



Mise en garde

La bibliothèque du Cégep de l'Abitibi-Témiscamingue et de l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT) a obtenu l'autorisation de la personne autrice de ce document afin de diffuser, dans un but non lucratif, une copie de son œuvre dans [Depositum](#), site d'archives numériques, gratuit et accessible à tous. L'autrice ou l'auteur conserve néanmoins ses droits de propriété intellectuelle, dont son droit d'auteur, sur cette œuvre.

Warning

The library of the Cégep de l'Abitibi-Témiscamingue and the Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT) obtained the permission of the author to use a copy of this document for nonprofit purposes in order to put it in the open archives [Depositum](#), which is free and accessible to all. The author retains ownership of the copyright on this document.

Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue

ANALYSE DE LA DURABILITÉ DE BIOCOMPOSITES À BASE DE CELLULOSE
FORTEMENT CHARGÉS EN FIBRES PAPETIÈRES

Mémoire présenté
comme exigence partielle
de la maîtrise en ingénierie

Par
MOHAMED YASSINE ELLOUMI

Octobre 2025

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, je souhaite exprimer ma gratitude envers mon directeur de maîtrise, Monsieur Hatem Mrad, pour son soutien, sa disponibilité tout au long de mon parcours académique. Je suis reconnaissant envers lui pour la confiance qu'il m'a toujours accordé. Je suis extrêmement reconnaissant envers Monsieur Hatem Bentaher, Professeur à l'École Nationale d'Ingénieurs de Sfax (ENIS), Tunisie, pour ses conseils scientifiques. Spécialement, je suis reconnaissant envers Monsieur Ahmed Koubaa pour son soutien financier, sa disponibilité, ses conseils pertinents et l'opportunité de la bi diplomation entre l'ENIS et l'UQAT. Je souhaite également exprimer ma profonde gratitude à Monsieur Lotfi Toubal, professeur à l'Université du Québec à Trois-Rivières (UQTR), pour son engagement dans la collaboration UQAT-UQTR, qui m'a permis de finaliser mes travaux de vieillissement UV au sein du Laboratoire de mécanique et éco-matériaux (LMEM). Je remercie tous les membres de la famille de mon cousin Abdelmadjid pour leur accueil dans la ville de Rouyn-Noranda afin de faire mes premiers pas et m'installer.

Je remercie Heni Abdelhadi, étudiant doctorant à l'UQTR pour son assistance lors des tests de vieillissement. Je tiens aussi à exprimer ma gratitude envers tous les membres du laboratoire des matériaux renouvelables de l'UQAT et l'unité de recherche UQTR, spécialement, Madame Asma Khouaja, auxiliaire de recherche au Laboratoire de biomatériaux de l'UQAT. Sa disponibilité, son soutien et ses conseils avisés ont été vitaux pour me familiariser avec l'utilisation des équipements du laboratoire. Un grand merci à tous les membres de CRC notamment Melek, Youssef, Fatma, Bilel, Morgan, Sofien, Hamza, Thomas

Un grand merci à notre technicien Simon Filiatrault de l'Institut de Forêt pour ses efforts et ses sacrifices lors des séances d'injection et d'extrusion. Son sourire et son soutien après chaque échec de mise en œuvre ont été extrêmement précieux. Finalement, je souhaite exprimer ma profonde gratitude à tous les membres du jury d'avoir accepté d'évaluer mon travail.

DÉDICACE

Du fond de mon cœur et avec toute l'intensité de mes émotions, je dédie cette maîtrise à mes chers parents, qui m'ont soutenu tout au long de ma vie, en particulier dans les moments difficiles liés à mes études. Merci pour votre soutien inestimable, tant moral que financier, tout au long de mon parcours. Je vous aime profondément, maman et papa.

À mon cousin Abdelmajid et à sa famille,
pour leur soutien moral, leur accueil chaleureux à Rouyn-Noranda et leurs efforts acharnés qui m'ont grandement aidé lors de mes premiers pas.

À mes frères, ainsi qu'à mes cousins et cousines,
pour leurs encouragements constants : je vous souhaite une vie remplie de joie, de bonheur et de réussite.

À ma fiancée,
je tiens à remercier de tout cœur mon amoureuse et sa famille pour leur précieux soutien et leur réconfort moral tout au long de mon parcours académique.

À mes grands-mères et pères, je dédie les premiers fruits de ma réussite et prie Dieu le Tout-Puissant de leur accorder santé et longue vie.

À mes amis, qui ont été présents avec leur soutien moral et leurs encouragements tout au long de ce travail : merci du fond du cœur.

TABLE DES MATIÈRES

Remerciements.....	ii
Dédicace.....	iii
Table des matières	iv
Liste des figures.....	viii
Liste des tableaux.....	xi
Liste des sigles et des abréviations.....	xii
Résumé	xiv
1. INTRODUCTION	1
1.1 Mise en contexte	1
1.2 L'originalité	3
1.3 Les objectifs de recherche.....	3
1.4 Hypothèses	4
2. ÉTAT DES CONNAISSANCES	5
2.1 Définition et classification des composites biosourcés.....	5
2.1.1 Les bioplastiques.....	5
2.1.2 Les esters de cellulose	7
2.1.3 Applications	10
2.2 Généralités sur les composites bois-polymère.....	10
2.3 Renfort	10
2.3.1 Fibre de bois.....	10
2.3.2 Fibres papetières.....	14
2.3.3 Pâtes thermomécaniques	15
2.3.4 Pâtes chimiques	16
2.4 Les additifs	18
2.5 Domaine d'application	19
2.6 La mise en forme des biocomposites	19
2.6.1 L'extrusion	19
2.6.2 Le moulage par injection.....	22
2.6.3 Fabrication des biocomposites à forte teneur en fibres	24

2.7	Comparaison des propriétés mécaniques des composites biodégradables et non biodégradables.....	25
2.8	Les types de vieillissement.....	26
2.8.1	<i>Vieillissement hygroscopique.....</i>	27
2.8.2	<i>Mécanisme de vieillissement UV.....</i>	28
2.8.3	<i>Dégradation du polymère.....</i>	30
2.8.4	<i>Dégradation de la fibre cellulosique.....</i>	31
2.8.5	<i>Conséquences de vieillissement UV sur les propriétés mécaniques..</i>	34
2.8.6	<i>Décoloration et changements chimiques des composites dus aux intempéries.....</i>	36
2.9	Conclusion.....	39
3.	APPROCHE MÉTHODOLOGIQUE.....	40
3.1	Introduction.....	40
3.2	Plan d'expérimentation.....	41
3.3	Matériel et Méthodes.....	42
3.3.1	<i>Préparation des fibres.....</i>	42
3.3.2	<i>Polymères et additifs.....</i>	42
3.3.3	<i>Renforts.....</i>	43
3.4	Caractérisation anatomique des fibres.....	43
3.5	Caractérisation de la chimie de la surface par spectroscopie infrarouge .	45
3.6	Préparation des mélanges.....	46
3.6.1	<i>Extrusion.....</i>	46
3.6.2	<i>Moulage par injection et formation des éprouvettes.....</i>	48
3.6.3	<i>Préparation des pastilles pour test rhéologiques.....</i>	49
3.7	Caractérisation thermique.....	51
3.7.1	<i>Analyse thermogravimétrique (TGA).....</i>	51
3.7.2	<i>Analyse par calorimétrie différentielle à balayage DSC.....</i>	52
3.8	Caractérisation rhéologique.....	54
3.9	Caractérisation de la stabilité dimensionnelle.....	55
3.10	Caractérisation mécanique.....	57
3.11	Vieillissement artificiel accéléré.....	63

3.12	Changement de couleur	64
3.13	Analyses microscopiques	65
3.14	Analyse micro structurale : Microscopie à balayage électronique MEB ...	66
3.15	Analyses statistiques	67
3.16	Conclusion	68
4.	RÉSULTATS ET DISCUSSION	69
4.1	Introduction	69
4.2	Étude de la compatibilité fibres matrices par l'analyse de la chimie de surface	69
4.2.1	<i>Cas des composites à base polypropylène haute densité chargés par Kraft avant vieillissement</i>	69
4.2.2	<i>Cas des différents biocomposites à base d'acétate de cellulose avant vieillissement</i>	70
4.2.3	<i>. Modification de l'état de surface d'acétate de cellulose lors de vieillissement</i>	72
4.2.4	<i>Modification de l'état de surface des biocomposites lors du vieillissement</i>	74
4.3	Les propriétés rhéologiques des biocomposites	76
4.3.1	<i>Influence de la concentration et de la nature de la fibre sur les paramètres de stockage et de perte</i>	76
4.3.2	<i>Influence de la concentration et de la nature de la fibre sur la viscosité complexe des bio composites</i>	78
4.3.3	<i>Interaction entre les propriétés rhéologiques et la mise en œuvre</i>	81
4.4	Les propriétés thermiques	82
4.4.1	<i>Les analyses thermogravimétriques</i>	82
4.4.2	<i>Résultats des essais de calorimétrie différentielle à balayage</i>	86
4.5	Propriétés mécaniques	89
4.5.1	<i>Effet de la concentration de la fibre sur les propriétés de flexion des composites</i>	89
4.5.2	<i>Effet de la concentration de la fibre sur les propriétés de traction des composites</i>	92

4.5.3	<i>Effet de la concentration et de la nature de la fibre sur l'allongement à la rupture</i>	95
4.5.4	<i>Effet de la concentration de la fibre sur les propriétés d'impact</i>	96
4.5.5	<i>Effet de plastifiant sur les propriétés mécaniques</i>	97
4.6	Analyse de la stabilité dimensionnelle	99
4.7	Influence du vieillissement sur la décoloration des composites	100
4.8	Influence de vieillissement sur la rugosité des composites	104
4.9	Influence du vieillissement sur la morphologique	106
4.10	Influence du vieillissement sur la dureté des composites	107
4.11	Influence de l'exposition UV sur les propriétés mécaniques	109
4.11.1	<i>Effet de la matrice</i>	110
4.11.2	<i>Effet de la teneur en fibre</i>	111
4.11.3	<i>Effet du type de fibre</i>	113
4.12	Implications pratiques des résultats de la recherche	115
4.13	Analyse statistiques	116
4.14	Conclusion	118
5.	CONCLUSIONS GÉNÉRALES	119
	LISTE DES RÉFÉRENCES	121

LISTE DES FIGURES

Figure 1 Classification des bioplastiques	6
Figure 2 Formation d'acétate de cellulose à partir de cellulose pure	7
Figure 3 La synthèse de l'acétate de cellulose	9
Figure 4. La structure de paroi cellulaire de bois	11
Figure 5 Représentation schématique de la hiérarchie structurelle dans une fibre végétale	12
Figure 6 Influence de la structure lignocellulosique sur la résistance mécanique et la dégradation environnementale	14
Figure 7 Procédés mécanique de séparation des fibres	15
Figure 8 Procédé de mise en pâte chimique	17
Figure 9 Mécanisme d'extrusion	20
Figure 10 Exemples de tests de durabilité	27
Figure 11 Mécanisme de vieillissement UV	29
Figure 12 Cycle d'oxydation autocatalytique des polyoléfines induite par les UV	31
Figure 13 Chromophores en structure lignine et leurs spectres d'absorption UV	33
Figure 14 Effet combiné de l'eau et des rayons UV sur les fibres cellulosiques	34
Figure 15 Coordonnées du système CIELAB	37
Figure 16 Décoloration des composites à base de PEHD renforcée par trois espèces différentes de bois avec la durée d'exposition	38
Figure 17 Méthodologie expérimentale	40
Figure 18 Processus de broyage et de tamisage de la poudre	42
Figure 19 Fibres papetières sélectionnées	43
Figure 20 Analyseur de fibres METSO FS300 (QFA)	44
Figure 21 Appareil de spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier IR Tracer-100	46
Figure 22 Extrusion des mélanges	47
Figure 23 Machine de moulage par injection	48
Figure 24 Éprouvettes de traction et flexion pour les mélanges avec 60% de fibres	49
Figure 25 Presse à compression LabEcon 300	50
Figure 26 Appareil d'analyse thermogravimétrique TA Q50	52

Figure 27 Calorimètre différentielle à balayage DSC	53
Figure 28 Rhéomètre rotatif (MCR302, ANTON PARR, Autriche).....	54
Figure 29 Test de stabilité dimensionnelle des échantillons.....	56
Figure 30 Essai de flexion (Machine Zwick).....	57
Figure 31 Essai de flexion (Machine Instron (modèle LM-UI50)).....	59
Figure 32 Essai de traction (Machine Zwick).....	60
Figure 33 Mouton pendule résistance au choc.....	62
Figure 34 Duromètre analogique Shore D.....	62
Figure 35 Machine de vieillissement UV	63
Figure 36 Colorimètre CR-410	64
Figure 37 Microscope à LASER Keyence VK-X150	66
Figure 38 Microscope électronique à balayage.....	67
Figure 39 Spectre d'absorbance de Kraft, PEHD et des composites PEHD-K	69
Figure 40 Spectre d'absorbance des composites : a) AC-K ; b) AC-T.....	71
Figure 41 Modifications chimiques de l'acétate de cellulose lors du vieillissement..	72
Figure 42 Évolution du spectre FTIR des composites PEHD-K en fonction du temps d'exposition UV.....	74
Figure 43 Modifications chimiques des biocomposites AC-K50 lors du vieillissement	75
Figure 44 Évolution des modules de stockage complexes et de la perte des différents composites de l'étude : a) AC-T ; b) AC-K ; C) PEHD-K	77
Figure 45 Évolution de la viscosité complexe des différents composites de l'étude : a) AC-K ; b) AC-T ; c) PEHD-K	79
Figure 46 Log (η^*) en fonction de la teneur en fibre à une fréquence de 628 rad. s ⁻¹	81
Figure 47 Courbes thermogravimétriques des matières premières.	83
Figure 48 Les thermogrammes : a) ATG et DTG des biocomposites PEHD-K; b) ATG des composites AC-T; C) ATG des AC-K.....	86
Figure 49 Thermographes des analyses de calorimétrie différentielle à balayage ...	88
Figure 50 Évolution des propriétés de flexion des composites avant vieillissement	89
Figure 51 Évolution des propriétés de traction des composites avant vieillissement	93

Figure 52 Évolution de l'allongement à la rupture en fonction teneur en fibre	95
Figure 53 Propriétés d'impact des composites.....	97
Figure 54 Effet de matrice sur l'évolution de l'absorption en fonction du temps d'immersion	99
Figure 55 Effet de fibre sur l'évolution de l'absorption en fonction du temps d'immersion	100
Figure 56 Évolution des coordonnées de couleur (L^* , a^* , b^*) pour les échantillons AC-K50, AC-T50 et PEHD-T50	102
Figure 57 Évolution de l'aspect visuelle des éprouvettes au cours du vieillissement	103
Figure 58 Changements de rugosité au fil du temps d'exposition UV.....	105
Figure 59 Images MEB de la détérioration des échantillons à différents temps d'altération pour : AC-T50, AC-K50, PEHD-K50	107
Figure 60 Évolution de la dureté en fonction avant et au cours d'exposition aux UV	108
Figure 61 Courbes de la contrainte en fonction de la déformation des composites chargés.....	109
Figure 62 Évolution de la rétention du module d'élasticité et de la perte de masse pour les composites PEHD-K50 et AC-K50	111
Figure 63 Effet de la teneur de fibre sur la conservation de la résistance des composites PEHD-K et AC-K.....	112
Figure 64 Évolution de la perte de masse pour les composites PEHD-K et AC-K.	113
Figure 66 Évolution de la rétention de rigidité et la résistance pour les composites AC-T50 et AC-K50	113
Figure 67 Comparaison des composites par rapport les produits commerciaux en termes de rétention des propriétés mécaniques.....	116

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 Paramètres d'extrusion des composites AC rapportés dans la littérature	21
Tableau 2 Paramètres d'injection pour des différents composites à base d'acétate de cellulose	23
Tableau 3 Codes d'échantillons et compositions des biocomposites : les pourcentages correspondent à la proportion en poids.....	41
Tableau 4 Les propriétés géométriques des fibres.....	45
Tableau 5 Condition d'extrusion utilisée dans ce projet.....	47
Tableau 6 Paramètres du programme utilisé pour préparer les pastilles	51
Tableau 7 Les températures de dégradations et le taux des résidus extraites à partir des courbes ATG et DTG.	84
Tableau 8 Résultats de l'analyse calorimétrie différentielle à balayage.....	87
Tableau 9 Comparaison des performances en flexion des composites AC-K et AC-T aux résultats rapportés dans la littérature	92
Tableau 10 Comparaison des performances en traction des composites AC-K et AC-T aux résultats rapportés dans la littérature	94
Tableau 11 Effet de l'ajout de glycérine sur les propriétés mécaniques de flexion des mélanges AC	98
Tableau 12 Variation des couleurs des composites avant et après vieillissement UV	101
Tableau 13 Propriétés chimiques des fibres cellulosiques	115
Tableau 14 Résultats des analyses de variance (ANOVA) concernant l'effet de vieillissement UV sur les propriétés mécaniques des composites.....	117

LISTE DES SIGLES ET DES ABRÉVIATIONS

Paramètres expérimentaux

T_c (°C) : Température de cristallisation

T_f (°C) : Température de fusion

T_g (°C) : Température de transition vitreuse

X_c (%) : Indice de cristallinité

ΔH_f (J/g) : Enthalpie de fusion

ΔH_{f0} (J/g) : Enthalpie de fusion théorique pour un polymère 100 % cristallin

W : Fraction massique

E_T (MPa) : Module de Young en flexion

E_f (MPa) : Module de Young en traction

MOR_F : Résistance à la flexion

MOR_T : Résistance à la Traction

G_m (%) : Gain massique

G_v (%) : Gain volumique

ΔE : Différence de couleur

L^* : Teinte de couleur en noir et blanc et représente la luminosité

a^* : Teinte de couleur en noir

b^* : Teinte de couleur en vert et rouge

G' : Module de stockage viscoélastique

G'' : Module de perte viscoélastique

a_c (KJ/mm²) : Résistance aux chocs

E_c (J) : Énergie absorbée par l'échantillon

Techniques

ATG : Analyse thermogravimétrique

DSC : Calorimétrie différentielle à balayage

ANOVA : Analyse de variance

Matériaux

CBP : Composite bois polymère

AC : Acétate de cellulose

ACP : Acétate de cellulose plastifié

CAP : Acétate de cellulose propionate

AC-T : Composite à base d'acétate renforcée par fibre TMP

AC-K : Composite à base d'acétate renforcée par fibre kraft

PEHD : Polyéthylène haute densité

PEHD-K : Composite à matrice de polyéthylène haute densité renforcé par des fibres de kraft

K : Pâte chimique

TMP : Fibre issue de pâtes thermomécaniques

RÉSUMÉ

Face aux enjeux liés aux changements climatiques et aux exigences croissantes des réglementations limitant l'usage des plastiques conventionnels, les matériaux composites biosourcés s'imposent comme alternative durable. Toutefois, leur utilisation à grande échelle rencontre des limitations en termes de durabilité environnementale. Peu de recherche ont regarder l'effet de la dégradation induit par les rayonnements UV des bio composites à haute teneur en fibres . Dans ce sens la présente étude vise à combler cette lacune scientifique qui entrave le développement des bio composites. Deux types de fibres papetières ont été sélectionnées comme renforts: (i) les fibres chimiques kraft, et (ii) les fibres thermomécaniques (TMP) ont été incorporées dans une matrice biosourcée à base d'acétate de cellulose (AC) à des fractions massiques de 40 %, 50 % et 60 %. En parallèle, une matrice de polyéthylène haute densité (PEHD) a été employée à titre de référence. Les mélanges ont été préparés en deux étapes à l'aide d'une extrudeuse bi-vis, puis soumis à un procédé d'injection.

Les résultats des propriétés mécaniques montrent que les composites AC présente de meilleures propriétés que les composites PEHD. À 60 % de fibres kraft, l'AC de cellulose a donné des composites avec un MOE de 5,26 GPa alors que les composites de PEHD avaient un MOE de 3,47 GPa. Toutefois, la viscosité élevée des composites AC (100 fois celle du PEHD) complique leur utilisation et l'ajout de glycérine, bien qu'améliorant la fluidité, diminue la résistance mécanique. Les tests d'absorption d'eau révèlent une plus grande stabilité dimensionnelle des composites PEHD par rapport à celle des composites AC en raison de leur sensibilité à l'humidité. Un vieillissement accéléré UV/humidité (1200h) simulant un an d'exposition naturelle a permis d'évaluer la durabilité des matériaux. Les taux de rétention du module de rigidité après vieillissement atteignent 38 % (AC-Kraft), 64 % (AC-TMP) et 75 % (PEHD-Kraft). Le suivi des propriétés mécaniques, esthétiques, chimiques et morphologiques a permis d'expliquer le mécanisme de dégradation du matériau.

Cette recherche a permis une meilleure compréhension des performances et des limites des biocomposites AC. Elle a dressé une feuille de route pour nos partenaires industriels et pour les prochaines recherches visant le développement des matériaux biosourcés à la fois performants et adaptés à des applications industrielles spécifiques.

Mots-clés : Biocomposites, acétate de cellulose plastifiée, propriétés physico-mécaniques, durabilité, vieillissement artificiel accéléré.

Keywords: Biocomposites, plasticized cellulose acetate, physico-mechanical properties, durability, accelerated artificial aging

1. INTRODUCTION

1.1 *Mise en contexte*

Depuis 1950, la production à grande échelle de matières plastiques à base pétrochimique a augmenté par plus de 200 fois, dépassant 8 milliards de tonnes, soit plus d'une tonne par être humain (Atiweh et al., 2021). En revanche, cette production mondiale de plastiques issus de combustibles fossiles représente 90,2 % de la production de plastiques (Hassan et al., 2024). La fabrication intensive de plastique produit des déchets nocifs pour l'environnement, pouvant persister pendant des siècles (Hassan et al., 2024). À titre d'exemple, la décomposition d'un sac de plastique peut prendre plus de 500 ans (Mohanty et al., 2000). Ces déchets de plastiques omniprésents et alarmants pour la planète dépasseront 850 millions de tonnes par an d'ici 2050 (Tripathi et al., 2021).

Compte tenu de la dépendance sur plastiques pétrochimiques, de la raréfaction du pétrole et des préoccupations environnementales, les chercheurs s'orientent de plus en plus sur la production de bioplastiques. L'initiative mondiale verte met l'accent sur l'importance croissante des bioplastiques au XXI^e siècle (Chang et al., 2020). En 2019, les matrices biodégradables représentaient 55,5 % de l'utilisation totale des bioplastiques (Varyan et al., 2022). Il est estimé qu'il y aura une augmentation de 47 et 21%, respectivement de la production de plastiques biodégradables et de plastiques non biodégradables dans la période de 2020 à 2025. Grâce à cette stratégie de transition vers les polymères biodégradables, la production mondiale de plastique a engendré une réduction d'entre 241 et 316 millions de tonnes d'équivalent CO₂ chaque année (Tripathi et al., 2021).

La gestion des sous-produits de l'industrie du bois, tels que les copeaux et la sciure, constitue un enjeu à la fois environnemental et économique majeur. La diminution de la demande en papier journal et en papier d'impression a entraîné une baisse de la consommation de pâte à papier, générant ainsi un excédent de copeaux de bois (Gouvernement du Canada, 2022). Pour surmonter cette crise, le développement de stratégies de valorisation représente une option prometteuse.

Dans un contexte où la réduction des déchets plastiques et la valorisation des ressources renouvelables deviennent des priorités mondiales, l'intégration d'une proportion élevée de fibres de bois dans une matrice biosourcée constitue une approche durable et prometteuse. Parmi les techniques de fabrication des composites bois-polymère (CBP), le moulage par injection se distingue comme une méthode particulièrement adaptée et déjà adoptée par de nombreuses industries, y compris nos partenaires industriels.

Cependant, l'incorporation de fortes teneurs en fibres végétales présente un défi majeur : l'incompatibilité entre les phases hydrophiles et hydrophobes (Jafarian Jam & Hossein Behraves, 2009). Cette incompatibilité complexifie le procédé de fabrication et exige des ajustements précis des paramètres d'injection. Le manque de maîtrise de ces paramètres limite aujourd'hui la capacité de production optimale des CBP. Ainsi, les initiatives « vertes » doivent concentrer leurs efforts sur l'optimisation des procédés de transformation pour garantir la qualité et la performance de ces matériaux.

Cette dynamique a conduit au développement des composites bois-polymère, dont la popularité ne cesse de croître. Le marché mondial des biocomposites illustre cet engouement, avec une valeur estimée à 12,6 milliards de dollars en 2021 et un taux de croissance annuel prévu de 8,9 % d'ici 2030 (Hosseini et al., 2023).

Malgré les avantages mécaniques offerts par les fibres végétales, leur utilisation présente également certaines limites, notamment une réduction de la durée de vie du matériau due au gonflement, à la dégradation et aux phénomènes de vieillissement. La durabilité reste donc un axe de recherche prioritaire dans le développement des biocomposites, particulièrement pour les applications structurelles et extérieures. Les facteurs environnementaux tels que l'humidité, l'exposition aux rayons UV ou les cycles thermiques peuvent altérer l'interface fibre-matrice et détériorer les propriétés mécaniques (Hernández-Alvarado et al., 2026; Ratanawilai & Taneerat, 2018). De plus, les bioplastiques présentent une sensibilité accrue à l'humidité et au vieillissement (Hamma et al., 2014), affectant non seulement leurs performances mécaniques, mais également leur apparence esthétique. Le manque de

connaissances scientifiques approfondies sur ces phénomènes limite encore leur compétitivité face aux matériaux conventionnels (Chang et al., 2020). C'est pourquoi l'étude du vieillissement UV constitue une étape essentielle avant leur adoption dans le secteur de la construction (Bakshi et al., 2021). Malgré de nombreuses recherches sur les biocomposites, rares sont les études ayant analysé à la fois l'effet d'une forte teneur en fibres et celui du rayonnement UV sur les propriétés mécaniques des bioplastiques. Ce travail vise ainsi à combler cette lacune, en apportant de nouvelles connaissances sur le comportement des biocomposites soumis au vieillissement, dans une perspective de développement de matériaux à la fois performants, durables et respectueux de l'environnement.

1.2 L'originalité

L'originalité de ce projet réside en deux points :

- La mise en forme, par injection, de composites constitués d'une matrice en acétate de cellulose (AC) fortement chargée en fibres de bois.
- L'évaluation de l'influence du vieillissement UV sur les propriétés des biocomposites obtenus.

1.3 Les objectifs de recherche

L'objectif général de ce projet est l'évaluation de la durabilité des composites entièrement biosourcés en mettant en relief deux contributions principales. Dans un premier temps, ce travail vise à développer des biocomposites entièrement biosourcés en utilisant une matrice biodégradable renforcée par une forte proportion en poids de fibres papetières (40, 50, 60 %). Dans un deuxième temps, ce travail vise à évaluer l'impact du vieillissement UV sur les biocomposites développés.

Plus spécifiquement, ce projet vise à :

- Élaborer un biocomposite à base d'une matrice biodégradable avec une haute teneur en fibres.
- Étudier le comportement rhéologique des mélanges.

- Étudier les propriétés mécaniques, physiques et chimiques des biocomposites avant et après vieillissement.

1.4 Hypothèses

Notre approche dans cette recherche consiste à considérer deux fibres issues des différents procédés de défibrage. Dans cette optique, les hypothèses suivantes ont été prises en compte :

- L'ajout de fibres de bois mènera à la création de CBP ayant de meilleures performances mécaniques que le polymère pur.
- Les propriétés mécaniques, physiques et rhéologiques des CBP varieront en fonction de la nature de la fibre et de la matrice utilisée.
- Les propriétés mécaniques, esthétiques et chimiques seront variables en fonction du temps d'exposition aux rayons UV.
- La lignine joue un rôle protecteur pour les biocomposites.

2. ÉTAT DES CONNAISSANCES

2.1 Définition et classification des composites biosourcés

2.1.1 Les bioplastiques

La décomposition des plastiques issus de la pétrochimie peut s'étendre sur une période comprise entre une et dix années. Toutefois, en raison de leur dégradation incomplète, ces matériaux demeurent dans l'environnement pendant des durées beaucoup plus longues, pouvant atteindre plusieurs siècles. À titre d'exemple, la durée de vie d'un sac de plastique est estimée à environ 20 ans, celle d'une bouteille de boisson peut atteindre jusqu'à 450 ans, tandis qu'un gobelet en plastique se dégrade en près de 50 ans. Même les mégots de cigarette, souvent négligés, peuvent persister dans l'environnement pendant près de 5 ans (Hassan et al., 2024). Ainsi, les initiatives vertes s'orientent vers le développement de plastiques d'origine biosourcée, capables de se dégrader naturellement dans l'environnement (Atiweh et al., 2021). Un biopolymère est une classe de polymères qui est formée à partir de biomasse (Ahmad et al., 2025). Selon plusieurs études, l'utilisation des bioplastiques permettrait d'éviter l'émission de 241 à 316 millions de tonnes d'équivalent CO₂ par an, tout en réduisant les impacts environnementaux d'au moins 20 %, contribuant ainsi à la préservation des ressources pétrolières (Tripathi et al., 2021). Les biopolymères peuvent être classés en trois grandes catégories, selon leur origine et leur procédé de synthèse, comme illustre le schéma ci-dessous (Figure 1).

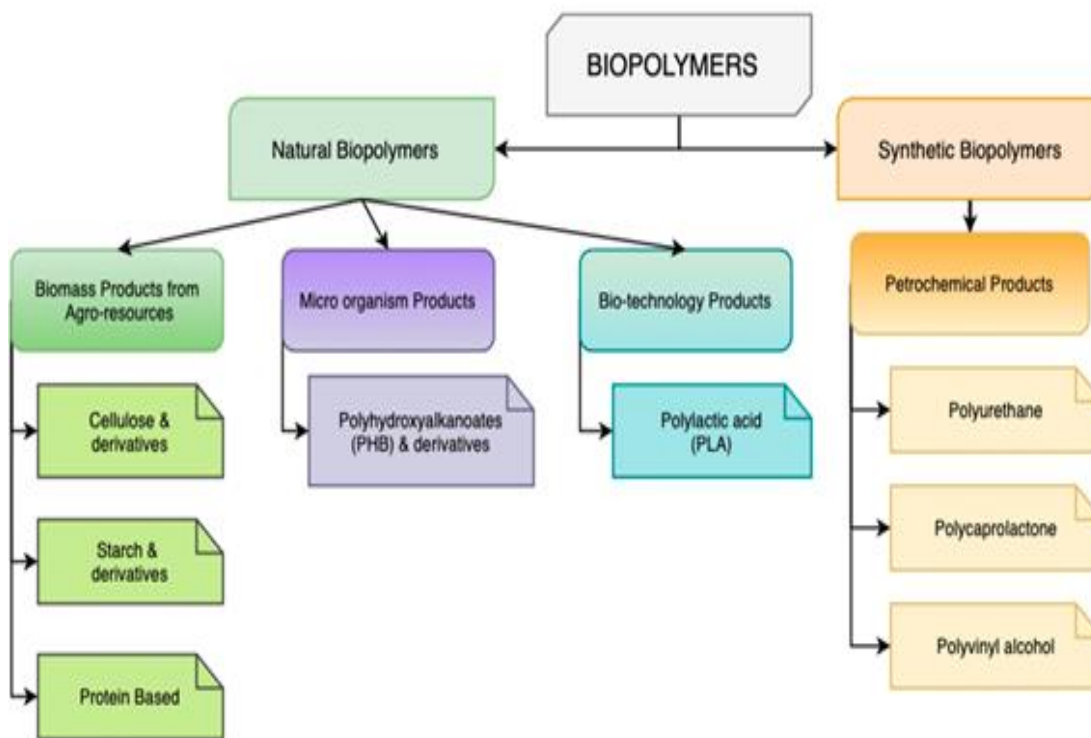


Figure 1 Classification des bioplastiques

Source : Adapté de (Phiri et al., 2023)

La première famille regroupe les polymères directement extraits de la biomasse, notamment issus du fractionnement des polysaccharides (tels que l'amidon et la cellulose), des lipides, ainsi que des protéines d'origine animale. La deuxième famille comprend les polyesters produits par fermentation de biomasse, dont le représentant le plus connu est le polyhydroxyalcanoate (PHA). La troisième famille rassemble les polymères synthétisés chimiquement à partir de monomères d'origine biosourcée, tels que l'acide polylactique (PLA). Enfin, la quatrième famille correspond aux polyesters entièrement dégradables, mais issus de ressources pétrochimiques, qui conservent néanmoins un caractère biodégradable (Satyanarayana et al., 2009). Parmi les polymères appartenant à cette catégorie figurent le polycarbonate d'ester (PEC), le polytéréphtalate d'éthylène (PET) modifié, ainsi que divers copolyesters aliphatiques et aromatiques tels que le PBAT (Avérous & Caillol, 2021). Parmi les matériaux les plus prometteurs, les esters de cellulose se distinguent particulièrement en raison de leur structure chimique proche de celle de la cellulose naturelle. Cependant, les

facteurs environnementaux tels que l'humidité, la température ou le rayonnement ultraviolet peuvent altérer leurs performances, entraînant une dégradation des propriétés mécaniques et physiques des composites élaborés à partir de ces biopolymères (Aaliya et al., 2021).

2.1.2 Les esters de cellulose

La cellulose est un polysaccharide naturel largement répandu dans le monde végétal. Il s'agit de l'un des glucides les plus abondants sur Terre, présent dans la majorité des matériaux d'origine végétale (Aaliya et al., 2021). Cette macromolécule constitue le principal composant des parois cellulaires des plantes, où elle s'organise en microfibrilles dont le diamètre varie entre 2 et 20 nm et la longueur entre 0,1 et 40 μm (Pang et al., 2014b). La cellulose peut être extraite à partir de fibres de bois ou de coton (Bonifacio et al., 2023). La Figure 2 illustre en détail le processus de formation de l'acétate de cellulose à partir de la cellulose :

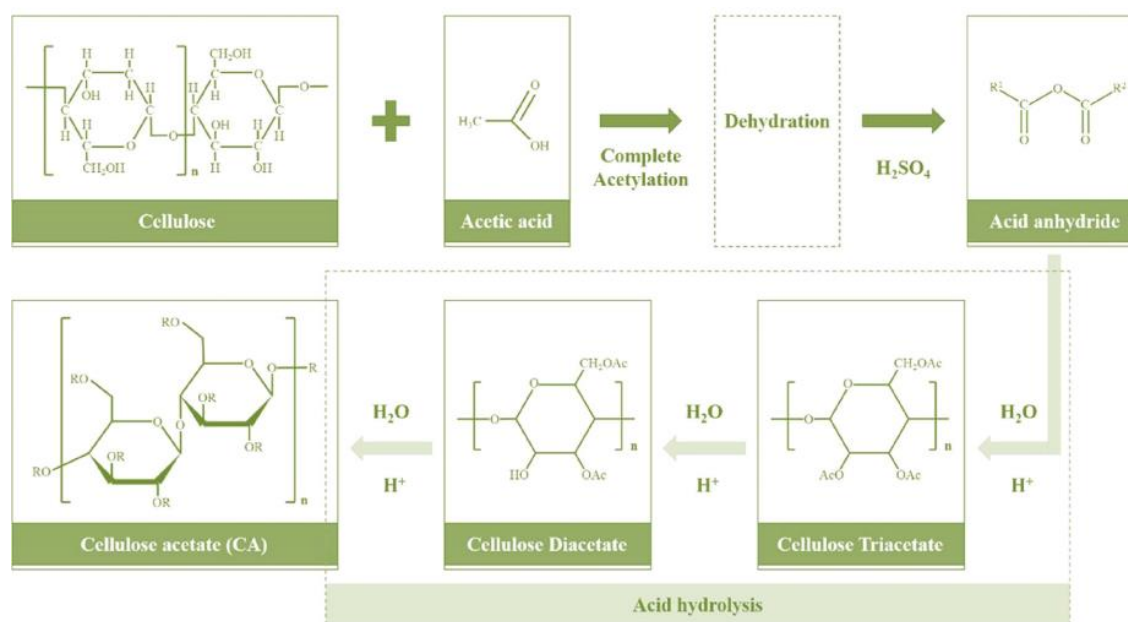


Figure 2 Formation d'acétate de cellulose à partir de cellulose pure

Source : (Y. Liu et al., 2021)

Avec une production annuelle estimée à plus de 10^{11} tonnes, la cellulose figure parmi les substances naturelles les plus abondantes sur Terre (Motaung & Lingano, 2018).

Cette ressource renouvelable suscite un intérêt croissant pour la synthèse de biopolymères, notamment grâce aux avancées récentes dans les procédés biologiques et chimiques innovants (Khoshnevisan et al., 2018; Y. Liu et al., 2021). Parmi les dérivés de la cellulose, les esters de cellulose occupent une place importante en tant que polymères biosourcés à haute valeur ajoutée (Khouaja et al., 2024). Ils sont obtenus par substitution des groupes hydroxyle (-OH) de la cellulose par des groupes fonctionnels spécifiques, généralement via une réaction d'estérification avec des acides organiques. La nature de l'acide utilisé ainsi que les conditions opératoires (température, catalyseur, solvant) influencent directement les propriétés structurales et mécaniques des esters obtenus. Les principaux esters de cellulose comprennent l'acétate de cellulose (AC), l'acétate de cellulose propionate (CAP) et l'acétate de cellulose butyrate (CAB), chacun se différenciant par la nature et la longueur de ses chaînes latérales. L'acétate de cellulose, en particulier, est synthétisé par l'acétylation de la cellulose purifiée, réaction impliquant l'anhydride acétique et l'acide acétique (Decroix et al., 2020), suivie de la formation de films par extrusion à l'aide d'un solvant tel que l'acétone (Khoshnevisan et al., 2018; Y. Liu et al., 2021). Au cours de cette transformation, les groupes hydroxyle (-OH) de la cellulose sont remplacés par des groupements acétyle (RCO-), modifiant ainsi sa structure chimique et ses propriétés physiques. Ces modifications structurelles sont illustrées en détail dans la Figure 3 qui présente le mécanisme de formation de l'acétate de cellulose à partir de la cellulose .

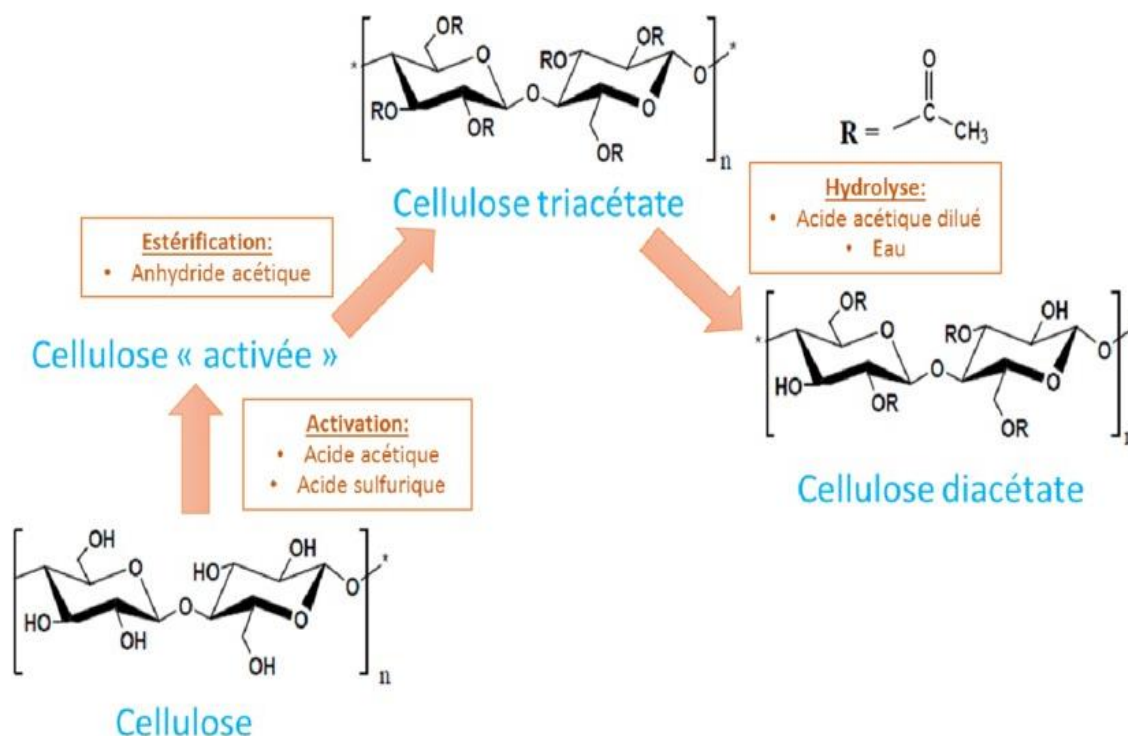


Figure 3 La synthèse de l'acétate de cellulose

Source : (Decroix et al., 2020)

L'acétate de cellulose peut être synthétisé à partir de ressources renouvelables variées, notamment par estérification de déchets agricoles tels que la bagasse de canne à sucre (Suzuki et al., 2020), les résidus de palmier (Shaikh et al., 2022) ou encore les fibres issues de rouleaux de serviettes (Yıldız et al., 2019). Cependant, ce biopolymère présente certains inconvénients majeurs, notamment une température de traitement proche de sa température de décomposition, ce qui limite sa fabrication (Choi et al., 2004). De plus, selon une étude récente (Lecoublet, Ragoubi, Leblanc, et al., 2023), l'acétate de cellulose se caractérise par une viscosité plus élevée que d'autres biopolymères tels que le PLA, rendant son transfert et sa mise en forme plus complexes. Pour pallier cette limitation, l'utilisation d'un plastifiant est souvent nécessaire. La plastification permet d'améliorer les propriétés rhéologiques du matériau, facilitant ainsi l'incorporation d'une forte teneur en fibres ou particules de bois (Segerholm et al., 2007). Elle contribue également à accroître la flexibilité

thermique du polymère, notamment en modifiant les températures de fusion (T_f) et de transition vitreuse (T_g), mais s'accompagne d'une réduction des propriétés mécaniques des matériaux (Gutiérrez et al., 2014; Park et al., 2004).

2.1.3 Applications

L'acétate de cellulose est un polymère biodégradable, transparent et facilement imprimable (Fischer et al., 2008). Sa polyvalence en fait un matériau de choix dans de nombreux domaines d'application, notamment l'emballage alimentaire, les filtres à cigarettes (Decroix et al., 2020), les membranes de filtration (Dobos et al., 2023), ainsi que les dispositifs médicaux (N. Bifari et al., 2016). En tant que matrice pour les composites, l'acétate de cellulose peut être renforcée par diverses fibres naturelles, telles que les fibres courtes de curauá (Gutiérrez et al., 2012, 2014), les fibres de chanvre (Choi et al., 2004), fibres de kenaf (Pang et al., 2014b), les fibres de lin (Taha & Ziegmann, 2006), la farine de bois de résineux (Sykacek et al., 2009, 2010) et la cellulose microcristalline (Khouaja et al., 2025a). Des travaux récents ont par ailleurs mis en évidence le potentiel de l'acétate de cellulose comme matrice polymérique, notamment en intégrant des additifs plastifiants tels que le glycérol, afin d'améliorer la flexibilité et la processabilité du matériau lors de sa mise en forme.

2.2 Généralités sur les composites bois-polymère

2.3 Renfort

2.3.1 Fibre de bois

Au fil des années, les fibres naturelles ont suscité un intérêt croissant à l'échelle internationale, en raison de leurs avantages environnementaux et de leurs propriétés mécaniques compétitives. Parallèlement, le gouvernement canadien encourage la valorisation de la biomasse en encadrant plus strictement l'usage des fibres synthétiques, dans une optique de réduction de l'empreinte carbone. Les fibres naturelles présentent une capacité de capturer davantage de dioxyde de carbone que leurs homologues synthétiques (Ayana et al., 2024), tout en étant renouvelables et biodégradables. Cette approche s'est traduite par un remplacement progressif des fibres synthétiques par des fibres végétales dans de nombreuses applications non structurelles. En Amérique du Nord, le bois occupe une place

prépondérante en tant que matériau de renfort, représentant environ 75 % du marché de la construction (Mohanty et al., 2001). La teneur en bois dans les composites bois-polymère (CBP) peut atteindre jusqu'à 70 % en poids avec une matrice issue de ressources fossiles (Ben Jmeaa, 2019). Cette utilisation massive du bois comme renfort est directement liée à la structure hiérarchique et complexe des fibres cellulodiques, qui leur confère des caractéristiques mécaniques et physico-chimiques uniques, comme illustré dans la Figure 4.

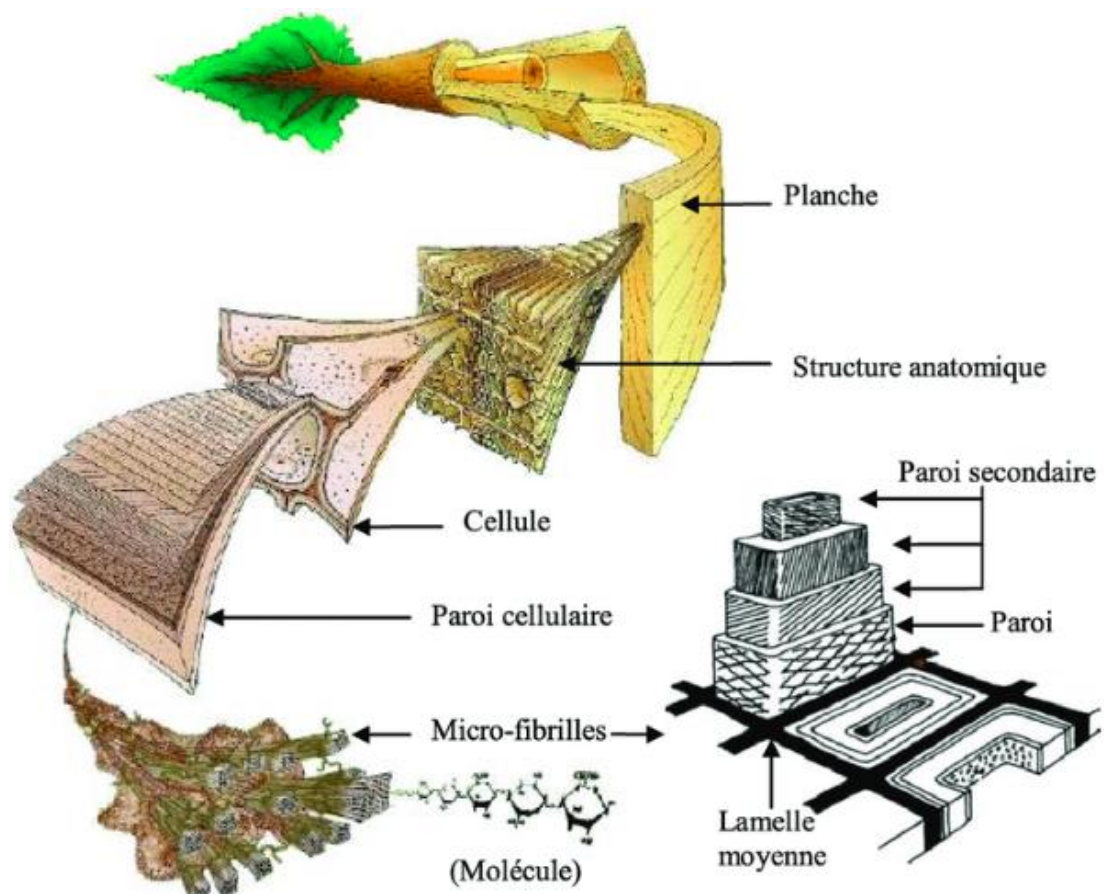


Figure 4. La structure de paroi cellulaire de bois

Source : (THI, 2017)

La paroi cellulaire est constituée d'une lamelle moyenne riche en lignine et d'une paroi secondaire. Cette couche est formée par trois types de polymères: la cellulose, l'hémicellulose et la lignine, comme illustré dans la Figure 5.

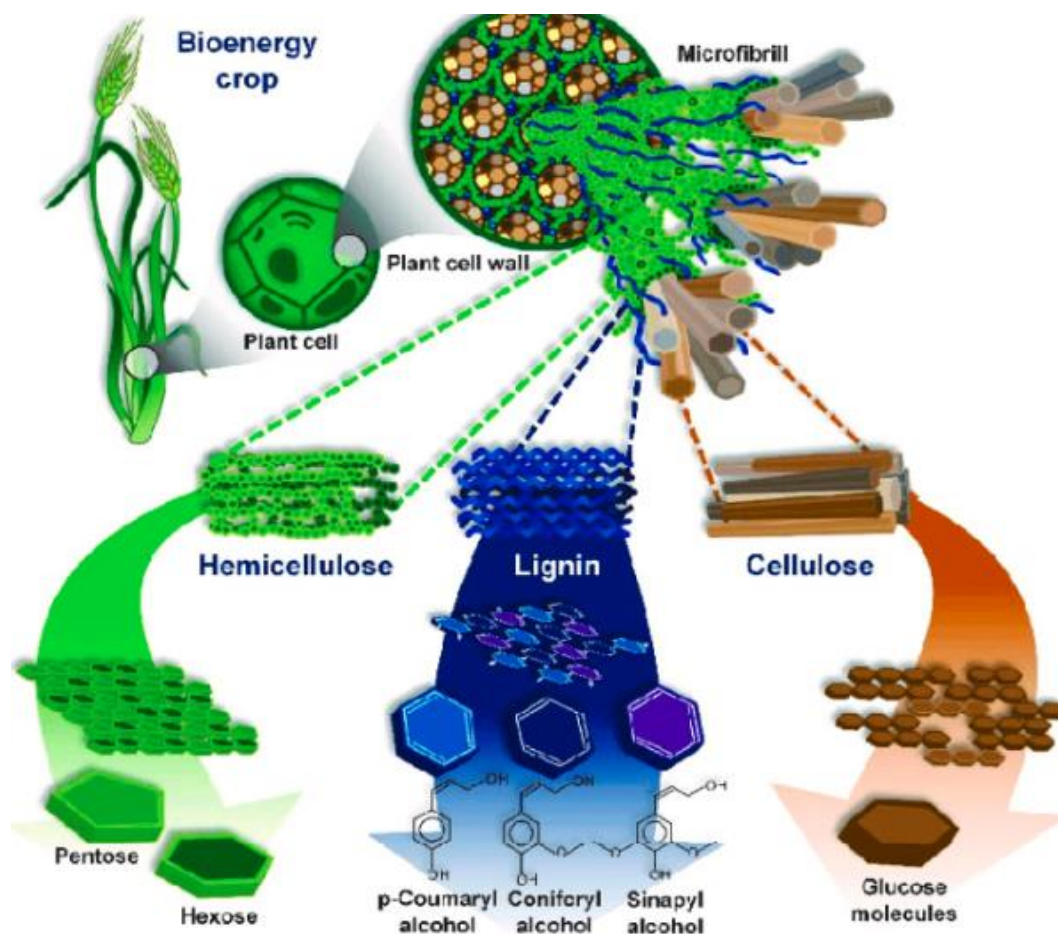


Figure 5 Représentation schématique de la hiérarchie structurale dans une fibre végétale

Source : Adapté de (Elfaleh et al., 2023)

La cellulose présente une structure cristalline constituée de chaînes répétées d'unités de cellobiose, elles-mêmes formées de deux molécules de D-anhydroglucopyranose (AGU) reliées par des liaisons covalentes β -1,4-glycosidiques (Elfaleh et al., 2023). Elle constitue le principal composant des parois cellulaires végétales, représentant environ 40 à 45 % de la composition des fibres de bois, avec un degré de polymérisation pouvant dépasser 10 000 unités.

De formule chimique $C_6H_{10}O_5$, la cellulose est un polysaccharide naturel et un homopolymère semi-cristallin, dont la structure ordonnée confère une résistance

mécanique élevée, particulièrement recherchée dans la fabrication des composites bois-polymère (CBP) (Migneault et al., 2014).

Les hémicelluloses sont des polysaccharides hydrophiles et adhésifs jouant un rôle essentiel dans la cohésion structurelle des parois végétales, où elles agissent comme une matrice de liaison entre les microfibrilles de cellulose (Azwa et al., 2013). Elles sont constituées d'un mélange de sucres tels que le D-xylose, le D-mannose et le D-galactose, fréquemment rencontrés dans les plantes à écorce (Elfaleh et al., 2023). Leur degré de polymérisation, compris entre 100 et 150, est nettement inférieur à celui de la cellulose.

Les hémicelluloses se distinguent par la présence d'un grand nombre de groupes hydroxyles (-OH), leur conférant une forte affinité pour l'eau et donc un caractère hydrophile prononcé, tout en favorisant une biodégradation rapide (Akil et al., 2011; Sadasivuni et al., 2020). Cependant, leur présence dans les composites peut perturber l'interface fibre-matrice, compromettant ainsi la transmission efficace des contraintes mécaniques (Azwa et al., 2013).

La lignine est un polymère tridimensionnel moins polaire avec une structure amorphe et un haut poids moléculaire (Ilyas et al., 2022). Il agit comme une barrière contre les attaques biologiques, chimiques et de l'eau (Azwa et al., 2013). C'est également un agent protecteur contre les rayons UV grâce aux groupes fonctionnels chromophores (Nasri et al., 2022; Sadasivuni et al., 2020).

Les composants de la structure cellulaire sensibles à différentes attaques environnementales sont énumérés dans la figure 6.

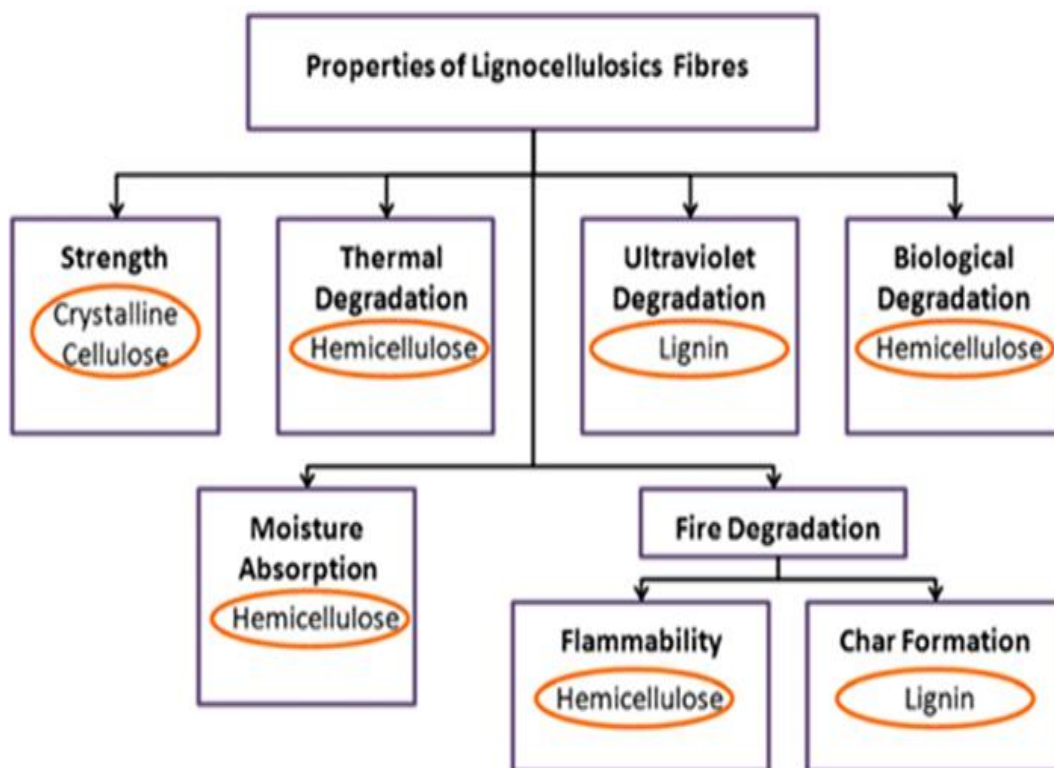


Figure 6 Influence de la structure lignocellulosique sur la résistance mécanique et la dégradation environnementale

Source : (Azwa et al., 2013)

Pour améliorer l'adhésion entre les fibres lignocellulosiques et les matrices, on peut utiliser différentes stratégies, comme le traitement enzymatique des fibres (Bendourou et al., 2021; Chaari et al., 2023) et les traitements chimiques (Pokharel et al., 2022).

2.3.2 Fibres papetières

Au Canada, l'industrie papetière représente l'une des principales sources de fibres de bois (Rejeb, Koubaa, Elleuch, Godard, Migneault, Khelif, et al., 2021). Plusieurs procédés de défibrage sont employés pour l'extraction de ces fibres, parmi lesquels le défibrage chimique (procédé kraft), le défibrage thermomécanique (TMP) et le défibrage chimio-thermomécanique (CTMP) (Thiebaud-Roux, 1995). La Figure 7 présente le principe de fonctionnement de chacune de ces méthodes. Chaque procédé exerce une influence particulière sur la morphologie, la composition chimique

et les propriétés mécaniques des fibres obtenues, impactant ainsi la qualité finale des fibres de bois récupérées (Soucy, 2007)

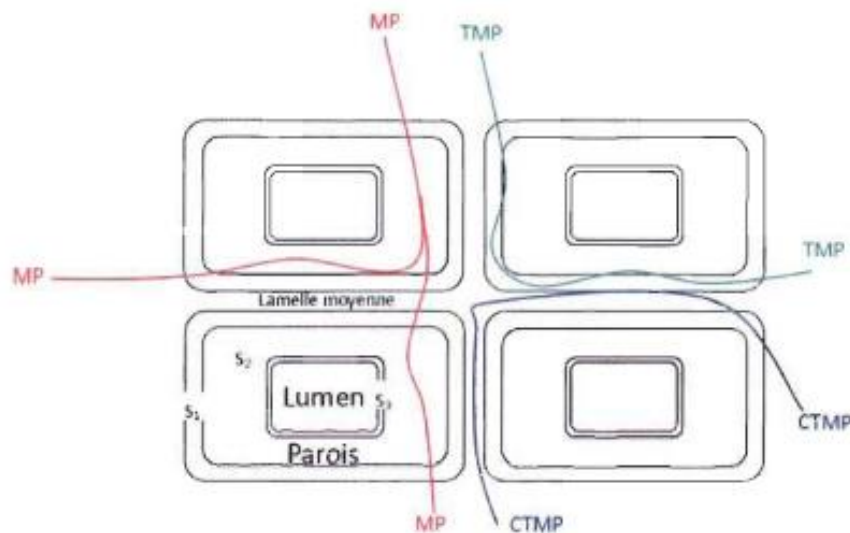


Figure 7 Procédés mécanique de séparation des fibres

Source : (Biermann, 1996)

2.3.3 Pâtes thermomécaniques

Le procédé de pâte thermomécanique (TMP) repose sur l'imprégnation et le préchauffage de copeaux de bois à l'aide de vapeur sous pression, à des températures comprises entre 115 et 155 °C, dans un réacteur sous atmosphère contrôlée (Mboowa, 2024). Une fois ramollis, les copeaux sont désintégrés mécaniquement entre les disques d'un raffineur, ce qui permet la libération des fibres. Ce procédé conserve une grande proportion de lignine, conférant à la pâte une opacité élevée, mais favorisant également le jaunissement par oxydation au fil du temps (Schirp & Stender, 2010). Les fibres obtenues par le procédé TMP se distinguent par une rigidité accrue par rapport à celles issues d'autres procédés, tout en conservant une fraction notable de lignine (Migneault et al., 2010; Soucy et al., 2018). Elles sont couramment utilisées dans la fabrication de papiers et de cartons, où elles contribuent à renforcer la rigidité du produit final. Bien que le défibrage thermomécanique offre un

rendement élevé, pouvant atteindre jusqu'à 90 % (Fengel & Wegener, 1984), il demeure un procédé fortement énergivore, avec une consommation d'énergie pouvant dépasser 2000 kWh par tonne de pâte produite (Bajpai, 2018).

2.3.4 *Pâtes chimiques*

Les fibres Kraft sont généralement obtenues par défibrage chimique (Kraft) des copeaux de bois. Le processus de pâte kraft (sulfate) représente la plus grande partie de la production mondiale de pâte à papier (Kinnarinen et al., 2016). Ce procédé s'engage dans l'élimination de la lignine des copeaux de bois en utilisant un mélange de produits chimiques de cuisson alcalins, d'hydroxyde de sodium et de sulfure, connu sous le nom de liqueur blanche (Golmaei et al., 2017). Ce processus a pour objectif d'éliminer l'hémicellulose et la lignine, tout en conservant l'intégrité de la cellulose, constituant principal des fibres (Migneault et al., 2010). Principalement, les produits

chimiques attaquent les agents liants entre les fibres. Parmi les différentes structures du bois, il y a la lamelle mitoyenne riche en lignine (Figure 8).

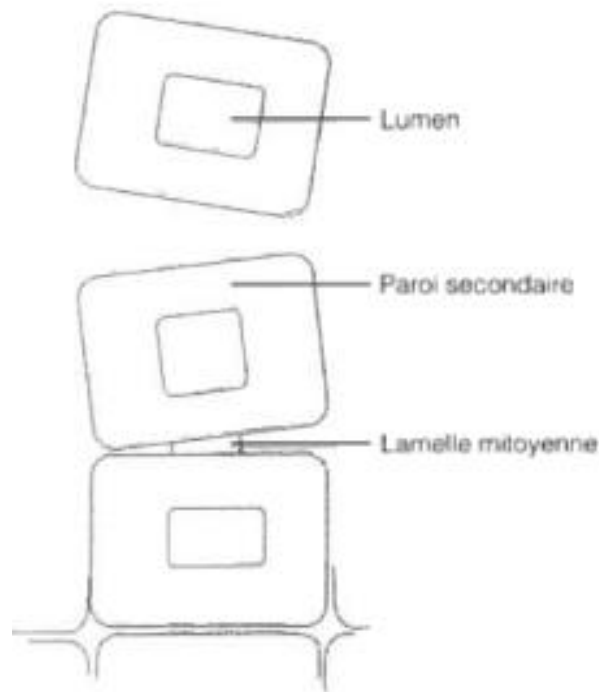


Figure 8 Procédé de mise en pâte chimique

Source : (Biermann, 1996)

Ce mode de défibrage présente un rendement relativement faible (entre 45 % et 55 %) comparativement aux procédés mécaniques et thermomécaniques (Mboowa, 2024). Les fibres obtenues par ce procédé sont généralement plus longues et plus résistantes que celles issues du procédé thermomécanique (Migneault et al., 2010). En revanche, leur grande longueur les rend plus difficiles à extruder que les fibres TMP (Soucy et al., 2016). Les fibres Kraft ont été intégrées avec succès dans diverses matrices polymères telles que le polypropylène (Rejeb, Koubaa, Elleuch, Godard, Migneault, Khlif et al., 2021 ; Ben Jmeaa, 2019 ; Vilaseca et al., 2008), le polyéthylène haute densité (Bouafif, Koubaa, Perré et Cloutier, 2009 ; Migneault et al., 2014), ainsi que l'acétate de cellulose (Khouaja et al., 2024). Dans les composites à base de polyéthylène basse densité, les fibres Kraft se distinguent par leur résistance supérieure à celle d'autres types de fibres issues de procédés de défibrage différents

(Migneault et al., 2010), ainsi qu'à celle des nanofibrilles de cellulose (Rodríguez-Fabià et al., 2023) et de la cellulose microcristalline (Khouaja et al., 2024). Par ailleurs, l'ajout de fibres kraft confère une stabilité thermique et dimensionnelle supérieure à celle obtenue avec les fibres papetières de type CTMP et TMP (Ben Jmeaa, 2019; Bouafif, Koubaa, Perré, & Cloutier, 2009) .

2.4 Les additifs

Les additifs sont des substances incorporées physiquement aux polymères dans le but de modifier ou d'améliorer leurs propriétés (Hsissou et al., 2021). Ils visent soit à optimiser le comportement rhéologique du polymère lors du traitement industriel (extrusion, injection, etc.), soit à améliorer les performances d'usage du matériau fini, telles que ses propriétés physiques, sa stabilité thermique ou sa résistance environnementale (Ramesh et al., 2022). Les additifs sont généralement classés selon leur fonction : plastifiants, stabilisants, lubrifiants, colorants ou agents de couplage.

Les lubrifiants facilitent le processus de transformation en améliorant la fluidité du mélange polymère-fibre, tout en réduisant les frictions entre les particules de bois et le polymère fondu, ce qui favorise une meilleure dispersion. Par exemple, l'ajout d'un lubrifiant dans un composite PEHD/bois permet d'obtenir une homogénéité accrue du matériau (Zhang et al., 2009). Les plastifiants, quant à eux, améliorent la flexibilité du polymère en favorisant la mobilité des chaînes macromoléculaires.

Des études antérieures ont montré que la glycérine peut être utilisée comme plastifiant efficace pour des formulations fortement chargées en bois (Ben Jmeaa, 2019). Les agents de couplage jouent un rôle clé dans l'adhésion entre les fibres de bois et la matrice polymère en assurant une meilleure compatibilité interfaciale. Ainsi, Migneault et al. (2008) ont démontré que l'ajout de polyéthylène greffé à l'anhydride maléique (MAPE) permet de réduire l'absorption d'eau grâce à l'effet hydrophobe du polymère sur les fibres lignocellulosiques. De même, Ngueho Yemele et al. (2013) ont montré que le MAPE améliore significativement la résistance mécanique des composites PEHD/écorce, tout en réduisant la ténacité et la déformation du matériau.

2.5 Domaine d'application

Les composites bois-polymère (CBP) sont largement utilisés dans le secteur de la construction, notamment pour la fabrication de fondations, terrasses, ponts, structures extérieures, clôtures et planchers. Ils constituent une alternative durable aux matériaux de construction traditionnels tels que le bois massif, le béton ou l'acier (Win & Stark, 2004). Au-delà de la construction, les matériaux composites biosourcés connaissent un essor considérable dans les industries du transport, de l'aéronautique et de l'emballage, où ils sont privilégiés pour leur légèreté et leur potentiel écologique.

Historiquement, l'adoption de composites à base de fibres naturelles a d'abord été motivée par des facteurs économiques et commerciaux, notamment la réduction du poids et du coût (Ramli et al., 2018). En effet, l'utilisation de fibres naturelles en remplacement des fibres de carbone réduit l'empreinte carbone d'environ 75 %, tout en améliorant la durabilité des produits et en abaissant les coûts de production d'environ 30 % (Ullah et al., 2025). De plus, l'ajout de fibres végétales allège le poids des véhicules d'environ 30 %, entraînant une diminution de 75 % de la consommation de carburant (Yang et al., 2012). Cette légèreté favorise la réduction des coûts énergétiques et des émissions de CO₂, contribuant à une mobilité plus durable (Gurunathan et al., 2015). Selon l'étude de Gurunathan et al., 2015 une baisse de 25 % du poids d'un véhicule permettrait d'économiser 250 millions de barils de pétrole brut et d'éviter l'émission de près de 220 milliards de livres de CO₂ chaque année. Le Japon a mis en place des réglementations strictes visant à encourager la valorisation et le recyclage des matériaux (Faruk et al., 2014). Aujourd'hui, un des défis majeurs, tant sur le plan scientifique qu'industriel, est d'élargir l'emploi des composites biosourcés à des applications à forte valeur ajoutée.

2.6 La mise en forme des biocomposites

2.6.1 L'extrusion

L'extrusion est une technique de mise en forme élémentaire du plastique. L'objectif de l'extrusion est de fondre et de mélanger le polymère, la charge et les additifs (Yadav et al., 2021). Ce procédé garantit un mélange homogène et de relativement bonnes interfaces fibre-matrice. Les recherches (Gamon et al., 2013) montrent que les

paramètres d'extrusion bi-vis ont une incidence sur l'amélioration de la dispersion des fibres bambou dans la matrice PLA. La matière première passe par trois phases comme montré dans la Figure 9.

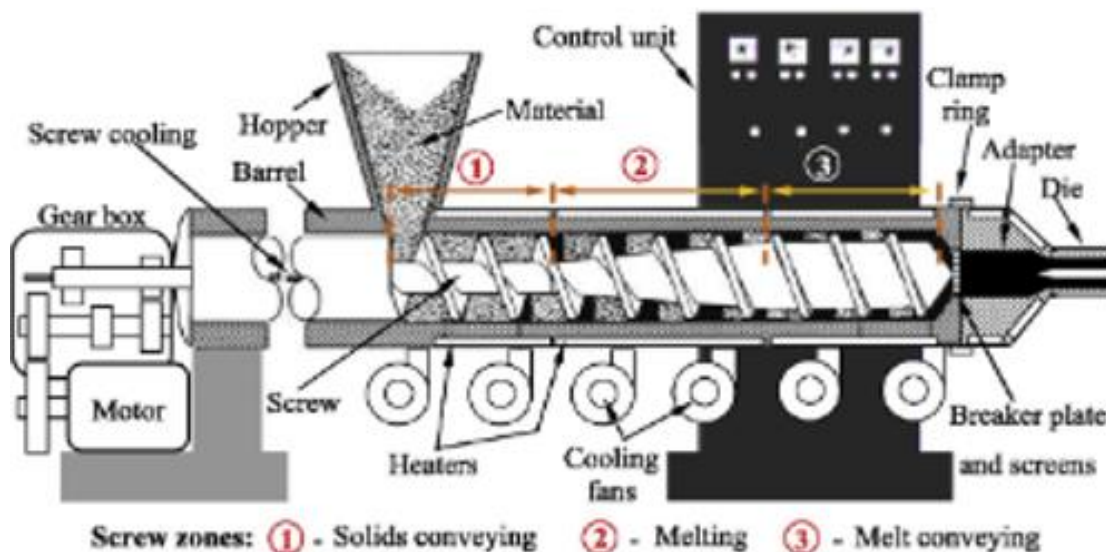


Figure 9 Mécanisme d'extrusion

Source : (Deng et al., 2014)

Le principal défi de la fabrication des composites bois-polymère réside dans le contrôle précis de la température de production, qui doit être suffisamment élevée pour assurer la fusion de la matrice polymérique, tout en restant inférieure à la température de dégradation des fibres naturelles. En effet, les fibres cellulosiques commencent à se détériorer dès 200 °C (Migneault et al., 2014). Des études antérieures (Godard et al., 2008) ont par exemple utilisé un profil de température de 170 °C, associé à une vitesse de rotation comprise entre 60 et 90 tr/min, pour la mise au point de formulations à base de polypropylène haute densité (PEHD) renforcées par 60 % en masse de fibres de bois. Un bref résumé des paramètres d'élaboration des composites à base d'acétate de cellulose renforcé par des fibres végétales, en fonction des types et teneurs en fibres utilisés, est présenté dans le tableau1.

Tableau 1 Paramètres d'extrusion des composites AC rapportés dans la littérature

Composites	T _{extrusion} (°C)	Vitesse de rotation	Références
AC/30% chanvre	190-195	150	(Mohanty et al., 2004)
ACP/50%bois	190-200	120	(Segerholm et al., 2007)
AC/(20-40-60%) lin / chanvre	190-230	200	(Taha & Ziegmann, 2006)
ACP/50%bois	160-180	75	(Sykacek et al., 2009a, 2010)
AC/50% (Kraft, MCC)	160-180	120	(Khouaja et al., 2024)
ACP/10% chanvre	180-200	150-250	(Gutiérrez et al., 2012)

Il faut maintenir la température du noyau autour de 120 °C afin d'éviter la surchauffe au niveau de la vis, phénomène pouvant entraîner une adhérence du matériau sur le filet ainsi qu'une obstruction de la filière lors du traitement du mélange d'acétate de cellulose propionate (CAP) (Sykacek et al., 2009a, 2010). L'extrusion des composites à base d'acétate de cellulose (AC) a généralement été réalisée à une vitesse de rotation d'environ 120 tr/min, comme indiqué dans les travaux de référence. Une augmentation modérée de la vitesse de rotation permet en outre de réduire le temps de séjour du matériau dans la chambre de mélange, limitant ainsi les risques de dégradation thermique et le collage du polymère sur le filet de la vis (Sykacek et al., 2009a, 2010).

2.6.2 Le moulage par injection

Le procédé de moulage par injection s'est rapidement imposé dans le domaine des composites à fibres naturelles, en raison de son efficacité, de sa précision et de sa grande reproductibilité. À ce jour, près d'un tiers des pièces produites dans l'industrie de la plasturgie sont fabriquées par injection (Rabbi et al., 2021a). Comparé au procédé d'extrusion, le moulage par injection permet d'obtenir des composites présentant de meilleures propriétés physiques et mécaniques. Les échantillons injectés affichent, en effet, des performances supérieures à celles produites par compression ou extrusion (Bouafif, Koubaa, Perré, & Cloutier, 2009; Migneault et al., 2009). Cette amélioration s'explique notamment par l'orientation préférentielle des fibres dans la direction de l'écoulement au cours du moulage, favorisant ainsi un meilleur transfert des contraintes mécaniques comparativement à une orientation aléatoire (Migneault et al., 2009). Les pièces injectées présentent également une densité plus élevée que celles obtenues par extrusion, résultat d'un compactage plus homogène du matériau fondu (Ayana et al., 2024). Toutefois, l'injection de biocomposites à base de fibres végétales requiert un contrôle précis de la température du moule et de la pression d'injection, en raison de la sensibilité thermique des fibres lignocellulosiques (Kumari et al., 2007). La maîtrise du comportement rhéologique du matériau à l'état fondu est donc indispensable pour garantir la qualité du moulage. Le tableau 2 présente une synthèse des paramètres d'injection utilisés pour différents mélanges à base d'acétate de cellulose renforcés par divers types de fibres végétales.

Tableau 2 Paramètres d'injection pour des différents composites à base d'acétate de cellulose

Composites	T _{injection} (°C)	t _{refroidissement} (s)	T _{moule} (°C)	P _{injection}	Références
AC/chanvre (70/30)	195	40	60	1200- 1500 Psi	(Mohanty et al., 2003, 2004)
AC/curauá (80/20)	190	25	50	70- 20MPa	(Gutiérrez et al, 2014)
AC/curauá (90/10)	200	10	50	80 MPa	(Gutiérrez et al., 2012)
AC/MCC, Kraft (50/50)	185	35	60	160 MPa	(Khouaja et al., 2024)
AC/lin, chanvre (20,40,60)	230	-	50	500-800 bar	(Taha & Ziegmann, 2006)

D'après les travaux de Taha & Ziegmann (2006), basés sur les composites acétate de cellulose renforcée par les fibres chanvre/lin : La température d'injection était de 230°C, la pression d'injection et la température des moules étaient entre 500-800 bar et 50°C respectivement. Dans des travaux parallèles (Mohanty et al., 2003) sur l'acétate de cellulose et la fibre de chanvre, la pression d'injection était de l'ordre de 1200-1500 psi. Tandis que la température d'injection, la température de moule et le temps de refroidissement étaient de l'ordre de 195°C, 60°C et 40s, respectivement.

D'un autre côté, pour le moulage par compression des composites à base d'acétate de cellulose, la température a atteint environ 185°C pendant 15 minutes (Pang et al., 2014a, 2015).

2.6.3 *Fabrication des biocomposites à forte teneur en fibres*

La fabrication de biocomposites à forte teneur en fibres présente plusieurs contraintes technologiques liées à l'augmentation de la viscosité et à la diminution de la fluidité du polymère fondu. Lorsque la proportion de charge dépasse un certain seuil, le moulage par injection devient difficile, voire impossible (Ben Jmeaa, 2019). En effet, les travaux de Sykacek et al. (2010) ont montré que les composites contenant plus de 55 % de fibres ne peuvent pas être moulés dans un moule en spirale, et que le moulage reste limité à des charges inférieures à 65 %, au-delà desquelles la capacité d'écoulement est perdue. Les travaux de Khouaja et al. (2025b) confirment cette tendance : la viscosité des biocomposites à base d'acétate de cellulose plastifié augmente fortement avec la teneur en fibres. La viscosité complexe est multipliée par 570 et 100 par rapport au PCA pur pour des biocomposites contenant 50 % de fibres Kraft et MCC, respectivement.

Dans les composites bois-polymère (CBP), les propriétés rhéologiques dépendent étroitement de la nature de la matrice, de la dispersion et de l'orientation des fibres (Diouf et al., 2022). L'incorporation de fibres rigides dans la matrice tend à entraver l'écoulement du polymère fondu, entraînant une hausse de la rigidité et une augmentation des modules viscoélastiques G' et G'' , traduisant un comportement plus élastique et moins fluide (Kimura et al., 2024; Soucy et al., 2018). Ce comportement pseudoplastique se manifeste par une diminution progressive de la viscosité complexe avec la fréquence (Dobos et al., 2023; Zepnik et al., 2013).

En parallèle, les biopolymères, tels que l'acétate de cellulose plastifié, présentent une viscosité intrinsèquement plus élevée que les polymères conventionnels comme le PEHD en raison de leur structure moléculaire rigide et de la présence de groupements polaires favorisant les liaisons hydrogène et l'enchevêtrement moléculaire. (Lecoublet, Ragoubi, Leblanc, et al., 2023). À basse fréquence, le PCA pur présente une viscosité supérieure à celle du PEHD (Khouaja et al., 2025b).

De manière générale, une augmentation de la teneur en fibres provoque une diminution de l'indice de fluidité (MFI) et une hausse significative de la viscosité, comme observé dans plusieurs études (Jafarian Jam & Hossein Behraves, 2009). Cette perte de fluidité rend le moulage par injection plus exigeant, nécessitant des ajustements précis des paramètres de procédé, notamment de la température, de la pression d'injection et du temps de maintien (Rabbi et al., 2021b).

L'une des solutions les plus efficaces consiste à augmenter la pression d'injection afin d'assurer un remplissage complet du moule malgré la viscosité accrue. Cette stratégie a été expérimentalement validée aussi bien pour les biopolymères (Sykacek et al., 2009b) que pour les polymères conventionnels tels que le polypropylène (Ben Jmeaa, 2019). Par ailleurs, la plastification de la matrice polymérique, par exemple via l'ajout de glycérine, permet d'améliorer la fluidité du polymère fondu et de réduire la résistance à l'écoulement (Wang et al., 2016 ; Zhou et al., 2021).

En somme, plus la teneur en fibres augmente, plus le matériau devient rigide mais difficile à mouler. Un compromis entre performance mécanique et aptitude à l'écoulement doit donc être recherché, impliquant une optimisation rigoureuse des paramètres de production pour garantir la qualité et la stabilité des biocomposites à base de cellulose.

2.7 Comparaison des propriétés mécaniques des composites biodégradables et non biodégradables

Des améliorations des propriétés mécaniques ont été observées pour tous les biopolymères testés (PBAT, AC) renforcés par des teneurs élevées de fibres, jusqu'à 65 %, à l'exception du PLA (Sykacek et al., 2009a). En revanche, une augmentation notable du module de traction a été observée, passant de 1520 MPa à 7480 MPa en ajustant la fraction de fibres de 0 à 65 %. La bonne cohésion fibre-matrice AC a été confirmée par des tests de micrographie. L'étude de Sykacek et al. (2010) a examiné l'impact de l'incorporation de fibres de bois traitées sur les propriétés mécaniques. Il a été prouvé que l'incorporation de 50 % de fibres conduit à une augmentation pouvant atteindre 15 fois la rigidité du composite CAP-bois. Des études parallèles ont montré que l'ajout de 20 % de fibres végétales aux matrices à base d'acétate de cellulose

(AC) entraînaient une augmentation de la module de Young, passant de 1,4 GPa à 2,8 GPa (Gutiérrez et al., 2012, 2014). Cela pourrait être attribué à la bonne cohésion interfaciale naturelle entre les groupements hydroxyle et carbonyle matrice/fibre. De leur côté, Pang et al. (2014) ont montré que l'incorporation de 30 % de fibre de kenaf entraîne une augmentation allant de 1,23 GPa à 2,76 GPa. Par ailleurs, Mohanty et al. (2004) ont observé que le biocomposite à base d'acétate de cellulose (AC) présentait un module de flexion de 5,6 GPa et une résistance de 78 MPa, contre respectivement 3,7 GPa et 55 MPa pour le composite PP contenant 30 % de fibres de chanvre. Un résultat similaire a été obtenu, avec une amélioration de 167 % du module de flexion, passant de 1,28 GPa à 3,44 GPa pour un composite à base de PHBV renforcé par 40 % de fibres de bois (Singh & Mohanty, 2007).

2.8 Les types de vieillissement

Les industries nord-américaines sont confrontées à un défi de taille : évaluer la durabilité des composites soumis à une irradiation UV en environnement humide, afin de répondre à des exigences à la fois scientifiques et structurels. Cette dégradation peut se traduire par différents mécanismes chimiques, thermiques, mécaniques, thermomécaniques ou photochimiques, comme illustré à la Figure 10.

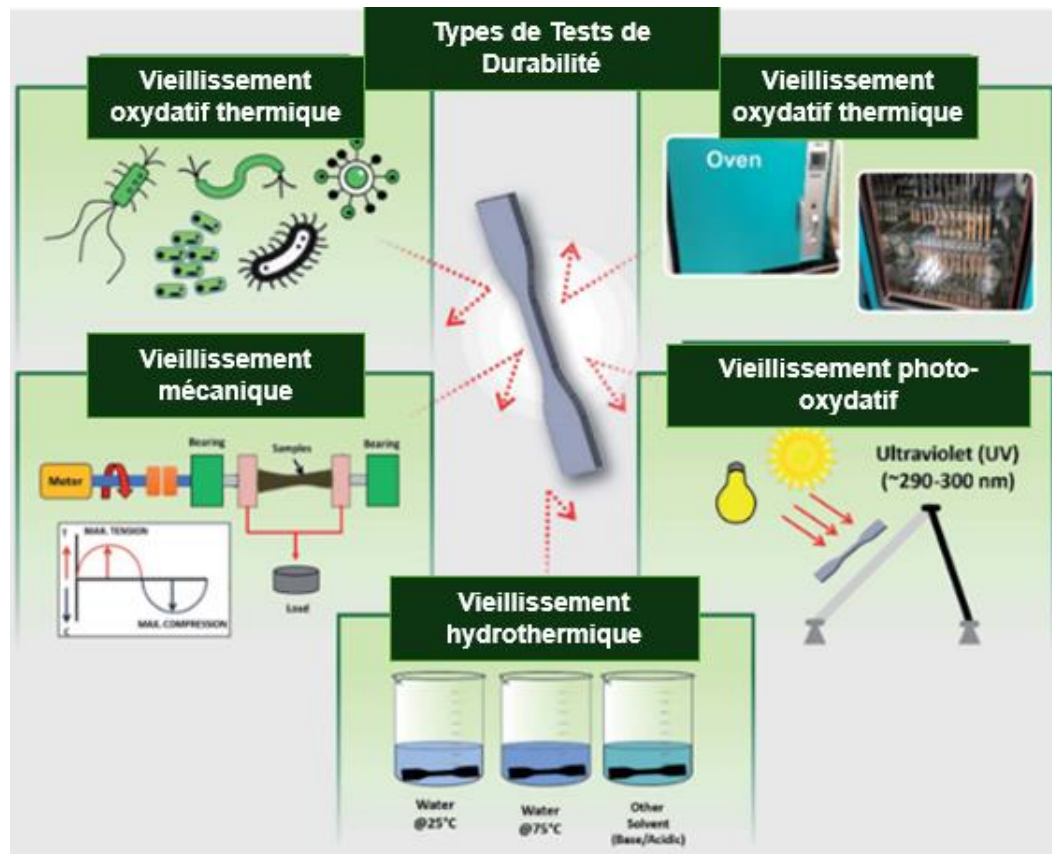


Figure 10 Exemples de tests de durabilité

Source : Adapté de (Chang et al., 2020)

2.8.1 Vieillissement hygroscopique

Le développement rapide des composites bois-plastique (CBP) au cours des deux dernières décennies s'explique principalement par leur durabilité et leur résistance face aux conditions extérieures (Mrad et al., 2018). Cependant, leur vieillissement hygroscopique demeure une problématique majeure, notamment en milieu humide, où la pénétration de l'eau dans la matrice favorise le gonflement et la fissuration du matériau. Cette sensibilité à l'humidité provient principalement de la présence de groupes hydroxyles au sein des composants lignocellulosiques du bois (Migneault et al., 2015). L'absorption d'eau dans les CBP est principalement régie par deux mécanismes. D'une part, les fibres naturelles poreuses augmentent l'hydrophilie du

composite et facilitent la diffusion de l'eau. C'est pourquoi la teneur en fibres accroît l'absorption (Ben Jmeaa, 2019). L'accroissement de masse observé lors de l'immersion est principalement dû aux composants hydrophiles des fibres, notamment les hémicelluloses et la cellulose (Beg & Pickering, 2008; Dhakal et al., 2007). À l'inverse, la lignine, de nature hydrophobe, absorbe beaucoup moins d'eau que les autres constituants (Fang et al., 2013). Par ailleurs, l'eau peut s'accumuler à l'interface fibre–matrice ou au sein de la paroi cellulaire des fibres. L'ajout de fibres favorise alors la formation de vides et de microfissures à cette interface, facilitant la pénétration capillaire de l'eau (Ben Jmeaa, 2019).

La nature de la matrice polymère exerce également une influence déterminante sur la stabilité dimensionnelle. Les biopolymères, en raison de leur caractère hydrophile, favorisent davantage la pénétration de l'eau. Rejeb et al. (2021) ont montré que les composites bois–polymère à base de PLA présentent une sensibilité accrue à l'absorption d'eau par rapport à leurs homologues à base de PP.

La majorité des études (Helaoui et al., 2024; Mrad et al., 2018) ont rapporté que la cinétique de diffusion de l'eau dans les CBP suit un processus de diffusion de type fickien. Toutefois, certaines recherches, notamment celle de Mrad et al. (2018) ont observé un écart par rapport au modèle classique, suggérant la présence de mécanismes de sorption plus complexes. La modélisation de ce phénomène ne sera pas abordée dans le cadre de cette étude.

Afin d'améliorer leur performance en usage extérieur, plusieurs travaux recommandent l'application de revêtements protecteurs pour limiter la pénétration d'eau et renforcer la durabilité du matériau (Rejeb et al., 2021).

2.8.2 Mécanisme de vieillissement UV

La lumière peut provoquer la dégradation des polymères, notamment par un mécanisme de photo-oxydation. Ce processus correspond à une altération de la structure chimique du matériau sous l'effet d'une exposition prolongée à la lumière. Lors d'une exposition aux UV, l'énergie associée à la longueur d'onde des rayons incidents est le principal facteur responsable de la rupture des chaînes moléculaires

dans les matériaux composites, comme l'illustre la Figure 11. La résistance aux rayonnements UV et à l'humidité constitue un critère essentiel pour les matériaux destinés aux applications extérieures (Chang et al., 2020). Les composites biosourcés (CBP) en particulier présentent une vulnérabilité accrue à la photodégradation et aux conditions climatiques en raison de l'action combinée de la lumière solaire, de l'eau et de l'oxygène. Une fois exposés aux UV, les composites sont soumis à deux processus : la scission de la chaîne macromoléculaire et la dégradation des fibres naturelles (Mohammed et al., 2023). Pour limiter ce phénomène, des stabilisants UV sont généralement incorporés dans les polymères sensibles aux rayonnements ultraviolets.

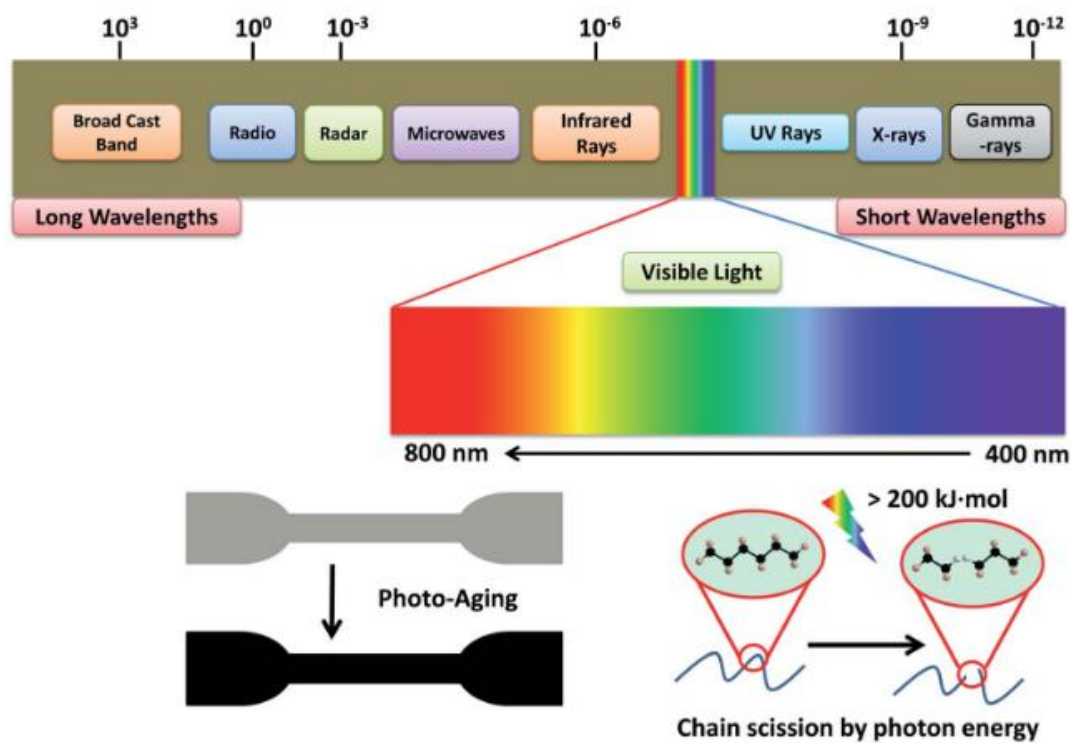


Figure 11 Mécanisme de vieillissement UV

Source : (Chang et al., 2020)

2.8.3 D gradation du polym re

Les rayons UV nocifs provoquent l'auto-oxydation des polym res en g n rant des radicaux libres et en rompant les cha nes polym riques (Andrady et al., 2019). La rupture des cha nes polym riques est induite par leur excitation sous l'effet de l' nergie solaire, dont la plage spectrale se situe entre 290 et 410 kJ/mol. (Mohammed et al., 2023).   titre d'exemple, l' nergie port e par une irradiation   la longueur d'onde de 295 nm est suffisante pour rompre les liaisons C C, C O, Si O, N H et O O au sein des polym res (Brown, 1999). La d gradation du polym re peut intervenir   plusieurs niveaux : elle d bute par l'oxydation des unit s monom res et s' tend jusqu'  des modifications observables   l' chelle macroscopique (Azwa et al., 2013). En pr sence d'un environnement riche en oxyg ne, ce processus s'intensifie pour g n rer des radicaux peroxy, des hydroperoxydes ainsi que des compos s c toniques et carboxyliques, lesquels initient les r actions photochimiques (Chang et al., 2020; Stark & Matuana, 2003). La Figure 12 pr sente ce cycle.

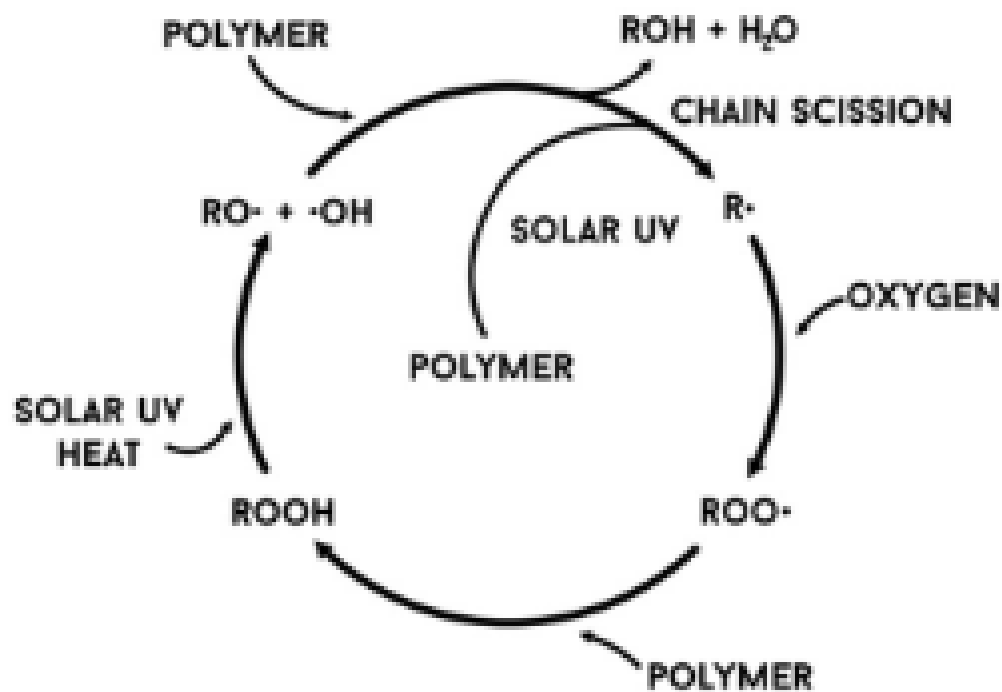


Figure 12 Cycle d'oxydation autocatalytique des polyoléfines induite par les UV

Source : (Andrady et al., 2019)

La formation d'acides carboxyliques, l'apparition de groupes fonctionnels spécifiques, ainsi que l'augmentation de la cristallinité en surface constituent des indicateurs clairs de la rupture des chaînes polymériques (Grause et al., 2020; Mohammed et al., 2023). À titre d'exemple, une augmentation du taux de cristallinité, passant de 36 % à 42 % après exposition, a été observée sur un site saharien en Algérie. (Imane et al., 2015).

2.8.4 Dégradation de la fibre cellulosique

Tout comme le plastique, l'exposition prolongée des fibres naturelles à l'humidité et aux UV entraîne une dégradation accélérée des matériaux composites dans lesquels elles sont intégrées. Cette sensibilité provient principalement de la structure chimique des fibres naturelles riches en polymères, tels que la cellulose et les hémicelluloses. Parmi les polymères du bois, la lignine joue un rôle antioxydant en absorbant 80 à

95% de la radiation solaire (Azwa et al., 2013). Cependant, en raison de sa structure riche en groupes chromophores, tels que les quinones et les groupements phénoxy méthoxylés, la lignine est également sujette à la photodégradation (Sadeghifar & Ragauskas, 2020). Ce processus conduit à la formation de quinones supplémentaires, responsables de l'apparition d'une teinte jaunâtre caractéristique sur les matériaux lignocellulosiques (Nguyen et al., 2020a). Le degré de dégradation des fibres peut être évalué visuellement par l'intensité de la décoloration en surface (Cogulet et al., 2016; Kim et al., 2016). Par ailleurs, la couleur brunâtre à noire de la lignine s'explique par la présence de groupes fonctionnels insaturés, tels que les carbonyles conjugués, les cycles aromatiques et les doubles liaisons carbone-carbone, capables d'absorber la lumière dans le domaine UV-visible (Lou et al., 2013; Paulsson & Parkås, 2012). Un spectre d'absorption de la lignine dans le domaine UV et visible, ainsi que différents groupes chromophores avec leurs longueurs d'onde d'absorption approximatives, sont démontrés dans la Figure 13, qui illustre également le taux d'absorption des groupes chromophores.

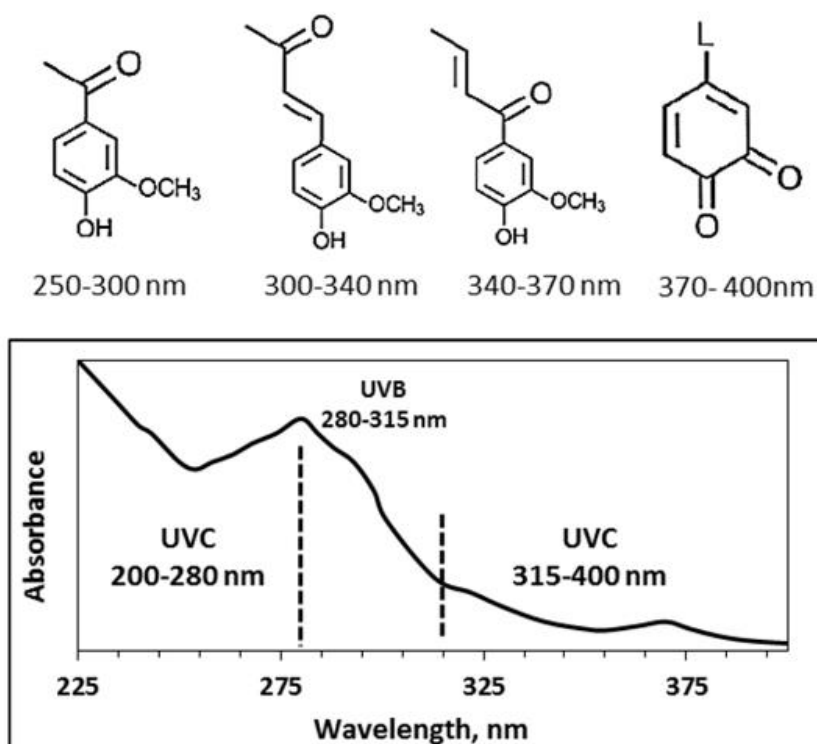


Figure 13 Chromophores en structure lignine et leurs spectres d'absorption UV

Source : (Sadeghifar & Ragauskas, 2020)

Outre la lignine, les rayons UV altèrent la fraction amorphe de la cellulose, mais à un rythme relativement plus lente (Cogulet et al., 2016; Kim et al., 2016). Cette constatation a été confirmée à la fois pour le bois d'épicéa (Cogulet et al., 2016), le bambou (Kim et al., 2016), ainsi que pour les composites bois-plastiques (Hazarika & Maji, 2017). Bien que ce processus soit lent dans des conditions naturelles, une méthodologie d'altération UV accélérée a été développée à l'échelle du laboratoire. Elle repose sur la diffusion de l'eau combinée à une exposition aux rayons UV sous des conditions de température contrôlée. Ce protocole présente l'avantage d'être plus rapide que l'exposition naturelle tout en assurant une bonne reproductibilité (Azwa et al., 2013). La diffusion d'eau a un effet accélérateur sur leur vieillissement, en particulier lorsqu'elle favorise la création ou l'amplification de microfissures (Chang et al., 2020), comme indiqué dans la Figure 14. Une étude antérieure de Stark &

Matuana (2006) a montré que le vieillissement UV associé à une pulvérisation d'eau a un impact plus prononcé que celui de l'UV seul.

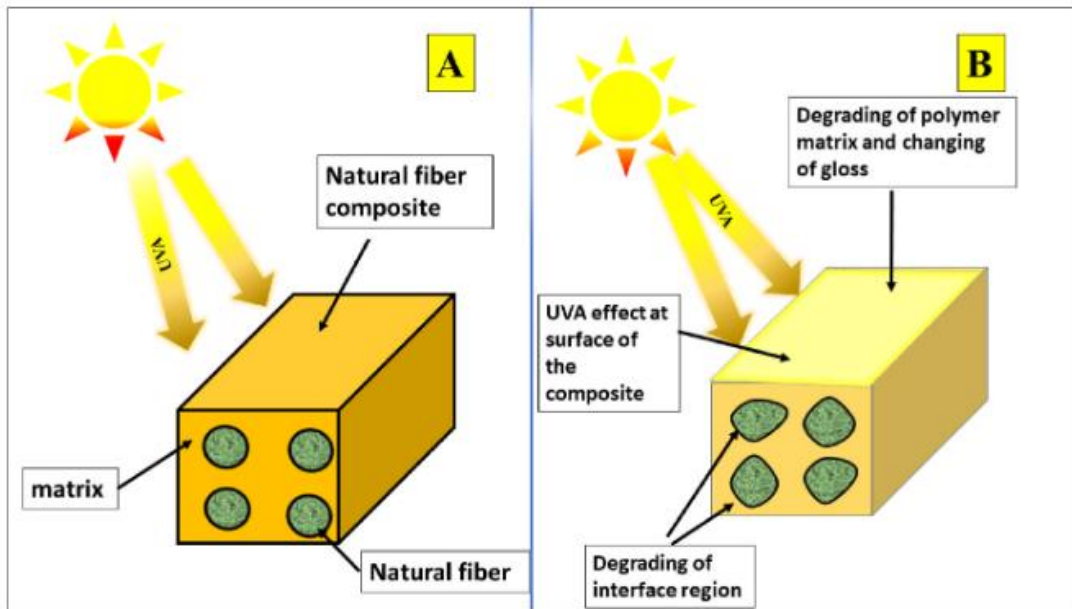


Figure 14 Effet combiné de l'eau et des rayons UV sur les fibres cellulosiques

Source : (Mohammed et al., 2023)

2.8.5 Conséquences de vieillissement UV sur les propriétés mécaniques

Les composites bois-plastique sont particulièrement sensibles aux rayons ultraviolets, dont l'exposition prolongée peut entraîner une altération progressive de leurs propriétés mécaniques. L'effet des UV provoque la rupture des liaisons dans les polymères, notamment au niveau des chaînes moléculaires, ce qui fragilise le matériau. L'intensité du rayonnement et la durée d'exposition sont des facteurs déterminants de l'ampleur de la dégradation. Ainsi, la résistance aux rayonnements UV constitue un indicateur clé de la durabilité des matériaux destinés à des applications extérieures. La conservation des propriétés mécaniques peut être évaluée par la formule suivante (Chang et al., 2020)

$$\text{Taux de rétention} = \frac{\text{Propriétés après vieillissement}}{\text{Propriétés avant vieillissement}} \times 100 \quad (1)$$

Pour qu'un produit soit accepté à l'échelle industrielle, son taux de rétention doit rester supérieur à 50 % après exposition aux intempéries (Chang et al., 2020b). La dégradation des propriétés mécaniques sous l'effet du vieillissement UV varie effectivement selon le type de matrice utilisé (LDPE, HDPE, PP, PVC, PS, etc.) dans les composites bois-plastique (CBP). Une étude (Ratanawilai & Taneerat, 2018) a montré que les composites à base de PS et les PP représentent les meilleurs candidats pour les applications extérieures exposées à un vieillissement naturel. Cependant, cette tendance s'accroît pour les composites à base de biopolymères, en raison de l'hydrophilie de leur matrice. L'étude de Chan et al. (2020), portant sur des composites renforcés à 50 % de fibres réalisés avec des matrices de PLA, PE et PHA, a mis en évidence une dégradation mécanique plus prononcée des matrices biosourcées comparativement à celles d'origine pétrochimique. L'exposition conjointe aux UV et à l'humidité provoque le gonflement des particules de bois, ce qui détériore leur adhérence avec la matrice. Ces phénomènes réduisent l'efficacité du transfert de contrainte entre la fibre et la matrice, entraînant une dégradation notable des propriétés mécaniques des biocomposites après vieillissement. Des travaux antérieurs (Nguyen et al., 2020b) ont affirmé que le type de fibre de bois utilisé a une incidence sur les propriétés mécaniques des composites PEHD avec 60 % en poids de fibres bois et avec des taux de rétention de 102 % et 97 % pour différentes espèces. Cela s'explique par la forte teneur en cellulose du bois estimée à environ 70 %, contre seulement 50 % pour les deux autres espèces étudiées. Ces résultats sont en accord avec les travaux de Qi et al. (2021), qui ont observé que les composites renforcés par des fibres cellulosiques d'eucalyptus, de balle de riz et de bambou présentaient des taux de rétention de la résistance à la flexion de l'ordre de 24,6 %, 11,6 % et 13,7 %, respectivement. Cette différence est attribuée à la faible hydrophilie de la lignine et ses propriétés antioxydantes (Chen et al. 2020). Cette observation est en accord avec les conclusions de Dönmez Çavdar et al. (2021). En revanche, l'inclusion des charges céramiques de gypse, marbre (Bakshi et al., 2021), zéolite d'ammonium (Dönmez Çavdar et al., 2021) améliorent la rétention sous l'exposition UV des composites PP et LDPE et PEHD, respectivement. Parmi les méthodes prometteuses les absorbeurs UVA, les colorants et les nano-argiles peuvent atténuer

l'impact des rayons nocifs sur les propriétés mécaniques (Hazarika & Maji, 2017; Stark & Matuana, 2003).

2.8.6 *Décoloration et changements chimiques des composites dus aux intempéries*

La décoloration des composites bois-plastique constitue à la fois un signe de dégradation matérielle et un critère esthétique déterminant pour leur acceptation sur le marché (Azwa et al., 2013). Des échantillons de CBP exposés à des intempéries peuvent s'éclaircir au début des tests (8 premiers mois), puis s'obscurcir par la moisissure et la saleté déposées sur la surface (Fabiya et al., 2008). La couleur du bois exposé aux intempéries commence par jaunir et brunir en raison de la photo-oxydation de la lignine, puis devient grise avec lessivage de bois (Azwa et al., 2013). Les changements de couleur se produisent lorsque la lumière ultraviolet provoque la formation de groupes carbonyle provenant de groupes chromophores, tels que les acides carboxyliques, les quinones et les radicaux hydroperoxy (Mohammed et al., 2023). Avec la lignine, une partie de la cellulose est également dégradée par les rayons UV du soleil, bien qu'à un rythme relativement plus lent (Andrady et al., 2019). Pour quantifier les changements de couleur une méthode de laboratoire basée sur la mesure de la luminosité de l'échantillon (L^*) et des coordonnées chromatiques (a^* et b^*) (Stark & Matuana, 2006) est utilisée. Cette méthode repose sur le système CIELAB (ou CIE 1976 (L^* , a^* , b^*)) qui est un modèle de couleur perceptuel conçu pour décrire les couleurs de manière plus proche de la perception humaine. Les coordonnées L^* se situent entre 0 et 100 (en noir et blanc) et représentent la luminosité des échantillons. Tandis que les coordonnées a^* et b^* reflètent, respectivement, les rapports rouge/vert et jaune/bleue (Figure 15).

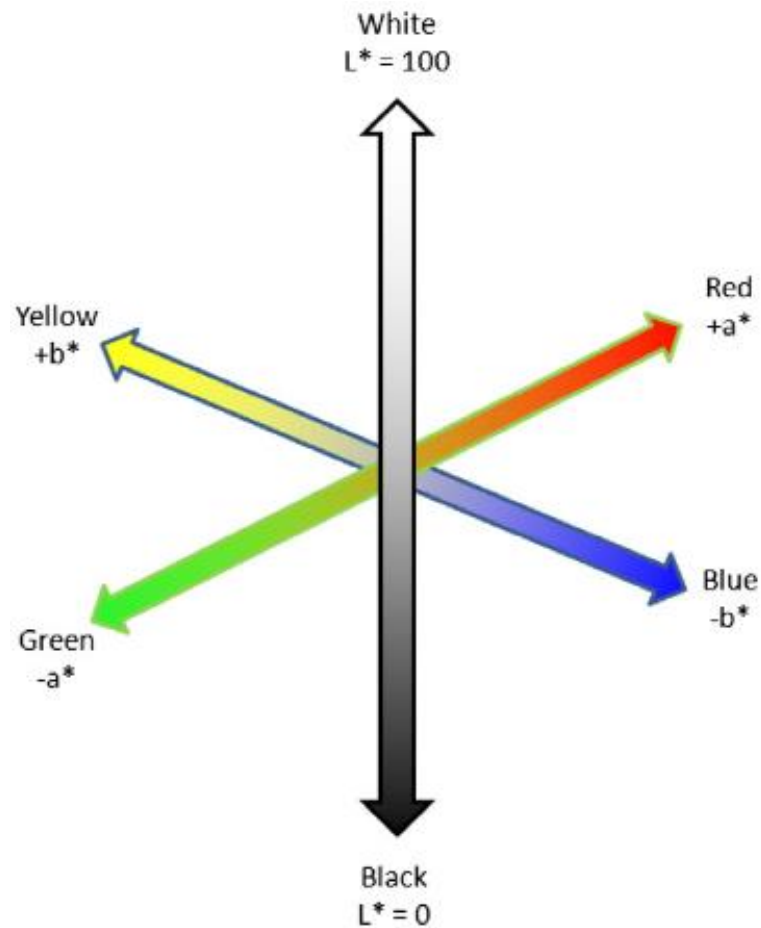


Figure 15 Coordonnées du système CIELAB

Source : Adapté de (Azwa et al., 2013)

Les composites à base de PEHD renforcés par des fibres lignocellulosiques telles que la cellulose microcristalline (MCC) (Dönmez Çavdar et al., 2021), lignine (Peng et al., 2015), farine de bois (Nguyen et al., 2020b) et bois de pin (Fabiyyi et al., 2008) ont présenté plus de changement de couleur et d'éclaircissement par rapport au PEHD pur. Cela a été expliqué par le blanchissement des fibres celluloses. Ces changements sont dus aux changements chimiques (teneur en lignine et concentrations de carbonyl). Des corrélations fortes entre la composition chimique et la luminosité couleur (L) ont été établies par Fabiyyi et al. (2008). Toutefois, les études de Stark & Matuana (2006) ont observé une augmentation de la coordonnée

L* dans le cas où les échantillons sont exposés aux rayons ultraviolets avec de l'eau pulvérisée par rapport à une exposition aux rayons ultraviolets seuls. Cette observation indique que l'absorption d'eau provoque un gonflement et la formation de microfissures, facilitant ainsi une pénétration accrue des rayons UV nocifs (Mohammed et al., 2023). Le rythme de ces variations de couleur dépend de l'espèce. Les travaux antérieurs de Nguyen et al. (2020b) ont comparé l'évolution de la couleur des trois composites à base de PEHD renforcés par les fibres de bois *A. mangium*, *P. caribaea* et *E. urophylla*, et ont établi un classement selon l'intensité du changement de couleur (ΔE^*). Ce classement a montré que la stabilité chromatique dépendait du taux de lignine, cette dernière jouant un rôle antioxydant lors de l'exposition aux rayons UV., comme le montre la Figure 16.

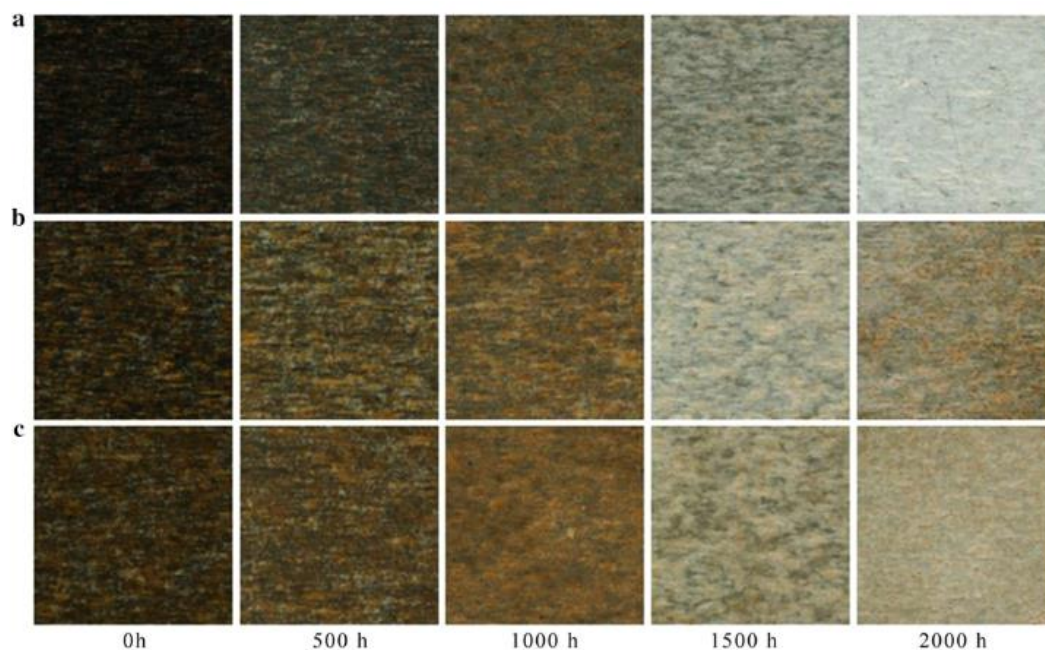


Figure 16 Décoloration des composites à base de PEHD renforcée par trois espèces différentes de bois avec la durée d'exposition

Source : (Nguyen et al., 2020b)

L'oxydation est plus prononcée pour les composites remplis par des fibres de cellulose comparé à la lignine. Ceci a été validée par l'analyse spectroscopique XPS des

changements du rapport atomique oxygène-carbone (Peng et al., 2015). Les changements dans la chimie de surface peuvent être étudiés soit par spectroscopie XPS par la variation de rapport O/C ou par FTIR. Afin d'explorer plus en profondeur la dégradation de la surface du matériau, les valeurs de l'indice carbonyle et de l'indice lignine ont été exploitées dans certains travaux (Qi et al., 2021). Lorsque les composites vieillissent, les coordonnées Δa^* et Δb^* peuvent prendre des valeurs négatives, ce qui signifie que le produit devient bleu et vert (Qi et al., 2021). La transition graduelle vers le bleu avec le temps pourrait être attribuable à la transformation de la lignine en un nouveau type de composé carbonyle.

2.9 Conclusion

Le premier chapitre de cette étude a permis de présenter un large éventail de connaissances sur les biocomposites renforcés par des fibres naturelles. De plus, cette partie a permis d'examiner les différentes méthodes de fabrication, leurs conditions, les matières premières biosourcées, ainsi que la notion de la durabilité. Cette revue a souligné les effets nocifs de l'irradiation UV sur les propriétés mécaniques et esthétiques des composites. Ces informations fournissent une base théorique solide pour aborder les recherches expérimentales qui seront développées dans les chapitres suivants.

3. APPROCHE MÉTHODOLOGIQUE

3.1 Introduction

Ce chapitre présente la méthodologie expérimentale, les matières premières utilisées, ainsi que les techniques de caractérisation utilisées. Les fibres (TMP et kraft) ont d'abord été préparées par broyage et tamisage, puis caractérisées d'un point de vue anatomique afin de déterminer leur rapport d'aspect. Des analyses thermiques ont ensuite permis d'identifier leur température de dégradation. La fabrication des composites CBP s'est déroulée en deux étapes : extrusion bi-vis suivie d'un moulage par injection, avec des essais rhéologiques intermédiaires visant à optimiser les conditions de fabrication. Les échantillons produits ont été soumis à des caractérisations thermiques, chimiques et mécaniques. Enfin, des éprouvettes de flexion normalisées selon la norme ASTM D790 ont été exposées à un vieillissement UV (de 0 à 1200 heures), permettant un suivi de l'évolution de leurs propriétés mécaniques, esthétiques et morphologiques. La démarche expérimentale adoptée est illustrée dans la figure suivante.

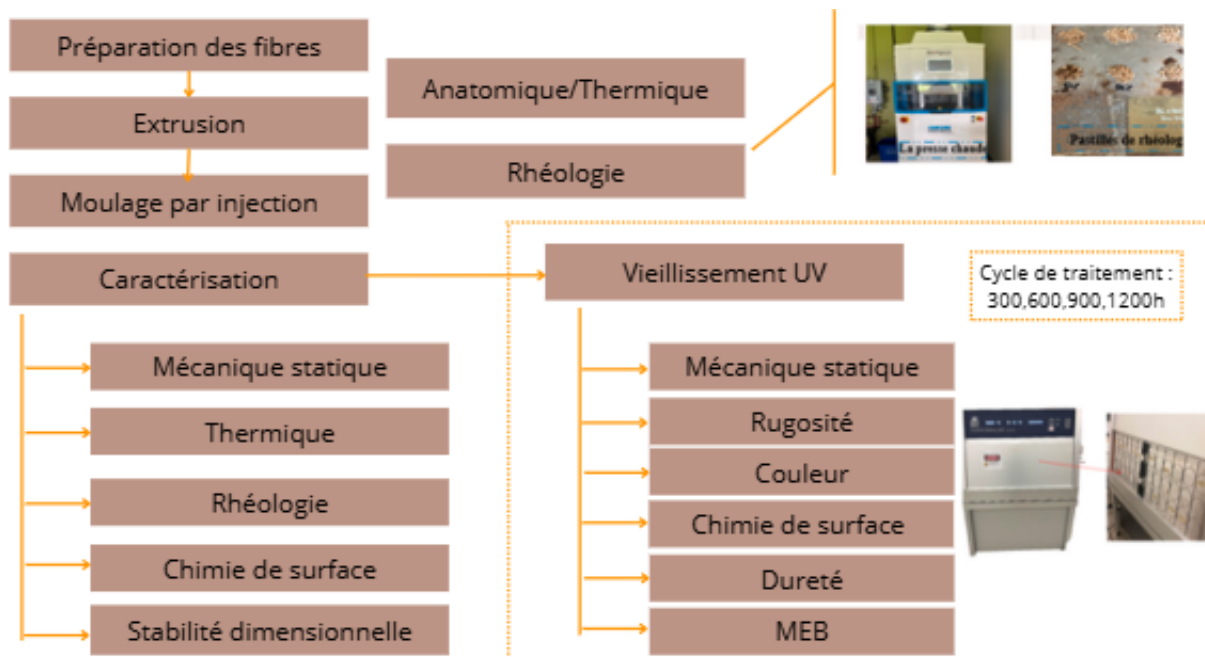


Figure 17 Méthodologie expérimentale

3.2 Plan d'expérimentation

Des composites à base d'acétate de cellulose plastifié renforcés par des fibres papetières ont été élaborés. Pour améliorer la fluidité du composite AC, 3 % de glycérine liquide ont été ajoutés. Un composite à base de polyéthylène haute densité (PEHD) a été utilisé comme référence. Afin d'assurer une bonne dispersion des fibres dans cette matrice, 3 % d'agent de couplage MAPE ont été incorporés, comme indiqué dans le tableau:

Tableau 3 Codes d'échantillons et compositions des biocomposites : les pourcentages correspondent à la proportion en poids

Composites	Matrices		Charges		Additifs	
	AC	PEHD	TMP	Kraft	MAPE	Glycérine
PEHD	-	100%	-	-	-	-
PEHD-K40	-	57%	-	40%	3%	-
PEHD-K50	-	47%	-	50%	3%	-
PEHD-K60	-	37%	-	60%	3%	-
AC	100%	-	-	-	-	-
AC-K40	57%	-	-	40%	-	3%
AC-K50	47%	-	-	50%	-	3%
AC-K60	37%	-	-	60%	-	3%
AC-T40	57%	-	40%	-	-	3%
AC-T50	47%	-	50%	-	-	3%
AC-T60	37%	-	60%	-	-	3%

3.3 Matériel et Méthodes

3.3.1 Préparation des fibres

Dans une première étape, les fibres ont été broyées à l'aide d'un broyeur à couteaux rotatif de type RESTCH, fabriqué par la compagnie NEWTOWN, USA, comme illustré à la Figure 18(a). Grâce à l'emploi d'une grille de 1 mm, le broyage des fibres permet d'affiner la granulométrie des particules.



a) Broyeur à couteaux Retsch



b) Tamiseur RO-TAP

Figure 18 Processus de broyage et de tamisage de la poudre

Une opération de tamisage est réalisée par la suite pour séparer des fibres utilisant un tamiseur de type RO-TAP de la compagnie W.S. Tyler (Figure 18(b)). Une série de tamis de différentes tailles, allant de 76 μm à 106 μm jusqu'à 125 μm sont utilisés afin de récupérer des fibres de taille moyenne de 100 μm .

3.3.2 Polymères et additifs

Dans cette étude, l'acétate de cellulose (AC) et le polyéthylène haute densité (PEHD) sont utilisés comme matrices de base. Le PEHD a été fourni sous forme de granulés blanchis par la compagnie (NexeoSolutions, The Woodlands, TX, USA) avec une densité de 0,96 g /cm³ et un indice de fluidité MFI de 4,9 g/10 min. L'acétate de cellulose a été fourni par la société française Nature Plast avec un taux de plastifiant

de 29%, une densité de $1,27 \text{ g/cm}^3$ et un indice de fluidité MFI de 15 g/10 min . Afin d'assurer la cohérence entre le PEHD hydrophobe et les fibres hydrophiles, 3 % de polyéthylène greffé avec de l'anhydride maléique (MAPE) a été ajouté. Cet additif, fourni par Mitsui Chemicals America, Inc. (San Jose, Canada) a une densité de $0,91 \text{ g/cm}^3$ et une température de fusion avoisinant 158°C .

3.3.3 Renforts

Deux fibres papetières provenant de deux procédés de fabrication de papiers distincts ont été sélectionnées: la fibre kraft fournie par Domtar Inc., Windsor, QC, Canada) et la fibre thermomécaniques (TMP) fournie par Resolu Amos (Amos, QC, Canada) (Figure 19). Elles ont été ajoutées à trois proportions différentes (40, 50 et 60 %) en poids pour la fabrication des CBP.

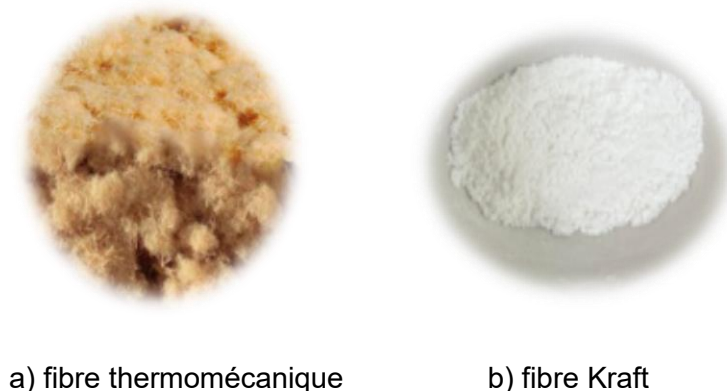


Figure 19 Fibres papetières sélectionnées

3.4 Caractérisation anatomique des fibres

Pour déterminer le rapport longueur sur largeur (L/D) des fibres cellulósiques, une analyse optique qualitative a été réalisée conformément à la norme TAPPI271. Cette analyse a été effectuée à l'aide de l'instrument Kajaani FS300, fabriqué par le constructeur MESTO (Figure 20).



Figure 20 Analyseur de fibres METSO FS300 (QFA)

Conformément à la norme TAPPI 271, les fibres ont été diluées dans de l'eau pour garantir une dispersion homogène. Les dimensions des particules ont été déterminées à l'aide d'images des fibres capturées à l'aide d'un système d'imagerie intégré. Ces images permettent d'observer la longueur moyenne, la largeur des fibres et la distribution des longueurs. Une fois cette étape achevée, la longueur moyenne arithmétique (L_n) est calculée en utilisant l'expression suivante :

$$L_n = \frac{\sum_{K=1}^N n_K \times L_K}{\sum_{K=1}^N n_K} \quad (2)$$

Avec :

L_n : longueur moyenne en nombre (en mm)

n_k : nombre de fibres dans la classe k

L_k : longueur moyenne de la classe k (en mm)

Tableau 4 Les propriétés géométriques des fibres

Fibres	Propriétés géométriques		
	L(mm)	D(μ m)	L/D
TMP	0,18	31,83	5,65
Kraft	0,1	19,8	5,05

Le Tableau 4 récapitule les propriétés anatomiques des fibres utilisées. Les fibres TMP possèdent un rapport d'aspect moyen d'environ 5,65, contre 5,05 pour les fibres Kraft. Cette différence de rapport d'aspect est susceptible d'influencer les propriétés mécaniques des composites, notamment la dispersion des fibres au sein de la matrice (Migneault et al., 2008).

3.5 Caractérisation de la chimie de la surface par spectroscopie infrarouge

La spectroscopie infrarouge consiste à identifier et quantifier les groupements fonctionnels présents sur la surface en utilisant l'absorption des infrarouges par les liaisons chimiques. Un faisceau dirigé vers l'échantillon testé réagit avec les liaisons de la surface. Lorsque l'énergie du faisceau infrarouge se superpose à l'énergie de vibration des molécules, le rayonnement est absorbé, entraînant une diminution de l'intensité. En utilisant une transformée de Fourier, le spectre infrarouge de la matière testée peut être reconstruit. Ensuite, une analyse comparative des pics d'absorption obtenus en utilisant les bibliothèques spectrales dans le but d'identifier les liaisons à la surface peut être effectué. À cet effet, une caractérisation a été réalisée en utilisant la spectroscopie infrarouge IR Tracer-100 de marque SHIMADZU (Figure 21).



Figure 21 Appareil de spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier IR Tracer-100

3.6 Préparation des mélanges

3.6.1 Extrusion

Avant de commencer l'extrusion, les mélanges ont été séchés durant 48h par lots d'un kilogramme à une température ajustée à 60°C. Une extrudeuse conique à double vis de 35 mm avec vis contrarotatives (Thermo Scientific HAAKE PolyLab OS Rheodrive 7 avec le module Rheomex OS) a été utilisée pour mélanger (Figure 22).



a) Extrudeuse bi-vis



b) extrudât AC-60T

Figure 22 Extrusion des mélanges

Pour les formulations CBP, les paramètres d'extrusion ont été maintenus constants comme mentionné dans le Tableau 5 suivant :

Tableau 5 Condition d'extrusion utilisée dans ce projet

Paramètres	N _{vis}	Température(°C)
AC-K	120	160-180-185-185
AC-T	130	160-180-185-185
PEHD-K	50	150-160-170-180

Les paramètres et les conditions de traitement ont été optimisées à partir des tests préliminaires et de la littérature:

- La température a été ajustée pour qu'elle se situe entre la température de dégradation des fibres et la température de fusion du plastique. Pour les formulations à base d'acétate, le profil de température 160,180,185, et 185°C a été choisi. Parallèlement, le profil de la température a été ajusté entre 150 et 180°C pour les formulations PEHD-K en tenant compte du problème de fusion.

- Une vitesse de rotation de 120 et 130 tr/min, respectivement, pour les mélanges AC-K ; AC-T a été utilisée afin de réduire le temps de résidence de la matière.
- Une vitesse de vis de 50 tr/min a été utilisée pour les composites à base de PEHD afin d'assurer un temps de séjour approprié (Migneault et al., 2009). Cette vitesse a été ajustée après calibrage à une vitesse de 120 tr/min conformément à l'extrusion AC-K. À cette vitesse, la matière ne fondait pas correctement, ce qui causait une accumulation à l'intérieur du fourreau.
- Ensuite, le filament a été refroidi dans un banc d'eau pour le solidifier avant d'être broyé à l'aide d'un broyeur rotatif à disque. Finalement, les granulés fabriqués ont été séchés jusqu'à ce qu'ils atteignent une humidité inférieure à 2 % avant de passer à l'étape suivante du procédé, à savoir le moulage par injection des CBP (Stokke & Gardner, 2003).

3.6.2 Moulage par injection et formation des éprouvettes

Une machine de moulage par injection de type Arburg 370 A (600 KN) (voir Figure 23) a été utilisée pour la fabrication des échantillons.



Figure 23 Machine de moulage par injection

La machine d'injection est équipée d'un moule multi-empreintes permettant de fabriquer des éprouvettes de traction, de flexion, d'impact et d'immersion dans l'eau, conformément aux normes ASTM. Les paramètres de moulage par injection ont été les suivants :

- Une température de 185 °C,
- Une pression d'injection de 160 MPa,
- Un temps d'injection de 45 s
- Une pression de maintien de 70 MPa,
- Un temps de maintien de 9s
- Une température du canon et de la buse de 185 °C
- Un temps de refroidissement de 35 s.

Tous les spécimens ont été fabriqués selon la norme ASTM D590 (Figure 24).



Figure 24 Éprouvettes de traction et flexion pour les mélanges avec 60% de fibres

3.6.3 Préparation des pastilles pour test rhéologiques

Pour les tests rhéologiques, des pastilles de 25 mm de diamètres et d'environ 2 mm d'épaisseur ont été préparées. Ces échantillons ont été fabriqués à l'aide d'une presse LabEcon 300 comme présenté dans la Figure 25 :

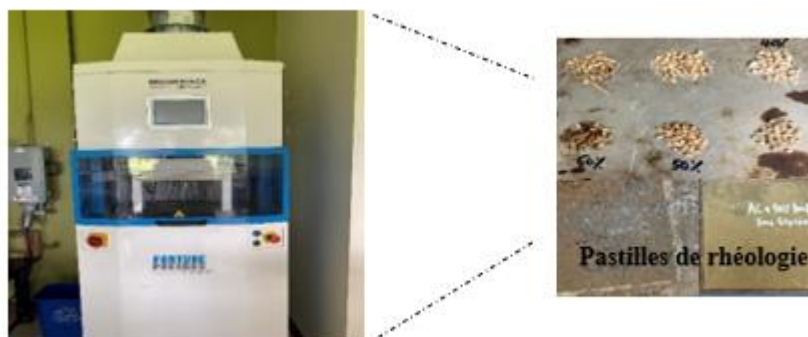


Figure 25 Presse à compression LabEcon 300

Les différents granules étudiés (AC-K, AC-T, PEHD-K) ont été placés dans un moule multi-empreintes, protégés par du papier téflon. Par la suite, le dispositif a été placé entre deux plaques chauffantes. Le tableau 6 ci-dessous illustre le programme pour la thermocompression :

Tableau 6 Paramètres du programme utilisé pour préparer les pastilles

Paramètres	Étape 1	Étape 2	Étape 3
Force (KN)	50	300	100
T _{plaque supérieure} (°C)	210	210	60
T _{plaque inférieure} (°C)	210	210	60
t (min)	10	7	5

3.7 Caractérisation thermique

3.7.1 Analyse thermogravimétrique (TGA)

La production de composites à base de bois dépend du contrôle de la dégradation de deux éléments, à savoir les fibres et la matrice. Cela nécessite une caractérisation thermique afin de trouver l'équilibre entre la température de fusion de la matrice et la température de dégradation des fibres. Pour cela une analyse thermogravimétrique a été effectuée avec l'appareil de type TA Q50 (NewCastle, USA) (Figure 26).



Figure 26 Appareil d'analyse thermogravimétrique TA Q50

Cet essai vise à mesurer la variation de masse de l'échantillon en fonction d'une variation de la température. L'objectif de cet essai est de déterminer la température de dégradation, la température de décomposition et le taux de résidus à partir de la courbe dérivée ATG. Pour éviter toute réaction avec l'atmosphère, le test doit être réalisé sous gaz inerte. Environ 8 à 15 mg de matière est chauffée à une température allant de 30°C à 600°C à une vitesse réglée à 10 °C/min. Le test a été réalisé sur les fibres ainsi que sur les granules des composites AC-K, PEHD-K, AC-T.

3.7.2 Analyse par calorimétrie différentielle à balayage DSC

L'utilisation de la calorimétrie différentielle à balayage de marque TA instrument Q20 (NewCastle, USA) (Figure 27) permet d'évaluer les propriétés thermiques, notamment la température de transition vitreuse (T_g), la température de fusion (T_m) et l'enthalpie de fusion (ΔH_m).



Figure 27 Calorimètre différentielle à balayage DSC

Pendant cette étape, les échantillons ont été maintenus à une température comprise entre $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $210\text{ }^{\circ}\text{C}$, avec une vitesse réglée à $10\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$, dans un environnement contrôlé par gaz inerte. Pour ce faire, deux cycles de chauffage et de refroidissement ont été appliqués : le premier cycle de chauffage a été appliqué dans le but de supprimer l'historique thermique causée par la fabrication. Le second cycle a été appliqué pour évaluer les caractéristiques thermiques des matières. Les cycles de chauffage et refroidissement pour les formulations à base de PEHD a été inspirés du protocole expérimental proposé par Bouafif, Koubaa, Perré, & Cloutier (2009). Tandis que le protocole expérimental pour l'acétate de cellulose a été inspiré par les travaux de Khouaja et al. (2021) et Lecoublet et al. (2023). Les thermogrammes obtenus ont été utilisés pour déterminer l'enthalpie de fusion. L'indice de cristallinité a été déterminé à partir de la formule suivante (Bouafif et al., 2009) :

$$X_c = \frac{\Delta H_f}{\Delta H_f^0} \times \frac{1}{1 - W} \times 100 \quad (3)$$

Où : - ΔH_f : enthalpie de fusion spécifique du polymère utilisé.

ΔH_f^0 : enthalpie de fusion du polymère 100% cristallin à la température d'équilibre thermodynamique : $\Delta H_f^0(PEHD) = 293 \text{ J/g}$ $\Delta H_f^0(AC)=58,8 \text{ J/g}$ (Nabili et al., 2017)

W : Fraction massique de la fibre dans le composite.

Les charges jouent normalement un rôle de nucléation. Ce test a été effectué sur les échantillons de matrices pures et leurs composites.

3.8 Caractérisation rhéologique

La mise en forme des composites CBP hautement renforcés nécessite une compréhension approfondie de leurs propriétés rhéologiques à l'état fondu. Le présent test vise à évaluer la fluidité du matériau et à analyser l'effet de l'ajout de glycérine. À cette fin, un essai de cisaillement oscillatoire en régime dynamique et à faible amplitude a été réalisé à l'aide d'un rhéomètre rotatif (MCR302, Anton Paar, Autriche). Les échantillons ont été positionnés entre deux plateaux : l'un fixe et l'autre rotatif, comme illustré dans la Figure 28.



Figure 28 Rhéomètre rotatif (MCR302, ANTON PARR, Autriche)

Le protocole expérimental en mode oscillatoire a été adapté avec une contrainte constante sous forme de couple appliqué aux échantillons. Le domaine de viscoélasticité linéaire du matériau (LVE) a été choisi sur la base de tests préliminaires d'amplitude. Un balayage de fréquence (0,1 - 631 Hz) a été réalisé en mode oscillatoire avec une faible déformation de l'ordre de 0,1 % pour rester dans la zone élastique. Dans cette configuration, une température de 210 °C a été maintenue sous atmosphère d'azote tout le long de l'expérience. Le test a été effectué sur les 13 spécimens des composites AC-K, AC-T, PEHD-K, ainsi que sur les formulations AC-K50 sans glycérine.

3.9 Caractérisation de la stabilité dimensionnelle

L'absorption d'eau a été évaluée en mesurant le gonflement volumique et le gain de masse des échantillons (AC-K, AC-T, PEHD-K) immergés dans l'eau à différents intervalles de temps, conformément à la norme ASTM D1037-99. Par ailleurs, des essais complémentaires ont été réalisés selon la norme ASTM D570 à l'aide de spécimens circulaires de 50 mm de diamètre, tel que présenté dans la Figure 29.

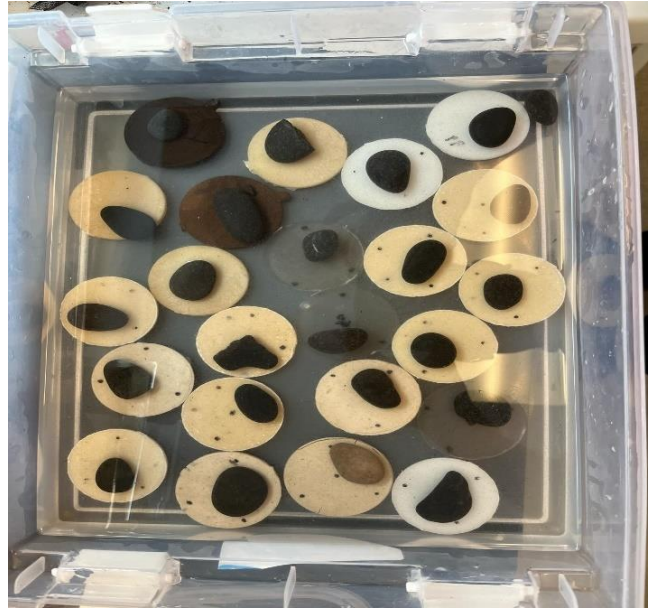


Figure 29 Test de stabilité dimensionnelle des échantillons

Pour chaque formulation, trois échantillons ont été produits pour chaque mélange (soit 33 échantillons au total). À chaque semaine, les dimensions de l'échantillon ont été mesurées à l'aide d'un micromètre possédant une précision de 0,001 mm durant 10 semaines. Ensuite, les échantillons ont été pesés à l'aide d'une balance de laboratoire possédant une précision de 0,001 g. Le gain massique et le gonflement de l'épaisseur ont été déterminés par les équations (4,5) :

$$G_m(\%) = \frac{m_f - m_i}{m_i} \times 100 \quad (4)$$

$$G_e(\%) = \frac{e_f - e_i}{e_i} \times 100 \quad (5)$$

Avec :

- $G_m(\%)$: gain massique
- m_f (g): masse finale après immersion dans l'eau
- m_i (g) : masse initiale avant immersion dans l'eau
- $G_e(\%)$: gonflement de l'épaisseur

- $e_f(\text{mm})$: épaisseur finale après immersion dans l'eau
- $e_i(\text{mm})$: épaisseur initiale avant immersion dans l'eau

3.10 Caractérisation mécanique

Afin d'évaluer l'effet de la proportion et du type de fibres sur les matrices AC et PEHD, divers essais de flexion, traction et impact ont été effectués avant vieillissement au sein du laboratoire de biomatériaux UQAT. Le suivi des propriétés mécaniques après vieillissement a été effectué au sein du laboratoire de génie mécanique UQTR.

- **Essais de flexion** : Une force a été appliquée au milieu de l'éprouvette entre deux appuis. Une machine Zwick/Rowell Z020 présente au laboratoire biomatériaux équipée d'une cellule de charge de 15 kN (Figure 30) a été utilisée. Les propriétés ont été mesurées conformément aux normes ASTM D 790. La taille de l'échantillon était 127 x 12,7 x 3,2 mm. Pour assurer la répétabilité des résultats, trois éprouvettes ont été testées conformément à la norme ASTM D790, soit 60 éprouvettes au total.

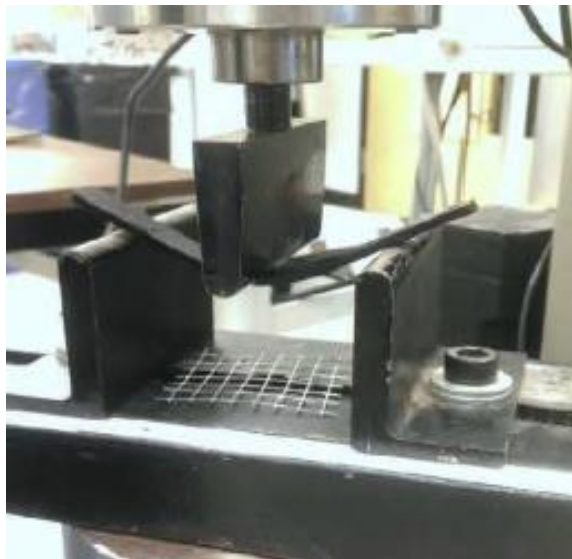


Figure 30 Essai de flexion (Machine Zwick)

Le module de Young E_f et la résistance à la flexion MOR_f ont été quantifiés à partir des équations suivantes (Baïlon & Dorlot, 2000) :

$$E_f = \frac{F \times L_f^3}{4 \times \delta_f \times b \times h^3} \quad (6)$$

$$\sigma_f = \frac{3 \times F \times L_f}{2 \times b \times h^2} \quad (7)$$

Avec :

- L_f : distance entre deux appuis (mm)
- F : force appliquée(N)
- B : largeur (mm)
- h : épaisseur (mm)
- δ_f : Déflexion (mm)

En parallèle, les échantillons vieillis ont été testés à chaque prélèvement. Un suivi des propriétés mécaniques de flexion a été effectué à l'aide d'une machine implantée au laboratoire de génie mécanique de I2E3. Une machine Instron (modèle LM-UI50) équipée d'une cellule de 10 kN (Figure 31)) a été utilisée dans cette configuration. Le régime d'essai adapté avec les deux machines utilisées était de 1,6 mm/min et toutes les mesures ont été effectuées à température ambiante. Chaque groupe de tests a été effectué trois fois et la valeur moyenne a été prise pour le calcul. Pour chaque formulation, trois échantillons ont été évalués répartis sur cinq prélèvements, soit un total de 165 éprouvettes.



Figure 31 Essai de flexion (Machine Instron (modèle LM-UI50))

- **Essai de traction** : Des tests de traction ont été effectués avant vieillissement selon la norme ASTM D638 pour tous les échantillons. La dimension de l'échantillon était de 200 mm de longueur, 32 mm de largeur et 149 mm d'épaisseur. Le test a été effectué sur une machine à essais Zwick Rowell RN20 présente au laboratoire biomatériaux (Figure 32) .



Figure 32 Essai de traction (Machine Zwick)

Le régime de vitesse d'essai a été réglé à 1,6 mm/min⁻¹. Cinq échantillons ont été testés avant vieillissement pour chaque type de composite (AC-K, AC-T, PEHD-K) seulement avant vieillissement, soit un total de 55 échantillons. Tous les essais mécaniques ont été effectués à température ambiante. À partir de la courbe de déformation / contrainte enregistrée, nous pouvons déterminer le module d'élasticité MOE, la résistance à la traction ainsi que l'allongement à la rupture comme décrits par les équations suivantes

$$E_t = \frac{F_e \times L_0}{b \times h \times \Delta L} \quad (8)$$

$$\sigma_e = \frac{F_m}{b \times h} \quad (9)$$

$$\epsilon = \frac{\Delta L}{L_0} \quad (10)$$

Avec

- F_m : force maximale (N)
- F_e : force mesurée à la limite de la zone élastique (N)
- h : épaisseur de l'échantillon (mm)
- L_0 : longueur initiale (mm)
- b : largeur de l'échantillon (mm)
- ΔL : allongement (mm)

- **Essai d'impact** : Afin de déterminer la résilience du matériau, un testeur de choc pendulaire Zwick/Roel de marque HIT (Allemagne) a été utilisée (Figure 33). Le pendule utilisé possédait une capacité d'énergie de choc maximale de 2,75 J. Le protocole expérimental était conforme à la norme ASTM D256. Afin d'assurer la reproductibilité des essais, dix échantillons par formulation (AC-K, PEHD-K) ont été testés, soit 110 échantillons au total. À chaque essai, l'énergie absorbée a été enregistrée. À l'aide de cette valeur, la résistance au choc a été calculée grâce à l'équation suivante :

$$a_c = \frac{E_c}{b \times h} \times 1000 \quad (11)$$

Avec

- A_c : énergie absorbée par unité de surface (KJ/mm²)
- E_c : énergie absorbée par l'échantillon (J)
- b : largeur de l'échantillon (mm)
- h : épaisseur de l'échantillon (mm)



Figure 33 Mouton pendule résistance au choc

Dureté : Des essais de dureté ont été réalisés à l'aide d'un duromètre analogique Shore D (Figure 34) , conformément à la norme ASTM D2240-15 (Boughanmi et al., 2024; Koffi et al., 2021). Les mesures ont été effectuées sur cinq points distincts des surfaces vieilles et non vieilles pour l'ensemble des formulations. Ce test vise à évaluer la résistance à la pénétration et, plus particulièrement, à quantifier l'effet du vieillissement sur les propriétés de surface des matériaux.



Figure 34 Duromètre analogique Shore D

3.11 Vieillissement artificiel accéléré

Afin d'évaluer la durabilité des biocomposites étudiés, un essai de résistance aux intempéries a été réalisé conformément à la norme ASTM G154 à l'aide d'un appareil QUV/SE de Q-Lab Co. (USA), illustré dans la Figure 35.



Figure 35 Machine de vieillissement UV

Cette machine est équipée d'un support sur lequel les échantillons sont exposés à une irradiation UVA émise par des lampes ultraviolettes. Par ailleurs, une chaudière intégrée chauffe le bassin d'eau ; lorsque la température augmente, la vapeur générée se dirige vers le portique où les échantillons sont disposés. La condensation se produit toutes les huit heures, sous l'effet du rayonnement UV. Ce procédé vise à accélérer le vieillissement des matériaux et à simuler les conditions environnementales réelles. Pour ce faire, un cycle d'exposition alternée est appliqué : 8 heures d'irradiation UV à sec avec une intensité lumineuse de $0,89 \text{ W/mm}^2$ à 60°C , suivies de 4 heures de condensation à 50°C , conformément à la norme ASTM G154-12a. Quatre durées d'exposition ont été retenues (300, 600, 900 et 1200 heures) afin de suivre l'évolution des propriétés mécaniques, de la couleur, de la morphologie de surface et de la composition chimique en fonction du vieillissement accéléré. Ce protocole expérimental s'inspire des travaux de Hadj-Djilani et al. (2024). À chaque période de

prélèvement, trois échantillons de chaque formulation de composite étudiée (AC-K, AC-T et PEHD-K) ont été analysés dans le cadre des différents essais. Au total, 165 échantillons ($11 \times 3 \times 5$) ont été évalués lors des tests de vieillissement UV.

3.12 *Changement de couleur*

La couleur des échantillons a été caractérisée à l'aide d'un colorimètre CR-410 (Konica Minolta, Tokyo, Japon), fournissant les coordonnées de couleur dans l'espace colorimétrique *CIE Lab (1976)**, comme illustré à la Figure 36.



Figure 36 Colorimètre CR-410

Les coordonnées L^* varient entre 0 et 100, correspondant respectivement au noir et au blanc. Une augmentation de L^* indique donc un éclaircissement de l'échantillon. Les coordonnées de couleur a^* et b^* s'étendent de -150 à $+150$ et sont définies comme suit :

- a^* : une variation positive ($+\Delta a^*$) reflète une tendance vers le rouge, tandis qu'une variation négative ($-\Delta a^*$) indique un déplacement vers le vert ;
- b^* : une variation positive ($+\Delta b^*$) correspond à une teinte plus jaune, alors qu'une variation négative ($-\Delta b^*$) indique une tendance vers le bleu.

En considérant les échantillons avant vieillissement comme point de référence, la différence de couleur totale (ΔE^*) entre l'état initial et celui après 1200 heures

d'exposition UV a été calculée. Cette valeur permet de quantifier l'altération chromatique des échantillons par rapport à la couleur originale du composite bois-polymère (CBP). La différence de couleur ΔE^* a été déterminée selon l'équation définie par la norme ASTM D2244, exprimée comme suit :

$$\Delta E = \sqrt{(\Delta a^*)^2 + (\Delta b^*)^2 + (\Delta c^*)^2} \quad (12)$$

Où :

- E : la différence de couleur
- L* : la luminosité des couleurs
- a* : le rouge au vert
- b* : le jaune au bleu

La différence de couleur ΔE est utilisée pour valider la visibilité du changement de couleur à l'œil nu. Des pastilles de diamètre 50 mm ont été utilisées pour cet essai, conformément aux ASTM D 570. Seules les formulations AC-K50, AC-T50 et PEHD-K50, avec trois échantillons chacune, ont été testées.

3.13 Analyses microscopiques

Un microscope optique a été utilisé pour suivre l'évolution des dommages à la surface des échantillons vieillis. Ces tests ont été menés avant et après vieillissement sur les

échantillons à l'aide d'un microscope VK-X150 de Keyence, dont l'équipement est disponible au laboratoire de biomatériaux (Figure 37).



Figure 37 Microscope à LASER Keyence VK-X150

Un balayage de cinq points a été effectué pour chaque échantillon à un grossissement de $\times 100$. À chaque prélèvement, un suivi du profil de surface et linéaire a été réalisé pour l'ensemble des formulations afin d'évaluer l'évolution de la rugosité en fonction du vieillissement. Les paramètres pris en considération étaient la hauteur moyenne arithmétique pour un profil de rugosité (R_a) et la hauteur moyenne arithmétique (S_a).

3.14 Analyse micro structurale : Microscopie à balayage électronique MEB

Des micrographies ont été prises à l'aide d'un microscope à balayage (SEM) de la marque Hitachi SU1510 VP-SEM présent au labo I₂E₃ de Université du Québec à Trois-Rivières (Figure 38). Cette méthode permet de surveiller les dommages superficiels des composites exposés aux rayons UV à différents stades de vieillissement (0 heure, 600 heures, 1 200 heures). Les détails morphologiques des surfaces exposées ont été notés après avoir cassé les échantillons de flexion sous azote pour les composites renforcés à 50%. En tout, 9 échantillons ont été testés.

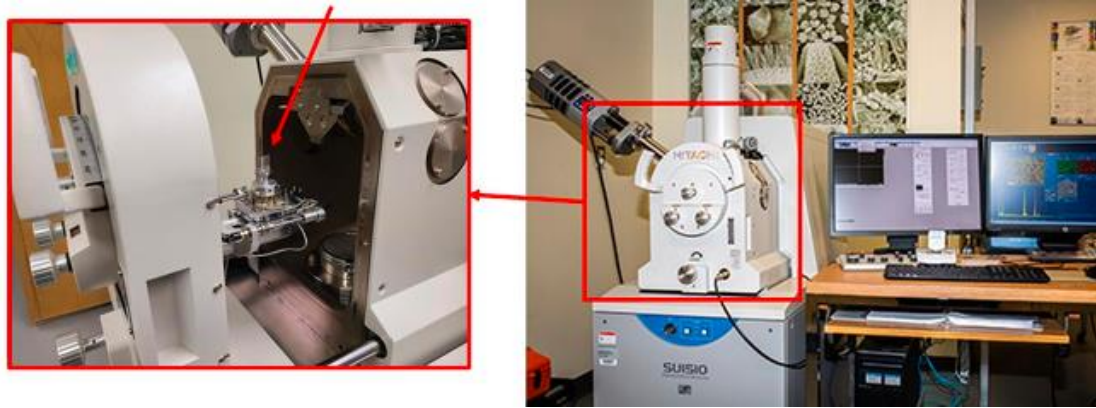


Figure 38 Microscope électronique à balayage

3.15 Analyses statistiques

L'analyse de la variance (ANOVA) est une méthode statistique utilisée pour évaluer l'effet des facteurs principaux ainsi que de leurs interactions sur une variable de réponse. Elle permet d'interpréter les résultats expérimentaux et de déterminer la significativité des influences observées. Dans cette étude, un plan factoriel incomplet a été adopté en se basant sur les variables indépendantes suivantes :

- La proportion de fibre en bois (A) : 0 , 40 , 50 , 60 %
- Le type de fibre (B) : fibre issue du procédé thermomécanique et Kraft (TMP, Kraft)
- Le type de matrice (C) : PEHD, AC
- Le temps d'exposition aux UV (D) : 0, 300, 600, 900, 1200 h

Comme réponse, le module les propriétés mécaniques de flexion (MOE, MOR et la dureté) ont été considérées comme des variables dépendantes. Les analyses ont été effectuées à l'aide du logiciel R dans le but de déterminer les effets des facteurs considérés et leurs interactions.

3.16 Conclusion

Ce chapitre présente la méthodologie expérimentale adaptée aux normes pour les matériaux utilisés dans cette recherche. Ainsi, il inclut toutes les formulations, les appareils utilisés et leur méthode d'utilisation, les paramètres ajustés et les équations pour calculer les différents paramètres qui caractérisent le mieux nos formulations. Les résultats de ces caractérisations, ainsi que leur analyse, seront présentés et discutés dans le chapitre 4.

4. RÉSULTATS ET DISCUSSION

4.1 Introduction

Dans ce chapitre, les résultats expérimentaux sont présentés et accompagnés par les discussions. Ces résultats portent principalement sur les essais mécaniques, thermiques et rhéologiques réalisés avant vieillissement, ainsi que sur le suivi, à chaque étape du vieillissement, de l'état de surface, de la couleur, des propriétés mécaniques, de la chimie de surface et des caractéristiques morphologiques.

4.2 Étude de la compatibilité fibres matrices par l'analyse de la chimie de surface

La mesure de l'absorbance des composites avant vieillissement est essentielle pour caractériser l'état de leur surface et l'adhésion entre les constituants principaux et les additifs.

4.2.1 Cas des composites à base polypropylène haute densité chargés par Kraft avant vieillissement

Un échantillon de kraft pur ainsi que des échantillons de PEHD chargés en kraft (de 40 % à 60 %) ont été analysés par spectroscopie infrarouge.

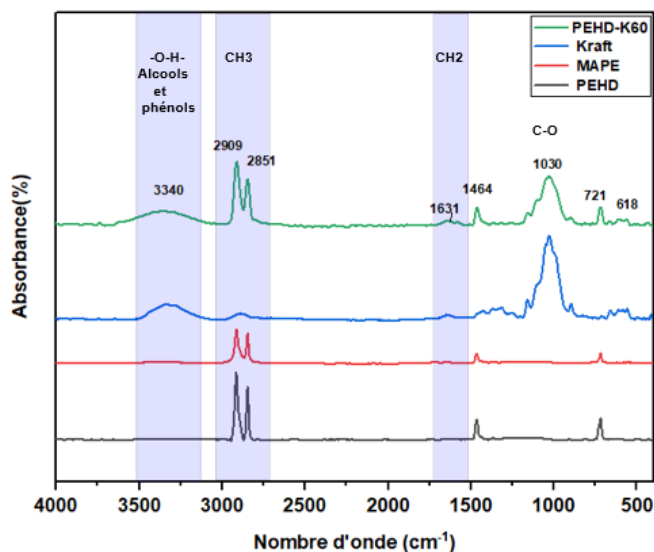


Figure 39 Spectre d'absorbance de Kraft, PEHD et des composites PEHD-K

La Figure 39 présente les spectres du PEHD et ses composites contenant 40 %, 50 % et 60 % de fibres sur une plage de longueurs d'onde allant de 4000 - 400 cm^{-1} . Aucune variation significative n'a été constatée entre les composites PEHD-K contenant 40 %, 50 % et 60 % de fibres. Les pics caractéristiques des fibres de kraft apparaissent aux alentours 3340, 2904, 1654, 1158, 1030, 898 et 618 cm^{-1} (Bouafif et al., 2008; Soucy et al., 2018). Tandis que ceux du PEHD se situent à 2851, 2909, 1464 et 721 cm^{-1} (Bouafif et al., 2008; Saddem et al., 2019; Soucy et al., 2016). Les pics déjà cités sont superposés dans le spectre du composite PEHD-K60 suggérant une bonne compatibilité fibres-matrice. Les pics de PEHD-K60 les plus distinctifs se forment à 2851 et 2909 cm^{-1} en raison de l'étirement symétrique et asymétrique du méthylène. De plus, le large pic vers 3440 cm^{-1} indique la présence d'un étirement de la liaison O-H. Cet élargissement prouve la réussite de l'ajout d'une haute teneur en fibre cellulosique riche en groupements hydroxyles (Khouaja et al., 2021). En outre, le pic 721 cm^{-1} est associé aux vibrations de balancement des atomes hydrogène dans les groupes méthyles $-\text{CH}_2$, et le pic 1464 cm^{-1} est attribué à la déformation de la liaison CH_2 . Cependant, les groupes du PEHD entraînent des interactions faibles et peu orientées, appelées forces de van der Waals, qui pourraient affecter les propriétés mécaniques (Hammad et al., 2015; Khouaja et al., 2021, 2024).

4.2.2 Cas des différentes biocomposites à base d'acétate de cellulose avant vieillissement

Un échantillon d'acétate de cellulose pur ainsi que des composites d'acétate de cellulose chargés en fibres (de 40 % à 60 %) ont été analysés.

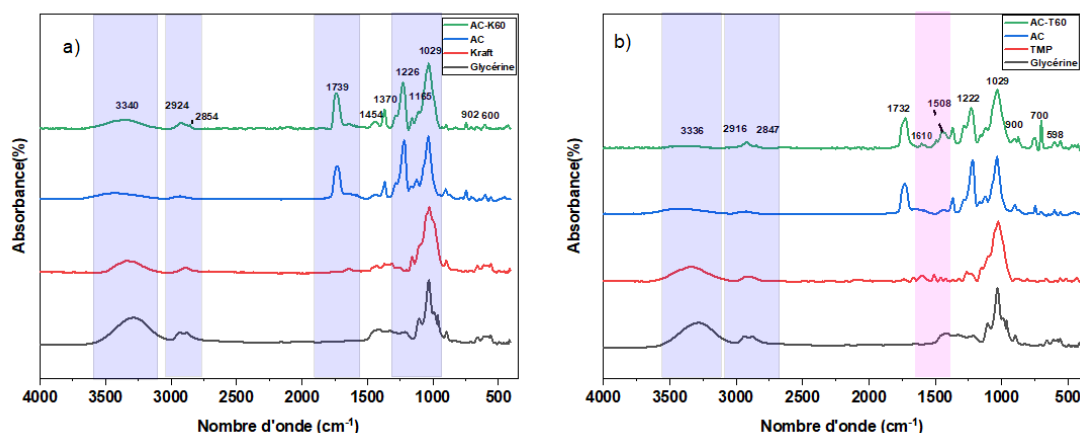


Figure 40 Spectre d'absorbance des composites : a) AC-K ; b) AC-T

La figure 40 présente les spectres d'absorbance de kraft, AC et AC-K60 en fonction de la longueur d'onde. Pour l'échantillon AC-K60, plusieurs pics apparaissent aux alentours de 3340, 2854, 2924, 1739, 1029, 902 et 600 cm^{-1} , attestant de la présence de la fibre cellulosique. Le premier pic caractéristique apparaît sous forme d'un élargissement autour de la longueur d'onde de 3340 cm^{-1} , attribué aux vibrations des groupements hydroxyles ($-\text{OH}$). Cette affirmation confirme aussi que le AC utilisé est un diacétate de cellulose (Wsoo et al., 2020). Le déplacement du pic de 3426 à 3340 cm^{-1} est expliqué par la bonne adhésion interfaciale entre fibre-matrice, en raison de leur similitude polaire (Khouaja et al., 2024). Deux autres pics caractéristiques ont été observés au niveau de 2924 et 2854 cm^{-1} , correspondant aux étirements asymétriques C–H dans les groupes méthyle et méthylène. De plus, le composite AC-K révèle deux intenses pics à 1739 et 1226 cm^{-1} associé au biopolymère. Ces pics sont causés par l'étirement symétrique du groupe carbonyle ($\text{C}=\text{O}$) et du groupe acétyle ($\text{CH}_3\text{C}(\text{O})\text{O}$) (Španić, 2015). Toutefois, la série de pics notés à 1165 et 1026 cm^{-1} est plus prononcées et montre la présence de cellulose dans les CBP. Ils sont attribuables aux liaisons C–O–C des groupes cellulose et acétyle (Nabili et al., 2017). Cependant, des pics ont été observés autour de 1454 et 1370 cm^{-1} , indiquant la déformation asymétrique des groupes méthyle ($-\text{CH}_3$). La bande observée autour de

902 cm^{-1} correspond aux étirements des groupements β -glycosidiques de la cellulose (Španić, 2015).

4.2.3. Modification de l'état de surface d'acétate de cellulose lors de vieillissement

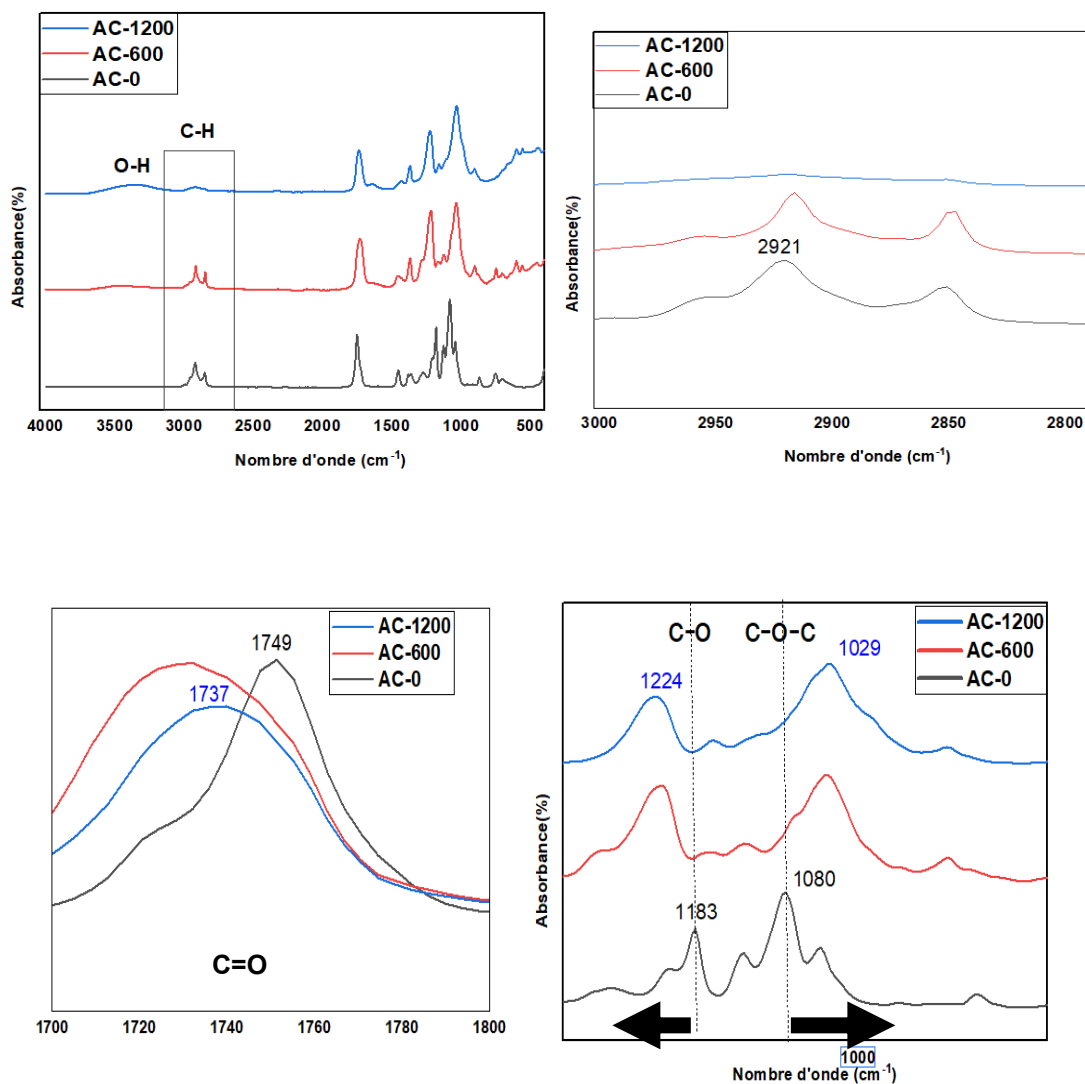


Figure 41 Modifications chimiques de l'acétate de cellulose lors du vieillissement

Les spectres FTIR des échantillons d'AC à différentes durées d'exposition aux UV sont présentés dans la figure 41. Le vieillissement UV de l'acétate de cellulose pur

entraîne une augmentation de la polarité due aux phénomènes de déacétylation et d'oxydation, favorisant ainsi l'absorption d'humidité. Cela se traduit par l'apparition d'une bande caractéristique du groupement (H–O–H) autour de 1646 cm^{-1} et par un élargissement accompagné d'une intensification de la bande $\nu(\text{OH})$ située entre 3400 et 3500 cm^{-1} . Ces évolutions ont été rapportées dans les travaux de Nunes et al. (2020) et Tan et al. (2023). D'une part, l'élargissement de la bande O–H indique la formation de groupes hydroxyles résultant de phénomènes d'oxydation et/ou de déacétylation. Cela entraîne une augmentation de l'hygroscopicité (absorption d'eau) et une polarisation accrue de la surface (Nunes et al., 2020; Tan et al., 2023). Par ailleurs, l'apparition d'un pic autour de 1646 cm^{-1} , attribuée à l'eau adsorbée, indique que la surface devient plus hydrophile après exposition aux UV (Cichosz & Masek, 2020).

Cependant, au cours du processus de dégradation de l'AC, une dégradation prononcée du groupement C–H, signe de la perte de la partie aliphatique du plastifiant ainsi que de la matrice par appauvrissement en segments aliphatiques et ruptures de chaînes sous UV, est observée (Mušič et al., 2023; Rambaldi et al., 2014).

Cette dégradation a été suivie par la diminution de la quantité de C=O pendant le processus. Il est important de noter un décalage de la liaison C–O avec la diminution du temps de dégradation, ce qui pourrait être dû à la suppression partielle des groupes acétyles du plastifiant et de l'AC. Ce changement est probablement dû aux liaisons esters et à l'affaiblissement de la matrice (Cichosz & Masek, 2020; Yadav et al., 2021). La Figure 41 révèle une diminution progressive de la bande carbonyle ($1735\text{--}1740\text{ cm}^{-1}$), signe de la dégradation des groupements acétyles caractéristiques de l'AC et du plastifiant, ce qui pourrait être dû à la suppression partielle des groupes acétyles du plastifiant et de l'AC (L. Liu et al., 2019). Cette constatation est confirmée par les

indices carbonyles après normalisation : $\frac{I_{1752}(0)}{I_{1076}(0)} > \frac{I_{1741}(1200)}{I_{1035}(1200)}$. On observe

également un léger décalage de la bande C–O–C ($\approx 1080\text{--}1030\text{ cm}^{-1}$) vers les basses fréquences, ce qui traduit un affaiblissement des liaisons glycosidiques au sein de la matrice (Tan et al., 2023). Ce phénomène est typique d'un début de rupture ou de la réorganisation structurale des chaînes polymériques, souvent induit par la photo-

oxydation (Rambaldi et al., 2014 ; Tan et al., 2023). En résumé, la photodégradation entraîne l'absorption et l'oxydation de la matrice.

4.2.4 Modification de l'état de surface des biocomposites lors du vieillissement

L'analyse spectrale présentée ci-dessous compare les échantillons vieillis et non vieillis afin d'évaluer les modifications de la chimie de surface induites par le vieillissement

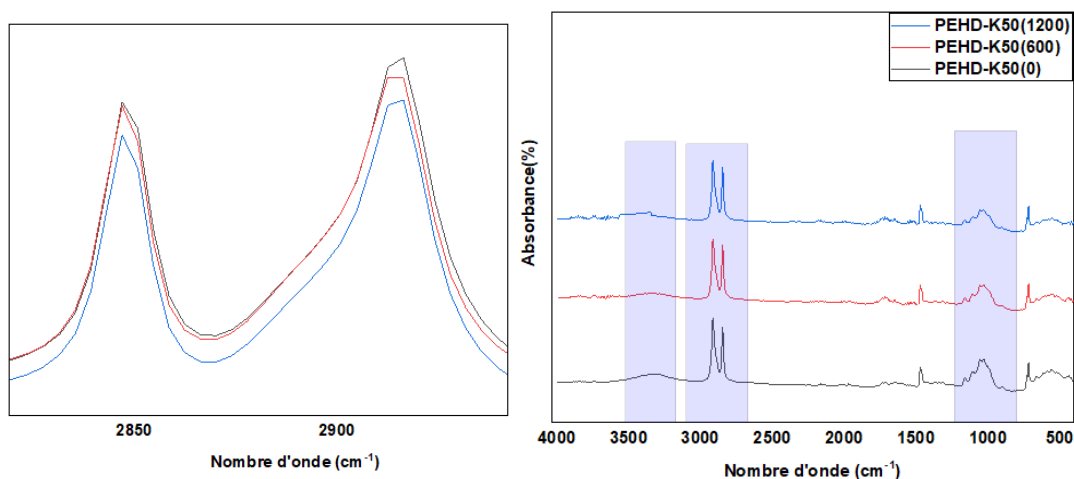


Figure 42 Évolution du spectre FTIR des composites PEHD-K en fonction du temps d'exposition UV

La figure 42 montre l'élargissement du spectre proche de 3334 cm^{-1} causée par l'étirement du groupe fonctionnel hydroxyle O-H. Ce résultat prouve l'absorption d'eau des CBP après le vieillissement (Qi et al., 2021). On observe une diminution progressive au cours du temps des pics caractéristiques du polymère, ce qui indique une oxydation croissante du matériau. En effet, la scission des chaînes polymères et la diminution de la densité des enchevêtrements favorisent leur migration vers la surface (Nguyen et al., 2020). Plus précisément, le pic situé autour de 1050 cm^{-1} , associé à la cellulose, diminue au fil de l'exposition aux UV, ce qui indique une décomposition progressive de la cellulose. Ces observations sont en accord avec les travaux de Dönmez Çavdar et al. (2021) qui ont rapporté une dégradation significative de la cellulose dans les composites à base de cellulose microcristalline (MCC). Par ailleurs, le vieillissement accéléré a entraîné une augmentation de l'intensité de la

bande carbonyle entre 1700 et 1750 cm^{-1} , correspondant aux liaisons C=O et C=C présentes naturellement dans la cellulose et les hémicelluloses (Badji et al., 2018). Des recherches antérieures (Stark et Matuana, 2004) ont également montré que le taux d'oxydation est proportionnel au nombre de scissions de chaînes dans le polyéthylène. De plus, les travaux de Fabiyi et al. (2008) ont rapporté que la dégradation du PEHD entraîne la formation de quatre types de groupe carbonyle: les cétones conjuguées (1700–1685 cm^{-1}), les acides carboxyliques (1715 cm^{-1}), les esters (1735 cm^{-1}) et les groupements vinyle (1635 cm^{-1}), caractéristiques des composites à base de PEHD.

Les biocomposites AC-K présentent une bande carbonyle (1700–1750 cm^{-1}) dont l'intensité augmente avec l'augmentation du temps d'exposition aux UV (Figure 43). Ce phénomène indique la formation de nouveaux groupements C=O issus de réactions d'oxydation du squelette cellulosique après scission des chaînes (Y. Liu et al., 2021). La tendance vers le haut des pics H-O-H indique l'absorption d'eau. Par ailleurs, on peut affirmer que l'ajout de fibre cellulosique joue un rôle protecteur en conservant le squelette de l'acétate de cellulose par rapport à l'acétate de cellulose vieillis.

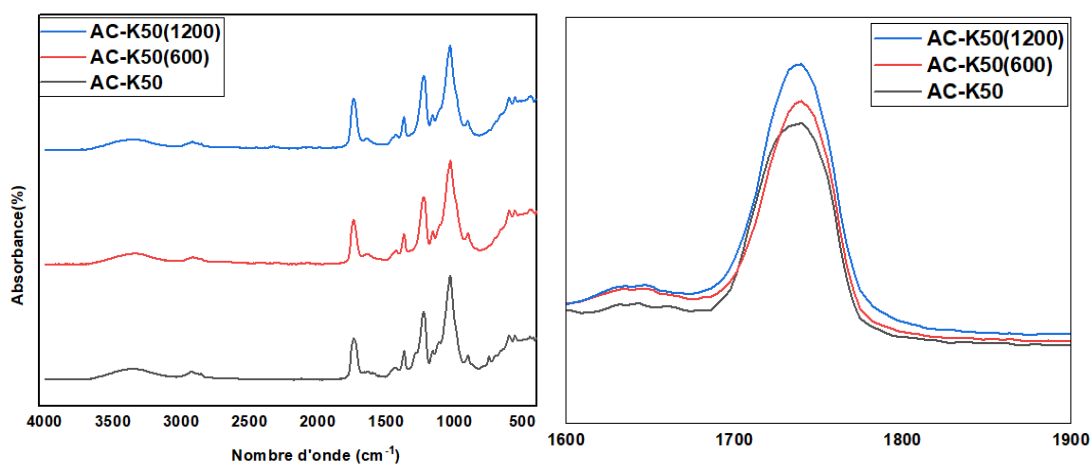


Figure 43 Modifications chimiques des biocomposites AC-K50 lors du vieillissement

4.3 Les propriétés rhéologiques des biocomposites

Les composites à base de polymères renforcés par des fibres posent souvent des défis techniques en raison de la viscosité élevée du mélange et de la sensibilité thermique des fibres qui sont susceptibles de se dégrader sous l'effet de températures trop élevées.

4.3.1 Influence de la concentration et de la nature de la fibre sur les paramètres de stockage et de perte

La compréhension du comportement rhéologique à l'état fondu joue un rôle essentiel pour optimiser la fluidité nécessaire au procédé d'injection des biocomposites. L'évaluation des paramètres rhéologiques de stockage, de la perte et de la viscosité repose sur les tests de balayage en fréquence. Le module de stockage, noté G' , reflète la composante élastique du comportement du matériau. Cela correspond à l'énergie stockée et récupérée lors d'une déformation cyclique. La capacité d'un matériau à stocker l'énergie élastique lors d'une déformation oscillatoire est indiqué par un

module de stockage G' élevé. Cependant, le facteur de perte G'' est l'élément visqueux ou liquide du matériau.

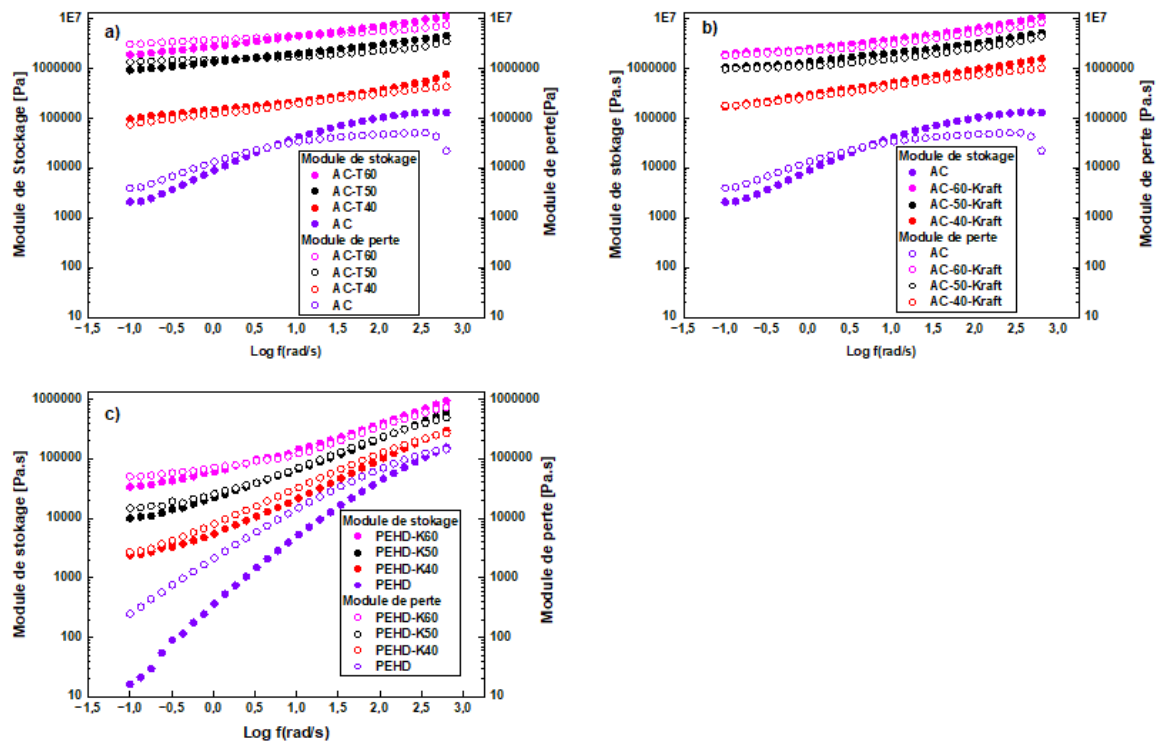


Figure 44 Évolution des modules de stockage complexes et de la perte des différents composites de l'étude : a) AC-T ; b) AC-K ; c) PEHD-K

La figure 44 présente l'évolution des modules de stockage et de perte en fonction de la fréquence. Elles indiquent que l'ajout de charges cellulosiques entraîne une augmentation considérable des modules dynamiques de stockage (G') et de perte (G''), avec une dépendance marquée à la fréquence pour les composites AC-T, AC-K et PEHD-K. À basse fréquence, le comportement des composites PEHD-K semble être typiquement newtonien, caractérisé par un module de perte G'' plus élevé que le module de stockage G' . Tandis qu'à haute fréquence, le module G' progresse plus rapidement que le module de perte G'' pour toutes les formulations (AC-K, AC-T, PEHD-K). Par conséquent, elles aboutissent à des « croisements » appelés points de transition. À partir de ce point, le matériau a un comportement plus visqueux qu'élastique (Ching et al., 2016). Comme prévu, au fur et à mesure de l'augmentation

du taux de charges, les fréquences des points de croisement diminuent de telle sorte que les propriétés élastiques prévalent sur celles visqueuses. Cela pourrait être expliqué par les chaînes polymériques, ne pouvant pas subir de déformation permanente en raison du manque de temps (Diouf et al., 2022) . Ce phénomène peut aussi être expliqué par l'interaction accrue entre les particules et la restriction du mouvement des chaînes polymériques (Lecoublet, Ragoubi, Kenfack, et al., 2023; Mazzanti & Mollica, 2020; Saddem et al., 2019). En plus, ce déplacement des points de croisement est d'autant plus marqué pour les formulations renforcées de 40 % à 60 % par rapport aux matrices pures, comme on l'a observé dans les composites à base de PEHD renforcée en sciure de bois (Godard et al., 2008 ; Soury et al., 2012). Des études antérieures (Diouf et al., 2022) sur les composites renforcés en fibre de palmier ont suggérés que ce point se produisait à faible fréquence. Cela indiquait une augmentation du temps de relaxation du polymère et que ce comportement était dû à la bonne interaction entre les particules de remplissage et la matrice PEHD recyclée (Diouf et al., 2022)

4.3.2 Influence de la concentration et de la nature de la fibre sur la viscosité complexe des bio composites

Pour analyser l'évolution de la viscosité complexe des différents composites étudiés, plusieurs échantillons ont été testés à l'aide d'un rhéomètre rotatif. Les résultats sont démontés dans la figure 45 . Elle montre la relation entre la viscosité complexe η^* , la fréquence angulaire, la composition de mélange et le taux en fibre pour toutes les configurations. La viscosité complexe est positivement corrélée avec la quantité de fibre cellulosique dans les composites AC-K, AC-T et PEHD-K. Cependant, elle est négativement corrélée avec la fréquence angulaire, ce qui valide le comportement de dilution en cisaillement du polymère fondu des biocomposites.

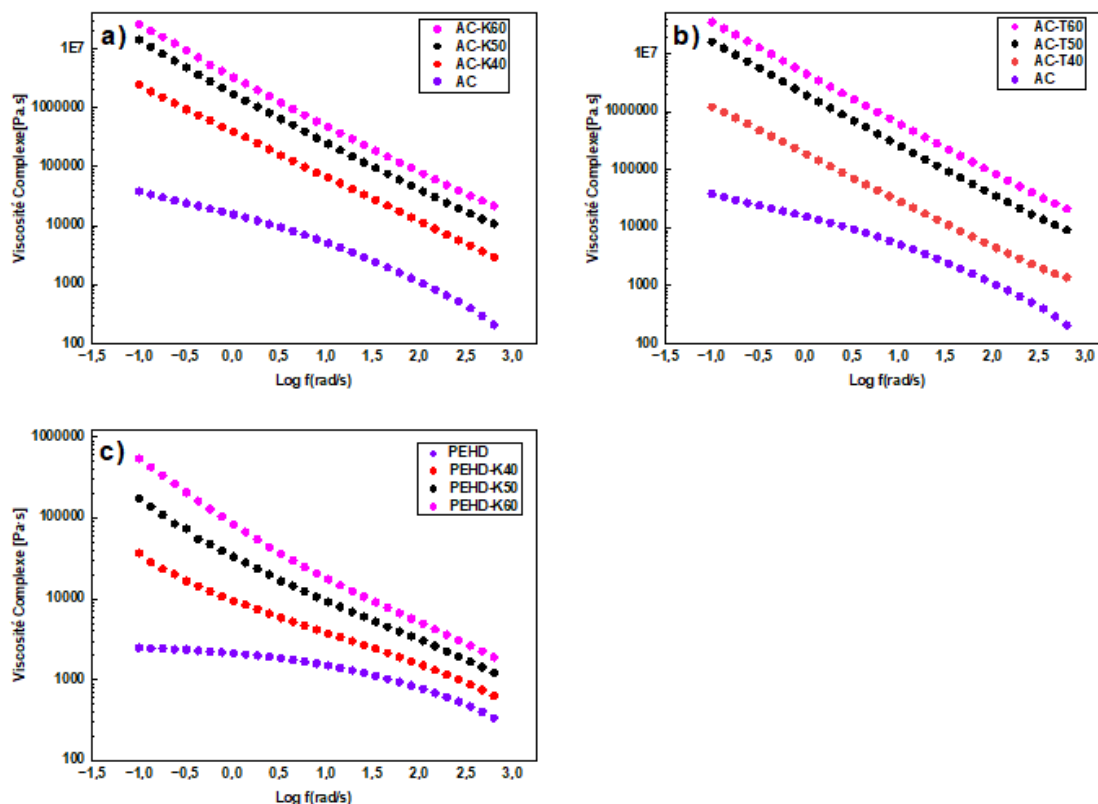


Figure 45 Évolution de la viscosité complexe des différents composites de l'étude : a) AC-K ; b) AC-T ; c) PEHD-K

À basses fréquences, le PEHD présente un plateau newtonien, où la viscosité est indépendante du taux de cisaillement. Quand le taux de fibre augmente, le plateau newtonien tend à disparaître (Figure 45). Selon les travaux (Mazzanti & Mollica, 2020), cette tendance devient encore plus marquée pour des teneurs en fibres supérieures à 30 %. Ce résultat est en accord aussi avec les travaux de Diouf et al. (2022), Huang & Zhang (2009), Khouaja et al. (2025b) et Soucy et al. (2018). Selon la Figure 45, l'augmentation du taux de charge en fibre papetière conduit à l'augmentation de la viscosité complexe, ce qui pourrait être expliqué par le fait que l'ajout de fibre cellulosique agit comme un corps rigide et entrave l'écoulement de la matrice. Ceci est en accord avec des travaux précédents intégrant des fibres dans des bioplastiques (Joseph et al., 2015). Cette tendance, déjà rapportée par Khouaja et al. (2025b), a été

confirmée dans la présente étude pour les composites AC et PEHD renforcés par MCC et Kraft (Khouaja et al., 2025b). La viscosité des composites renforcés avec 60 % de PEHD est six fois supérieure à celle du matériau pur, passant de 768,3 à 4906,7 à une fréquence de 628 rad. s⁻¹ comme indiqué dans la Figure 45. Par contre, les biocomposites AC-K60 présentaient une viscosité 4,4 fois supérieure comparée aux composites PEHD-K60. Ce comportement est principalement une conséquence des interactions charge-polymère qui sont dominantes. Ces résultats sont en accord avec les analyses de la chimie de surface confirmant la forte intensité des pics caractéristiques de la cellulose dans les composites AC. Ce résultat est également en accord avec des travaux de Cindradewi et al. (2021) et de Joseph et al. (2015). Cependant, Choi et al. (2004) ont observé qu'un ajout de 30 % de fibre de chanvre a triplé la viscosité des composites à base d'acétate de cellulose. Cela pourrait être expliqué par l'effet de l'alignement des fibres ajoutées dans le sens de l'écoulement de la matrice. Cet alignement réduit la résistance à l'écoulement, ce qui entraîne une augmentation progressive des viscosités. Il est clair que les composites à base d'AC sont plus visqueux que leur homologue à base de PEHD. L'augmentation de la viscosité complexe pourrait être causée par la rigidité de base de l'unité cellulosique de la matrice AC et l'encombrement stérique du groupement acétyl autour de la chaîne principale conduit à une densité d'enchevêtrement plus importante des chaînes (Lecoublet et al., 2023). Ce résultat concorde avec des travaux utilisant 60 % de charge où la viscosité dynamique du composite est plus de 100 fois supérieure à celle du polymère pur (Tazi et al., 2014). Cependant, les composites AC-T possèdent une viscosité plus élevée que celle des AC-K. Ceci est probablement expliqué par le rapport d'aspect élevé de fibres TMP utilisées comparées au fibre kraft. Les fibres ayant des rapports élevés sont plus susceptibles de s'enchevêtrer et d'accroître ainsi la surface spécifique. Cette tendance est d'autant plus importante que les fibres sont plus longues et alignées. Ce résultat est en accord avec les études antérieures de Godard et al. (2008), de Soucy et al. (2018) et de Soury et al. (2012), qui ont attribué ce phénomène à la surface spécifique plus élevée des fibres longues, laquelle augmente la probabilité de formation de liaisons interfaciales entre la matrice et les

fibres. C'est une preuve qui démontre la complexité rencontrée lors de l'élaboration, rendant le processus de transformation difficile.

4.3.3 Interaction entre les propriétés rhéologiques et la mise en œuvre

Afin de prédire la complexité de mise en œuvre des composites, la connaissance du comportement rhéologique d'un matériau sous un taux de cisaillement élevé est essentielle pour s'approcher de l'utilisation réelle des mélanges. C'est pourquoi, un zoom a été fait sur les viscosités complexes pour différents composites remplis à 60% à une fréquence $f = 628 \text{ rad.s}^{-1}$ (Figure 46).

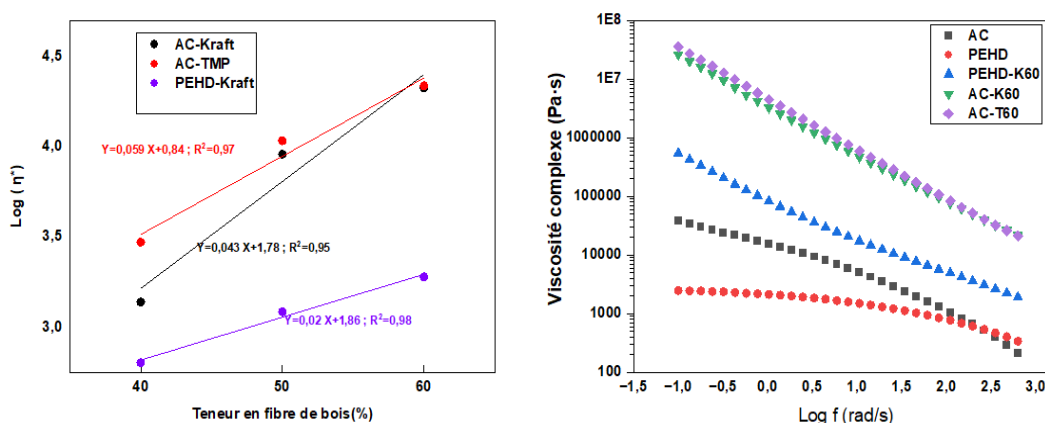


Figure 46 Log (η^*) en fonction de la teneur en fibre à une fréquence de 628 rad.s^{-1}

Le tracé Log η^* en fonction de la teneur en fibre suit la loi de puissance sous forme $\text{Log } \eta^* = AX + B$ avec, X = la teneur en fibre (%) et A et B étant des constantes. Les différentes valeurs conduisent aux équations suivantes :

Pour le AC-K :

$$\text{Log } (\eta^*) = 0.043X + 1.78 \quad (13)$$

Pour le AC-T :

$$\text{Log } (\eta^*) = 0,059X + 0,84 \quad (14)$$

Pour le PEHD-K :

$$\text{Log}(\eta') = 0,02X + 1,86 \quad (15)$$

En guise d'exemple, à une fréquence $f = 628 \text{ rad.s}^{-1}$, les viscosités complexes des composites à base d'acétate renforcées par les fibres kraft et TMP à 60% sont passées respectivement à 21 182 et 21 787 Pa·s, soit des valeurs nettement supérieures à celle de la matrice pure AC, qui s'élève à environ 209 Pa·s. PEHD-K présentait une valeur de 1898 contre 337 Pa·s pour la matrice pure de PEHD. La pente positive des courbes indique l'effet positif de la teneur en fibre sur la viscosité. C'est la raison pour laquelle apparaissent les difficultés de mise en œuvre des composites. D'autre part, la viscosité dépend du taux de cisaillement et diminue avec celui-ci (Mazzanti & Mollica, 2020). Ce comportement justifie le choix de certains paramètres d'extrusion, notamment l'augmentation de la vitesse à 130 tr/min pour les formulations AC-T.

4.4 Les propriétés thermiques

4.4.1 Les analyses thermogravimétriques

Afin de déterminer la plage de température de fabrication, la détermination des températures de dégradation des matières premières est nécessaire.

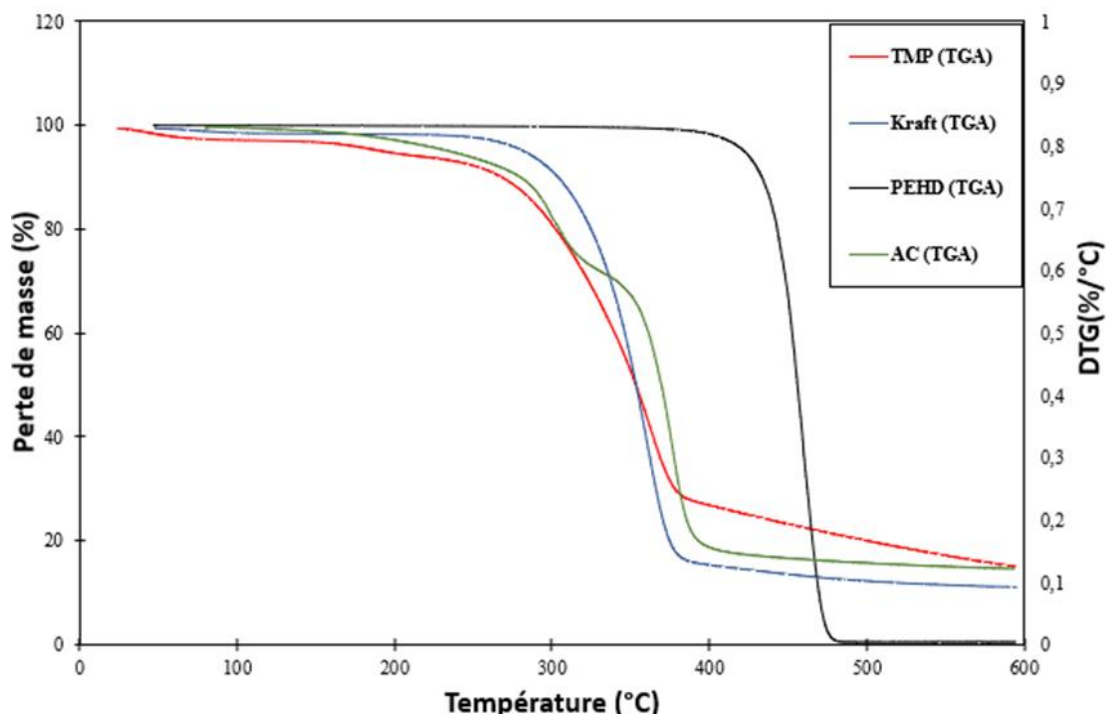


Figure 47 Courbes thermogravimétriques des matières premières.

La figure 47 présente les courbes ATG et DTG des matières premières telles que l'AC, le PEHD, le TMP et le Kraft. Pour les matrices étudiées, l'acétate de cellulose est plus sensible thermiquement que le polyéthylène haute densité. Un seul stade de dégradation et perte de masse pour le PEHD pur à partir de 480°C a été constaté. Cette répartition a été confirmée par les travaux antérieurs de Bouafif, Koubaa, Perré, & Cloutier (2009) et Saddem et al. (2019). La décomposition de l'acétate de cellulose a débuté entre 190-200°C, ce qui correspond aux dégradations des groupements acétyles (Shaikh et al., 2022). Une deuxième dégradation s'est produite entre 215-310°C, correspondant à la dégradation du plastifiant (Lecoublet, Ragoubi, Kenfack, et al., 2023; Teixeira et al., 2021). Une troisième dégradation a eu lieu aux alentours de 380 °C et est associée à la phase de pyrolyse du squelette de cellulose. Cette répartition est en accord avec des travaux antérieurs de Choi et al. (2004). Les résultats démontrent aussi que les fibres Kraft ont tendance à être plus stables thermiquement que les fibres TMP. Cela peut être expliqué par la teneur en

hémicellulose (Migneault et al., 2014). Comme le montre la figure 48, tous les composites fabriqués à partir de PEHD étaient thermiquement stables jusqu'à 280 °C, mais les échantillons se sont complètement détériorés au-delà de 600 °C. Les composés contenant de l'AC ont commencé à se dégrader plus rapidement que les autres échantillons, à une température de 179 °C (tableau 7). Leur décomposition se déroule en trois étapes. Cette faible stabilité thermique révèle le défi de fabrication par injection des bioplastiques.

Tableau 7 Les températures de dégradations et le taux des résidus extraites à partir des courbes ATG et DTG.

Échantillons	T_{Début dégradation} (°C)	T_{Fin dégradation} (°C)	T_{max} (°C)	Résidu (%) à 600 °C
PEHD	456,86	497,73	484,95	0,38
PEHD-K40	307,07	498,37	488,13	3,794
PEHD-K50	298,60	495,21	486,12	4,342
PEHD-K60	298,15	399,5	483,66	5,742
AC	210,72	391,3	377,42	6,64
AC-K40	182,74	384,12	369,76	11,14
AC-K50	184,22	385,74	365,5	12,22
AC-K60	181,74	388,67	357,6	12,53
AC-T40	179,19	388,3	373,25	10,68
AC-T50	179,07	389,34	366,55	13,1
AC-T60	180,94	381,95	360,96	15,4

Les valeurs $T_{\text{Début dégradation}}$, $T_{\text{Fin dégradation}}$ et T_{max} sont inversement corrélées au taux de charge cellulosique (TMP, Kraft) pour tous les composites. Les variations sont causées par les faibles propriétés thermiques des fibres végétales utilisées et par la sensibilité du bioplastique, déclenchant la décomposition à plus basse température (Choi et al., 2004). De plus, une mauvaise répartition des charges par rapport aux matrices pures peut également renforcer cet effet négatif des fibres. Néanmoins, les masses résiduelles après décomposition sont élevées et dépendent du taux de renfort. Par exemple, pour les composites AC-T, le pourcentage de résidus s'est élevé à 10,7 %, 13,1 % et 15,4 % pour une teneur en fibres allant de 40 à 60%.

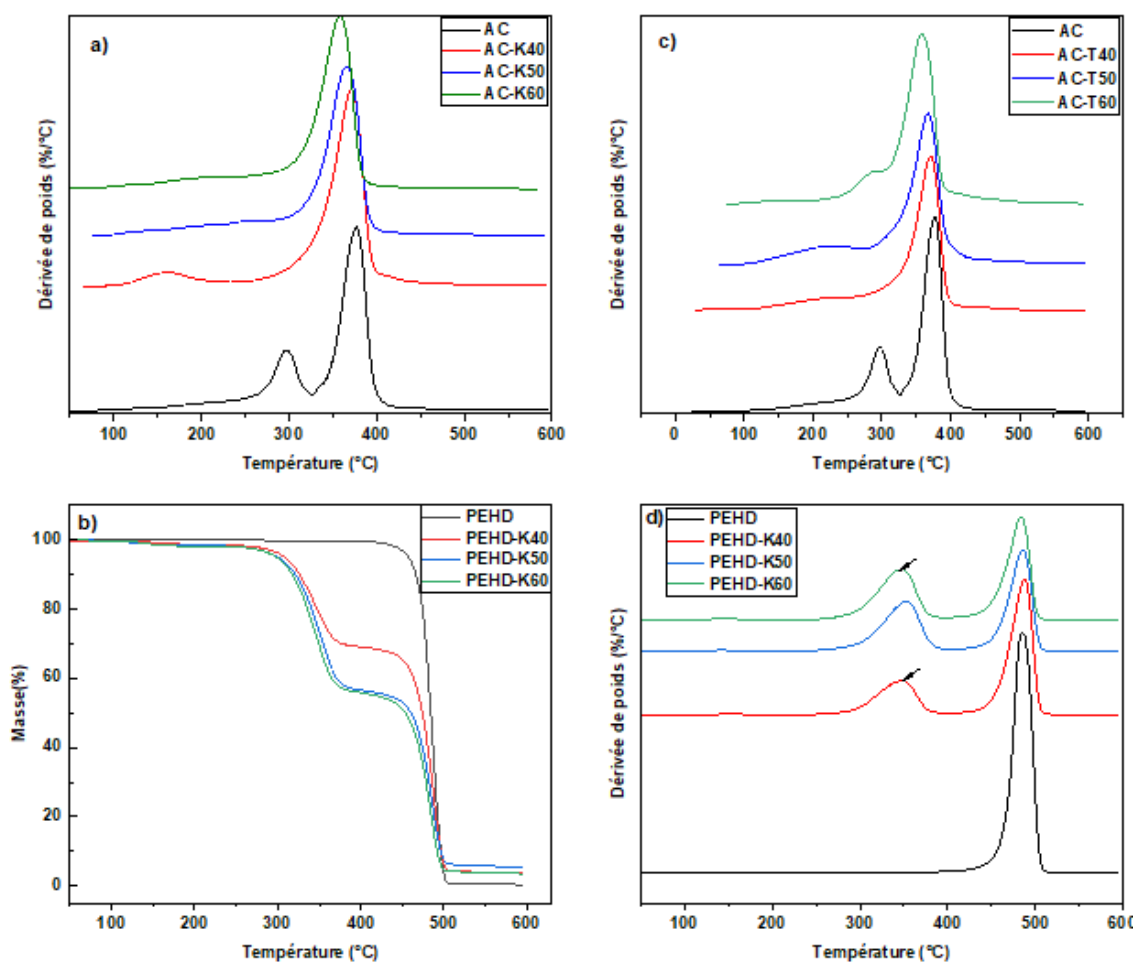


Figure 48 Les thermogrammes : a) ATG et DTG des biocomposites PEHD-K; b) ATG des composites AC-T; C) ATG des AC-K

4.4.2 Résultats des essais de calorimétrie différentielle à balayage

L'analyse par la calorimétrie différentielle à balayage est un moyen pour définir les paramètres optimaux de fabrication du composite. Cet essai sert à déterminer la température de fusion (T_f), l'enthalpie de fusion (ΔH_f) et le pourcentage de cristallinité X_c . Des essais ont été menés sur les échantillons élaborés pour évaluer l'effet de l'ajout de fibres sur toutes les formulations. Le tableau 8 englobe tous les résultats de cette analyse.

Tableau 8 Résultats de l'analyse calorimétrie différentielle à balayage

Échantillons	T_f (°C)	ΔH_f (J/g)	T_c (°C)	ΔH_c (J/g)	X_c (%)
PEHD	124,40	165,1	116	168,6	78,99
PEHD-K40	114,08	113,7	126,89	111,4	64,68
PEHD-K50	110,26	91,59	145,2	77,37	62,52
PEHD-K60	114,29	71,02	158,35	76,07	60,6
AC	-	-	105,8	16,5	34,5
AC-T40	115,2	0,5	129,41	9,756	0,96
AC-T50	113,4	1,6	131,9	1,749	5,57
AC-T60	113,4	1,6	133,9	1,749	6,97

Il est clair que le polymère PEHD possède un caractère semi-cristallin (figure 49). L'acétate de cellulose paraît quant à lui amorphe, ne présentant pas de cristallisation ni de fusion dans la gamme de température testée. Les composites PEHD-K présentaient des températures de fusion aux alentours de 114-125 °C. Ce paramètre a été pris en compte dans l'élaboration des composites (chapitre 3). Cependant, l'effet n'est pas clair entre la température de fusion et l'augmentation du contenu de charge. Ceci est en accord avec les travaux de Khouaja et al. (2021). Comme prévu, la teneur croissante en fibre papetière Kraft a diminué les taux de cristallinité X_c . À titre d'exemple, le taux de cristallinité a passé d'une valeur de 78,66 à 60,6 % pour un contenu de fibre Kraft de 60%. Ce résultat s'explique par l'effet synergique entre les fibres et la matrice (Haddar et al., 2024). Les travaux antérieurs de Bouafif, Koubaa, Perré, Cloutier, et al. (2009) ont attribué ce phénomène au rôle nucléon des fibres cellulosiques, qui favorisent la cristallisation de la matrice pure. La cristallinité est liée

à la flexibilité des chaînes matricielles. Ce taux de cristallinité diminuait en fonction du contenu en fibres cellulosiques.

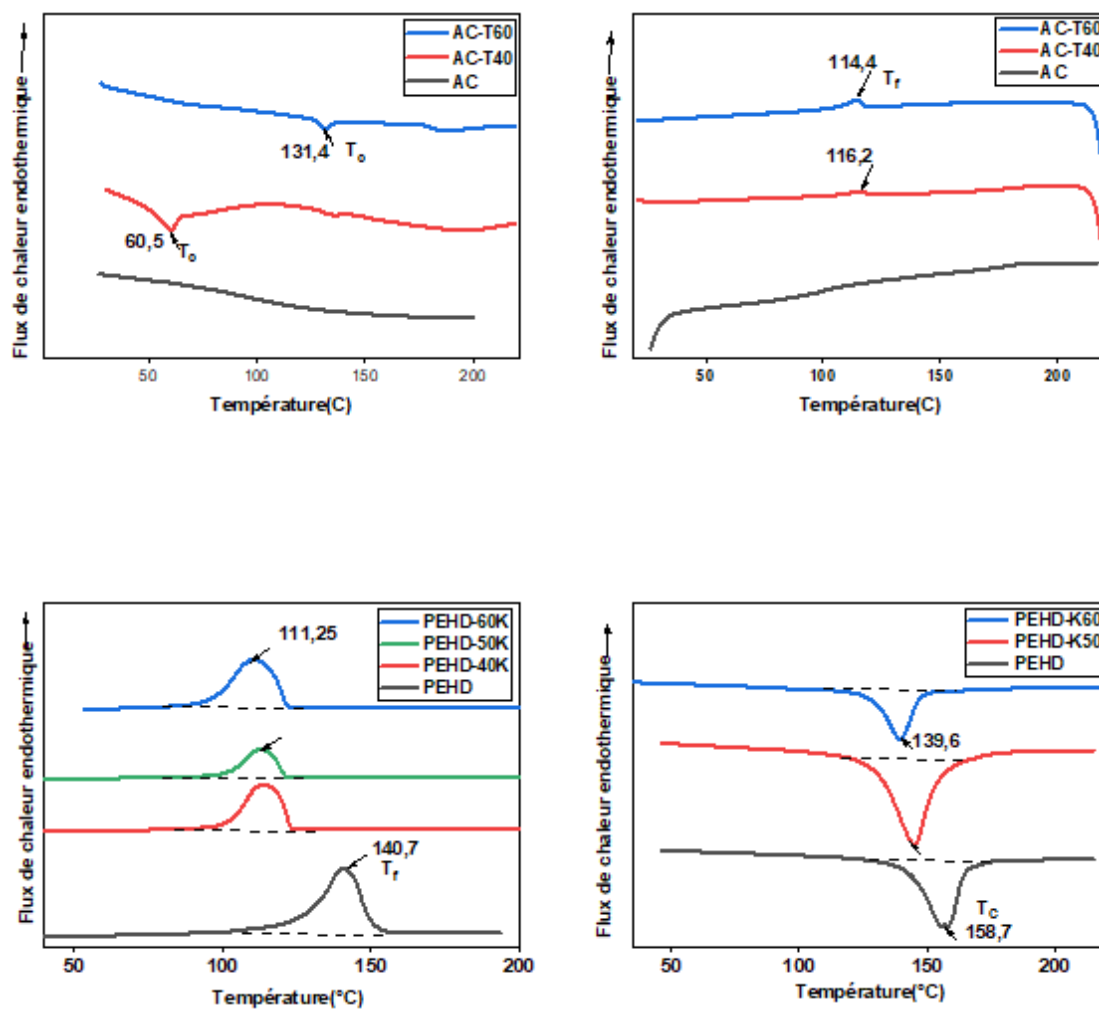


Figure 49 Thermographe des analyses de calorimétrie différentielle à balayage

4.5 Propriétés mécaniques

4.5.1 Effet de la concentration de la fibre sur les propriétés de flexion des composites

Afin d'évaluer l'influence de la teneur en fibres sur les différents mélanges, l'ensemble des compositions a été soumis à un essai de flexion normalisé, tel que décrit précédemment au chapitre 3. Les résultats sont présentés dans la figure suivante.

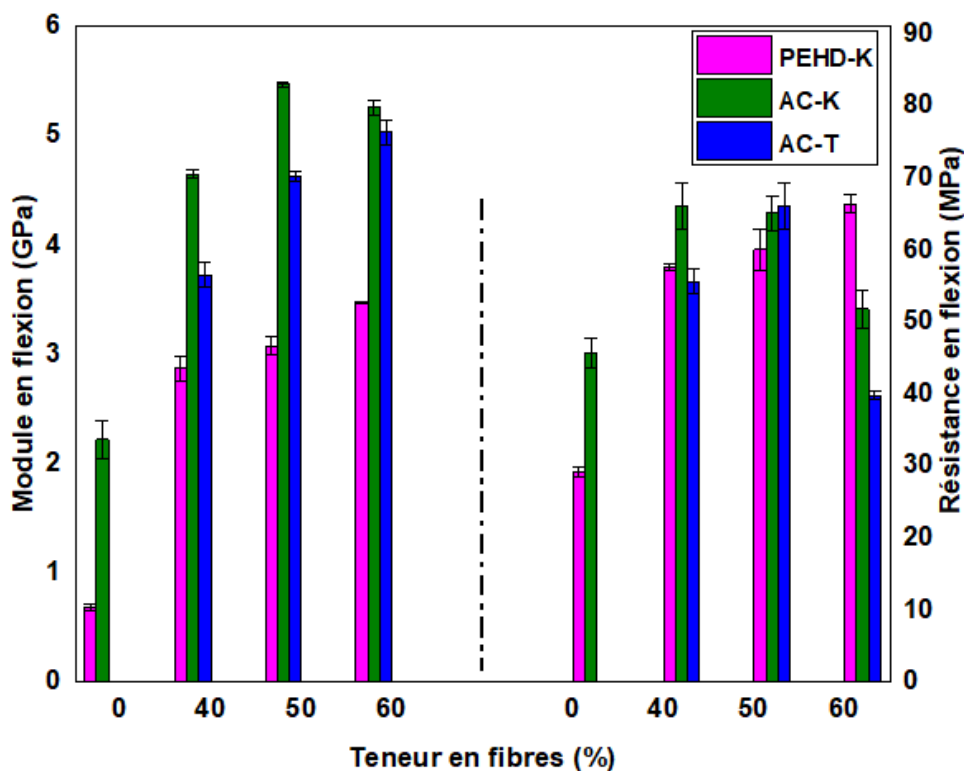


Figure 50 Évolution des propriétés de flexion des composites avant vieillissement

Les histogrammes de la figure 50 montrent l'évolution du module de flexion et du module de rupture en flexion (MOR) pour AC-K, AC-T et PEHD-K. Elles montrent que l'ajout des charges cellulosiques (Kraft ou TMP) comme renforts dans une matrice conduit à la réduction de la flexibilité du composite tout en augmentant sa rigidité. Les résultats prouvent que les modules de flexion de polymères (AC et PEHD) augmentent

avec l'ajout de fibre. En effet, en chargeant la matrice de PEHD-Kraft jusqu'à 60%, la rigidité de la matrice passe de 0,68 GPa à 3,47 GPa, soit une amélioration de 410%. Le module de flexion de l'acétate de cellulose pur était de 2,22 GPa. L'ajout de 60 % de fibres a permis de l'augmenter à 5,26 GPa avec les fibres de kraft et à 5,03 GPa avec les fibres TMP, correspondant à des hausses de 237 % et 226 %. Cette tendance est due à la prédominance des fibres lignocellulosiques, plus rigides que le polymère pur (Ben Jmeaa, 2019). Des travaux sur les biocomposites à base d'acétate de cellulose et de fibres de kenaf (Pang et al., 2014a, 2014b, 2015), de lin (Taha & Ziegmann, 2006), de bois (Segerholm et al., 2007; Singh & Mohanty, 2007; Sykacek et al., 2009a, 2010), et de chanvre (Mohanty et al., 2004) ont démontré des résultats similaires. À titre de comparaison, l'ajout de 30 % de fibres de kenaf a permis d'augmenter de 110 % le module de stockage du composite, atteignant ainsi 2,76 GPa (Pang et al., 2014a, 2014b, 2015). La figure 50 montre que les modules de flexion pour les composites AC-K sont supérieurs aux composites à base de PEHD. Les composites AC - kraft ayant une teneur de 60% présentent des modules d'élasticité en flexion de 5,26 GPa, contre 3,47 GPa pour les composites PEHD-K en raison de la similitude entre une matrice biopolymère et la fibre hydrophile, ce qui pourrait être expliquée par la formation des liaisons hydrogène et leur agrégation (Pang et al., 2015). De plus, la matrice AC est plus rigide que la PEHD. D'un autre côté, comme indiqué précédemment dans les analyses FTIR, la structure du PEHD est dominée par des liaisons méthyle pouvant favoriser la présence d'interactions de Van der Waals plus faibles que les liaisons acétyl-fibre de l'acétate de cellulose (Khouaja et al., 2025a). Une tendance similaire a été observée par Sykacek et al. (2010), leur composites à base d'acétate présentant un module de flexion variant de 1,6 GPa à 5,2 GPa avec une formulation à base d'acétate de cellulose propionate avec une teneur en poids de 50% de fibre de bois. Les recherches antérieures de Mohanty et al. (2004) qui ont observé une augmentation du module de flexion pour les composites à 30 % de fibres de chanvre. En effet, le module de flexion atteint 5,6 GPa pour le composite à base d'acétate contre 3,7 GPa pour le composite en polypropylène (PP). Des résultats similaires ont été également trouvés par Segerholm et al. (2007) avec des composites AC plastifiée et PP contenant 50% de bois traités. Pour finir, ces résultats

sont en accord avec les travaux de Taha & Ziegmann (2006), ayant prouvé par des analyses microscopiques le potentiel de complémentarité et la bonne cohésion entre l'acétate de cellulose et les fibres par rapport aux matériaux pétrochimiques.

D'après la figure 50, une exception pour les composites AC-K a été notée à une teneur maximale en fibre de kraft, où une légère diminution du module de flexion a été enregistrée. Malgré cette légère diminution pour le module de flexion, les fibres de kraft produisent toujours le module de flexion le plus élevé par rapport aux fibres TMP, ce qui est en accord avec les travaux de Taha & Ziegmann (2006). Cette diminution est principalement associée à la probabilité de contact fibre-fibre à des pourcentages élevés qui provoquent une mauvaise transmission de la charge mécanique entre les fibres. En outre, des teneurs élevées en fibres impliquent également des zones privées de résine, ce qui entraîne une adhésion fibre-matrice généralement insuffisante pour le transfert des contraintes (Taha & Ziegmann, 2006). D'autre part, la figure 50 met en évidence que les composites à base d'acétate de cellulose (AC) renforcés à 60 % de fibres ont une bonne résistance à la flexion, atteignant 51,8 MPa avec des fibres de kraft et 40,5 MPa avec des fibres TMP. Cependant, ces valeurs restent plus faibles que celle du composite en PEHD avec 60 % de fibres de kraft, qui atteint 66 MPa. Cette observation peut s'expliquer par une hétérogénéité accrue et une faible adhésion interfaciale. Les analyses microscopiques de Sykacek et al. (2010) ont montré que l'augmentation de la teneur en fibres au-delà de 30 % pouvait entraîner une hétérogénéité. Enfin, les composites AC-K se démarquent comme de meilleurs candidats que les composites AC-T, en raison de leur rigidité et de leur résistance supérieure. Cela s'explique par la teneur en cellulose plus élevée de ces fibres. Cette affirmation est confirmée par les travaux de Ben Jmeaa (2019), Bouafif et al. (2009) et Migneault et al. (2009, 2014). À l'échelle scientifique, nos composites sont compétitifs par rapport aux études antérieures, comme indiqué dans le tableau 9.

Tableau 9 Comparaison des performances en flexion des composites AC-K et AC-T aux résultats rapportés dans la littérature

Taux en fibre	Type de fibre	E_f (GPa)	MOR_f	Références
20	chanvre	4,1	77,3	(Taha & Ziegmann, 2006)
	lin	4,6	44,6	
30	Chanvre	2,8	24,7	(Pang et al., 2014b)
50	Kraft	5	54,1	(Khouaja et al., 2025a)
	MCC	4,7	49,1	
50	Kraft	5,5	63,9	Notre étude
	TMP	4,6	63,4	
60	Kraft	5,26	51,79	Notre étude
	TMP	5,03	39,45	

4.5.2 Effet de la concentration de la fibre sur les propriétés de traction des composites

Pour évaluer les propriétés en traction des composites renforcés par différentes teneurs en fibres papetières, toutes les formulations ont été soumises à un essai de traction normalisé avant vieillissement, tel que décrit au chapitre 3.

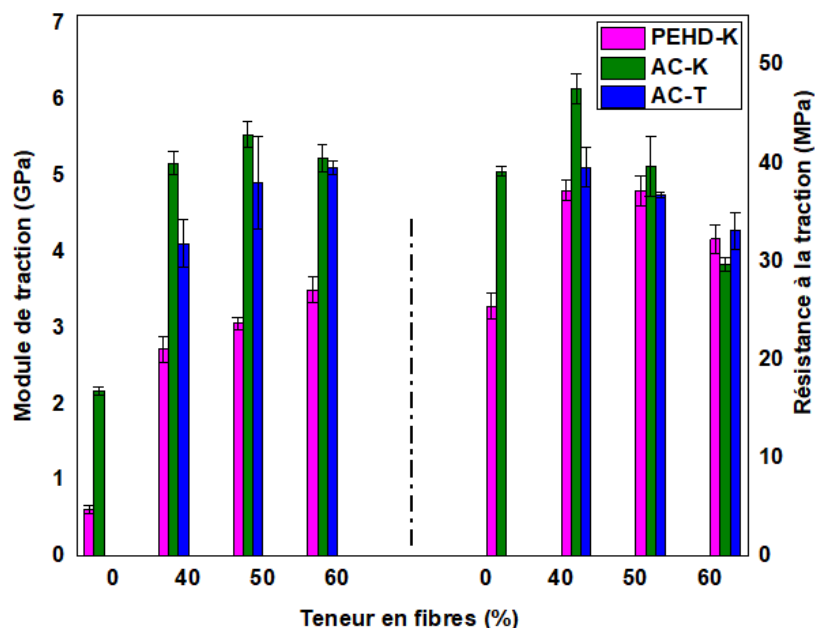


Figure 51 Évolution des propriétés de traction des composites avant vieillissement

La figure 51 présente l'évolution des modules de traction et des modules de rupture en traction pour les différents composites étudiés soit AC, PEHD et leurs composites. D'après les histogrammes, les modules en traction suivent globalement la même tendance d'augmentation avec le taux de fibres cellulosiques, comme observé lors des essais de flexion. Ce comportement est attendu, puisque l'incorporation d'une charge plus rigide que la matrice améliore la rigidité globale du composite (Ben Jmeaa, 2019). De plus, même s'il y a une diminution, les modules des composites AC-K60 conservent des modules de traction de 2 à 3 fois supérieurs à ceux des composites à base de PEHD, et comparables à ceux des composites AC-T. À titre d'exemple, les modules de traction des AC-K ont passé d'une valeur de 2,2 à une valeur de 5,2, soit une amélioration de 241 %. Cette amélioration est associée à la bonne cohésion entre la matrice et la fibre hydrophile, comme cela avait déjà été constaté précédemment par les analyses de la chimie de surface. Cependant, cette amélioration n'est pas marginale, car la résistance à la traction suit la même tendance

que les propriétés de flexion avec l'augmentation du taux de remplissage en fibres. Ces résultats concordent avec les travaux antérieurs Sykacek et al. (2010) et Taha & Ziegmann (2006) qui ont expliqué la régression des propriétés par l'augmentation des probabilités de contact fibre-fibre conduisant à une mauvaise transmission de la charge et à un manque d'adhérence. En opposition, les propriétés de traction des mélanges à base de biopolymère ont affiché des propriétés légèrement supérieures aux propriétés de flexion. Les travaux de Sykacek et al. (2010) ont rapporté des propriétés de traction supérieures aux modules de flexion pour des mélanges à base de biopolymère. En ce qui concerne la même proportion de fibre (50%), nos composites se démarquent par leur efficacité et leur compétitivité par rapport aux autres composites à base d'acétate de cellulose renforcés par d'autres fibres, comme indiqué dans le Tableau 10.

Tableau 10 Comparaison des performances en traction des composites AC-K et AC-T aux résultats rapportés dans la littérature

Taux en fibre	Type de fibre	E_T (GPa)	MOR_T	Références
50	Bois non acétylées	5,197	49	(Sykacek et al., 2010)
50	MCC KRAFT	5,3 5,6	26,8 29,7	(Khouaja et al., 2025a)
50	Bois non acétylés Bois Acétylés	6,2 5,9	42 31	(Segerholm et al., 2007)
50	TMP Kraft	4,91 5,54	39,7 32,75	Notre étude
60	TMP Kraft	5,11 5,23	33,1 26,68	Notre étude

4.5.3 Effet de la concentration et de la nature de la fibre sur l'allongement à la rupture

Afin d'évaluer la ténacité des composites, toutes les compositions ont subi les essais de flexion et traction avant vieillissement normalisé, tel que présenté au chapitre 3.

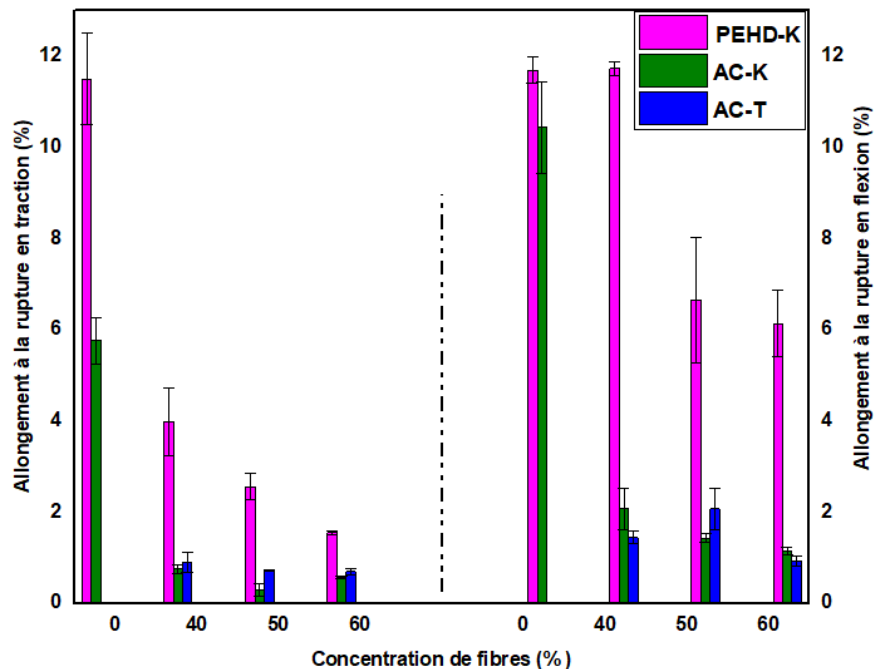


Figure 52 Évolution de l'allongement à la rupture en fonction teneur en fibre

La figure 52 groupe les différentes valeurs d'allongement à la rupture en flexion et en traction des composites PEHD-K, AC-K et AC-T avec différents taux de fibres. Il est clair que les charges naturelles ont tendance à réduire la déformabilité des polymères, ce qui aboutit à un matériau plus rigide, avec une réduction de l'allongement de 61 % pour le mélange à base de PEHD rempli avec 60% de fibre kraft. Quant aux composites AC-K, ils ont démontré une diminution significative atteignant 87 % par rapport à la matrice pure. Ce comportement est expliqué par l'augmentation de la probabilité de contact fibre-fibre (Sykacek et al., 2010). L'inclusion des fibres favorisant l'apparition de défauts et de zones de concentration des contraintes et accélérant la défaillance des composites (Taha & Ziegmann, 2006) pourrait être une

autre raison. Cette tendance a été confirmée par les études de Bouafif, Koubaa, Perré, Cloutier, et al. (2009), Khouaja et al. (2021, 2025a) et Migneault et al. (2009). Toutefois, les matériaux AC et PEHD purs se démarquent par leur ductilité comparée avec ceux chargés de fibres. Prenons l'exemple de polypropylène haute densité qui est le plus ductile et qui n'atteint pas la rupture puisque son allongement dépasse la déformation acceptée par la norme ASTM D790. Les histogrammes de la figure 51 prouvent que les composites remplis de fibres kraft avaient des allongements en flexion plus importants que ceux remplis de fibres TMP. La ductilité des mélanges AC-K est supérieure à celle des AC-T, ce qui peut être expliqué par la souplesse des fibres kraft (Ben Jmeaa, 2019). Pour remédier à ce problème, une option serait d'intégrer du caoutchouc ou de l'élastomère biosourcé dans la composition des composite biosourcée (Rejeb, Koubaa, Elleuch, Godard, Migneault, Khelif et al., 2021a).

4.5.4 *Effet de la concentration de la fibre sur les propriétés d'impact*

Un essai de résistance aux chocs a été réalisé afin d'évaluer l'effet d'ajout de fibre sur la ténacité des différentes formulations.

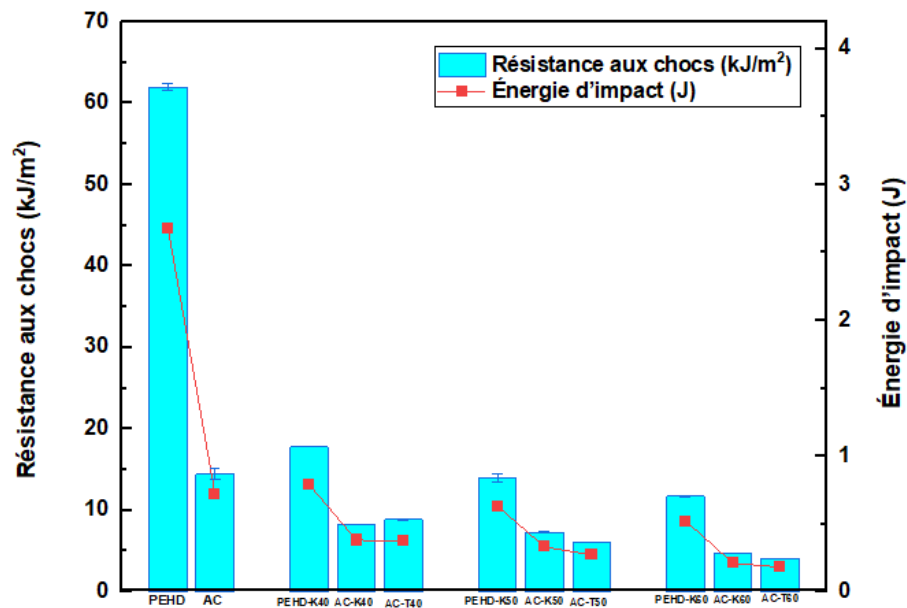


Figure 53 Propriétés d'impact des composites

Les résultats illustrés dans la figure 53 présentent l'effet du renforcement par des fibres sur les propriétés d'impact des composites. Il est évident que la teneur en fibre est inversement proportionnelle avec l'énergie d'impact. Ce comportement a souvent été rapporté pour les composites à base de fibres naturelles orientées de manière aléatoire. Cette réduction a réduit l'énergie de rupture de 45 %, 48 % et 27 % respectivement pour les PEHD-k, AC-k et AC-T, respectivement. Par exemple, les composites PEHD-K60 ont atteint 28,3 kJ/m² comparativement à 15,7 KJ/m² et 16,5 KJ/m² pour AC-K60 et AC-T60, respectivement. La conservation de la résistance à l'impact par les composites à base de PEHD peut s'expliquer par la ductilité du PEHD qui favorise la déformation avant la rupture. Cette propriété favorise l'absorption d'une plus grande quantité d'énergie lors d'un impact, contribuant ainsi à une meilleure résistance aux chocs.

4.5.5 Effet de plastifiant sur les propriétés mécaniques

En général, le glycérol agit principalement comme un plastifiant dans les composites, améliorant ainsi leur mise en œuvre, mais réduisant généralement leurs propriétés

mécaniques. Le Tableau 11 ci-dessous révèle que l'effet de la glycérine sur le module de flexion et la résistance à la flexion est notable pour les formulations à base d'acétate de cellulose renforcées par 50% en fibres. À titre d'exemple, le module de flexion et la résistance à la flexion pour le composite AC-50K varient de 5,8 GPa et 135,8 MPa à 5,5 GPa et 40,5 MPa, respectivement après l'ajout de glycérine. Ce résultat était attendu puisque la glycérine joue le rôle d'un plastifiant séparateur, accompagnée par une création probable de vides, lors de la mise en forme. Ceci serait en accord avec les travaux sur des films à base d'amidon et de glycérine, où les interactions entre les chaînes d'amidon diminuent tout en augmentant les interactions entre l'amidon et la glycérine (De Vilhena et al., 2023). Les recherches antérieures de (Ben Jmeaa (2019) affirment une diminution des propriétés de flexion et traction après l'utilisation de glycérine avec des mélanges à base de PP hautement chargées en bois. L'ajout de lubrifiant affaiblit les propriétés mécaniques à long terme et sert seulement à assurer la fluidité dans le moule en assurant une bonne dispersion. Cette constatation a été validée par les études antérieures de Tabatabaee et al. (2024). Cependant, la présence de glycérol avec une membrane à base d'acétate de cellulose affecte négativement toutes les propriétés mécaniques (Gontijo De Melo et al., 2018). Donc, son utilisation nécessite un compromis avec les performances finales du matériau. Un excès de ce composant pourrait avoir des effets négatifs sur d'autres propriétés du composite, comme le montrent les travaux de Ben Jmeaa (2019).

Tableau 11 Effet de l'ajout de glycérine sur les propriétés mécaniques de flexion des mélanges AC

Mélanges	Sans glycérine		Avec glycérine	
	E	MOR	E	MOR
AC-T50	5,5±0,1	79,58±1,1	4,6±1,3	63,4±1,3
AC-K50	5,8±0,1	95,8±2,7	5,5±0,1	40,5±0,9

4.6 Analyse de la stabilité dimensionnelle

La stabilité dimensionnelle a été évaluée par le taux d'absorption et de gonflement en masse et épaisseur en raison de la pénétration de l'eau. Les échantillons ont été immergés dans l'eau pendant 10 semaines. Une évaluation des taux d'absorption et de gonflement aux deux semaines a été effectuée.

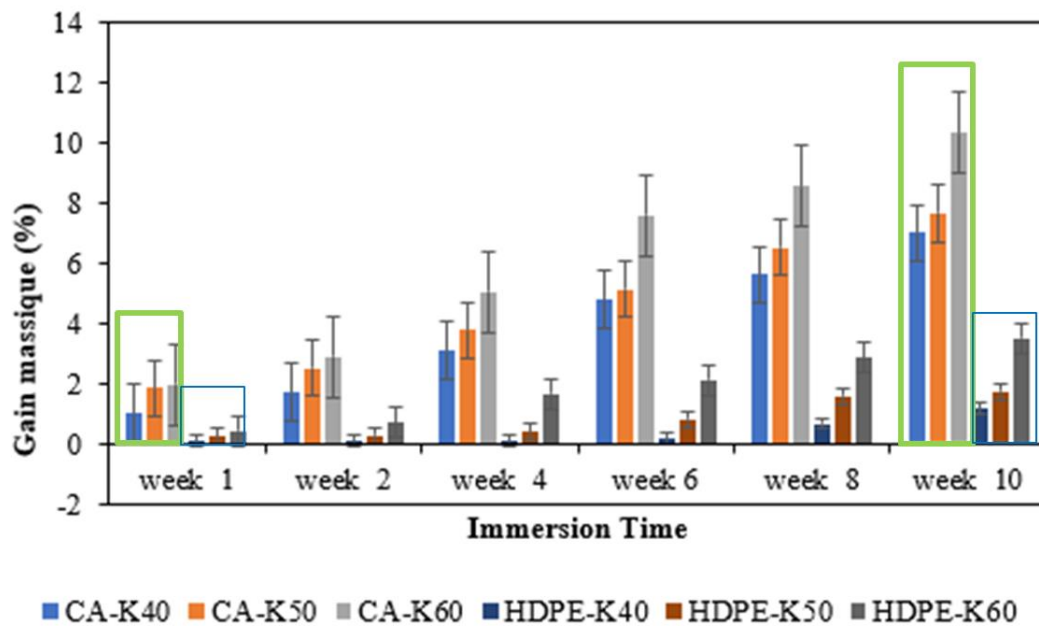


Figure 54 Effet de matrice sur l'évolution de l'absorption en fonction du temps d'immersion

La figure 54 présente l'évolution du gain en masse et en épaisseur au cours du temps pour les composites à base de PEHD et d'AC, purs ou chargés entre 40 % et 60 %. Les composites à base de PEHD-K présentent une meilleure stabilité dimensionnelle que ceux à base d'AC-K. Cela peut être expliqué par le fait que les matrices bioplastiques semblent favoriser l'absorption d'eau en raison de la forte composante hydrophile (groupement hydroxyle et carbonyle) provenant de l'acétate de cellulose (Sango et al., 2024). Cette constatation a été confirmée précédemment par les analyses de la chimie de surface FTIR, puisque les pics de groupes hydroxyle de l'OH étaient élargis. Il est clair que le gain massique et d'épaisseur sont proportionnels en fonction de la quantité de charge ajoutée. À titre d'exemple, le gain massique PEHD

avait des valeurs de 1,2% à 3,9% pour les teneurs de 0 à 60% pendant 10 semaines d'immersion. Ce phénomène était plus prononcé pour les composites AC-K hautement chargés, atteignant 10,3% après seulement 10 semaines. Ce phénomène est attribué à la présence des sites polaires des fibres cellulosiques (Mohammed et al., 2023) et la présence des défauts dépend de la mise en œuvre du composite (Helaoui et al., 2024). En contrepartie, les composites AC-K sont plus stables que leurs homologues AC-T, comme le montre la figure 55. Ces observations sont en accord avec les travaux de Rejeb et al. (2021) qui explique ce phénomène par la réduction des zones amorphes dans lesquelles pénètre l'eau. Une autre explication possible de ce phénomène est la teneur élevée en hémicellulose de la fibre TMP par rapport à celle de Kraft (Ayadi et al., 2020; Rejeb, Koubaa, Elleuch, Godard, Migneault, Khlif, et al., 2021)

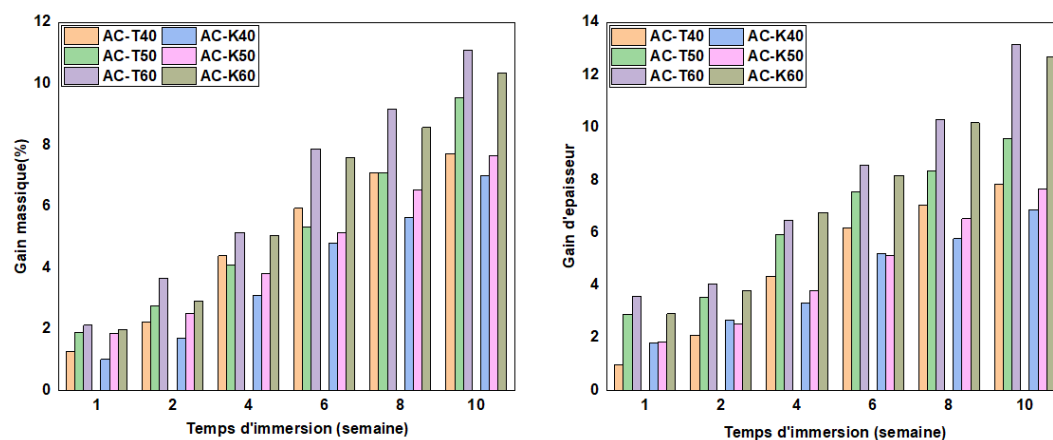


Figure 55 Effet de fibre sur l'évolution de l'absorption en fonction du temps d'immersion

4.7 Influence du vieillissement sur la décoloration des composites

La luminosité (L^*) et les coordonnées de couleur (a^* et b^*), avant et après 1200 h de vieillissement UV, des échantillons composites renforcés par 50% et le composite commercial de référence sont indiquées dans le Tableau 12.

Tableau 12 Variation des couleurs des composites avant et après vieillissement UV

Mélanges	L*		a*		b *		ΔE*
	0h	1200h	0h	1200h	0h	1200h	1200h
PEHD-K50	56,43 (0,63)	90,58 (0,28)	2,03 (0,32)	-0,345 (0,05)	9,51 (0,53)	0,76 (0,14)	70,18 (0,32)
AC-K50	70,47 (2,81)	82,03 (2,02)	1,89 (0,24)	-0,63 (0,88)	13,43 (1,93)	15,36 (1,17)	43,8 (1,2)
AC-T50	43,43 (2,18)	47,84 (1,58)	4,9 (1,01)	4,44 (0,83)	13,43 (1,93)	12,93 (1,08)	20,08 (0,33)
GRIN WOOD	37,04 (0,13)	33,16 (0,21)	0,06 (0,02)	0,15 (0,02)	0,48 (0,03)	0,2 (0,04)	16,63 (0,52)

La luminosité des composites a augmenté après le vieillissement, passant de 56,43, 70,47, 43,43 et 37,04 à 90,58, 82,03, 47,84 et 33,16, respectivement, pour les PEHD-K50, AC-K50, AC-T50 et Grin wood. Cela est expliqué par le blanchissement des fibres qui résulte de la dégradation photochimique de la lignine, incluant la perte de groupes méthoxyles, la rupture des liaisons C–C (Nasri et al., 2022), et la formation de structures chromophores dans la lignine (Badji et al., 2018). La dégradation s'accompagne d'une diminution des unités structurales aromatiques et d'une augmentation des groupes carbonyles conjugués (Qi et al., 2021). Des travaux

antérieurs ont établi une relation entre les valeurs de brillance de la surface et les changements chimiques (Fabiya et al., 2008).

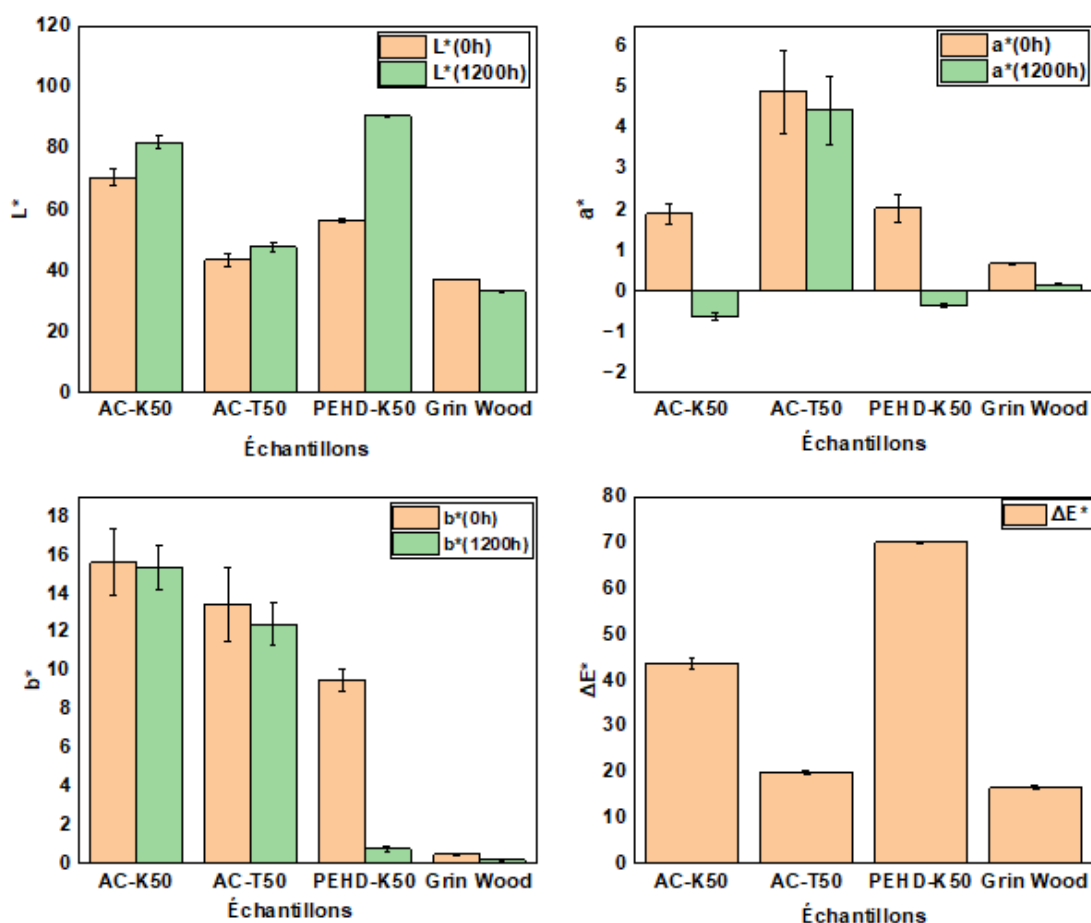


Figure 56 Évolution des coordonnées de couleur (L^* , a^* , b^*) pour les échantillons AC-K50, AC-T50 et PEHD-T50

Les composites contenant du kraft avaient des valeurs de L^* plus élevées que les autres (figure 56). Cela pourrait probablement être dû à la capacité d'absorption des UV du Kraft et son rythme rapide de dégradation. Des travaux antérieurs ont démontré que la teneur en lignine des fibres végétales contribue à leur protection contre la photodégradation (Nguyen et al., 2020). On peut ainsi attribuer un rôle antioxydant aux fibres TMP (Nasri et al., 2022). D'autre part, les résultats montrent que les

coordonnées b^* diminuent au cours du vieillissement. Cette évolution entraîne une réduction du jaunissement de la surface, la teinte tendant progressivement vers le bleu (figure 56). Ce résultat est en accord avec les travaux de Stark & Matuana (2006).

À la fin de l'exposition de 1200 h, le changement de couleur totale du CBP est classé comme suit : Grin WOOD < AC-T50 < PEHD-K50. Comme prévu, le changement de couleur est visible à l'œil nu pour tous les composites puisque les différences de couleur sont supérieures à 4. Les composites AC-T50 présentaient un changement plus léger par rapport aux AC-K50 (figure 57). En accord avec les travaux de Nasri et al. (2022), cela confirme le ralentissement du rythme de dégradation en raison de la présence de lignine. Les travaux antérieurs de Hadj-Djilani et al. (2024) ont attribué le changement de couleur à l'érosion produite au cours des cycles d'exposition. Il se pourrait que la surface du composite commence à se fissurer à mesure que l'exposition au rayonnement UV se produit (Dönmez Çavdar et al., 2021). Ces changements de couleur peuvent être venir de la photodégradation des structures dans les composants du bois, en particulier la lignine (Qi et al., 2021).

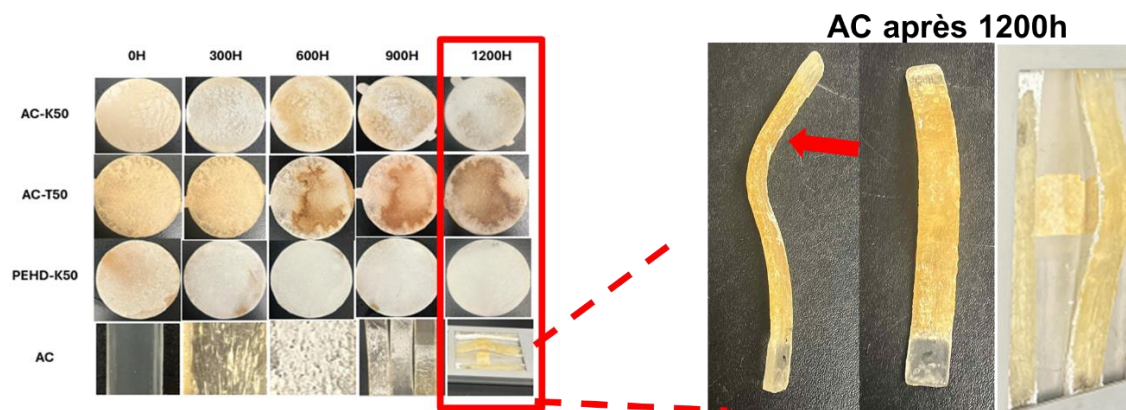


Figure 57 Évolution de l'aspect visuelle des éprouvettes au cours du vieillissement

4.8 Influence de vieillissement sur la rugosité des composites

Les échantillons ont des surfaces relativement lisses avant le vieillissement (figure 58). Comme prévu, les surfaces sont devenues plus rugueuses avec l'ajout de fibre de bois. L'accroissement de la rugosité peut être attribué à la structure anatomique des particules de bois, telles que la présence de cavités (vaisseaux et lumens cellulaires) (Rejeb, Koubaa, Elleuch, Godard, Migneault, Bouslimi, et al., 2021). Cependant, le vieillissement affecte la surface de tous les matériaux testés par l'apparition de fissures qui s'approfondissent et se propagent graduellement avec le temps (Badji et al., 2018). Cela peut être attribué aux scissions et ruptures des chaînes macromoléculaires, ainsi qu'au gonflement des fibres végétales. Comme prévu, les composites AC-K50 présentaient un aspect plus rugueux par rapport aux AC-T50. Les biocomposites AC-K50 avaient plus haute cinétique de dégradation mesurée par le paramètre de rugosité moyenne après 1200 h de vieillissement, ayant une valeur de 7,01 contre 6,17. La rugosité surfacique des AC-K50 est passée à 11,86 contre 8,52 pour les AC-T50. Cela peut être dû au rôle antioxydant de la lignine, observation en accord avec des travaux antérieurs (Badji et al., 2018; Nasri et al., 2022). Par ailleurs, la composition des fibres végétales a influencée les propriétés de rugosité de surface. Les travaux de Peng et al. (2015) ont signalé que la lignine retarde le processus de photodégradation de surface. De même Nasri et al. (2022) ont constaté que le renforcement par la fibre de pin a atténué la dégradation et présentait des surfaces moins rugueuses que les composites renforcés par la fibre de lin. Nous pouvons en déduire que la lignine joue un rôle positif dans le retard de la photodégradation des composites (Peng et al., 2015). Les valeurs R_a étaient 7,01 contre 3,09, respectivement, pour les composites PEHD-K50 et AC-K50. Cela peut être attribué aux fissurations de surface plus prononcées dans les matrices à base d'acétate de cellulose (AC) comparativement à celles en polyéthylène haute densité (PEHD). Les fissures tendent à s'approfondir et à se propager progressivement avec le temps en raison de l'hydrophilie de la matrice (Nagaraja et al., 2022). Ces résultats sont en accord avec la rugosité surfacique des biocomposites AC-K et PEHD-K.

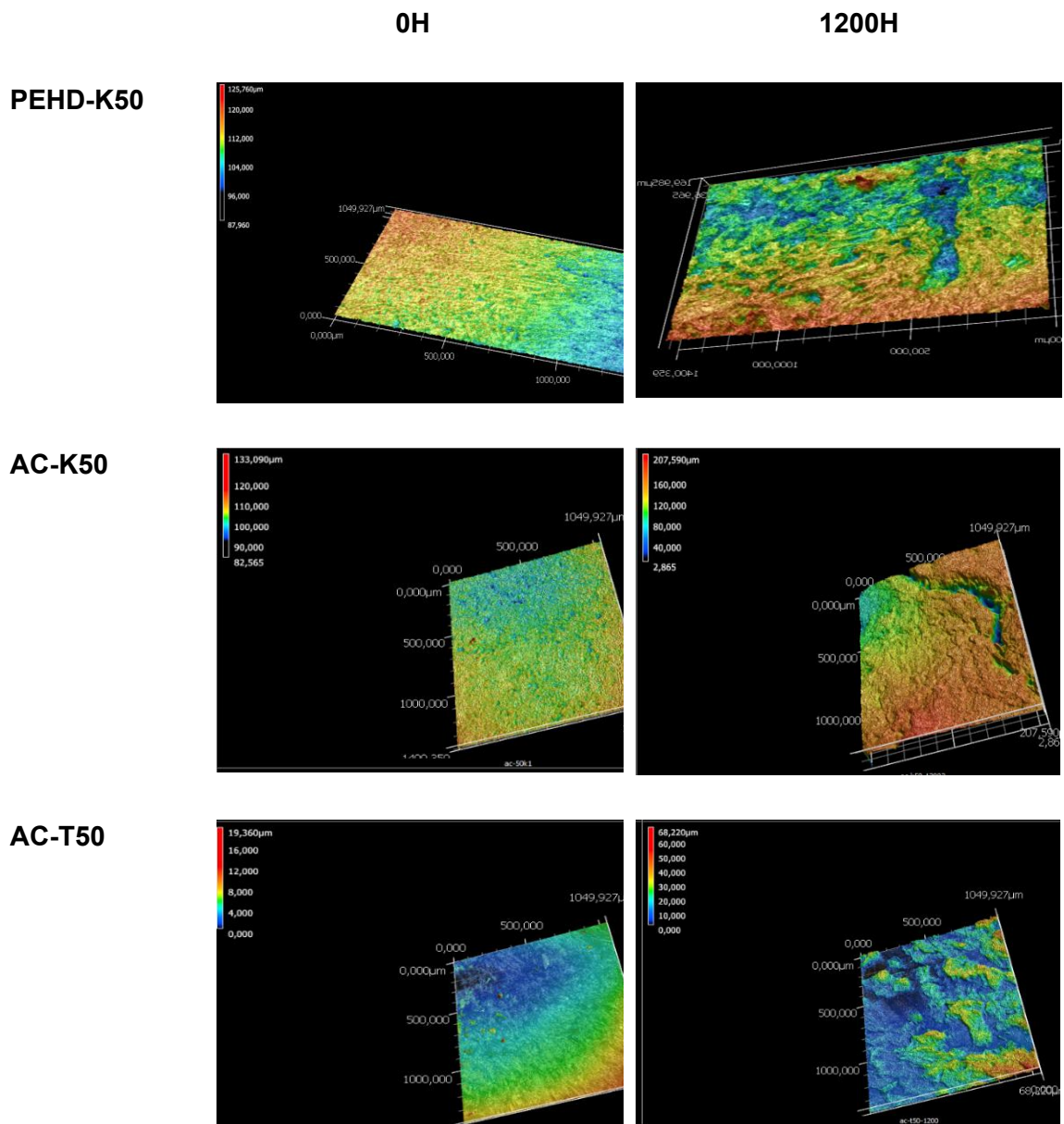


Figure 58 Changements de rugosité au fil du temps d'exposition UV

4.9 Influence du vieillissement sur la morphologique

La morphologie de surface a été étudiée à l'aide de micrographies obtenues par microscopie électronique à balayage MEB des composites non altérés et altérés (0h, 600h, 1200h). La morphologie de surface a changé de manière significative sur tous les échantillons (figure 59). Les effets d'érosion de la surface et des micro-fissures étaient visibles après 1200 h de vieillissement. Au début, la couche superficielle a été érodée et des petites fissures sont apparues, des écarts plus importants ainsi que de larges vides étaient présents entre la fibre et la matrice. Ceci est la conséquence des rayons UV nocifs qui provoquaient la dégradation des polymères et des fibres végétales (Qi et al., 2021). En ce qui concerne la fibre, les cycles répétés de vieillissement gonflent les parois cellulaires (Chaari et al., 2023; Mohammed et al., 2023). Cette action entraîne le décollement ou l'enlèvement des liaisons dans l'interface bois-matrice (Nasri et al., 2022). La pénétration de l'eau et de la lumière dans les couches plus profondes des composites est devenue possible en raison des fissures, entraînant une accumulation d'eau qui a facilité une dégradation supplémentaire (Nguyen et al., 2020). En même temps, l'exposition aux UV provoquait une dégradation des chaînes de polymères. Ceci peut être causé par l'augmentation de la cristallisation et la mobilité suffisante des chaînes de polymères, conduisant à une réorganisation et à un réarrangement (Chaari et al., 2023). Cet écartement fibre-matrice augmenterait au fur et à mesure d'exposition UV et les propriétés mécaniques commenceraient à décliner (Chaari et al., 2023, 2024; Hadj-Djilani et al., 2024; Nasri et al., 2022; Qi et al., 2021). Ces résultats sont en accord avec la détérioration de la conservation des propriétés de résistance à la flexion observées précédemment.

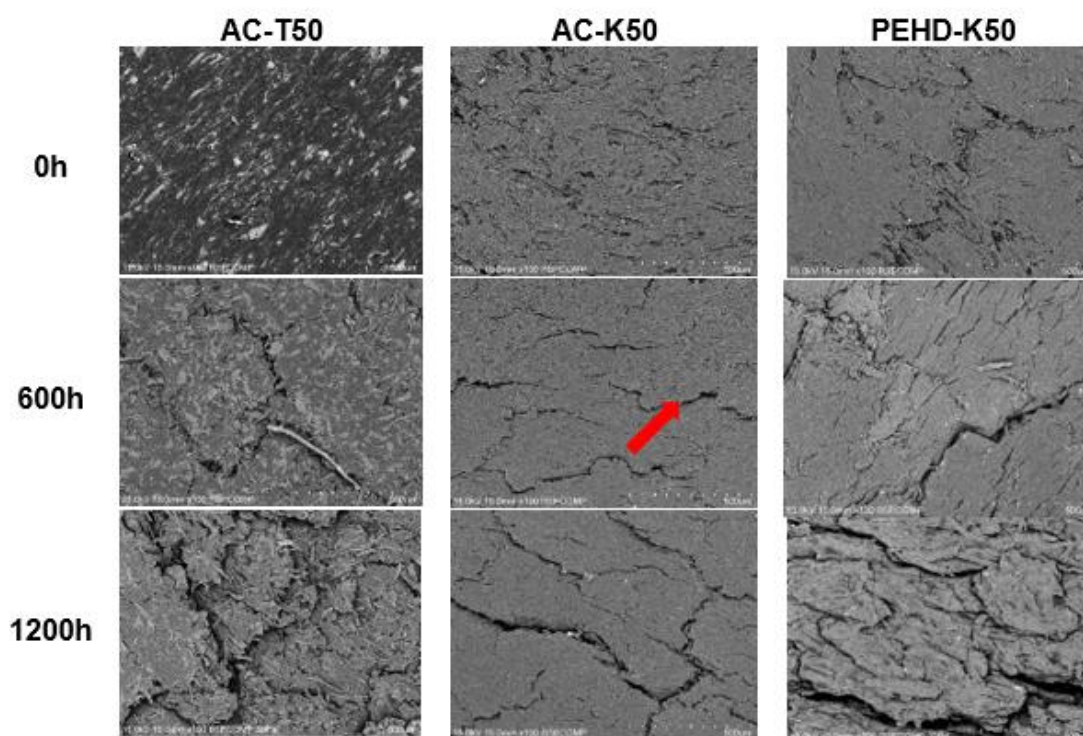


Figure 59 Images MEB de la détérioration des échantillons à différents temps d'altération pour : AC-T50, AC-K50, PEHD-K50

4.10 Influence du vieillissement sur la dureté des composites

La dureté Shore D a été mesurée sur cinq emplacements sur la face des échantillons vieillis et non vieillis. La figure 60 démontre des variations de comportement à la surface de l'échantillon avant vieillissement. Comme prévu, l'accroissement de teneur en fibre de bois améliore la dureté jusqu'à un seuil de 50 %. Des travaux antérieurs ont été effectués sur la dureté shore de composites PEHD avec 40% de fibres de bouleau et Il ressort que l'augmentation de la dureté est moins lente pour cette proportion par rapport à 30% (Koffi et al., 2021). Cela a été expliqué par les défauts résultant des contraintes thermiques et mécaniques du procédé de fabrication. En effet, l'étude de Boughanmi et al. (2024) ont montré que l'ajout de charge améliore la rigidité en limitant la mobilité des chaînes de polymère, ce qui améliore la dureté. Homkhiew et al. (2014) ont également signalé que l'ajout de farine de bois peut

diminuer la flexibilité des chaînes polymériques et ceci serait accompagnée par une augmentation du poids moléculaire et de la dureté.

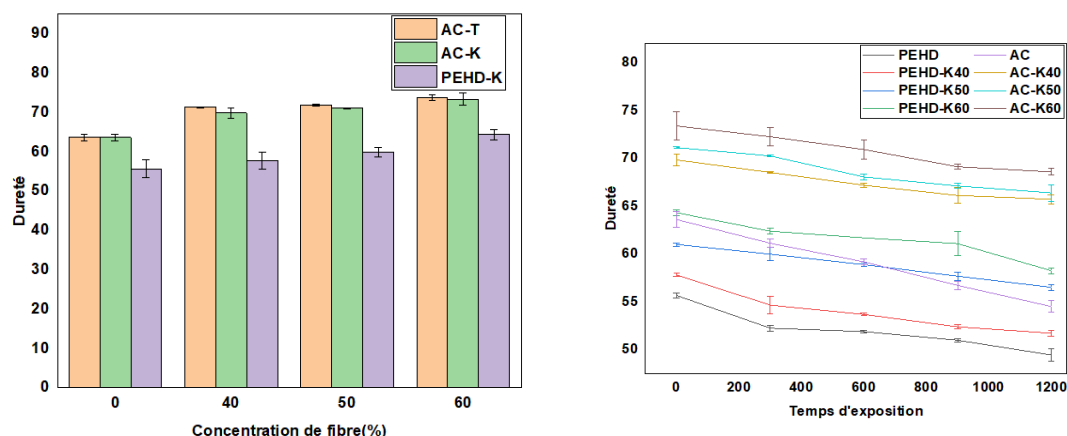


Figure 60 Évolution de la dureté en fonction avant et au cours d'exposition aux UV

Comme on le voit dans la figure 60, tous les échantillons vieillis ont montré des duretés moindres que les échantillons non vieillis. La dureté est passée de 73,4 et 64,3 à 68,6 et 58,27, respectivement, pour les formulations AC-K60 et PEHD-K50. La diminution de la dureté après chaque cycle de vieillissement peut être attribué à l'accroissement des fissures superficielles et à la fragilisation du matériau (Homkhiew et al., 2014b). Cela peut être expliqué par l'augmentation du nombre de scissions en chaîne au cours du temps d'exposition. Les travaux de Nasri & Toubal (2024) ont démontré que la dureté Vickers a diminué considérablement avec le temps d'exposition. Ils ont attribué cette réduction à l'accroissement des scissions des chaînes de polymère, ce qui a provoqué la formation de fissures superficielles et la fragilisation du matériau.

4.11 Influence de l'exposition UV sur les propriétés mécaniques

La figure 61 présente la courbe de la contrainte en fonction de la déformation des composites renforcés à 50%. Toutes les configurations à base d'acétate de cellulose avaient une réponse semi-fragile qui tendait vers un comportement fragile après vieillissement. Cependant, les composites à base de PEHD avaient un comportement semi-fragile, tandis que le composite commercial avait un comportement fragile. Les propriétés de flexion, y compris la contrainte maximale et le module de Young, ont diminué progressivement au fur et à mesure de l'exposition UV.

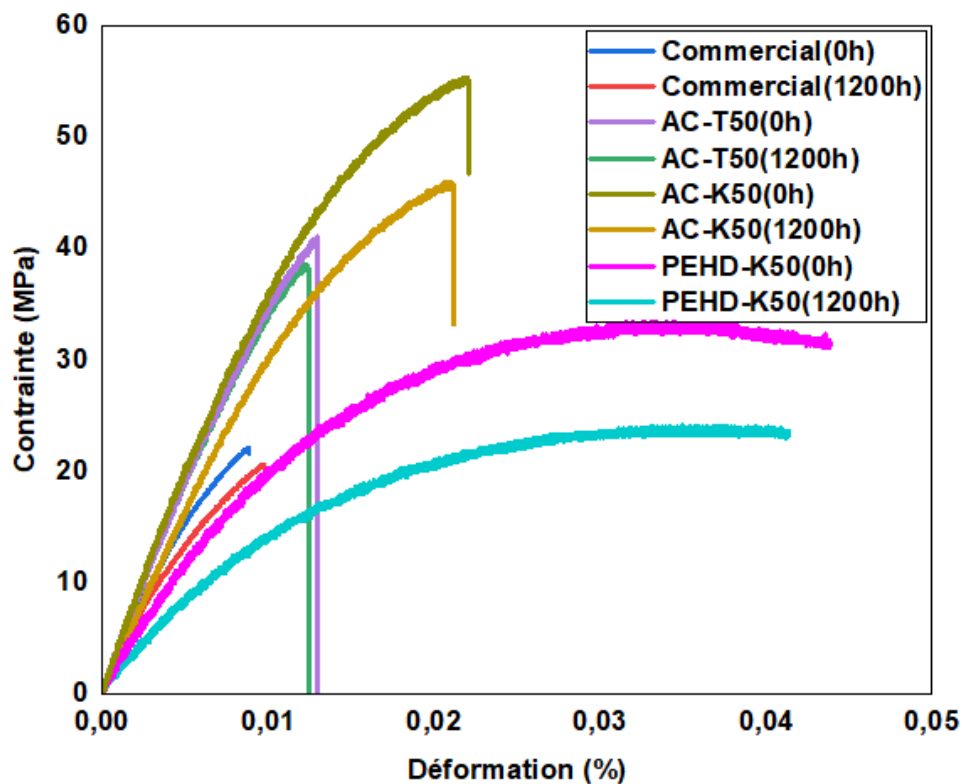


Figure 61 Courbes de la contrainte en fonction de la déformation des composites chargés

Une diminution drastique de la limite d'élasticité après 1200 h d'altération a été observée avec des pertes de 22,7 %, 61,7% et 39,7 % pour les PEHD-K50, AC-K50 et AC-T50 respectivement. Ces effets négatifs sont dus aux mécanismes de scission

des chaînes par photodégradation et à l'érosion superficielle de la matrice (Soccalingame et al., 2016). Ces deux facteurs agiraient de façon synergique en provoquant une érosion superficielle et une augmentation de la mouillabilité, conduisant ainsi à une dégradation des propriétés mécaniques et à une diminution de la durée de vie (Qi et al., 2021). En parallèle, les valeurs de MOR ont fortement diminué avec la durée d'exposition 1200h (figure 61), allant de 40,78%, 48,99% et 44,63%, respectivement, pour les mélanges PEHD-K50, AC-K50 et AC-T50.

4.11.1 *Effet de la matrice*

La nature de la matrice a eu un impact significatif, tant sur les propriétés mécaniques que sur la résistance à la dégradation par UV. La figure 62 illustre que le taux de rétention du module d'élasticité des composites PEHD-K50 est supérieur par rapport aux composites AC-K50. Les mélanges PEHD-K50 présentaient des rétentions de module de l'ordre de 77,3% contre 38,2% pour les composites à base d'acétate de cellulose AC-K50. Le rythme de dégradation rapide pour l'acétate de cellulose et ses composites serait causé par l'hydrophilie de ces deux composants (Nagaraja et al., 2022). Ces variations étaient principalement dues à la scission des polymères et à l'effet de pénétration d'humidité qui détruit l'adhérence matrice-fibre. Ces deux éléments réduisent l'efficacité de transfert de contrainte de la fibre à la matrice. Ce constat a été confirmé par la mesure de la perte de masse (figure 62). Elle montre une diminution de 99,07% contre 96,71%, respectivement, pour les composites AC-K50 et PEHD-K50. Il ressort également dans les travaux antérieurs d'immersion d'eau que le gain massique des composites AC-K est 7,66% contre 1,74% pour les composites PEHD-K50. L'exposition aux UV engendre la création de fissures et entraîne davantage la dégradation par UV (Mohammed et al., 2023). Un constat semblable a été observé par (Chan et al., 2020). Il en ressort que les composites à base de PLA

et PHA chargés à 50% par fibre de pin ont été moins stables contre le vieillissement UV comparés à leur homologue à base PE.

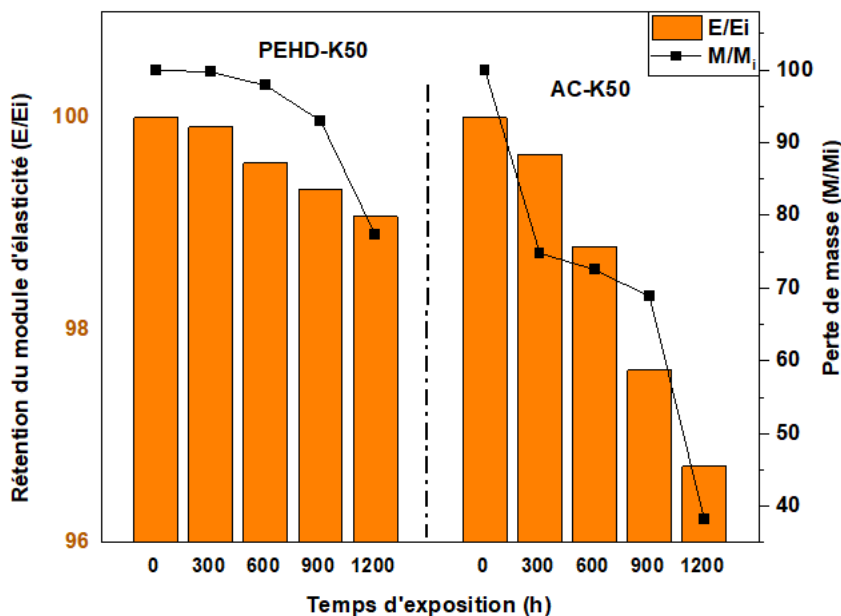


Figure 62 Évolution de la rétention du module d'élasticité et de la perte de masse pour les composites PEHD-K50 et AC-K50

4.11.2 Effet de la teneur en fibre

L'analyse de variance (ANOVA) a révélé que la teneur en fibres constitue un facteur statistiquement significatif dans la dégradation des propriétés mécaniques. En effet, d'après la figure 63, les modules de traction et de flexion présentent une tendance similaire : la résistance du composite PEHD-K diminue avec l'augmentation du taux de fibres, tandis que celle du composite AC-K évolue de manière opposée. Une teneur élevée en fibres dans la matrice d'acétate de cellulose semble favoriser la conservation de la résistance mécanique, alors que dans le cas du PEHD, l'ajout de fibres accélère la perte de performance. Ce comportement peut être attribué à l'encapsulation des fibres végétales dans la matrice polyéthylène, qui accentue la dégradation en raison du gonflement des fibres et de la formation de microfissures,

réduisant l'efficacité du transfert de contraintes entre la farine de bois et la matrice (Cherian et al., 2013; Stark & Matuana, 2003).

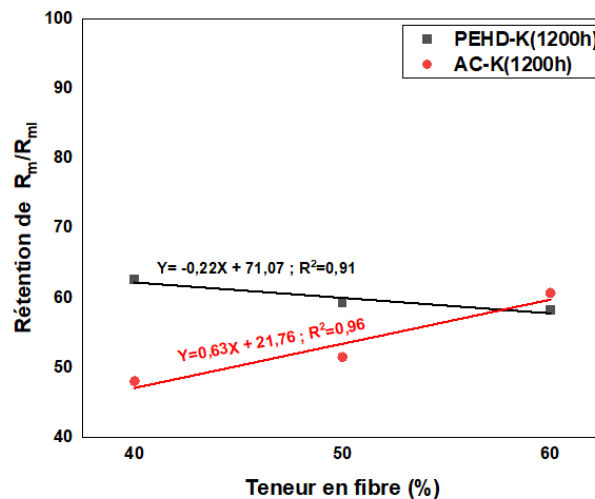


Figure 63 Effet de la teneur de fibre sur la conservation de la résistance des composites PEHD-K et AC-K

Ces observations rejoignent celles de Soccalingame et al. (2016) sur la dégradation des composites PP-bois. Par ailleurs, la perte de masse reste importante pour les composites PEHD-K, confirmant leur sensibilité au vieillissement, avec une variation de 0,7 % pour le PEHD pur à 1,7 % pour le composite PEHD-K60. À l'inverse, la perte de masse de l'acétate pur atteint 8,3 % contre seulement 2,4 % pour le composite AC-K60, ce qui indique que la matrice AC est beaucoup plus biodégradable que la matrice pétrochimique PEHD. L'ajout de fibres améliore ainsi la conservation de masse et l'intégrité structurelle du composite AC, alors qu'il amplifie la dégradation du composite PEHD. Ce comportement inversé selon la nature de la matrice confirme le

potentiel circulaire du composite AC-K et ouvre de nouvelles perspectives d'application dans le domaine agricole.

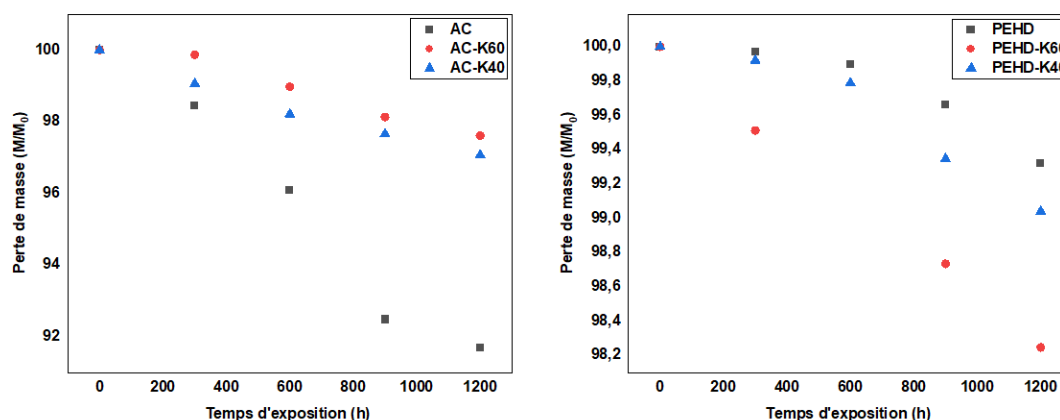


Figure 64 Évolution de la perte de masse pour les composites PEHD-K et AC-K

4.11.3 Effet du type de fibre

La variabilité de la composition chimique a eu une incidence non seulement sur les propriétés mécaniques, mais également sur le rythme de dégradation des propriétés.

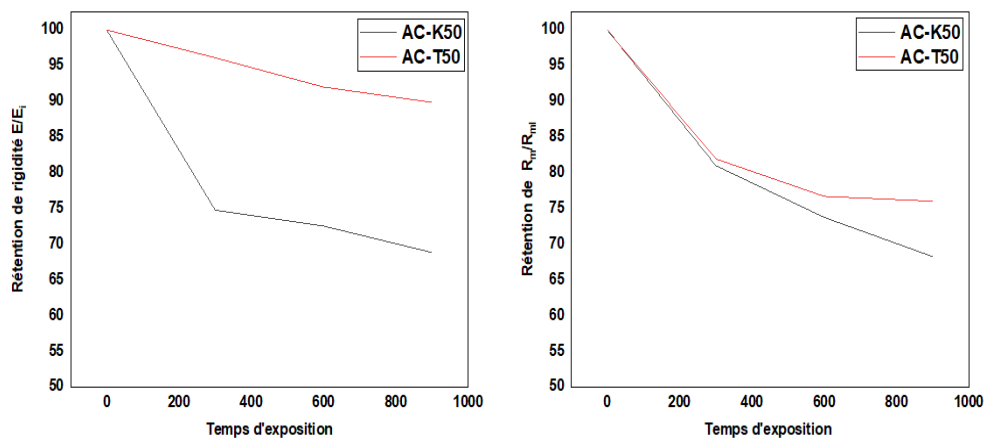


Figure 65 Évolution de la rétention de rigidité et la résistance pour les composites AC-T50 et AC-K50

Après 900 heures d'exposition au vieillissement accéléré, les échantillons AC-T ont présenté de meilleurs taux de rétention du module d'élasticité, atteignant 89,84 %, contre seulement 68,7 % pour leurs homologues AC-K. Le taux de rétention de résistance de flexion (R_m/R_m) était de 68,2 % contre 76%, respectivement, pour AC-T50 et AC-K50. Ces taux de rétention du module de rigidité intense après 1200 h seraient 38,2 % contre 60,4 %, respectivement, pour AC-K50 et AC-T50. Le taux de rétention de rigidité a fortement diminué jusqu'à 51,5% contre 55,4 % après 1200 h. Cela peut être expliqué par le fait que la fibre agit comme couche protectrice contre les facteurs d'altération. Une raison possible pourrait être la richesse en lignine pour les fibres thermomécaniques. Des travaux antérieurs ont prouvé la richesse des fibres thermomécaniques par rapport aux fibres Kraft (Rejeb, Koubaa, Elleuch, Godard, Migneault, Khlif, et al., 2021), comme mentionné dans le tableau 14. La teneur en lignine présente était de 25,3% pour les fibres thermomécaniques comme indiqué dans le Tableau 13.

Tableau 13 Propriétés chimiques des fibres cellulosiques

Fibres	Propriétés chimiques		
	Cellulose (%)	Lignine (%)	Extractible (%)
Kraft	87,9 (1,1)	0,4 (0,0)	3,4 (0,6)
TMP	49,7 (0,5)	25,3 (0,3)	7,3 (0,2)

Cette observation est en accord avec les conclusions de Peng et al. (2015) qui affirment qu'une quantité élevée de lignine entrave la dégradation mécanique et joue un rôle antioxydant. Ceci est en accord avec les travaux de Nguyen et al. (2020b) qui ont trouvé que le taux de résistance des composites à base de PEHD renforcés par des fibres riches en lignine était de 97 %, contre 102 % pour les autres fibres. De même, Nasri et al. (2022) ont expliqué que les fibres de pin ont mieux préservé le composite à base de polypropylène que les fibres de lin, en raison de leur teneur plus élevée en lignine. Ces observations corroborent les résultats de Spiridon et al. (2015) qui ont mis en évidence l'effet protecteur de la lignine contre la photodégradation dans des composites à base de PLA/lignine.

4.12 Implications pratiques des résultats de la recherche

Tous les taux de rétention de la résistance à la flexion et du module d'élasticité des composites PEHD-K50 étaient supérieurs à ceux des composites AC-K50 et des composites commerciaux équivalents. Après 1200 h de vieillissement, les taux de rétention ont été de l'ordre de 38 %, 64 %, 77 % et 75 %, respectivement, pour les composites AC-K50, AC-T50, PEHD-K50 et Grin Wood (figure 67). Ces résultats concordent, en termes de tendance générale, avec ceux de la rétention $\frac{R_m}{R_{mi}}$, qui étaient de 51,5 %, 55,4 %, 59,2 % et 64,7 %, respectivement. Ces observations confirment que les mélanges PEHD-K50 constituent les meilleurs choix pour les applications extérieures, tout en demeurant comparables aux composites commerciaux. Cependant, il est important de souligner que le composite AC-T50

présente des performances compétitives, il conserve une bonne stabilité mécanique et se rapproche du comportement du PEHD-K50, malgré une matrice d'acétate de cellulose plus sensible au vieillissement, démontrant ainsi son potentiel d'utilisation dans des applications durables. Les biocomposites AC-T respectent davantage l'environnement que les produits commerciaux en raison d'une teneur en fibre légèrement plus élevée. Selon la littérature, les composites ne peuvent pas être intégrés à l'échelle industrielle lorsque leur taux de rétention est inférieur à 50 % après vieillissement (Chang et al., 2020b). Des compromis entre la dégradation de la matrice, le type de fibre et la teneur en renfort feront partie de la feuille de route des travaux futurs pour améliorer la durabilité des composites biosourcés. Par ailleurs, les biocomposites à forte teneur en fibres présentent un intérêt croissant pour les partenaires industriels. L'ajout d'additifs photostabilisants et le traitement de surface des fibres constituent des pistes prometteuses à explorer.

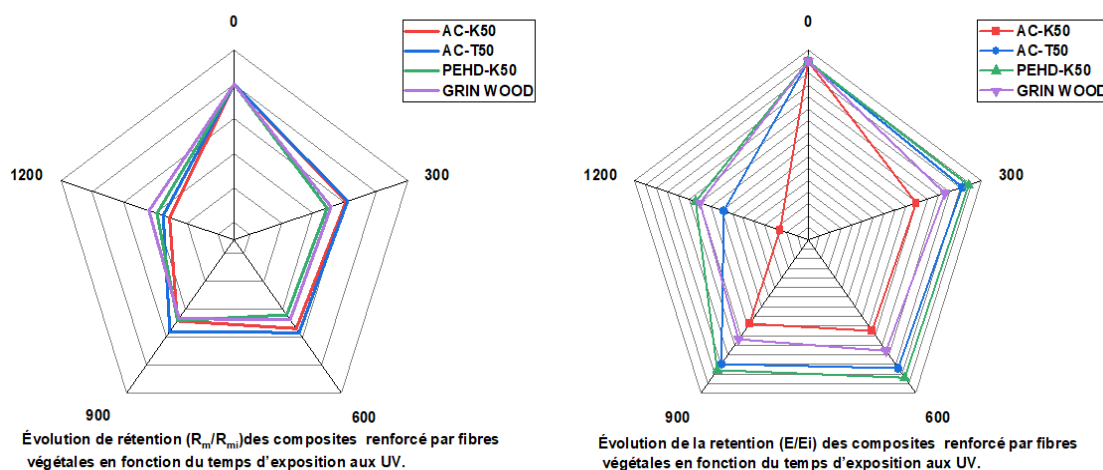


Figure 66 Comparaison des composites par rapport les produits commerciaux en termes de rétention des propriétés mécaniques

4.13 Analyse statistiques

Le Tableau 14 présente l'analyse de variance qui examine l'effet des facteurs étudiés (type de fibre, teneur et temps d'exposition UV) sur les propriétés de flexion et la dureté. La variation du module d'élasticité, de la contrainte maximale et de la dureté dépendait fortement du type de fibre, de la proportion et du temps d'exposition UV. En

ce qui concerne les caractéristiques de flexion, seule la quantité de fibres, le type de matrice et le temps d'exposition ont eu des effets extrêmement importants avec un seuil de signification de $\alpha = 0,001$. Cela montre que l'exposition aux UV est une propriété révélatrice, et il est essentiel de tenir compte de ces facteurs lors de la conception des nouveaux matériaux. Les résultats de l'analyse de variance confirment que l'accroissement du temps d'exposition a eu un effet très significatif sur les propriétés mécaniques des composites ($\alpha = 0,001$). En contrepartie, le type de fibre n'a pas d'effet important sur la résistance à la flexion MOR, même si elle se dégrade au fil de l'exposition aux UV.

Tableau 14 Résultats des analyses de variance (ANOVA) concernant l'effet de vieillissement UV sur les propriétés mécaniques des composites

	MOE	MOR	Dureté
Teneur en fibre (A)	1057,72***	315,53***	290,60***
Type de fibre (B)	313,87***	2,29 NS	337,36***
Type de matrice (C)	734,26***	112,89***	1282,70***
Temps d'exposition UV (D)	293,93***	479,99***	65,50***
A × B	7,03***	106,52***	42,99***
A × C	19,93***	106,90***	16,66***
A × D	4,28***	10,08***	4,43***
B × D	16,00***	18,68***	9,81***
C × D	55,09***	12,71***	3,65**

Avec : '***' significatif à 0,001 ; '**' significatif à 0,01 ; '*' significatif à 0,05 ; NS : non significatif

4.14 Conclusion

Ce chapitre a présenté une évaluation complète, à l'échelle des matières premières, des biocomposites fortement chargés. Des essais mécaniques en flexion et en traction, des analyses rhéologiques, anatomiques, d'impact et thermiques ont été menés afin d'évaluer la qualité des composites élaborés. Ensuite, des cycles de vieillissement artificiel ont été appliqués afin d'identifier plus précisément la formulation la mieux adaptée aux applications extérieures.

5. CONCLUSIONS GÉNÉRALES

Ce projet vise principalement à augmenter la teneur en matériaux biosourcés dans les composites en utilisant une matrice d'acétate de cellulose fortement chargée en fibres cellulosiques. Les résultats des analyses révèlent que :

- Une teneur élevée en fibres complique le processus d'injection.
- Les composites AC-K présentent une viscosité environ 100 fois supérieure à celle des composites PEHD-K.
- La glycérine a été incorporée avec succès dans les formulations AC-K et AC-T afin d'en améliorer la viscosité. Bien qu'elle contribue à une meilleure fluidité, son ajout entraîne toutefois une dégradation des propriétés mécaniques.
- Les biocomposites à base d'acétate de cellulose (AC) présentent des performances mécaniques globalement supérieures à celles des composites en PEHD, ce qui est expliqué par leur rigidité intrinsèque plus élevée ainsi que leur bonne compatibilité avec les fibres papetières.
- Les composites PEHD-K sont plus stables que les composites AC-K en raison de la nature hydrophobe de leur matrice.
- Les composites AC-K ont subi une altération plus marquée que les composites PEHD-K en raison de la capacité de leur matrice à absorber davantage d'eau.
- La lignine présente dans les fibres thermomécaniques a contribué à une meilleure préservation des taux de rétention des composites AC-T, comparativement à ceux des composites AC-K.
- La dégradation de la surface des composites a été mise en évidence par les mesures de rugosité, les altérations physico-chimiques, la décoloration ainsi que la diminution de la dureté.

Cette étude élucide l'effet du vieillissement UV sur les biocomposites. Cela peut fournir une base pour l'amélioration de ces matériaux pour leurs développements à l'échelle industrielle.

Plusieurs pistes de recherche doivent être explorées afin d'accroître la durabilité de ces matériaux et de favoriser leur adoption à l'échelle industrielle. L'un des principaux défis à court terme consiste à :

- Optimiser le compromis entre la teneur en fibres, les propriétés mécaniques et la durabilité du composite.
- Traiter la fibre pour améliorer la résistance à l'humidité du composite en favorisant une meilleure interface fibre/matrice.
- Développer un revêtement de surface hydrophobe et résistant aux UV pour protéger les zones exposées du composite.
- Des recherches supplémentaires sont nécessaires afin de déterminer la proportion optimale et le type d'absorbeur anti-UV le plus adapté.
- Des tests de biodégradabilité au sol, thermomécaniques et de fatigue sont essentiels pour une meilleure compréhension du comportement à long terme des matériaux.
- Des études complémentaires sont nécessaires afin d'évaluer l'impact environnemental des composites biosourcés (CBP), notamment à travers une analyse de leur cycle de vie (ACV) et une estimation des émissions de gaz à effet de serre (GES) en les comparant à celles des produits fabriqués à partir de polymères d'origine pétrochimique.

LISTE DES RÉFÉRENCES

- Aaliya, B., Sunooj, K. V., & Lackner, M. (2021). Biopolymer composites : A review. *International Journal of Biobased Plastics*, 3(1), 40-84.
<https://doi.org/10.1080/24759651.2021.1881214>
- Ahmad, W., McCormack, S. J., & Byrne, A. (2025). Biocomposites for sustainable construction : A review of material properties, applications, research gaps, and contribution to circular economy. *Journal of Building Engineering*, 105, 112525. <https://doi.org/10.1016/j.jobbe.2025.112525>
- Akil, H. M., Omar, M. F., Mazuki, A. A. M., Safiee, S., Ishak, Z. A. M., & Abu Bakar, A. (2011). Kenaf fiber reinforced composites : A review. *Materials & Design*, 32(8-9), 4107-4121. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2011.04.008>
- Andrady, A. L., Pandey, K. K., & Heikkilä, A. M. (2019). Interactive effects of solar UV radiation and climate change on material damage. *Photochemical & Photobiological Sciences*, 18(3), 804-825.
<https://doi.org/10.1039/c8pp90065e>
- Atiwesh, G., Mikhael, A., Parrish, C. C., Banoub, J., & Le, T.-A. T. (2021). Environmental impact of bioplastic use : A review. *Heliyon*, 7(9), e07918.
<https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2021.e07918>
- Avérous, L., & Caillol, S. (2021). Les polymères biosourcés, vecteurs d'innovations et acteurs d'un développement durable. *L'Actualité Chimique*, 456-457-458, 95-100.

- Ayadi, R., Koubaa, A., Braghiroli, F., Migneault, S., Wang, H., & Bradai, C. (2020). Effect of the Pyro-Gasification Temperature of Wood on the Physical and Mechanical Properties of Biochar-Polymer Biocomposites. *Materials*, 13(6), 1327. <https://doi.org/10.3390/ma13061327>
- Ayana, K. D., Ha, C.-S., & Ali, A. Y. (2024). Comprehensive overview of wood polymer composite : Formulation and technology, properties, interphase modification, and characterization. *Sustainable Materials and Technologies*, 40, e00983. <https://doi.org/10.1016/j.susmat.2024.e00983>
- Azwa, Z. N., Yousif, B. F., Manalo, A. C., & Karunasena, W. (2013). A review on the degradability of polymeric composites based on natural fibres. *Materials & Design*, 47, 424-442. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2012.11.025>
- Badji, C., Beigbeder, J., Garay, H., Bergeret, A., Bénézet, J.-C., & Desauziers, V. (2018). Correlation between artificial and natural weathering of hemp fibers reinforced polypropylene biocomposites. *Polymer Degradation and Stability*, 148, 117-131. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2018.01.002>
- Baïlon, J.-P., & Dorlot, J.-M. (2000). *Des Matériaux* (3^e édition). Presses internationales polytechnique.
- Bakshi, P., Pappu, A., Bharti, D. K., & Patidar, R. (2021). Accelerated weathering performance of injection moulded PP and LDPE composites reinforced with calcium rich waste resources. *Polymer Degradation and Stability*, 192, 109694. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2021.109694>

- Ben Jmeaa, A. (2019). *Élaboration, procédé et caractérisation des composites renforcés avec haute teneur en fibre de cellulose* [Mémoire de maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue].
<https://depositum.uqat.ca/id/eprint/827/>
- Bendourou, F. E., Suresh, G., Laadila, M. A., Kumar, P., Rouissi, T., Dhillon, G. S., Zied, K., Brar, S. K., & Galvez, R. (2021). Feasibility of the use of different types of enzymatically treated cellulosic fibres for polylactic acid (PLA) recycling. *Waste Management*, 121, 237-247.
<https://doi.org/10.1016/j.wasman.2020.11.058>
- Biermann, C. J. (1996). *Handbook of pulping and papermaking* (2nd ed). Academic Press.
- Bonifacio, A., Bonetti, L., Piantanida, E., & De Nardo, L. (2023). Plasticizer design strategies enabling advanced applications of cellulose acetate. *European Polymer Journal*, 197, 112360.
<https://doi.org/10.1016/j.eurpolymj.2023.112360>
- Bouafif, H., Koubaa, A., Perré, P., & Cloutier, A. (2009). Effects of fiber characteristics on the physical and mechanical properties of wood plastic composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 40(12), 1975-1981. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2009.06.003>
- Bouafif, H., Koubaa, A., Perré, P., Cloutier, A., & Riedl, B. (2008). Analysis of Among-Species Variability in Wood Fiber Surface Using DRIFTS and XPS :

- Effects on Esterification Efficiency. *Journal of Wood Chemistry and Technology*, 28(4), 296-315. <https://doi.org/10.1080/02773810802485139>
- Bouafif, H., Koubaa, A., Perré, P., Cloutier, A., & Riedl, B. (2009). Wood particle/high-density polyethylene composites : Thermal sensitivity and nucleating ability of wood particles. *Journal of Applied Polymer Science*, 113(1), 593-600. <https://doi.org/10.1002/app.30129>
- Boughanmi, O., Allegue, L., Marouani, H., Koubaa, A., & Fouad, Y. (2024). Repetitive recycling effects on mechanical characteristics of poly-lactic acid and PLA /spent coffee grounds composite used for 3D printing filament. *Polymer Engineering & Science*, 64(11), 5613-5626. <https://doi.org/10.1002/pen.26938>
- Chaari, R., Kharrat, F., Khlif, M., Bradai, C., Lacoste, C., & Dony, P. (2023). Investigating the influence of the aging process on the rheological and mechanical properties of composites based on PBS matrix and enzymatically treated date palm fibers. *Journal of Composite Materials*, 57(20), 3189-3199. <https://doi.org/10.1177/00219983231184631>
- Chaari, R., Khlif, M., Bradai, C., Lacoste, C., & Dony, P. (2024). A comparative study on the influence of fiber enzymatic treatment in thermal, morphological and mechanical properties of PBS matrix reinforced with different date palm fibers : Under accelerated UV radiation exposure. *Journal of Composite Materials*, 58(3), 287-298. <https://doi.org/10.1177/00219983231223821>

- Chan, C. M., Vandi, L.-J., Pratt, S., Halley, P., Richardson, D., Werker, A., & Laycock, B. (2020). Mechanical Stability of Polyhydroxyalkanoate (PHA)-Based Wood Plastic Composites (WPCs). *Journal of Polymers and the Environment*, 28(5), 1571-1577. <https://doi.org/10.1007/s10924-020-01697-9>
- Chang, B. P., Mohanty, A. K., & Misra, M. (2020). Studies on durability of sustainable biobased composites : A review. *RSC Advances*, 10(31), 17955-17999. <https://doi.org/10.1039/C9RA09554C>
- Cherian, B. M., Leão, A. L., De Moraes Chaves, M. R., De Souza, S. F., Sain, M., & Narine, S. S. (2013). Environmental ageing studies of chemically modified micro and nanofibril phenol formaldehyde composites. *Industrial Crops and Products*, 49, 471-483. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2013.04.033>
- Ching, Y. C., Ershad Ali, Md., Abdullah, L. C., Choo, K. W., Kuan, Y. C., Julaihi, S. J., Chuah, C. H., & Liou, N.-S. (2016). Rheological properties of cellulose nanocrystal-embedded polymer composites : A review. *Cellulose*, 23(2), 1011-1030. <https://doi.org/10.1007/s10570-016-0868-3>
- Choi, J. S., Lim, S. T., Choi, H. J., Mohanty, A. K., Drzal, L. T., Misra, M., & Wibowo, A. (2004). Preparation and characterization of plasticized cellulose acetate biocomposite with natural fiber. *Journal of Materials Science*, 39(21), 6631-6633. <https://doi.org/10.1023/B:JMSC.0000044909.60878.97>
- Cichosz, S., & Masek, A. (2020). IR Study on Cellulose with the Varied Moisture Contents : Insight into the Supramolecular Structure. *Materials*, 13(20), 4573. <https://doi.org/10.3390/ma13204573>

- Cindradewi, A. W., Bandi, R., Park, C.-W., Park, J.-S., Lee, E.-A., Kim, J.-K., Kwon, G.-J., Han, S.-Y., & Lee, S.-H. (2021). Preparation and Characterization of Cellulose Acetate Film Reinforced with Cellulose Nanofibril. *Polymers*, 13(17), 2990. <https://doi.org/10.3390/polym13172990>
- Cogulet, A., Blanchet, P., & Landry, V. (2016). Wood degradation under UV irradiation : A lignin characterization. *Journal of Photochemistry and Photobiology B: Biology*, 158, 184-191.
- De Vilhena, M., Matos, R., Ramos Junior, G., Viegas, B., Da Silva Junior, C., Macedo, E., Paula, M., Da Silva Souza, J., Candido, V., & De Sousa Cunha, E. (2023). Influence of Glycerol and SISAL Microfiber Contents on the Thermal and Tensile Properties of Thermoplastic Starch Composites. *Polymers*, 15(20), 4141. <https://doi.org/10.3390/polym15204141>
- Decroix, C., Chalamet, Y., Sudre, G., & Carroll, V. (2020). Thermo-mechanical properties and blend behaviour of cellulose acetate/lactates and acid systems : Natural-based plasticizers. *Carbohydrate Polymers*, 237, 116072. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2020.116072>
- Deng, J., Li, K., Harkin-Jones, E., Price, M., Karnachi, N., Kelly, A., Vera-Sorroche, J., Coates, P., Brown, E., & Fei, M. (2014). Energy monitoring and quality control of a single screw extruder. *Applied Energy*, 113, 1775-1785. <https://doi.org/10.1016/j.apenergy.2013.08.084>
- Diouf, P. M., Thiandoume, C., Abdulrahman, S. T., Ndour, O., Jibin, K. P., Maria, H. J., Thomas, S., & Tidjani, A. (2022). Mechanical and rheological properties of

recycled high-density polyethylene and ronier palm leaf fiber based biocomposites. *Journal of Applied Polymer Science*, 139(9), 51713.
<https://doi.org/10.1002/app.51713>

Dobos, A. M., Barga, A., Dunca, S., Rîmbu, C. M., & Filimon, A. (2023). Cellulose acetate/silica composites : Physicochemical and biological characterization. *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials*, 144, 106002.
<https://doi.org/10.1016/j.jmbbm.2023.106002>

Dönmez Çavdar, A., Tomak, E. D., Boran Torun, S., & Arpacı, S. S. (2021). Accelerated weathering resistance of high-density polyethylene composites reinforced with microcrystalline cellulose and fire retardants. *Journal of Building Engineering*, 39, 102282. <https://doi.org/10.1016/j.jobbe.2021.102282>

Elfaleh, I., Abbassi, F., Habibi, M., Ahmad, F., Guedri, M., Nasri, M., & Garnier, C. (2023). A comprehensive review of natural fibers and their composites : An eco-friendly alternative to conventional materials. *Results in Engineering*, 19, 101271. <https://doi.org/10.1016/j.rineng.2023.101271>

Fabiya, J. S., McDonald, A. G., Wolcott, M. P., & Griffiths, P. R. (2008). Wood plastic composites weathering : Visual appearance and chemical changes. *Polymer Degradation and Stability*, 93(8), 1405-1414.
<https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2008.05.024>

Faruk, O., Bledzki, A. K., Fink, H.-P., & Sain, M. (2014). Progress Report on Natural Fiber Reinforced Composites : Progress Report on Natural Fiber Composites.

Macromolecular Materials and Engineering, 299(1), 9-26.

<https://doi.org/10.1002/mame.201300008>

Fischer, S., Thümmeler, K., Volkert, B., Hettrich, K., Schmidt, I., & Fischer, K.

(2008). Properties and Applications of Cellulose Acetate. *Macromolecular*

Symposia, 262(1), 89-96. <https://doi.org/10.1002/masy.200850210>

Gamon, G., Evon, Ph., & Rigal, L. (2013). Twin-screw extrusion impact on natural

fibre morphology and material properties in poly(lactic acid) based

biocomposites. *Industrial Crops and Products*, 46, 173-185.

<https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2013.01.026>

Godard, F., Vincent, M., Agassant, J.-F., & Vergnes, B. (2008). Étude du

comportement rhéologique et des propriétés mécaniques de composites

sciures de bois-polyéthylène haute densité. *Rhéologie*, 13, 9.

Golmaei, M., Kinnarinen, T., Jernström, E., & Häkkinen, A. (2017). Study on the

filtration characteristics of green liquor dregs. *Chemical Engineering Journal*,

317, 471-480. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2017.02.104>

Gontijo De Melo, P., Fornazier Borges, M., Afonso Ferreira, J., Vicente Barbosa

Silva, M., & Ruggiero, R. (2018). Bio-Based Cellulose Acetate Films

Reinforced with Lignin and Glycerol. *International Journal of Molecular*

Sciences, 19(4), 1143. <https://doi.org/10.3390/ijms19041143>

Grause, G., Chien, M.-F., & Inoue, C. (2020). Changes during the weathering of

polyolefins. *Polymer Degradation and Stability*, 181, 109364.

<https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2020.109364>

- 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. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2015.06.007>
- Gutiérrez, M. C., De Paoli, M.-A., & Felisberti, M. I. (2012). Biocomposites based on cellulose acetate and short curauá fibers : Effect of plasticizers and chemical treatments of the fibers. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 43(8), 1338-1346. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2012.03.006>
- Gutiérrez, M. C., De Paoli, M.-A., & Felisberti, M. I. (2014). Cellulose acetate and short curauá fibers biocomposites prepared by large scale processing : Reinforcing and thermal insulating properties. *Industrial Crops and Products*, 52, 363-372. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2013.10.054>
- Hadj-Djilani, A., Bougherara, H., Zitoune, R., & Toubal, L. (2024). Assessing the impact of accelerated weathering on the mechanical properties of a flax/epoxy composite : A study on tensile performance and drop-weight impact. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 184, 108277. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2024.108277>
- Hamma, A., Kaci, M., Mohd Ishak, Z. A., & Pegoretti, A. (2014). Starch-grafted-polypropylene/kenaf fibres composites. Part 1 : Mechanical performances and viscoelastic behaviour. *Composites Part A: Applied Science and*

Manufacturing, 56, 328-335.

<https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2012.11.010>

Hassan, M., Mohanty, A. K., & Misra, M. (2024). 3D printing in upcycling plastic and biomass waste to sustainable polymer blends and composites : A review.

Materials & Design, 237, 112558.

<https://doi.org/10.1016/j.matdes.2023.112558>

Hazarika, A., & Maji, T. K. (2017). Ultraviolet resistance and other physical properties of softwood polymer nanocomposites reinforced with ZnO nanoparticles and nanoclay. *Wood Material Science & Engineering*, 12(1), 24-39. <https://doi.org/10.1080/17480272.2014.992471>

Helaoui, S., Koubaa, A., Nouri, H., Beauregard, M., & Guessasma, S. (2024). 3D printing of biodegradable biocomposites based on forest industrial residues by fused deposition modeling. *Industrial Crops and Products*, 222, 119799.

<https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2024.119799>

Hernández-Alvarado, M. J., Rodríguez-Salazar, A. E., Torres-Huerta, A. M., Gutiérrez-Galicia, F., Hernández-Alvarado, L. A., & Domínguez-Crespo, M. A. (2026). The evolution of biocomposites in renewable energy : An integrated review of research trends, patent activity, and technological innovation (2004–2024). *Fuel*, 404, 136225.

<https://doi.org/10.1016/j.fuel.2025.136225>

Homkhiew, C., Ratanawilai, T., & Thongruang, W. (2014). Effects of natural weathering on the properties of recycled polypropylene composites reinforced

with rubberwood flour. *Industrial Crops and Products*, 56, 52-59.

<https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2014.02.034>

Hosseini, S. B., Gaff, M., Li, H., & Hui, D. (2023). Effect of fiber treatment on physical and mechanical properties of natural fiber-reinforced composites : A review. *REVIEWS ON ADVANCED MATERIALS SCIENCE*, 62(1), 20230131. <https://doi.org/10.1515/rams-2023-0131>

Hsissou, R., Seghiri, R., Benzekri, Z., Hilali, M., Rafik, M., & Elharfi, A. (2021). Polymer composite materials : A comprehensive review. *Composite Structures*, 262, 113640. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2021.113640>

Huang, H.-X., & Zhang, J.-J. (2009). Effects of filler–filler and polymer–filler interactions on rheological and mechanical properties of HDPE–wood composites. *Journal of Applied Polymer Science*, 111(6), 2806-2812. <https://doi.org/10.1002/app.29336>

Ilyas, R., Zuhri, M., Aisyah, H., Asyraf, M., Hassan, S., Zainudin, E., Sapuan, S., Sharma, S., Bangar, S., Jumaidin, R., Nawab, Y., Faudzi, A., Abral, H., Asrofi, M., Syafri, E., & Sari, N. (2022). Natural Fiber-Reinforced Polylactic Acid, Polylactic Acid Blends and Their Composites for Advanced Applications. *Polymers*, 14(1), 202. <https://doi.org/10.3390/polym14010202>

Imane, B. M., Asma, A., Fouad, C. S., & Mohamed, S. (2015). Weathering Effects on the Microstructure Morphology of Low Density Polyethylene. *Procedia - Social and Behavioral Sciences*, 195, 2228-2235. <https://doi.org/10.1016/j.sbspro.2015.06.306>

Jafarian Jam, N., & Hossein Behraves, A. (2009). Challenge to the Production of Fine Wood—Plastic Injection Molded Composites. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 28(1), 73-82.

<https://doi.org/10.1177/0731684407083004>

Joseph, S., Deenadayalan, E., & Mahanwar, P. A. (2015). Studies on Melt Processable Biocomposites of Polylactic Acid. *Journal of Polymers and the Environment*, 23(3), 321-333. <https://doi.org/10.1007/s10924-014-0668-5>

Khoshnevisan, K., Maleki, H., Samadian, H., Shahsavari, S., Sarrafzadeh, M. H., Larijani, B., Dorkoosh, F. A., Haghpanah, V., & Khorramizadeh, M. R. (2018). Cellulose acetate electrospun nanofibers for drug delivery systems : Applications and recent advances. *Carbohydrate Polymers*, 198, 131-141. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2018.06.072>

Khouaja, A., Koubaa, A., & Ben Daly, H. (2021). Dielectric properties and thermal stability of cellulose high-density polyethylene bio-based composites. *Industrial Crops and Products*, 171, 113928. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2021.113928>

Khouaja, A., Koubaa, A., & Ben Daly, H. (2024). Study of the dielectric and chemical properties of cellulose bio-based composites. *Industrial Crops and Products*, 214, 118493. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2024.118493>

Khouaja, A., Koubaa, A., & Ben Daly, H. (2025a). Mechanical and morphological properties of cellulose biocomposites. *Chemosphere*, 379, 144415. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2025.144415>

- Khouaja, A., Koubaa, A., & Ben Daly, H. (2025b). Rheological Properties of Cellulose Biocomposites. In R. Elleuch, B. Ben Difallah, R. Mnif, M. Baklouti, A. Abdelkefi, & M. Kharrat (Éds.), *Advances in Mechanical Engineering, Materials and Mechanics II* (p. 594-603). Springer Nature Switzerland. https://doi.org/10.1007/978-3-031-89733-7_59
- Kim, Y. S., Lee, K. H., & Kim, J. S. (2016). Weathering characteristics of bamboo (*Phyllostachys pubescence*) exposed to outdoors for one year. *Journal of Wood Science*, 62(4), 332-338. <https://doi.org/10.1007/s10086-016-1562-7>
- Kimura, T., Takeuchi, T., Phulkerd, P., Pichaipanich, P., Kugimoto, D., Kouda, S., Kida, T., & Yamaguchi, M. (2024). Rheological Properties of poly(Lactic acid) Modified by Cellulose Acetate Propionate. *Journal of Polymers and the Environment*, 32(4), 1849-1859. <https://doi.org/10.1007/s10924-023-03104-5>
- Kinnarinen, T., Golmaei, M., Jernström, E., & Häkkinen, A. (2016). Separation, treatment and utilization of inorganic residues of chemical pulp mills. *Journal of Cleaner Production*, 133, 953-964. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2016.06.024>
- Koffi, A., Koffi, D., & Toubal, L. (2021). Mechanical properties and drop-weight impact performance of injection-molded HDPE/birch fiber composites. *Polymer Testing*, 93, 106956. <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2020.106956>
- Kumari, R., Ito, H., Takatani, M., Uchiyama, M., & Okamoto, T. (2007). Fundamental studies on wood/cellulose-plastic composites : Effects of

composition and cellulose dimension on the properties of cellulose/PP composite. *Journal of Wood Science*, 53(6), 470-480.

<https://doi.org/10.1007/s10086-007-0889-5>

Lecoublet, M., Ragoubi, M., Kenfack, L. B., Leblanc, N., & Koubaa, A. (2023). How Do 3D Printing Parameters Affect the Dielectric and Mechanical Performance of Polylactic Acid–Cellulose Acetate Polymer Blends? *Journal of Composites Science*, 7(12), 492. <https://doi.org/10.3390/jcs7120492>

Lecoublet, M., Ragoubi, M., Leblanc, N., & Koubaa, A. (2023). Dielectric and rheological performances of cellulose acetate, polylactic acid and polyhydroxybutyrate-co-valerate biobased blends. *Polymer*, 285, 126358. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2023.126358>

Liu, L., Gong, D., Bratasz, L., Zhu, Z., & Wang, C. (2019). Degradation markers and plasticizer loss of cellulose acetate films during ageing. *Polymer Degradation and Stability*, 168, 108952. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2019.108952>

Liu, Y., Ahmed, S., Sameen, D. E., Wang, Y., Lu, R., Dai, J., Li, S., & Qin, W. (2021). A review of cellulose and its derivatives in biopolymer-based for food packaging application. *Trends in Food Science & Technology*, 112, 532-546. <https://doi.org/10.1016/j.tifs.2021.04.016>

Lou, H., Lai, H., Wang, M., Pang, Y., Yang, D., Qiu, X., Wang, B., & Zhang, H. (2013). Preparation of Lignin-Based Superplasticizer by Graft Sulfonation and Investigation of the Dispersive Performance and Mechanism in a

- Cementitious System. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 52(46), 16101-16109. <https://doi.org/10.1021/ie402169g>
- Mazzanti, V., & Mollica, F. (2020). A Review of Wood Polymer Composites Rheology and Its Implications for Processing. *Polymers*, 12(10), 2304. <https://doi.org/10.3390/polym12102304>
- Mboowa, D. (2024). A review of the traditional pulping methods and the recent improvements in the pulping processes. *Biomass Conversion and Biorefinery*, 14(1), 1-12. <https://doi.org/10.1007/s13399-020-01243-6>
- 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. <https://doi.org/10.1002/app.28720>
- Migneault, S., Koubaa, A., Erchiqui, F., Chaala, A., Englund, K., & Wolcott, M. P. (2009). Effects of processing method and fiber size on the structure and properties of wood–plastic composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 40(1), 80-85. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2008.10.004>
- Migneault, S., Koubaa, A., Nadji, H., Riedl, B., Zhang, S. Y. (Tony), & Deng, J. (2010). Medium-Density Fiberboard Produced Using Pulp and Paper Sludge from Different Pulping Processes. *Wood and Fiber Science*, 292-303.
- Migneault, S., Koubaa, A., & Perré, P. (2014). Effect of Fiber Origin, Proportion, and Chemical Composition on the Mechanical and Physical Properties of Wood-

- Plastic Composites. *Journal of Wood Chemistry and Technology*, 34(4), 241-261. <https://doi.org/10.1080/02773813.2013.869604>
- Mohammadi, M., Ishak, M. R., & Sultan, M. T. H. (2024). Exploring Chemical and Physical Advancements in Surface Modification Techniques of Natural Fiber Reinforced Composite : A Comprehensive Review. *Journal of Natural Fibers*, 21(1), 2408633. <https://doi.org/10.1080/15440478.2024.2408633>
- Mohammed, M., Jawad, A. J. M., Mohammed, A. M., Oleiwi, J. K., Adam, T., Osman, A. F., Dahham, O. S., Betar, B. O., Gopinath, S. C. B., & Jaafar, M. (2023). Challenges and advancement in water absorption of natural fiber-reinforced polymer composites. *Polymer Testing*, 124, 108083. <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2023.108083>
- Mohanty, A. K., Misra, M., & Drzal, L. T. (2001). Surface modifications of natural fibers and performance of the resulting biocomposites : An overview. *Composite Interfaces*, 8(5), 313-343. <https://doi.org/10.1163/156855401753255422>
- Mohanty, A. K., Wibowo, A., Misra, M., & Drzal, L. T. (2003). Development of renewable resource-based cellulose acetate bioplastic : Effect of process engineering on the performance of cellulosic plastics. *Polymer Engineering & Science*, 43(5), 1151-1161. <https://doi.org/10.1002/pen.10097>
- Mohanty, A. K., Wibowo, A., Misra, M., & Drzal, L. T. (2004). Effect of process engineering on the performance of natural fiber reinforced cellulose acetate

- biocomposites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 35(3), 363-370. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2003.09.015>
- Motaung, T. E., & Liganiso, L. Z. (2018). Critical review on agrowaste cellulose applications for biopolymers. *International Journal of Plastics Technology*, 22(2), 185-216. <https://doi.org/10.1007/s12588-018-9219-6>
- Mrad, H., Alix, S., Migneault, S., Koubaa, A., & Perré, P. (2018). Numerical and experimental assessment of water absorption of wood-polymer composites. *Measurement*, 115, 197-203. <https://doi.org/10.1016/j.measurement.2017.10.011>
- Mušič, B., Jemec Kokalj, A., & Sever Škapin, A. (2023). Influence of Weathering on the Degradation of Cellulose Acetate Microplastics Obtained from Used Cigarette Butts. *Polymers*, 15(12), 2751. <https://doi.org/10.3390/polym15122751>
- N. Bifari, E., Bahadar Khan, S., A. Alamry, K., M. Asiri, A., & Akhtar, K. (2016). Cellulose Acetate Based Nanocomposites for Biomedical Applications : A Review. *Current Pharmaceutical Design*, 22(20), 3007-3019. <https://doi.org/10.2174/1381612822666160316160016>
- Nabili, A., Fattoum, A., Brochier-Salon, M.-C., Bras, J., & Elaloui, E. (2017). Synthesis of cellulose triacetate-I from microfibrillated date seeds cellulose (Phoenix dactylifera L.). *Iranian Polymer Journal*, 26(2), 137-147. <https://doi.org/10.1007/s13726-017-0505-5>

- Nagaraja, S., Bindiganavile Anand, P., Mahadeva Naik, R. N., & Gunashekaran, S. (2022). Effect of aging on the biopolymer composites : Mechanisms, modes and characterization. *Polymer Composites*, 43(7), 4115-4125.
<https://doi.org/10.1002/pc.26708>
- Nasri, K., Toubal, L., Loranger, É., & Koffi, D. (2022). Influence of UV irradiation on mechanical properties and drop-weight impact performance of polypropylene biocomposites reinforced with short flax and pine fibers. *Composites Part C: Open Access*, 9, 100296.
<https://doi.org/10.1016/j.jcomc.2022.100296>
- Ngueho Yemele, M. C., Koubaa, A., Cloutier, A., Soulounganga, P., Stevanovic, T., & Wolcott, M. P. (2013). Effects of hot water treatment of raw bark, coupling agent, and lubricants on properties of bark/HDPE composites. *Industrial Crops and Products*, 42, 50-56. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2012.05.012>
- Nguyen, V. D., Nguyen, T. T., Zhang, A., Hao, J., & Wang, W. (2020a). Effect of three tree species on UV weathering of wood flour-HDPE composites. *Journal of Forestry Research*, 31(3), 1071-1079.
<https://doi.org/10.1007/s11676-019-00890-4>
- Nguyen, V. D., Nguyen, T. T., Zhang, A., Hao, J., & Wang, W. (2020b). Effect of three tree species on UV weathering of wood flour-HDPE composites. *Journal of Forestry Research*, 31(3), 1071-1079.
<https://doi.org/10.1007/s11676-019-00890-4>

- Nunes, S., Ramacciotti, F., Neves, A., Angelin, E. M., Ramos, A. M., Roldão, É., Wallaszkovits, N., Armijo, A. A., & Melo, M. J. (2020). A diagnostic tool for assessing the conservation condition of cellulose nitrate and acetate in heritage collections : Quantifying the degree of substitution by infrared spectroscopy. *Heritage Science*, 8(1), 33. <https://doi.org/10.1186/s40494-020-00373-4>
- Pang, C., Shanks, R. A., & Daver, F. (2014a). *Bio-composites based on cellulose acetate and kenaf fibers : Processing and properties*. 350-353. <https://doi.org/10.1063/1.4873798>
- Pang, C., Shanks, R. A., & Daver, F. (2015). Characterization of kenaf fiber composites prepared with tributyl citrate plasticized cellulose acetate. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 70, 52-58. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2014.12.003>
- Pang, C., Shanks, R., & Daver, F. (2014b). Cellulose fibre-cellulose acetate hybrid composites with nanosilica. *Journal of Polymer Engineering*, 34(2), 141-144. <https://doi.org/10.1515/polyeng-2013-0168>
- Park, H.-M., Misra, M., Drzal, L. T., & Mohanty, A. K. (2004). “Green” Nanocomposites from Cellulose Acetate Bioplastic and Clay : Effect of Eco-Friendly Triethyl Citrate Plasticizer. *Biomacromolecules*, 5(6), 2281-2288. <https://doi.org/10.1021/bm049690f>
- Paulsson, M., & Parkås, J. (2012). REVIEW : LIGHT-INDUCED YELLOWING OF LIGNOCELLULOSIC PULPS – MECHANISMS AND PREVENTIVE

METHODS. *BioResources*, 7(4). <https://doi.org/10.15376/biores.7.4.5995-6040>

- Peng, Y., Liu, R., & Cao, J. (2015). Characterization of surface chemistry and crystallization behavior of polypropylene composites reinforced with wood flour, cellulose, and lignin during accelerated weathering. *Applied Surface Science*, 332, 253-259. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2015.01.147>
- Phiri, R., Mavinkere Rangappa, S., Siengchin, S., Oladijo, O. P., & Dhakal, H. N. (2023). Development of sustainable biopolymer-based composites for lightweight applications from agricultural waste biomass : A review. *Advanced Industrial and Engineering Polymer Research*, S2542504823000337. <https://doi.org/10.1016/j.aiepr.2023.04.004>
- Pokharel, A., Falua, K. J., Babaei-Ghazvini, A., & Acharya, B. (2022). Biobased Polymer Composites : A Review. *Journal of Composites Science*, 6(9), 255. <https://doi.org/10.3390/jcs6090255>
- Qi, R., He, C., & Jin, Q. (2021). Accelerated weathering of polyvinyl chloride-based wood-plastic composites : Effect of plant species. *BioResources*, 16(3), 5261-5271. <https://doi.org/10.15376/biores.16.3.5261-5271>
- Rabbi, M. S., Islam, T., & Islam, G. M. S. (2021a). Injection-molded natural fiber-reinforced polymer composites—a review. *International Journal of Mechanical and Materials Engineering*, 16(1), 15. <https://doi.org/10.1186/s40712-021-00139-1>

- Rabbi, M. S., Islam, T., & Islam, G. M. S. (2021b). Injection-molded natural fiber-reinforced polymer composites—a review. *International Journal of Mechanical and Materials Engineering*, 16(1), 15.
<https://doi.org/10.1186/s40712-021-00139-1>
- Rambaldi, D. C., Suryawanshi, C., Eng, C., & Preusser, F. D. (2014). Effect of thermal and photochemical degradation strategies on the deterioration of cellulose diacetate. *Polymer Degradation and Stability*, 107, 237-245.
<https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2013.12.004>
- Ramesh, M., Rajeshkumar, L., Sasikala, G., Balaji, D., Saravanakumar, A., Bhuvaneswari, V., & Bhoopathi, R. (2022). A Critical Review on Wood-Based Polymer Composites : Processing, Properties, and Prospects. *Polymers*, 14(3), 589. <https://doi.org/10.3390/polym14030589>
- Ramli, N., Mazlan, N., Ando, Y., Leman, Z., Abdan, K., Aziz, A. A., & Sairy, N. A. (2018). Natural fiber for green technology in automotive industry : A brief review. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, 368, 012012. <https://doi.org/10.1088/1757-899X/368/1/012012>
- Ratanawilai, T., & Taneerat, K. (2018). Alternative polymeric matrices for wood-plastic composites : Effects on mechanical properties and resistance to natural weathering. *Construction and Building Materials*, 172, 349-357.
<https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.03.266>
- Rejeb, M., Koubaa, A., Elleuch, F., Godard, F., Migneault, S., Bouslimi, B., Khlif, M., & Mrad, H. (2021). Effects of Chromic Treatment on the Surface

- Properties of Polypropylene (PP) Wood Composites. *Coatings*, 11(7), 851.
<https://doi.org/10.3390/coatings11070851>
- Rejeb, M., Koubaa, A., Elleuch, F., Godard, F., Migneault, S., Khlif, M., & Mrad, H. (2021). Effects of Coating on the Dimensional Stability of Wood-Polymer Composites. *Coatings*, 11(6), 711. <https://doi.org/10.3390/coatings11060711>
- Sadasivuni, K. K., Saha, P., Adhikari, J., Deshmukh, K., Ahamed, M. B., & Cabibihan, J. (2020). Recent advances in mechanical properties of biopolymer composites : A review. *Polymer Composites*, 41(1), 32-59.
<https://doi.org/10.1002/pc.25356>
- Saddem, M., Koubaa, A., Bouafif, H., Migneault, S., & Riedl, B. (2019). Effect of fiber and polymer variability on the rheological properties of wood polymer composites during processing. *Polymer Composites*, 40(S1).
<https://doi.org/10.1002/pc.24909>
- Sadeghifar, H., & Ragauskas, A. (2020). Lignin as a UV Light Blocker—A Review. *Polymers*, 12(5), 1134. <https://doi.org/10.3390/polym12051134>
- Sango, T., Koubaa, A., Ragoubi, M., Yemele, M. C. N., & Leblanc, N. (2024). Insights into the functionalities of cellulose acetate and microcrystalline cellulose on water absorption, crystallization, and thermal degradation kinetics of a ternary polybutylene succinate-based hybrid composite. *Industrial Crops and Products*, 222, 119572.
<https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2024.119572>

- Satyanarayana, K. G., Arizaga, G. G. C., & Wypych, F. (2009). Biodegradable composites based on lignocellulosic fibers—An overview. *Progress in Polymer Science*, 34(9), 982-1021.
<https://doi.org/10.1016/j.progpolymsci.2008.12.002>
- Schirp, A., & Stender, J. (2010). Eigenschaften von extrudierten Holz-Kunststoff-Werkstoffen auf Basis von Refiner-(TMP-)Fasern und Hanffasern. *European Journal of Wood and Wood Products*, 68(2), 219-231.
<https://doi.org/10.1007/s00107-009-0372-7>
- Segerholm, B. K., Walkenström, P., Nyström, B., Wålinder, M. E. P., & Larsson Breid, P. (2007). Micromorphology, moisture sorption and mechanical properties of a biocomposite based on acetylated wood particles and cellulose ester. *Wood Material Science and Engineering*, 2(3-4), 106-117.
<https://doi.org/10.1080/17480270801906175>
- Shaikh, H. M., Anis, A., Poulose, A. M., Al-Zahrani, S. M., Madhar, N. A., Alhamidi, A., Aldeligan, S. H., & Alsubaie, F. S. (2022). Synthesis and Characterization of Cellulose Triacetate Obtained from Date Palm (Phoenix dactylifera L.) Trunk Mesh-Derived Cellulose. *Molecules*, 27(4), 1434.
<https://doi.org/10.3390/molecules27041434>
- Singh, S., & Mohanty, A. (2007). Wood fiber reinforced bacterial bioplastic composites : Fabrication and performance evaluation. *Composites Science and Technology*, 67(9), 1753-1763.
<https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2006.11.009>

- Soccalingame, L., Perrin, D., Bénézet, J.-C., & Bergeret, A. (2016). Reprocessing of UV-weathered wood flour reinforced polypropylene composites : Study of a natural outdoor exposure. *Polymer Degradation and Stability*, 133, 389-398. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2016.09.011>
- Soucy, J. (2007). *Potentiel d'utilisation des fibres de papier dans la conception de composites bois polymères par une technique d'extrusion* [Masters, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue ; Université du Québec à Chicoutimi]. <https://depositum.uqat.ca/id/eprint/125/>
- Soucy, J., Godard, F., Rivard, P., & Koubaa, A. (2018). Rheological behavior of high-density polyethylene (HDPE) filled with paper mill sludge. *Journal of Applied Polymer Science*, 135(28), 46484. <https://doi.org/10.1002/app.46484>
- Soucy, J., Koubaa, A., Migneault, S., & Riedl, B. (2016). Chemical Composition and Surface Properties of Paper Mill Sludge and their Impact on High Density Polyethylene (HDPE) Composites. *Journal of Wood Chemistry and Technology*, 36(2), 77-93. <https://doi.org/10.1080/02773813.2015.1057647>
- Španić, N. (2015). Chemical and Thermal Properties of Cellulose Acetate Prepared from White Willow (*Salix alba*) and Black Alder (*Alnus glutinosa*) as a Potential Polymeric Base of Biocomposite Materials. *Chemical and Biochemical Engineering Quarterly*, 29(3), 357-365. <https://doi.org/10.15255/CABEQ.2015.2176>
- Spiridon, I., Leluk, K., Resmerita, A. M., & Darie, R. N. (2015). Evaluation of PLA–lignin bioplastics properties before and after accelerated weathering.

Composites Part B: Engineering, 69, 342-349.

<https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2014.10.006>

Stark, N. M., & Matuana, L. M. (2003). Ultraviolet weathering of photostabilized wood-flour-filled high-density polyethylene composites. *Journal of Applied Polymer Science*, 90(10), 2609-2617. <https://doi.org/10.1002/app.12886>

Stark, N. M., & Matuana, L. M. (2006). Influence of photostabilizers on wood flour–HDPE composites exposed to xenon-arc radiation with and without water spray. *Polymer Degradation and Stability*, 91(12), 3048-3056.

<https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2006.08.003>

Suzuki, S., Yada, R., Hamano, Y., Wada, N., & Takahashi, K. (2020). Green Synthesis and Fractionation of Cellulose Acetate by Controlling the Reactivity of Polysaccharides in Sugarcane Bagasse. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, 8(24), 9002-9008.

<https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.0c01639>

Sykacek, E., Hrabalova, M., Frech, H., & Mundigler, N. (2009a). Extrusion of five biopolymers reinforced with increasing wood flour concentration on a production machine, injection moulding and mechanical performance. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 40(8), 1272-1282.

<https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2009.05.023>

Sykacek, E., Hrabalova, M., Frech, H., & Mundigler, N. (2009b). Extrusion of five biopolymers reinforced with increasing wood flour concentration on a production machine, injection moulding and mechanical performance.

Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 40(8), 1272-1282.

<https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2009.05.023>

Sykacek, E., Schlager, W., & Mundigler, N. (2010). Compatibility of softwood flour and commercial biopolymers in injection molding. *Polymer Composites*,

31(3), 443-451. <https://doi.org/10.1002/pc.20823>

Tabatabaee, F., Hanifi, S., & Tavakkol, M. (2024). Glycerol-treated

polypropylene/carbon black nanocomposites : Analysis of electrical,

rheological, thermal and mechanical properties. *Journal of Elastomers &*

Plastics, 56(1), 74-90. <https://doi.org/10.1177/00952443231215471>

Taha, I., & Ziegmann, G. (2006). A Comparison of Mechanical Properties of Natural Fiber Filled Biodegradable and Polyolefin Polymers. *Journal of Composite*

Materials, 40(21), 1933-1946. <https://doi.org/10.1177/0021998306061304>

Tan, J., Liang, Y., Sun, L., Yang, Z., Xu, J., Dong, D., & Liu, H. (2023). Degradation Characteristics of Cellulose Acetate in Different Aqueous Conditions.

Polymers, 15(23), 4505. <https://doi.org/10.3390/polym15234505>

Teixeira, S. C., Silva, R. R. A., De Oliveira, T. V., Stringheta, P. C., Pinto, M. R. M.

R., & Soares, N. D. F. F. (2021). Glycerol and triethyl citrate plasticizer

effects on molecular, thermal, mechanical, and barrier properties of cellulose acetate films. *Food Bioscience*, 42, 101202.

<https://doi.org/10.1016/j.fbio.2021.101202>

- THI, V. D. (2017). *Modélisation du comportement au feu des structures en bois / Modelling the behaviour of timber structures under fire*.
<https://doi.org/10.13140/RG.2.2.22917.86245>
- Thiebaud-Roux, S. (1995). *Valorisation chimique de composés lignocellulosiques* [PhD Thesis, Institut National Polytechnique (Toulouse)].
<https://hal.science/tel-04287700/>
- Tripathi, N., Misra, M., & Mohanty, A. K. (2021). Durable Polylactic Acid (PLA)-Based Sustainable Engineered Blends and Biocomposites : Recent Developments, Challenges, and Opportunities. *ACS Engineering Au*, 1(1), 7-38. <https://doi.org/10.1021/acsengineeringau.1c00011>
- Ullah, S., Akhter, Z., Palevicius, A., & Janusas, G. (2025). Review : Natural fiber-based biocomposites for potential advanced automotive applications. *Journal of Engineered Fibers and Fabrics*, 20, 15589250241311468.
<https://doi.org/10.1177/15589250241311468>
- Varyan, I., Kolesnikova, N., Xu, H., Tyubaeva, P., & Popov, A. (2022). Biodegradability of Polyolefin-Based Compositions : Effect of Natural Rubber. *Polymers*, 14(3), 530. <https://doi.org/10.3390/polym14030530>
- Win, y, & Stark, C. (2004). *CONSIDERATIONS IN RECYCLING OF WOOD-PLASTIC COMPOSITES*.
- Wsoo, M. A., Shahir, S., Mohd Bohari, S. P., Nayan, N. H. M., & Razak, S. I. A. (2020). A review on the properties of electrospun cellulose acetate and its

- application in drug delivery systems : A new perspective. *Carbohydrate Research*, 491, 107978. <https://doi.org/10.1016/j.carres.2020.107978>
- Yadav, S. M., Lubis, M. A. R., & Sihag, K. (2021). A Comprehensive Review on Process and Technological Aspects of Wood-Plastic Composites. *Jurnal Sylva Lestari*, 9(2), 329. <https://doi.org/10.23960/jsl29329-356>
- Yang, Y., Boom, R., Irion, B., Van Heerden, D.-J., Kuiper, P., & De Wit, H. (2012). Recycling of composite materials. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, 51, 53-68. <https://doi.org/10.1016/j.cep.2011.09.007>
- Yıldız, Ş., Morcali, M. H., Ziba, C. A., Copcu, B., & Dolaz, M. (2019). Synthesis and Characterization of Cellulose Derivatives from Industrial Towel Waste. *ChemistrySelect*, 4(28), 8358-8364. <https://doi.org/10.1002/slct.201900398>
- Zepnik, S., Hildebrand, T., Kabasci, S., Ra-dusch, H.-J., & Wodke, T. (2013). Cellulose Acetate for Thermoplastic Foam Extrusion. In J. Kadla (Éd.), *Cellulose—Biomass Conversion*. InTech. <https://doi.org/10.5772/56215>
- Zhang, J., Park, C. B., Rizvi, G. M., Huang, H., & Guo, Q. (2009). Investigation on the uniformity of high-density polyethylene/wood fiber composites in a twin-screw extruder. *Journal of Applied Polymer Science*, 113(4), 2081-2089. <https://doi.org/10.1002/app.29991>