,35].

#### IV.4.1. 2. Le Graphite

Les nanoparticules de graphite sont une sorte de nanomatériaux de carbone de dimension zéro [36]. Le graphite a une structure 3d d'atomes de carbone en hybridation  $sp^2$  avec des liaisons covalentes [37]. Le graphite est constitué de plans parallèles de graphène sous forme de nid d'abeilles. Des atomes de carbone sont empilés successivement en plans (ABAB. . .), et sont liés entre eux par des liaisons de Van Der Waals. Sa structure cristallographique est hexagonale simple. La distance inter-feuillets est de  $3.35\text{Å}$ , c'est la structure la plus stable à température ambiante et à pression atmosphérique [38]. Une autre structure également bien connue de graphite, est la structure rhomboédrique faiblement métastable. Elle diffère de la précédente par l'ordre d'empilement des plans de graphites ABCABC. . . . Cette structure a les mêmes paramètres que la précédente, mais avec le paramètre  $c$  qui correspond à trois fois la distance inter-graphènes ( $c = 10,1\text{Å}$ ) [38]. Dans les deux cas, chaque atome de carbone est lié à trois carbones voisins avec un angle de  $120^\circ$  [37].

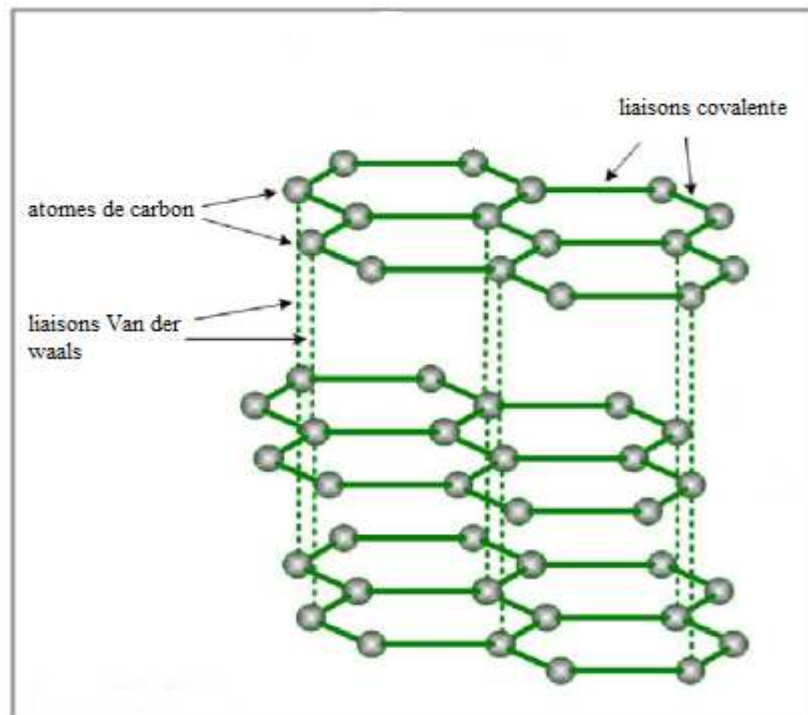
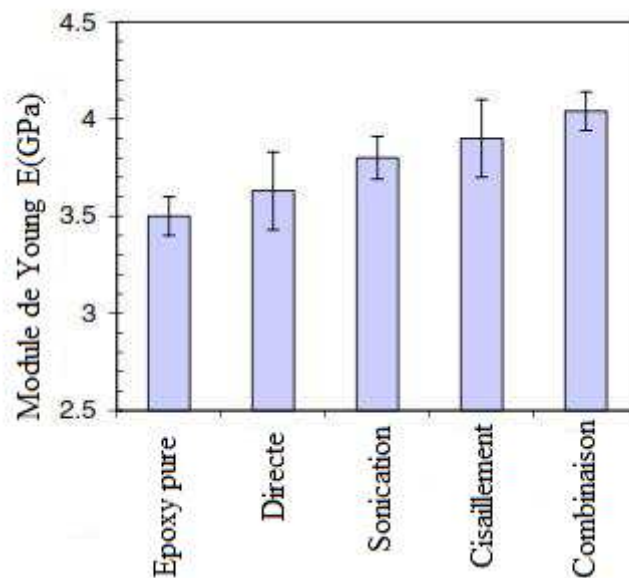


Figure .IV. 10. Structure du graphite [38].

Hui et al. [39] et Jing et al. [40] ont mené des recherches sur le graphite pour déterminer l'influence de la taille des particules sur la conductivité électrique des matériaux composites. Les résultats ont montré qu'une augmentation de la taille des particules de graphite pourrait augmenter la conductivité du composite.

Les nanocomposites composés de la matrice époxyde renforcé par les nano particules de graphite ont été fabriqués par méthode directe, par sonication, par mélange au cisaillement et par une combinaison des méthodes de sonication et de mélange par cisaillement. Parmi ceux-ci, la combinaison de sonication et de mélange par cisaillement a donné les meilleurs résultats en termes de module d'élasticité et de résistance à la traction, tandis que le mélange direct a donné les résultats les plus faibles parmi toutes les techniques de traitement. Dans cette étude, nous avons utilisé les résultats expérimentaux sur des nanocomposites graphite époxy trouvés par Yasmine et al [25] pour valider notre approche génétique **Figure IV.11**.



**Figure IV.11.** Variation du module d'élasticité de nanocomposites graphite-époxy pour différentes techniques de traitement.

#### IV.4.2. Développement de l'algorithme génétique

L'objectif de cette partie est d'appliquer le même modèle génétique de la partie 1 et dévaluer l'endommagement de l'interface fibre-matrice d'un matériau bionanocomposite Ramie/ graphite-époxyde. Pour cela, nous avons choisi d'utiliser une optimisation génétique en utilisant les ensembles de résultats de Yasmine  $E=3,9$  GPa [25], et un ensemble d'outils



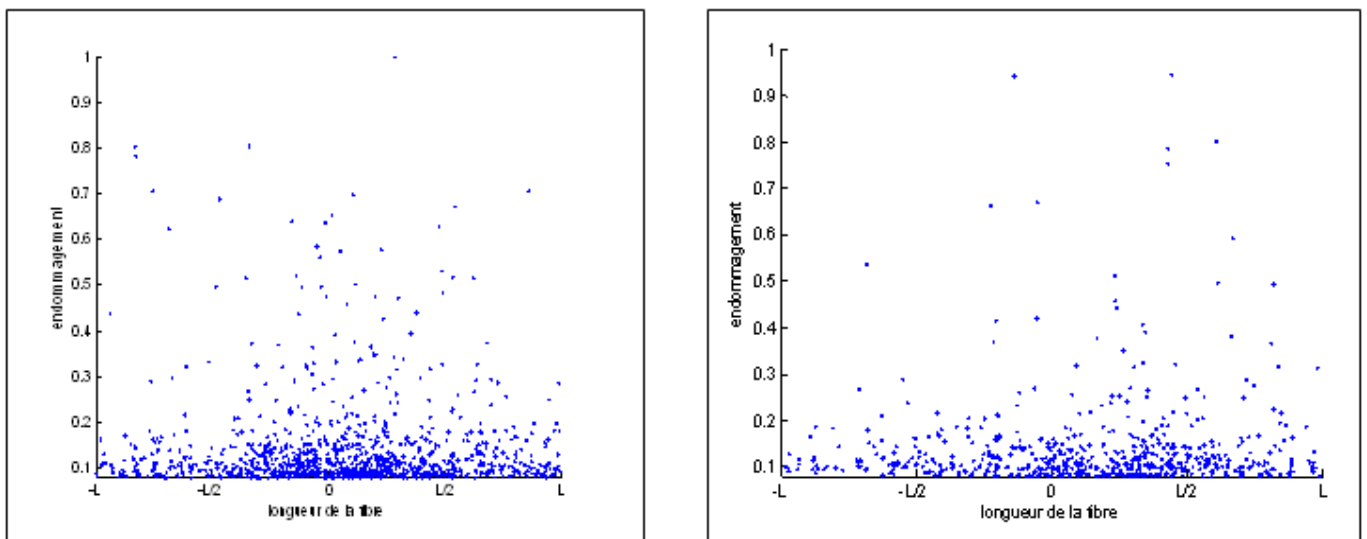
mathématiques et analytiques définies par le modèle de Cox et de théorème de la probabilité de Weibull. L'évaluation de chaque génération est effectuée par une fonction objective basée sur le modèle de Cox, qui comprend toutes les variables définies au début de l'algorithme (propriétés mécaniques de chaque composant du composite, le module d'Young, etc.),

#### IV.4.3 Les résultats de simulation

##### IV.4.3.1 Ramie /graphite-époxyde

Les figures montrent que l'endommagement "D" de l'interface commence au niveau de **0,05** pour une contrainte mécanique  $\sigma = 105 \text{ N / m}^2$ , quand la contrainte augmente jusqu'à  $\sigma = 125 \text{ N / m}^2$ , l'endommagement augmente jusqu'à une valeur maximale de **0,08**

- On remarque la présence d'une symétrie de l'endommagement de l'interface, dense au milieu et faible aux extrémités.



**Figure .IV. 12.** Les endommagements de l'interface de Ramie / Graphite-époxyde.

#### IV.5. Discussion des résultats

- ✓ Les résultats de notre approche génétique montrent que la concentration des variables aléatoires qui représente l'endommagement de l'interface dense au milieu de la fibre par rapport aux deux extrémités; c'est déjà confirmé par Cox.
- ✓ Ces endommagements diminuent progressivement lorsque la teneur en cellulose de chaque fibre augmente, où la même matrice a été utilisée pour les cinq fibres.

- ✓ Les nano particules de graphite ont amélioré la qualité de la matrice époxyde et par conséquent, l'interface fibre-matrice du bionanocomposite Ramie/graphite-époxyde a été la plus résistante par rapport aux autres interfaces malgré qu'on ait utilisé la fibre la plus pauvre au cellulose.

#### IV.6. Conclusion

Les résultats de notre modélisation génétique confirment que le niveau de l'endommagement est lié aux contraintes mécaniques appliquées sur les cinq matériaux étudiés: Coton-Polypropylène, Jute-Polypropylène, Lin Polypropylène, Ramie-Polypropylène et Aramide-Polypropylène. Notre modélisation génétique indique que le taux de cellulose dans chaque fibre a une influence significative sur la dégradation progressive de l'interface. Les résultats montrent que le niveau de dégradation de l'interface de composite Aramide-Polypropylène est supérieur à celui des autres matériaux biocomposites et que l'endommagement de l'interface coton-polypropylène (82.5 % de cellulose) est très faible par rapport aux autres biocomposites. On peut donc dire que le modèle a correctement pris en compte le phénomène de dégradation d'un composite unidirectionnel et biocomposite, nos calculs coïncident parfaitement avec les conclusions d'**Antoine et al [26]** qui ont montré que le taux de cellulose dans chaque fibre participe à l'amélioration des propriétés mécaniques des matériaux biocomposites. Les nano particules de graphite ont participé activement à l'amélioration de l'interface fibre-matrice des matériaux bionanocomposites, ce qui montre que les bionanocomposites sont plus résistants et plus performants que les matériaux biocomposites.

## Références

- [1] Lem.J and Chaboche.J.L. (1988). Mechanics of solid materials. Edition Dunod,
- [2] W. Weibull. (1939). Theory of the strength of materials, Royal Swedish Academy of Eng. Sci. Proc. 151, 1-45.
- [3] Alami, M., Mokaddem, A., Doumi, B., Beldjoudi, N., & Boutaous, A. (2015). Investigation by a Genetic Algorithm of the Effect of Moisture Diffusion on the Fiber Matrix Interface Damage of Graphite/Epoxy Nanocomposite. Recent Patents on Materials Science, 8(3), 253–259.
- [4] Sébastien GRANGE, Jean-Loup PRENSIER. Annexe : Détermination des paramètres de Weibull Le modèle de Weibull : un critère de rupture probabiliste. Université Paris-Saclay, 01/07/2006 <http://eduscol.education.fr/sti/si-ens-cachan/>
- [5] Cox H.L. (1952). The elasticity and strength of paper and other fibrous materials, British journal of applied physics , 12, 72–79
- [6] Ziani, N., Boudali, A., Mokaddem, A., Doumi, B., Beldjoudi, N., & Boutaous, A. (2016). Study by Genetic Algorithm of the Role of Alfa Natural Fibre in Enhancing the Mechanical Properties of Composite Materials Based on Epoxy Matrix. Fibres and Textiles in Eastern Europe, 24(3(117)), 58–62.
- [7] Lahouari, H. T., Allel, M., Belkaid, N., Boutaous, A., & Bouamrane, R. (2013). Study of the Effect of Water Intake by the Matrix on the Optimization of the Fiber Matrix Interface Damage for a Composite Material by Genetic Algorithms. Strength of Materials, 45(6), 739–747.
- [8] Mokaddem, A., Alami, M., Boutaous, A. (2012). A study by a genetic algorithm for optimizing the arrangement of the fibers on the damage to the fiber–matrix interface of a composite material. The Journal of The Textile Institute , 103(12), 1376–1382
- [9] Ticoalu A, Aravinthan T, Cardona F. (2010). A review of current development in natural fiber composites for structural and infrastructure applications. Proceedings of the Southern region engineering conference (SREC 2010). Engineers Australia.
- [10] Mohanty, A.K., Misra, M., and Hinrichsen, G. (2000), "Biofibers, biodegradable polymers and biocomposites: An overview. Macromolecular Materials and Engineering, 276(277), 1-24.

- [11] Sena Neto, A. R., Araujo, M. A. M., Souza, F. V. D., Mattoso, L. H. C., & Marconcini, J. M. (2013). Characterization and comparative evaluation of thermal, structural, chemical, mechanical and morphological properties of six pineapple leaf fiber varieties for use in composites. *Industrial Crops and Products*, 43, 529–537.
- [12] Gopanna, A., Rajan, K. P., Thomas, S. P., & Chavali, M. (2019). Polyethylene and polypropylene matrix composites for biomedical applications. *Materials for Biomedical Engineering*, 175–216. doi:10.1016/b978-0-12-816874-5.00006-2
- [13] Mader A, Kondor A, Schmid T, Einsiedel R, Mussig. (2016). J Surface properties and fiber-matrix adhesion of man-made cellulose epoxy composites influence on impact properties. *Compos Sci Technol*, 123,163–170.
- [14] Müssig, J., & Graupner, N. (2017). Characterisation of Fibre/Matrix Adhesion in Biobased Fibre-Reinforced Thermoplastic Composites. *Textile Finishing*, 485–555.
- [15] Bledzki, A.K. and Gassan, J. (1999). Composite reinforced with cellulose based fibers, *Progress in Polymer Science*, 24: 221-274
- [16] El Hadji Babacar Ly Nouveaux matériaux composites ther moformables à base de fibres de cellulose. *Matériaux*. Institut National Polytechnique de Grenoble, Thèse de Doctorat, INPG 2008.
- [17] Ashori, A., Menbari, S., & Bahrami, R. (2016). Mechanical and thermo-mechanical properties of short carbon fiber reinforced polypropylene composites using exfoliated graphene nanoplatelets coating. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 38, 37–42.
- [18] Gabr, M. H., Okumura, W., Ueda, H., Kuriyama, W., Uzawa, K., & Kimpara, I. (2015). Mechanical and thermal properties of carbon fiber/polypropylene composite filled with nano-clay. *Composites Part B: Engineering*, 69, 94–100.
- [19] Tripathi, D. (2001). *Practical guide to polypropylene*. Shrewsbury RAPRA ISBN 1859572820,
- [20] Polypropylene Plastic Materials & Fibers by Porex. *www.porex.com*. Retrieved 2016;11(09)
- [21] Clive, Calafut, Teresa Polypropylene: the definitive user's guide and databook. William Andrew. 1998; 14. ISBN 978-1-884207-58-7

- [22] Kaiser, (2011) Wolfgang Kunststoffchemie für Ingenieure von der Synthese se bis zur Anwendung (3. ed.). München: Hanser ; ISBN 978-3-446-43047-1,
- [23] Nuyken, von Sebastian Koltzenburg, Michael Maskos, Oskar Polymere. (2013). Synthese, Eigenschaften und Anwendungen. Springer; ISBN 978-3642347726
- [24] Cacciari, I.; Quatrini, P.; Zirletta, G.; Mincione, E.; Vinciguerra,V.; Lupattelli, P.; Giovannozzi Sermanni, G. (1993). Isotactic polypropylene biodegradation by a microbial community: Physicochemical characterization of metabolites produced". Applied and Environmental Microbiology, 59 (11): 3695–3700
- [25] Yasmin, A., Luo, J.-J., & Daniel, I. M. (2006). Processing of expanded graphite reinforced polymer nanocomposites. Composites Science and Technology, 66(9), 1182–1189. [26] Antoine Le Digou, Peter Davies, Christophe Baley,C. Study of interfacial bonding of Flax fibre/Poly-L-lactide. JNC 16, Toulouse, France. AMAC 2009:10
- [27] Abdellaoui, H., Bensalah, H., Echaabi, J., Bouhfid, R., & Qaiss, A. (2015). Fabrication, characterization and modelling of laminated composites based on woven jute fibres reinforced epoxy resin. Materials & Design, 68, 104–113.
- [28] Zhou, H., Du, X., Liu, H.-Y., Zhou, H., Zhang, Y., & Mai, Y.-W. (2017). Delamination toughening of carbon fiber/epoxy laminates by hierarchical carbon nanotube-short carbon fiber interleaves. Composites Science and Technology, 140, 46–53.
- [29] Ying, Z., Xianggao, L., Bin, C., Fei, C., & Jing, F. (2015). Highly exfoliated epoxy/clay nanocomposites: Mechanism of exfoliation and thermal/mechanical properties. Composite Structures, 132, 44–49.
- [30] Zaman, I., Nor, F. M., Manshoor, B., Khalid, A., & Araby, S. (2015). Influence of Interface on epoxy/clay Nanocomposites: 2. Mechanical and Thermal Dynamic Properties. Procedia Manufacturing, 2, 23–27.
- [31] Gassan, J., & Bledzki, A. K. (1999). Possibilities for improving the mechanical properties of jute/epoxy composites by alkali treatment of fibres. Composites Science and Technology, 59(9), 1303–1309.
- [32] Jawaid, M., Abdul Khalil, H. P. S., & Abu Bakar, A. (2011). Woven hybrid composites: Tensile and flexural properties of oil palm-woven jute fibres based epoxy composites. Materials Science and Engineering: A, 528(15), 5190–5195.

- [33] Abdellaoui, H., Raji, M., Bouhfid, R., & Qaiss, A. el kacem. (2019). Investigation of the deformation behavior of epoxy-based composite materials. *Failure Analysis in Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 29–49. doi:10.1016/b978-0-08-102293-1.00002-4
- [34] Gibson, G. (2017). Epoxy Resins. *Brydson's Plastics Materials*, 773–797. doi:10.1016/b978-0-323-35824-8.00027-x
- [35] Dixit, D., Pal, R., Kapoor, G., & Stabenau, M. (2016). Lightweight composite materials processing. *Lightweight Ballistic Composites*, 157–216. doi:10.1016/b978-0-08-100406-7.00006-4
- [36] Suherman, H., Mahyoedin, Y., Septe, E., & Rizade, R. (2019). Properties of graphite/epoxy composites: the in-plane conductivity, tensile strength and Shore hardness. *AIMS Materials Science*, 6(2), 165–173.
- [37] Rostami R, Ebrahimabadi A, Bakhshandeh M. (2017). Using Graphite Nanoparticles for Optimum Design of Water-Based Drilling Fluid (Case Study: Azadegan Oil Field). *Eurasia J Biosci* ,11, 16-21.
- [38] Littlejohn, S. D. (2014). *Electrical Properties of Graphite Nanoparticles in Silicone*. Springer Theses. doi:10.1007/978-3-319-00741-0
- [39] Hui C, Hong-Bo L, Li Y, et al. (2010). Study on the preparation properties of novolac epoxy/graphite composite bipolar plate for PEMFC. *Int J Hydrogen Energ* ,35, 3105–3109.
- [40] Jing X, Zhao W, Lan L. (2000). The effect of particle size on the electric conducting percolation threshold in polymer/conducting particle composites. *J Mater Sci Lett* ,19, 377–379.

*Conclusion*

*Générale*

## **Conclusion générale**

Le domaine de développement des nouveaux matériaux composites pour les grandes applications industrielles est en croissance continue, cette croissance a enregistré un taux annuel moyen d'environ de 8%. La compétitivité des matériaux composites est due principalement à leur légèreté, leur résistance et que ses matériaux s'ouvrent à de nouveaux challenges (les matériaux composites à mémoire de forme développés par La Nasa, lorsqu'ils activaient par la chaleur, l'effet mémoire de la structure du polymère entre en action et lui permet de retrouver sa forme initiale et de corriger lui-même ses défauts), mais le problème de recyclage reste toujours posé. Le défi actuel est de présenter des matériaux composites qui se conforment aux exigences environnementales.

L'objectif de cette étude est de modéliser l'endommagement de l'interface fibre-matrice par une simulation génétique, et ceci en absence des modèles analytiques caractérisant cet endommagement, afin de proposer aux expérimentateurs de nouveaux matériaux biocomposites et bionanocomposites résistants, légers et qui se conformes aux réglementations environnementales.

Peu d'études ont décrit l'effet du pourcentage de cellulose sur l'endommagement de l'interface fibre-matrice d'un matériau biocomposite et bionanocomposite. Notre contribution est de fournir un modèle analytique basé sur une approche génétique pour prédire l'effet de teneur en cellulose de fibre et les nanoparticules de graphites sur l'endommagement de l'interface des biocomposites et bionanocomposites, nous rappelons que les matériaux étudiés sont (Coton-Polypropylène, Jute-Polypropylène, Lin- Polypropylène, Ramie-Polypropylène, Aramid- Polypropylène et Ramie/Graphite-époxyde), les résultats montrent que le niveau de l'endommagement de l'interface est lié à la teneur en cellulose de chaque fibre pour les biocomposites, et que cet endommagement de l'interface de composite Aramide-Polypropylène est supérieur à celui des autres matériaux biocomposites et que l'endommagement de l'interface coton-polypropylène (82.5 % de cellulose) est très faible par rapport aux autres biocomposites.

Les nano particules de graphite ont participé activement à l'amélioration de l'interface fibre-matrice des matériaux bionanocomposites ramie/graphite-époxyde, et que le niveau d'endommagement de cette interface est reste toujours le plus faible comparant avec celui du biocomposite coton-polypropylène, ce qui montre que les bionanocomposites sont plus résistant et plus performants que les matériaux biocomposites.



On peut donc dire que le modèle a correctement pris en compte le phénomène de dégradation d'un biocomposite unidirectionnel et bionanocomposite et que nos calculs coïncident parfaitement avec les conclusions d'Antoine et al. qui ont déterminé que les fibres végétales participent à l'amélioration des propriétés mécaniques des matériaux biocomposites et bionanocomposites.

Nos perspectives s'ouvrent sur l'étude des nouveaux matériaux bionanocomposites basés principalement sur les nanotubes de carbone et d'une matrice biopolymère sous l'effet de la température pour voir la résistance de l'interface fibre-matrice et de la comparer avec nos résultats trouvés précédemment.

## " التحقيق ونمذجة تلف واجهة المواد المركبة النانوحويوية "

### الملخص:

التكنولوجيا الحديثة تتطلب خصائص ميكانيكية قوية أكثر وأكثر. برزت وجهات نظر جديدة مع ظهور المواد الحويوية المركبة التي يستمر مجال استخدامها في التوسع لتلبية عدد من المعايير. ومع ذلك ، لا تزال بعض جوانب سلوكهم الميكانيكي غير مفهومة بشكل جيد. في هذا السياق ، قمنا بالتحقيق باستخدام الخوارزمية الجينية القائمة على نماذج احتمالية لمعرفة تأثير محتوى السليلوز في كل ليف على تلف الواجهة بين الليف والمصفوفة في المواد المركبة النانو حويوية. أظهرت النتائج التي تم الحصول عليها أن قيم الأضرار التي لحقت بواجهة المواد النانو الحويوية المركبة انخفضت مع زيادة معدل السليلوز في كل ليف وهذه القيم ضعيفة مقارنة بالأضرار في المواد المركبة. تتوافق حساباتنا تمامًا مع البيانات التجريبية لـ Antoine et al. التي أظهرت أن الألياف السليلوزية هي تعزيزات جيدة للمواد المركبة.

**الكلمات المفتاحية:** التلف ، الواجهة ، السليلوز ، الخوارزمية الجينية ، المركبات النانو حويوية.

### «Investigation et modélisation de l'endommagement d'interface des bio-nanocomposites»

#### Résumé :

La technologie moderne nécessite de plus en plus des caractéristiques mécaniques sévères. De nouvelles perspectives sont apparues avec l'apparition des matériaux bio-composites dont le domaine d'utilisation ne cesse de s'élargir pour répondre à un certain nombre de critères. Néanmoins, certains aspects de leur comportement mécanique sont encore mal compris. Dans ce contexte, nous avons investigué en utilisant une modélisation génétique basée sur des modèles probabilistes de l'effet de la teneur en cellulose de chaque fibre sur l'endommagement d'un matériau bionanocomposite . Nos résultats obtenus ont montré que les valeurs de l'endommagement de l'interface fibre-matrice des matériaux bionanocomposites diminués avec l'augmentation de taux de cellulose dans chaque fibre et ces valeurs sont faibles en comparant avec les endommagements dans le matériau composite. Nos calculs coïncident parfaitement avec les données expérimentales d'Antoine et al. qui ont montré que les fibres cellulosiques sont des bons renforts pour un matériau composite.

**Mots clés:** Endommagement , interface, Cellulose, algorithme génétique, bionanocomposites.

### « Investigation and modeling of the interface damage of bio-nanocomposites »

#### Abstract :

Modern technology increasingly requires severe mechanical characteristics. New perspectives have emerged with the advent of bio-composite materials whose the field of use continues to expand to answer a number of criteria. Nevertheless, some aspects of their mechanical behavior are still unclear. In this context, we investigated using genetic modeling based on probabilistic models the effect of the cellulose content of each fiber on the damage of a bionanocomposite material. Our results obtained showed that the damage values of the fiber-matrix interface of the bionanocomposite materials decreased with the increase of cellulose content in each fiber and these values are low comparing with the damages in the composite material. Our calculations coincide perfectly with the experimental data of Antoine et al. which have shown that cellulosic fibers are good reinforcements for a composite material.

**Key words :** Damage, interface, Cellulose, genetic algorithm, bionanocomposites.