

DETERMINATION DES PROPRIETES MECANIQUES, RHEOLOGIQUES ET PHYSICOCHIMIQUES D'UN BIOCOPPOSITE A BASE DE PP RECYCLE ET DES FIBRES DE FEUILLES DE RONIER

Coumba THIANDOUUME¹, Papa Mbaye DIOUF^{*,1}, Babacar NIANG², Sajith T. ABDULRAHMAN³, Ousmane NDOUR¹, Elhadji Babacar LY^{1,2}, Sabu THOMAS^{3,4}, Adams TIDJANI¹

¹Laboratoire de Rayonnements Naturels et Artificiels / Département de Physique / Université Cheikh Anta Diop de Dakar / Dakar / Sénégal

²Section de Physique Appliquée, Unité de Formation et de Recherche de Sciences Appliquées et de Technologies / Université Gaston Berger / Saint-Louis / Sénégal

³International and Inter University Center of Nanoscience and Nanotechnology / Mahatma Gandhi University / Kottayam / Kerela / India

⁴India School of Chemistry / Mahatma Gandhi University / Kottayam / Kerela / India

Email: * papambaye.diouf@ucad.edu.sn

INFOS SUR L'ARTICLE

Historique de l'article:

Reçu le : Aout 2022

Reçu en format revisé le : xx juillet 201x

Accepté le : xx juillet 201x

Mots-Clés : *Polypropylène recyclé, Feuille de Rônier, Biocomposite, Rhéologie*

Keywords : *Recycled polypropylene, Ronier Palm leave, Biocomposite, Rheology*

RESUME / ABSTRACT

Du polypropylène recyclé (PPr) à partir des déchets plastiques de post-consommation a été avec des fibres issues de la feuille du Rônier pour la conception de biocomposites bois polymère. Deux groupes de fibres ont été utilisés à savoir les FRN et les FRE. L'analyse infrarouge à transformer de Fourier, le test de traction, le test de dureté, le test rhéologique ainsi que le test d'absorption d'eau ont été effectués pour déterminer les caractéristiques physicochimiques des biocomposites. L'analyse infrarouge a montré que le mélange entre la fibre et matrice est purement physique. La résistance à la traction a diminué en fonction du taux de renforts aussi bien pour les FRE que pour les FRN. Cette diminution est plus significative avec les FRE. Le module de Young a augmenté avec des taux élevés de FRN. Cependant, il a diminué avec les taux élevés de FRE. La dureté a augmenté avec les taux de FRE et de FRN. Avec l'ajout des fibres végétales le module de stockage G' ainsi que le module de perte G" ont augmenté en fonction de la fréquence angulaire. La viscosité complexe et la capacité d'absorption d'eau ont également été augmenté par l'ajout de la fibre végétale.

Résumé. Du polypropylène recyclé (PPr) à partir des déchets plastiques de post-consommation a été avec des fibres issues de la feuille du Rônier pour la conception de biocomposites bois polymère. Deux groupes de fibres ont été utilisés à savoir les FRN et les FRE. L'analyse infrarouge à transformer de Fourier, le test de traction, le test de dureté, le test rhéologique ainsi que le test d'absorption d'eau ont été effectués pour déterminer les caractéristiques physicochimiques des biocomposites. L'analyse infrarouge a montré que le mélange entre la fibre et matrice est purement physique. La résistance à la traction a diminué en fonction du taux de renforts aussi bien pour les FRE que pour les FRN. Cette diminution est plus significative avec les FRE. Le module de Young a augmenté avec des taux élevés de FRN. Cependant, il a diminué avec les taux élevés de FRE. La dureté a augmenté avec les taux de FRE et de FRN. Avec l'ajout des fibres végétales le module de stockage G' ainsi que le module de perte G" ont augmenté en fonction de la fréquence angulaire. La viscosité complexe et la capacité d'absorption d'eau ont également été augmenté par l'ajout de la fibre végétale.

I. INTRODUCTION

L'exploitation excessive du bois est un facteur très influent dans le processus de dégradation progressive de l'environnement de même que le réchauffement climatique. Pourtant certaines propriétés physicochimiques du bois sont indispensables dans plusieurs domaines d'applications. En effet, le bois a depuis longtemps était le matériau de construction par excellence. Le plastique également est un matériau qui est très utilisé dans plusieurs domaines d'application grâce à ces bonnes propriétés physicochimiques et sa facilité de mise en forme. L'utilisation très répandue du plastique, qui est non biodégradable, a causé son accumulation dans la nature causant une pollution qui très néfaste aussi bien pour la végétation que pour les animaux. Dès lors, il est important de freiner la dégradation de l'environnement ainsi que l'évolution croissante de la pollution des déchets plastiques. Cependant, l'évolution de la technologie qui demande la mise au point d'équipements très performants et résistants nécessite des matériaux qui présentent aussi bien les propriétés avantageuses du bois que celles du

plastique. C'est ainsi que depuis plusieurs décennies des recherches sont menées par des académiciens et des industriels pour la mise au point de matériaux de hautes performances avec les avantages du bois et ceux du plastique. Ces recherches ont conduit à une nouvelle famille de matériaux appelés composite bois polymère (CBP). Un matériau composite est formé d'au moins deux composants non miscibles de propriétés différentes dont les qualités se complètent pour donner des performances globales améliorées par rapport aux matériaux qui le composent. La partie qui est continu est appelé matrice et les autres discontinus sont appelés renforts. Les CBP sont constitués de polymères comme matrice et le bois comme renfort. Il est important de noter que le terme « bois » regroupe ici l'ensemble des fibres ou renfort d'origine végétale. Il faut mettre en considération qu'une des solutions pour la gestion des déchets plastiques est le recyclage. En effet, des études ont montré dans le passé que certains plastiques recyclés présentent des propriétés similaires à celles de ces mêmes plastiques vierges. Ainsi, plusieurs travaux de recherches récentes ont porté sur l'utilisation du plastique recyclé avec les fibres d'origine végétale pour la conception de biocomposites avec des propriétés intéressantes et variées (AlMaadeed et al., 2012; Ares et al., 2010; Chen et al., 2015; Dehghani et al., 2013). Au Sénégal il existe une large gamme de fibres végétales avec de bonnes propriétés physicochimiques. Parmi ces fibres il y a celle de la feuille du Rônier qui est très utilisée dans la fabrique artisanale. En effet, la feuille du Rônier est utilisée pour fabriquer des nattes, des ventailles, des paniers de fruits, des meubles de maison etc... Cette feuille possède des propriétés physicochimiques intéressantes qui restent inexplorées du point de vue scientifique. En même, comme beaucoup de pays dans le monde, le Sénégal dispose d'un de beaucoup de déchets plastiques et des entreprises de recyclage commencent à s'implanter.

Dans ce présent travail, la conception d'un biocomposite à base de fibres de feuille de Rônier et du polypropylène recyclé a été faite suivie de la détermination de ces propriétés physicochimiques. En effet, une analyse par spectroscopie infrarouge à transformeur de Fourier a été effectuée pour déterminer la structure chimique du biocomposite en identifiant ces principales liaisons chimiques. Un test de traction et un test de dureté ont permis de déterminer les propriétés mécaniques du biocomposites. Pour la détermination des propriétés rhéologiques, un test oscillatoire à balayage fréquentiel a été effectué et en fin un test d'absorption d'eau a effectué pour étudier le comportement du biocomposite dans un milieu aqueux.

II. MATÉRIELS ET MÉTHODES

II.1. Matériels

Le biocomposite préparé dans cette étude est basé sur du polypropylène recyclé (PPr) à partir des déchets plastiques de post-consommation provenant d'une entreprise locale de recyclage. Le PPr qui constitue la matrice du biocomposite a été obtenu sous forme de copeau avec une masse volumique de 0.946 g/cm³ et une température de

fusion d'environ 180°C. Le PPr a été utilisé sans traitement préalable. Le renfort utilisé est la fibre de la feuille du Rônier (FR). Les feuilles de Rônier ont été collectées dans la brousse de Touba Peyckouk à Thiès.

II.2. Préparation des feuilles de Rônier

Les feuilles de Rônier ont été lavées avec de l'eau distillée pour enlever les impuretés. Après lavage deux mode de séchage ont été utilisés à savoir le séchage naturel et le séchage à l'étuve. En effet, le premier groupe de feuilles a été séché naturellement dans le laboratoire à l'abri du soleil et à la température ambiante pendant trois semaines. L'autre groupe a été séché à l'étuve pendant 48h et à 100°C. Après séchage, les feuilles de Rônier ont été broyées et tamisées pour avoir de la poudre et ensuite gardées dans des sachets imperméables pour empêcher l'absorption d'humidité. La poudre de fibres du premier groupe est dénotée FRN et celle de l'autre groupe FRE..

II.3. Préparation des biocomposites

Pour la préparation des biocomposites à base du PPr et des FR, la méthode du malaxage à haute température a été employée en utilisant un Brabender mixeur bi-vis muni d'un rhéomètre de torque. La formulation utilisée avec les différents pourcentages massiques est donnée dans le Table 1. La température du Brabender mixeur a été réglée à 140°C et la vitesse de rotation des vis à 55 tr/mn. Le PPr a été mis en premier dans le mixeur jusqu'à ce qu'il atteigne sa température de fusion (environ 140°C) et ensuite la poudre de FR a été ajoutée progressivement et après on a laissé le mixage continuer jusqu'à ce que la courbe de la torque soit devenue constante. Le biocomposite obtenu a été compressé, en utilisant une machine électrique de compression à température élevée. La compression a été effectuée à 130°C sous une pression comprise entre 100 et 110 bars pendant 5mn. Ensuite l'échantillon compressé a été refroidi avec un système hydraulique et en maintenant la pression.

Table 1. La formulation des biocomposites avec les pourcentages massiques.

Noms des échantillons	PPr (%)	FRN (%)	FRE (%)
PPr	100	0	0
PPrFRN05	95	5	0
PPrFRN10	90	10	0
PPrFRN20	80	20	0
PPrFRN40	60	40	0
PPrFRE05	95	0	5
PPrFRE10	90	0	10
PPrFRE20	80	0	20
PPrFRE40	60	0	40

II.4. Analyse par FTIR

La spectroscopie Infrarouge qui est un moyen de déterminer les types de liaisons chimiques présentent dans un produit peut permettre de déterminer l'interaction chimique ou physique des molécules du PPr et de la fibre végétale issue de la feuille de Rônier. Cette technique est

basée sur l'interaction de la lumière infrarouge avec le nuage électronique des liaisons chimiques. Pour étudier l'interaction entre les fibres végétales et le PPr dans le biocomposite, une analyse par ATR-FTIR a été effectuée en utilisant un spectrophotomètre Shimadzu FTIR qui a enregistré le spectre infrarouge dans un intervalle de nombres d'ondes compris entre 500-4000 cm^{-1} . Des échantillons de dimensions en moyenne (1cm x 1cm x 2mm) ont été utilisés.

II.5. Test de traction

Le test de traction consiste à exercer une force de traction sur un spécimen de dimensions standardisées, jusqu'à sa rupture, en suivant un processus de mise en charge à une vitesse de déformation constante. Pour déterminer les propriétés en traction du biocomposite, un test a été effectué en utilisant une machine universelle de test mécaniques *Tinus Olsen* et en accord avec la référence ASTM D 638-standard. Le test a été effectué à la température ambiante du laboratoire avec la longueur entre les mors de fixation fixée à 40mm et la vitesse de déformation fixée à 5mm/mn sur des échantillons de (11cm x 1cm x 2mm).

II.6. Test rhéologique

En générale les propriétés rhéologiques peuvent informer sur la structure interne et les traitements possibles des polymères ou des composites à base de polymères. Elles peuvent également fournir des informations sur l'état de dispersion des particules ou l'interaction entre les particules et la matrice. Les deux grandeurs fondamentales de la rhéologie qui permettent de quantifier le rapport de dominance entre le comportement élastique (solide) et le comportement visqueux ou plastique (liquide) d'un matériau sont le module d'accumulation (G') et le module de perte ou de dissipation (G''). En plus de ces deux grandeurs, la viscosité complexe et le $\tan \delta$ sont souvent déterminés pour avoir des informations supplémentaires sur le comportement rhéologique des polymères fondus. Dans cette étude un test oscillatoire de faibles amplitudes a été effectué en utilisant un rhéomètre Anton Paar avec des plats parallèles de 25 mm de diamètre à la température de 140°C et dans la zone de viscosité linéaire. Pour la détermination de ces grandeurs citées précédemment, un balayage de fréquence oscillatoire de 100 à 0,1 s^{-1} a été effectué en fixant le taux de cisaillement à 0,1%. Le module complexe (G^*) est défini par l'équation suivante (Wang et al., 2015):

$$G^* = G' + iG'' \quad (1)$$

Le $\tan \delta$ représente le rapport entre G' et G'' et est donné par :

$$\tan \delta = \frac{G''}{G'} \quad (2)$$

II.7. Test d'absorption d'eau

Le comportement en milieu aqueux est une propriété très importante des composites bois polymères. En effet, puisque le bois est hygroscopique et est incorporé dans le matériau, il est important d'étudier l'absorption d'eau et la stabilité dimensionnel du composite préparé. Pour le test

d'absorption d'eau, des échantillons carrés de 2 cm de côté ont été coupés et immersés dans de l'eau distillée pendant une semaine. Pour chaque temps caractéristique, les échantillons ont été enlevés de l'eau en essuyant l'eau superficielle et leurs nouvelles masses ont été pesées. L'absorption d'eau est calculée à partir de l'équation suivante :

$$A(\%) = \frac{Mt - Me}{Me} * 100 \quad (3)$$

Où Mt représente la masse de l'échantillon au temps t et Me représente la masse de l'échantillon à l'état initial avant immersion dans l'eau.

III. RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

III.1. L'analyse ATR-FTIR

La composition chimique de la fibre lignocellulosique issue de la feuille de Rônier (FR), du polypropylène recyclé (PPr) et des composites préparés avec 5% et 20% de cette fibre a été analysée par spectroscopie infrarouge à transformé de Fourier (FTIR - *Fourier Transform Infrared Spectroscopy*).

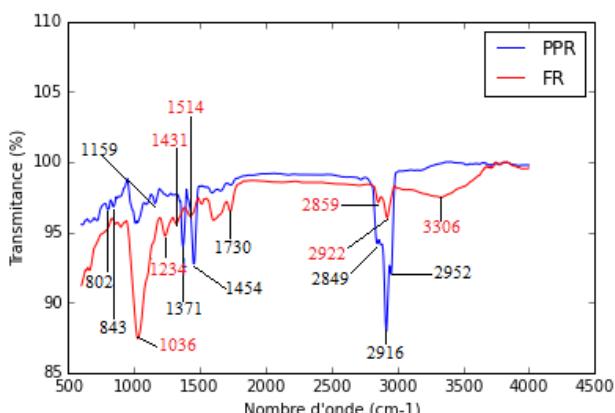


Fig. 1. Spectre Infrarouge de la feuille de Rônier.

Les spectres de la fibre et du polypropylène recyclé sont présentés sur la Fig. 1. Le spectre de la fibre montre un pic, à 3306 cm^{-1} , qui est dû à un groupement OH. En effet, dans un milieu concentré c'est-à-dire d'humidité relativement faible, les alcools forment des liaisons d'hydrogène intermoléculaire entre deux ou plusieurs molécules d'alcool illustrées avec un pic à 3300 cm^{-1} . Ce spectre montre aussi un pic à 2922 cm^{-1} qui représente l'élongation de la liaison C-H du groupement CH_2 , à 2859 cm^{-1} dû à une élongation symétrique de liaison C-H d'un groupement CH_2 , à 1730 cm^{-1} qui représente l'élongation d'un groupement C=O , à 1514 cm^{-1} dû à l'élongation d'une liaison C=C des cycles aromatiques, à 1431 cm^{-1} dû à la déformation asymétrique de la liaison C-H d'un groupement CH_3 (alcano), à 1234 cm^{-1} dû à une élongation d'une liaison C-O et à 1036 cm^{-1} dû à l'élongation d'une liaison C-O. Ces résultats sont conformes à ceux trouvés dans la littérature. En effet, dans les travaux de (Das et al., 2015), le spectre infrarouge du bois de pin a montré un pic de OH à environ 3350 cm^{-1} , un pic d'acide acétique estérifié à 1650 cm^{-1} et des pics de lignine à 1500 cm^{-1} et

1250 cm^{-1} . Ces pics sont dus à la vibration de déformation de CO et de l'elongation de C=C des cycles aromatiques prouvant la nature récalcitrante de la lignine dans le bois. Le spectre du bois utilisé a montré la présence de pic à 3423 cm^{-1} (étirement de -OH), 2923 cm^{-1} (élongation de -CH), 1734 cm^{-1} (élongation de C=O), 1636 cm^{-1} (déformation de -OH), 1160 et 1046 cm^{-1} (élongation de C-O) et 1000-650 cm^{-1} (vibration de déformation hors du plan de C-H) (Deka and Maji, 2011). Dans les travaux Zhou et al. (2013) (Zhou et al., 2013), le spectre de la farine de Bambou non traitée a montré la présence de bandes à 3402 cm^{-1} pour l'elongation de -OH, à 2915 cm^{-1} pour l'elongation de -CH, à 1601 cm^{-1} et 1510 cm^{-1} pour C=C (cycle aromatique), à 1424 cm^{-1} pour la déformation de -CH₂ dans la lignine et les glucides et à 1051 cm^{-1} pour l'elongation de C-O. Une large bande d'absorption commune entre 3600 et 3200 cm^{-1} est caractéristique de la vibration d'elongation de la liaison hydrogène O-H, la vibration d'elongation de la liaison C-H des groupements méthyle et méthylène dans la cellulose et les hémicelluloses est observée près de 2902 cm^{-1} , la bande près de 1751 cm^{-1} est assigné à l'elongation de la liaison C=O des groupes carboxyle et acétyle dans les hémicelluloses de la fibre de jute qui était important dans la fibre de jute brute, la bande à 1641 cm^{-1} a indiqué l'absorption d'eau dans la cellulose cristalline, la bande à 1512 cm^{-1} est attribuée à la présence des cycles aromatiques dans la lignine et la bande d'absorption à 1359 cm^{-1} est assignée à la déformation de la liaison C-H dans l'hémicellulose et la lignine (Hossen et al., 2016). Les mêmes larges bandes allant de 3100 à 3700 cm^{-1} , peuvent être attribuées aux groupes hydroxyle liés à l'hydrogène (O-H) provenant d'un étirement vibratoire complexe, associé à des groupes hydroxyle libres, inter et intramoléculaires (Sanjay et al., 2018).

Le spectre du PPr montre un pic à 2951 cm^{-1} et à 2916 cm^{-1} dus à l'elongation asymétrique de la liaison C-H du groupe -CH₃ (alcano) et -CH₂ respectivement. Ce spectre montre également d'autres pics à 2849 cm^{-1} dû à l'elongation symétrique de la liaison C-H du groupe -CH₂, à 1454 et 1371 cm^{-1} dus à la déformation asymétrique et symétrique, respectivement, de la liaison C-H du groupe -CH₃, à 1159 cm^{-1} dû à l'elongation de la liaison C-O des alcools tertiaires et enfin à 843 et 802 cm^{-1} dus à la déformation hors du plan de la liaison C-H (aromatique). Ces résultats sont conformes à ceux de la littérature. En effet, dans les travaux (Turku and Kärki, 2016), il a été reporté que le pic spécifique du PP se situe à 2917 cm^{-1} . Il a été également reporté que les autres pics remarquables du PP sont ceux situés à 2952, 2918 et 2840 cm^{-1} dus à l'étirement de la liaison C-H, ceux situés à 1456 et 1375 cm^{-1} dus à la déformation du groupe CH₃, celui situé à 1165 cm^{-1} dû à la vibration de déformation des carbones tertiaires et ceux situés à 974, 841 et 808 cm^{-1} dus à la déformation hors du plan de la liaison C-H. On remarque que seul le pic à 974 cm^{-1} n'apparaît pas dans notre spectre et ceci peut être expliqué par la faiblesse de son intensité. A cause de la faiblesse de l'intensité du pic 998 cm^{-1} on ne peut pas l'utiliser comme un pic caractéristique du PP dans un spectre FTIR (Zhou et al., 2009). Dans les travaux de

Wang et al. (Wang et al., 2019), il a été reporté que l'ensemble des échantillons présentaient des pics à 2920, 2850, 1460, 1370 et 1150 cm^{-1} attribués à la vibration d'elongation de C-C, C-H et CH₃ qui existent tous dans la molécule de PP. En comparant le PP vierge et le PP recyclé à partir des déchets plastiques que nous avons utilisé dans cette étude, nous trouvons les mêmes pics caractéristiques. Ceci montre que les adjuvants utilisés lors de la fabrication des objets de provenance de ces déchets plastiques n'ont pas beaucoup modifié la structure chimique du PP vierge.

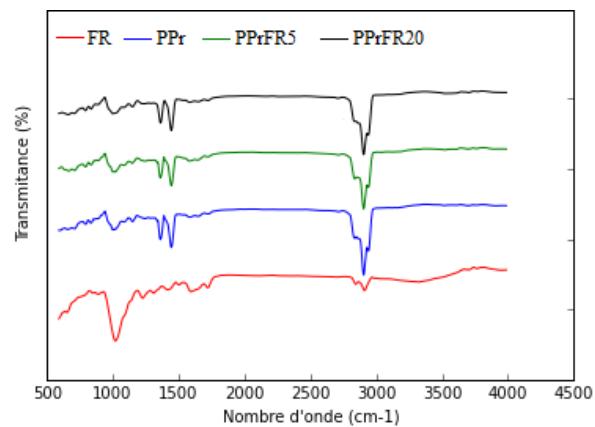


Fig. 2. Spectre Infrarouge de la feuille de Rônier, du PPr et des biocomposites.

En explorant la Fig. 2 qui présente les spectres infrarouges du PPr et de ces composites à base de la fibre de feuille de Rônier, nous notons une diminution de l'intensité, avec l'augmentation de la quantité de fibres végétales, des pics situés à 2951, 2916, 2849, 1454 et 1371 cm^{-1} , ces pics sont caractéristiques du PPr. Cette diminution de l'intensité de ces pics peut être liée à la diminution de la quantité de PPr dans les composites. Dans les travaux de Das et al. (Das et al., 2016), une diminution de l'intensité des pics avec l'augmentation de la quantité de biochar dans les composites a été noté et spécialement à 1375 et 1450 cm^{-1} . Cette diminution a été attribuée à la réduction de la fraction massique du PP qui correspond à une augmentation de la quantité de biochar dans les composites. On note également que les pics du spectre du PPr et ceux du spectre des composites sont presque identiques. Aucun nouveau pic ne s'est formé ou du moins n'apparaît sur le spectre des composites. Ce qui confirme que le processus de mélange du PPr et de la fibre de bois était purement physique (Poulou et al., 2018).

III.2. Les propriétés en traction

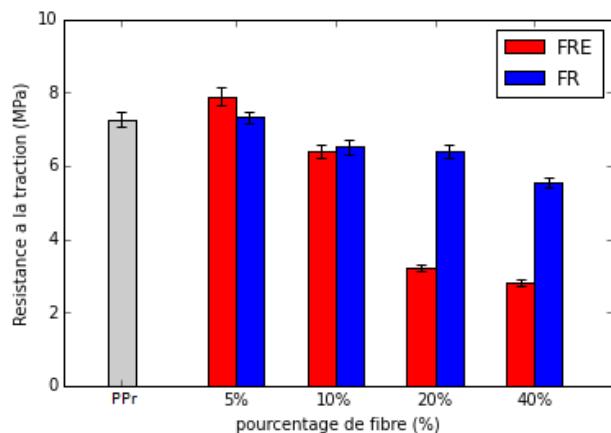


Fig. 3. Evolution de la résistance à la traction en fonction du taux de fibres.

La Fig. 3 montre la variation de la résistance à la traction du RPP et de ces composites à base de feuilles de Rônier (FR). Les composites avec 5% de fibres de FR présentent une légère augmentation de la résistance à la traction comparée à celle de la PPR. A partir d'une incorporation de 10% jusqu'à 40% en fibre, on note une diminution de la résistance à la traction des composites. La diminution de la résistance à la traction des composites à base de fibres végétales comparés à celle de la matrice polypropylène (PP) a été reportée dans plusieurs travaux de recherche. Selon Zhang et al. (Zhang, 2014), cette réduction est due à la présence de faisceaux dans les fibres non traitées réduisant la limite de la surface effective, ce qui entrave la fibre et l'adhérence de la matrice. Le PP a une rigidité élevée mais son adhésion à l'interface avec les fibres de bois est très faible. En plus, à un taux de renforcement élevé, des agglomérations de fibres se produisent augmentant la faiblesse de l'adhérence entre les fibres et la matrice et donnant un caractère brutal au biocomposite et diminuant ainsi la résistance à la traction (Ndiaye et al., 2015; Ratanawilai and Taneerat, 2018; Sultan et al., 2015). Dans l'étude présente, la diminution de la résistance à la traction est plus importante pour les composites à base de feuilles de Rônier séchées longtemps à l'étuve (FRE), que pour ceux à base de feuilles séchées longtemps à l'air libre à l'abri du soleil (FRN). Pour les composites contenant entre 10% et 40% de fibres de FRN, la diminution de la résistance à la traction passe seulement de 11% à 23% alors que pour les composites contenant entre 10% et 20% de fibres à base de FRE, cette diminution passe de 12% à 56%. La diminution la plus remarquable est observée pour les composites contenant 20% de fibres de FRE. Ces résultats peuvent être dus au fait que les fibres séchées longtemps et à haute température peuvent se dégrader et perdre certaines de leurs propriétés physiques. En plus dans ces conditions elles vont jouer un rôle de charge et non celui d'un renfort. Donc un traitement thermique peut réduire la quantité d'humidité dans les fibres et permettre une meilleure adhésion avec la matrice mais un long traitement peut détériorer certaines propriétés mécaniques et réduire la résistance à la traction des composites.

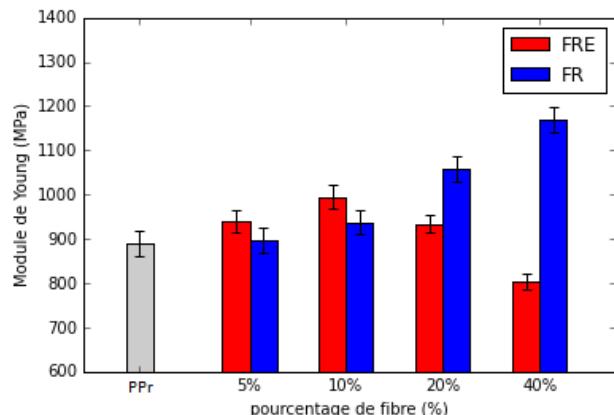


Fig. 4. Evolution du module de Young en fonction du taux de fibres.

La Fig. 4 montre l'évolution des modules de Young du PPR et de ces composites à base de FR. Tous les biocomposites à base de FR, sauf celui avec 40% de FRE, présentent des modules de Young supérieurs à celui du PPR. Pour les faibles taux de fibres, cette augmentation est plus significative pour les composites à base de FRE que pour les composites à base de FRN. En effet, entre 5% et 10% de composition en fibre, le module de Young augmente de 6% à 12% pour les composites à base de FRE contre une augmentation de 1% à 5% pour les composites à base FRN. Ces résultats peuvent être justifiés par la meilleure adhésion de la matrice avec les FRE, qui sont plus secs, et donc une meilleure transmission des contraintes. A partir d'un ajout de 20% de fibre, le composite à base de FRN présente une augmentation du module de rigidité de 18% contre seulement 5% pour celui à base de FRE. L'effet de la meilleure rigidité des FRN comparée à celle des FRE pourrait être la cause de cette observation. Pour un taux de 40%, le biocomposite à base de FRN présente une augmentation du module de Young de 31%, alors que celui à base de FRE présente une diminution, comparés au PP recyclé. L'augmentation du module d'Young avec le taux de fibres végétales dans les composites a déjà été reportée dans plusieurs travaux (Ares et al., 2010; Gozdecki et al., 2015; Klyosov, 2007; Lei et al., 2015; Ratanawilai and Taneerat, 2018). Cette évolution croissante du module de Young témoigne de l'augmentation de la rigidité du biocomposite avec l'ajout des fibres végétales en favorisant une bonne distribution des charges. Selon Ares et al. (Ares et al., 2010), ce résultat était attendu car le module d'élasticité du bois est supérieur à celui du polymère. L'objectif premier de l'ajout du bois comme renfort est d'augmenter la rigidité du composite (Gozdecki et al., 2015).

III.3. La dureté

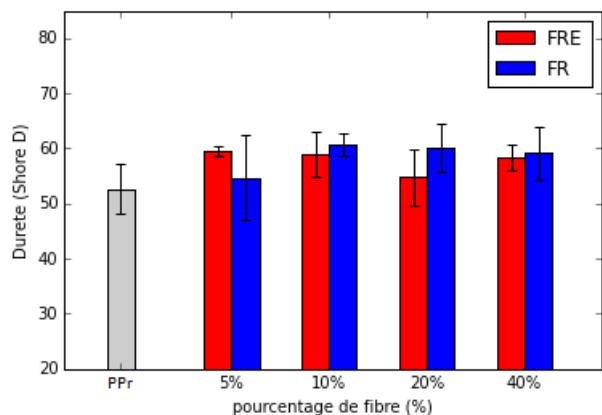


Fig. 5. Evolution de la dureté en fonction du taux de fibres.

La Fig. 5 montre la variation de la dureté avec l'augmentation de la quantité de fibre dans les biocomposites. Il est clair que toutes les duretés des différents biocomposites sont supérieures à celle du PP recyclé. Ce résultat est en accord avec plusieurs de la littérature. En effet, plusieurs auteurs ont rapporté l'augmentation de la dureté des composites avec l'augmentation d'une charge de dureté plus élevée que celle du polymère de base (Bansal et al., 2017; Kashyap and Datta, 2017; Nikmatin et al., 2017; Turku et al., 2017). Par contre, dans les travaux de Magarajan et al. (Magarajan et al., 2018), il a été noté une baisse de la dureté des composites avec l'ajout des fibres de jute et ils l'ont expliqué par la présence du jute qui a une dureté plus faible que celle de la matrice. Donc on peut noter que la dureté des composites préparés dépend de la valeur de la dureté de la charge incorporée. Concernant la présente étude, les biocomposites à base de FRN présentent des duretés supérieures à celles des biocomposites à base de FRE sauf pour ceux qui contiennent 5% de fibre. En effet, les taux d'augmentation de la dureté des biocomposites à base de FRN sont 13%, 12%, 4% et 10% pour des taux de renforts de 5%, 10%, 20% et 40%, respectivement. Alors que pour les biocomposites à base de FRE avec les mêmes taux de renforts, ces taux d'augmentation sont 4%, 15%, 14% et 12%, respectivement. Ceci confirme la probable perte de certaines propriétés mécaniques notée plus haut.

III.4. Les propriétés rhéologiques

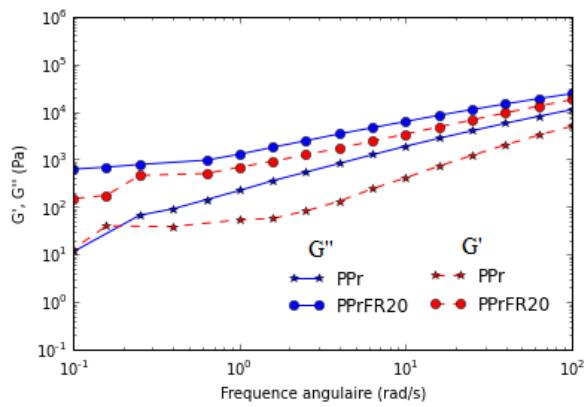


Fig. 6. Variation en fonction de la fréquence angulaire du module de stockage G' et du module de perte G'' .

La Fig. 6 présente la variation du module de stockage G' et du module de perte G'' en fonction de la fréquence angulaire. Une augmentation de ces modules avec le renforcement du PPr par l'ajout de 20% de fibre végétale a été notée. Cette augmentation peut être due à la formation d'un réseau par une interaction entre la fibre et la matrice dans le composite. Ceci réconforte l'idée de l'interaction existante entre le PP recyclé et la fibre de feuille de Rônier précédemment notée avec les résultats du spectre infrarouge et des tests mécaniques. On peut également remarquer un comportement viscoélastique aussi bien pour le PP recyclé que pour le biocomposite avec 20% de la fibre de feuille de Rônier. Ce comportement est matérialisé par la valeur supérieure du module de perte G'' comparé à celle du module de conservation G' . Ces résultats sont en accord avec d'autres travaux de recherches sur des composites à base de PP (Ares et al., 2010; Bettini et al., 2013; Poulose et al., 2018). Ces auteurs ont justifié ces résultats par la présence de réseaux interconnectés entre les particules du renfort ou entre la matrice et le renfort. Il a été également conclu que si l'interaction ou l'adhésion entre les fibres et la matrice n'est pas bonne, alors le module de stockage des biocomposites n'est pas très affecté, même avec un taux élevé de fibres végétales. En raison de la rigidité intrinsèque de la biomasse, les modules de stockage et de perte des composites sont supérieurs à ceux du PP, ce qui indique que les charges ont contribué à une plus grande réponse visqueuse en raison du frottement entre la charge et la matrice polymère (Părpăriță et al., 2014). Toutefois, il est important de noter le comportement pseudo-solide du biocomposite, aux faibles fréquences, caractérisé par les plateaux Newtoniens présentés par les modules de stockage et de perte. Ceci suggère la formation de réseaux interconnectés entre la fibre et la matrice. Il est bien connu dans la littérature que l'interconnexion des charges conduit à une limite d'élasticité qui correspond à l'apparition du plateau de G' ou G'' pour les fréquences faibles dans une mesure dynamique.

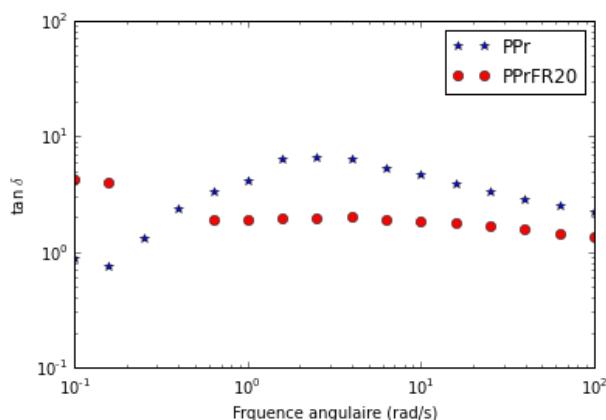


Fig. 7. Variation de $\tan \delta$ en fonction de la fréquence angulaire.

La Fig. 7 montre l'évolution de $\tan \delta$ et de la viscosité complexe en fonction de la fréquence angulaire du PP recyclé et du biocomposite avec 20% de fibre de FR. Il est clai que pour les faibles fréquences $\tan \delta$ du PPr est inférieur à celui du biocomposite mais augmente avec l'évolution de la fréquence. Ce dernier résultat est également noté dans les travaux de Sodeifia et al. (Sodeifian et al., 2019). Cependant, pour les hautes fréquences $\tan \delta$ diminue en fonction de l'évolution de la fréquence angulaire. Avec l'ajout de la FR, le $\tan \delta$ diminue en fonction de l'augmentation de la fréquence angulaire. Cette diminution est plus remarquable avec les faibles fréquences. Toutefois, il est important de noter qu'à partir des fréquences moyennes le $\tan \delta$ du PPr reste supérieur à celui du biocomposite.

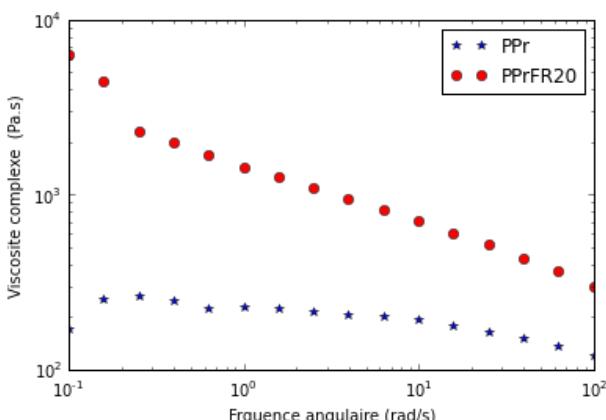


Fig. 8. Variation de la viscosité complexe η^* en fonction de la fréquence angulaire.

Sur la Fig. 8 on peut voir que la viscosité complexe du PPr montre un plateau Newtonien pour les faibles fréquences et présente une légère diminution progressive pour les hautes fréquences caractéristique du comportement rhéofluidifiant. L'ajout de 20% de fibre de FR augmente la viscosité complexe et montre plus clairement le comportement rhéofluidifiant. A haute fréquence les chaînes polymériques ne disposent pas suffisamment de temps pour récupérer la distribution initiale des particules de charge. Une autre cause de ce comportement rhéofluidifiant pourrait être le contact mécanique entre les particules de fibres végétales. En effet, ces particules peuvent former des agglomérations et rester ensemble en

raison des forces adhésives ce qui favorise l'amincissement par cisaillement. Ainsi, ce comportement est plus important dans le biocomposite contenant la fibre végétale. L'augmentation de la viscosité complexe notée avec l'incorporation des fibres végétales a été également reportée dans des travaux de recherche (Da Silva et al., 2016; Joel SOUCY, 2015).

III.5. L'absorption d'eau

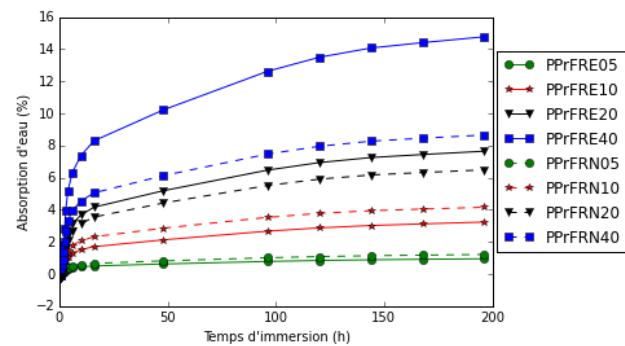


Fig. 9. Variation du taux d'absorption d'eau en fonction du temps d'immersion.

La Fig. 9 montre que le taux d'absorption d'eau augmente avec le taux de fibre végétale dans les biocomposites. Pour un taux de fibre inférieur ou égal à 10% les biocomposites avec les fibres naturellement séchées (FRN) présentent des taux d'absorption d'eau supérieurs à ceux des biocomposites à base de fibres séchées longuement à l'étuve (FRE). Et pour les composites avec des taux de 20% et 40% en fibres c'est le contraire qui est noté. Il est également important de noter que cet écart est beaucoup plus significatif avec le taux le plus élevé (40%) de fibre. L'augmentation de l'absorption d'eau en fonction du taux de fibre végétale était prévisible par ce que les fibres végétales sont hydrophiles et leur présence favorise la pénétration de l'eau dans les biocomposites. Cette pénétration peut être au niveau du polymère ou bien au niveau de la fibre. Au niveau des fibres végétales principalement formées de cellulose qui contient un lumen à son centre, l'eau peut être retenue dans ce lumen ou dans la cellule. En plus, dans les biocomposites l'eau peut être retenue dans les écarts et les défauts dans l'interface entre la fibre et le PPr. Avec l'augmentation du taux de fibre, les écarts et les défauts à l'interface vont augmenter à cause de la pauvre dispersion des fibres. Ceci va augmenter l'ensemble des trois régions de rétention d'eau entraînant l'augmentation, de manière significative, de l'absorption d'humidité avec l'augmentation du taux de fibres végétales (Lin et al., 2002). Au niveau du polymère l'absorption d'eau dépend principalement de la présence de trous de dimension nanométrique et de sites polaires. Les molécules d'eau peuvent être présentes dans le polymère sous deux états : les molécules libres dans les trous nanométriques du polymère et les molécules qui forment des liaisons hydrogènes avec les groupes polaires (Pothan and Thomas, 2004). L'augmentation de l'absorption d'eau avec le taux de fibre est liée au nombre de groupements OH libres dans la cellulose, aux phénomènes de pénétration et d'actions capillaires (Andrzejewski et al.,

2019; Chen et al., 2015; Hosseinihashemi et al., 2016; Mrad et al., 2017; Zhou et al., 2013).

IV. CONCLUSION

Dans cette étude, un biocomposite a été conçu à partir des fibres de la feuille du Rônier et du PP recyclé. Le spectre infrarouge a montré que le mélange entre le PPr et la FR a été purement physique car aucun nouveau pic a été détecté. Les résultats ont montré une augmentation du module de Young et de la dureté en fonction du taux de FRN. Cependant la résistance à la traction a diminué en fonction de l'augmentation du taux de FRN. Avec l'ajout de FRE, la résistance à la traction, le module de Young et la dureté ont augmenté pour un taux faible de fibre avant de diminuer avec l'augmentation du taux de fibres. En milieu aqueux, l'ajout de FRN et FRE entraîne une augmentation de l'absorption d'eau. Les résultats rhéologiques ont révélé que l'apport de FR entraîne une augmentation du module de stockage, du module de perte de même la viscosité complexe avec l'évolution de la fréquence angulaire. Par contre, le tan δ a diminué en fonction de l'évolution de la fréquence angulaire en présence de FR. Comme espéré, le taux d'absorption d'eau a augmenté en fonction du taux de fibres dans le biocomposite. Donc les fibres issues de la feuille de Rônier sont de bons candidats pour renforcer le polypropylène recyclé toutefois il serait intéressant d'étudier l'effet d'un agent de couplage, ou un traitement de surface des fibres, sur les propriétés physicochimiques du biocomposite.

REFERENCES

- AlMaadeed, M.A., Kahraman, R., Noorunnisa Khanam, P., Madi, N., 2012. Date palm wood flour/glass fibre reinforced hybrid composites of recycled polypropylene: Mechanical and thermal properties. *Mater. Des.* 42, 289–294. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2012.05.055>
- Andrzejewski, J., Szostak, M., Barczewski, M., Łuczak, P., 2019. Cork-wood hybrid filler system for polypropylene and poly(lactic acid) based injection molded composites. Structure evaluation and mechanical performance. *Compos. Part B Eng.* 163, 655–668. <https://doi.org/10.1016/J.COMPOSITESB.2018.12.109>
- Ares, A., Bouza, R., Pardo, S.G., Abad, M.J., Barral, L., 2010. Rheological, mechanical and thermal behaviour of wood polymer composites based on recycled polypropylene. *J. Polym. Environ.* 18, 318–325. <https://doi.org/10.1007/s10924-010-0208-x>
- Bansal, S., Kumar, N., Jindal, P., 2017. Effect of MWCNT Composition on the Hardness of PP/MWCNT Composites. *Mater. Today Proc.* 4, 3867–3871. <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2017.02.285>
- Bettini, S.H.P., De Miranda Josefovich, M.P.P., Muñoz, P.A.R., Lotti, C., Mattoso, L.H.C., 2013. Effect of lubricant on mechanical and rheological properties of compatibilized PP/sawdust composites. *Carbohydr. Polym.* 94, 800–806. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2013.01.080>
- Chen, R.S., Ab Ghani, M.H., Salleh, M.N., Ahmad, S., Tarawneh, M.A., 2015. Mechanical, water absorption, and morphology of recycled polymer blend rice husk flour biocomposites. *J. Appl. Polym. Sci.* 132, 1–12. <https://doi.org/10.1002/app.41494>
- Da Silva, S.P.M., Lima, P.S., Oliveira, J.M., 2016. Rheological behaviour of cork-polymer composites for injection moulding. *Compos. Part B Eng.* 172–178. <https://doi.org/10.1016/J.COMPOSITESB.2015.12.015>
- Das, O., Bhattacharyya, D., Hui, D., Lau, K.T., 2016. Mechanical and flammability characterisations of biochar/polypropylene biocomposites. *Compos. Part B Eng.* 106, 120–128. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2016.09.020>
- Das, O., Sarmah, A.K., Bhattacharyya, D., 2015. A novel approach in organic waste utilization through biochar addition in wood/polypropylene composites. *Waste Manag.* 38, 132–140. <https://doi.org/10.1016/j.wasman.2015.01.015>
- Dehghani, A., Madadi Ardekani, S., Al-Maadeed, M.A., Hassan, A., Wahit, M.U., 2013. Mechanical and thermal properties of date palm leaf fiber reinforced recycled poly (ethylene terephthalate) composites. *Mater. Des.* 52, 841–848. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2013.06.022>
- Deka, B.K., Maji, T.K., 2011. Effect of TiO₂ and nanoclay on the properties of wood polymer nanocomposite. *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 42, 2117–2125. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2011.09.023>
- Gozdecki, C., Wilczyński, A., Kociszewski, M., Zajchowski, S., 2015. Properties of wood–plastic composites made of milled particleboard and polypropylene. *Eur. J. Wood Wood Prod.* 73, 87–95. <https://doi.org/10.1007/s00107-014-0852-2>
- Hosseinihashemi, S.K., Arwifan, F., Najafi, A., Nemli, G., Ayrilmis, N., 2016. Long-term water absorption behavior of thermoplastic composites produced with thermally treated wood. *Measurement* 86, 202–208. <https://doi.org/10.1016/j.measurement.2016.02.058>
- Hossen, M.F., Hamdan, S., Rahman, M.R., Islam, M.S., Liew, F.K., Lai, J.C.H., Rahman, M.M., 2016. Effect of clay content on the morphological, thermo-mechanical and chemical resistance properties of propionic anhydride treated jute fiber/polyethylene/nanoclay nanocomposites. *Measurement* 90, 404–411. <https://doi.org/10.1016/J.MEASUREMENT.2016.05.006>
- Joel SOUCY, 2015. UTILISATION DES RÉSIDUS PAPETIERS DE DIVERSES SOURCES POUR LA PRODUCTION DE MATÉRIAUX COMPOSITES BOIS-POLYMIÈRE. UNIVERSITÉ DU QUÉBEC EN ABITIBI-TÉMISCAMINGUE, Quebec.
- Kashyap, S., Datta, D., 2017. Reusing industrial lime sludge waste as a filler in polymeric composites.

- Mater. Today Proc. 4, 2946–2955. <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2017.02.176>
- Klyosov, A.A., 2007. Wood-Plastic Composites. John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, New Jersey.
- Lei, B., Zhang, Y., He, Y., Xie, Y., Xu, B., Lin, Z., Huang, L., Tan, S., Wang, M., Cai, X., 2015. Preparation and characterization of wood-plastic composite reinforced by graphitic carbon nitride. Mater. Des. 66, 103–109. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2014.10.041>
- Lin, Q., Zhou, X., Dai, G., 2002. Effect of Hydrothermal Environment on Moisture Absorption and Mechanical Properties of Wood Flour – Filled Polypropylene Composites. J. Appl. Polym. Sci. 85, 2824–2832. <https://doi.org/10.1002/app.10844>
- Magarajan, U., Kumar, S.D., Arvind, D., Kannan, N., Hemanandan, P., 2018. A Comparative Study on the Static Mechanical Properties of Glass Fibre Vs Glass-Jute Fibre Polymer Composite. Mater. Today Proc. 5, 6711–6716. <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2017.11.328>
- Mrad, H., Alix, S., Migneault, S., Koubaa, A., Perré, P., 2017. Numerical and experimental assessment of water absorption of wood-polymer composites. <https://doi.org/10.1016/j.measurement.2017.10.011>
- Ndiaye, D., Gueye, M., Thiandoume, C., Badji, A.M., Tidjani, A., 2015. Effects of Reinforcing Fillers and Coupling Agents on Performances of Wood-Polymer Composites, in: Green Bio Renewable Bio Composites from Knowledge to Industrial Applications. pp. 365–385. <https://doi.org/10.1201/b17601-11>
- Nikmatin, S., Syafiuddin, A., Hong Kueh, A.B., Maddu, A., 2017. Physical, thermal, and mechanical properties of polypropylene composites filled with rattan nanoparticles. J. Appl. Res. Technol. 15, 386–395. <https://doi.org/10.1016/j.jart.2017.03.008>
- Părpăriță, E., Darie, R.N., Popescu, C.M., Uddin, M.A., Vasile, C., 2014. Structure-morphology-mechanical properties relationship of some polypropylene/lignocellulosic composites. Mater. Des. 56, 763–772. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2013.12.033>
- Pothan, L.A., Thomas, S., 2004. Effect of Hybridization and Chemical Modification on the Water-Absorption Behavior of Banana Fiber – Reinforced Polyester Composites. J. Appl. Polym. Sci. 91, 3856–3865.
- Poulose, A.M., Elnour, A.Y., Anis, A., Shaikh, H., Al-Zahrani, S.M., George, J., Al-Wabel, M.I., Usman, A.R., Ok, Y.S., Tsang, D.C.W., Sarmah, A.K., 2018. Date palm biochar-polymer composites: An investigation of electrical, mechanical, thermal and rheological characteristics. Sci. Total Environ. 619–620, 311–318. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.11.076>
- Ratanawilai, T., Taneerat, K., 2018. Alternative polymeric matrices for wood-plastic composites: Effects on mechanical properties and resistance to natural weathering. Constr. Build. Mater. 172, 349–357. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.03.266>
- Sanjay, M.R., Madhu, P., Jawaad, M., Sentharamaikannan, P., Senthil, S., Pradeep, S., 2018. Characterization and properties of natural fiber polymer composites: A comprehensive review. J. Clean. Prod. 172, 566–581. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2017.10.101>
- Sodeifian, G., Ghaseminejad, S., Yousefi, A.A., 2019. Preparation of polypropylene/short glass fiber composite as Fused Deposition Modeling (FDM) filament. Results Phys. 12, 205–222. <https://doi.org/10.1016/J.RINP.2018.11.065>
- Sultan, M.T., Haque, M.M.U., Maniruzzaman, M., Alam, M.A., 2015. Composites of polypropylene with pulque fibres: Morphology, thermal and mechanical properties. J. Thermoplast. Compos. Mater. 28, 1615–1626. <https://doi.org/10.1177/0892705713513295>
- Turku, I., Kärki, T., 2016. Accelerated weathering of fire-retarded wood – polypropylene composites. Compos. PART A 81, 305–312. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2015.11.028>
- Turku, I., Keskisaari, A., Kärki, T., Puurtinen, A., Marttila, P., 2017. Characterization of wood plastic composites manufactured from recycled plastic blends. Compos. Struct. 161, 469–476. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2016.11.073>
- Wang, M., Fan, X., Thitsartarn, W., He, C., 2015. Rheological and mechanical properties of epoxy/clay nanocomposites with enhanced tensile and fracture toughnesses. Polymer (Guildf). 58, 43–52. <https://doi.org/10.1016/J.POLYMER.2014.12.042>
- Wang, W., Zhang, X., Mao, Z., Zhao, W., 2019. Effects of gamma radiation on the impact strength of polypropylene (PP)/high density polyethylene (HDPE) blends. Results Phys. 12, 2169–2174. <https://doi.org/10.1016/j.rinp.2019.02.020>
- Zhang, H., 2014. Effect of a novel coupling agent, alkyl ketene dimer, on the mechanical properties of wood-plastic composites. Mater. Des. 59, 130–134. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2014.02.048>
- Zhou, X., Yu, Y., Lin, Q., Chen, L., 2013. Effects of Maleic Anhydride-Grafted Polypropylene (MAPP) on the Physico-Mechanical Properties and Rheological Behavior of Bamboo Powder-Polypropylene Foamed Composites. BioResources 8, 6263–6279.
- Zhou, X., Zhang, P., Jiang, X., Rao, G., 2009. Influence of maleic anhydride grafted polypropylene on the miscibility of polypropylene / polyamide-6 blends using ATR-FTIR mapping. Vib. Spectrosc. 49, 17–21. <https://doi.org/10.1016/j.vibspec.2008.04.004>