



Université Mohamed Khider de Biskra
Faculté des Sciences Exactes et des Sciences de la Nature et de la Vie
Département des Sciences de la Matière

MÉMOIRE DE MASTER

En vue de l'obtention d'un diplôme Startup / Projet innovant régi par l'arrêté ministériel
n° 1275

Domaine : Sciences de la Matière

Filière : Chimie

Spécialité : chimie des matériaux

Réf. : ...

Présenté et soutenu par :

LAKEHAL MAROUA

Le : 02/07/2023

Valorisation des déchets de bouteilles en plastiques et gobelets en papier dans la fabrication des matières plastiques à usage quotidien

Jury :

Mme	Djouama Hanane	MCB	Université de Biskra	Présidente
Melle	Boussehel Hamida	MCA	Université de Biskra	Reportrice
Mme	Djoudi Lynda	MCB	Université de Biskra	Examinatrice

Année universitaire : 2022-2023

REMERCIEMENTS

Nous remercions avant tout le Bon Dieu de nous avoir donné le savoir et la faculté de pouvoir pour suivre nos études.

Nous souhaitons adresser nos remerciements les plus sincères à notre promotrice Dr. BOUSSEHEL Hamida qui nous a permis de bénéficier de la qualité de son encadrement, les conseils qu'elle nous a prodigués, la patience et la confiance qu'elle nous a témoignée.

Nos vifs remerciements vont au Dr DJOUAMA Hanane d'avoir accepté la présidence du jury, nous tenons compte à exprimer toute nos reconnaissances à Dr DJOUDI Lynda qui nous a fait l'honneur d'examiner notre travail, leur regards critiques ne sauront que rehausser le niveau de notre savoir-faire.

Nous exprimons nos sincères gratitude et remerciements au Pr. GUERJRA Belhi, chef de département de génie mécanique à la faculté des sciences et de la technologie de l'université de Biskra, pour sa disponibilité et ces précieuses aides pour l'élaboration et la caractérisation de nos composites élaborées.

Nous exprimons bien entendu nos remerciements les plus sincères pour tout l'ensemble du personnels de l'Enterprise Nationale des Industries des Câbles Biskra (ENICAB) pour leurs accueil et leurs aide, notamment que l'élaboration d'une partie de notre étude expérimentale et certaines caractérisations des composites ont été réalisées au niveau de l'entreprise, ENICAB. Nous tenons à remercier aussi tous les membres du laboratoire de chimie de l'université de Biskra pour leurs disponibilités et leurs précieuses aide, ainsi que l'ensemble des enseignants du département des Sciences de la Matière de l'Université Mohamed Khider Biskra pour la formation fournie durant les 5 années passées.

إهداء

أهدي ثمرة جهدي إلى والدي الكريمين حفظهما الله
وأطال الله في عمرهما

إلى كل عائلتي من اخوتي و أخواتي
سامية، خالد، عادل، مالك، ياسين، و إلى ابنة أختي لينة وهبة
الرحمان

إلى أخي عادل الذي ساعدني في كل صغيرة و كبيرة و الذي
لطالما كان مصدر قوة وتشجيع لي أتمنى له كل التوفيق في
حياته

إلى كل زميلاتي اللواتي أمضيت
معهن سنوات جامعية بجلوها ومرها
خاصة لمياء وهالة على وقوفهما
بجانبي طيلة فترة الدراسة

SOMMAIRE

Liste des Figures

Liste des Tableaux

INTRODUCTION GENERALE

Introduction générale.....	1
Référence	4

CHAPITRE I : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

I.1. LE POLYETHYLENE TEREPHTALATE (PET)	5
I.1.1. Synthèse du PET	5
I.1.2. Propriétés du PET	7
I.1.3. Domaines d'applications du PET.....	8
I.1.4. Recyclage du PET.....	9
I.2. LE PAPIER	11
I.2.1. Structure du papier	11
I.2.2. Le recyclage du papier.....	13
I.3. LES MATERIAUX COMPOSITES A CHARGES CELLULOSIQUE.....	14
I.3.1. Caractéristiques d'un matériau composite.....	14
I.3.2. Paramètres affectant les propriétés des composites à renfort cellulosique ...	15
Reference	19

CHAPITRE II : MATERIAUX UTILISES ET TECHNIQUES EXPERIMENTALES

II.1. MATERIAUX UTILISE.....	39
II.1.1. Le Polyéthylène Téréphthalate.....	39
II.1.2. Le Polyéthylène.....	39

II.1.3. L'acide chlorhydrique.....	40
II.1.4. Acide sulfurique.....	40
II.1.5. Acide méthacrylique.....	40
II.1.6. Persulfate de potassium	40
II.1.7. Eau de javel.....	41
II.2. TECHNIQUES EXPERIMENTALES.....	41
II.2.1. Préparation de fibre de gobelet en papier.....	41
II.2.2. Blanchissement des fibres de papier par l'eau de javel	42
II.2.3. Greffage chimique des fibres de papier par l'acide méthacrylique.....	42
II.2.4. Elaboration des composites PE/PET/ fibres de papier.....	43
II.3. TECHNIQUES DE CARACTERISATION.....	45
II.3.1 Analyse spectrale par IRTF.....	45
II.3.2. Test de dureté shore D.....	46
II.3.3. Essai de traction.....	46
Référence	49

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSION

III.1. CARACTERISATION DES FIBRES DE PAPIER	51
III.1.1. Analyse spectroscopique infrarouge à transformée de Fourier FTIR...	51
III.1.2. Mécanisme réactionnel de la polymérisation de l'acide méthacrylique sur les fibres cellulosiques.....	53 56
III.2. CARACTERISATION DES COMPOSITES ELABORES.....	56
III.2.1. Essai de traction	59
III.2. 2. Test de la dureté Shore D	60
III.2.3 Taux d'absorption d'eau	63
Référence	

CONCLUSION GENERALE

Conclusion générale	66
---------------------------	----

LISTE DES FIGURES

Figure I.1 : Motif de répétition du PET	5
Figure I.2: Capacité mondiale pour la production de PET en 2017 selon les régions.....	9
Figure I.3 : Codes d'identification des produits plastiques recyclables.....	10
Figure I.4 : Principe de la valorisation des matières plastiques.....	10
Figure I.5 : Etapes de recyclage des bouteilles en PET.....	11
Figure I.6: Molécule de cellulose (n répétitions du motif cellobiose).....	12
Figure I.7: Cycle de recyclage de papier.....	13
Figure I.8 : Les éléments constitutifs d'un matériau composite.....	14
Figure II.1 : Les gobelets en papier.....	41
Figure II.2 : Les étapes de préparation des fibres traitées par l'eau javel.....	42
Figure II.3 : Les fibres obtenues après le tamisage.....	43
Figure II.4 : Extrudeuse de type PolyLab.....	44
Figure II.5 : Granulés des composites de PE/PET renforcés des fibres de papier traitées et non traitées après l'extrusion.....	44
Figure II.6: Presse "SWHWABENTHAN POLYSTAT 300S".....	45
Figure II.11 : Les plaques des composites obtenus après moulage.....	45
Figure II.12 : Spectrophotomètre Agilent Cary 630 FTIR.....	46
Figure II.13: Duromètre utilisé.....	46
Figure II.14 : La machine de traction utilisée.....	47
Figure II.15 : Test d'absorption d'eau.....	48
Figure .III. 1. Spectres IRTF de la fibre de papier des gobelets (FNT) et greffé à l'acide méthacrylique (FGA).....	52
Figure III.2 : Evolution de la contrainte et l'allongement à la rupture des composites traitée et non traitée.....	57

Figure III.3 : Evolution de module d'Young des composites traitée et non traitée.....	58
Figure III.4 : Evolution de la dureté Shore des composites traitée et non traitée.....	59
Figure III.5 : Evolution du taux d'absorption d'eau des composites renforcées par les fibres cellulosique non traitée en fonction du temps.....	60
Figure III.6 : Formation des liaisons hydrogènes entre les molécules de cellulose et les molécules d'eau.....	61
Figure III.7 : Evolution du taux d'absorption d'eau des composites renforcées par 1% de fibres cellulosique traitée et non traitée en fonction du temps.....	62
Figure III.8 : Evolution du taux d'absorption d'eau des composites renforcées par 4% de fibres cellulosique traitée et non traitée en fonction du temps.....	62
Schéma I.1 : Synthèse du PET à partir du diméthyl téréphtalate et de l'éthylène glycol.....	6
Schéma I.2 : Synthèse du PET à partir de l'acide téréphtalique et l'éthylène glycol.....	7
Schéma III.1 : Mécanisme réactionnel d'activation du la cellulose.....	53
Schéma III.2 : Mécanisme réactionnel d'amorçage de l'acide méthacrylique sur la molécule de la cellulose.....	53
Schéma III.3 : Mécanisme réactionnel de la croissance de la chaine macromoléculaire cellulosique.....	54
Schéma III.4 : Mécanisme réactionnel de la terminaison de la chaine macromoléculaire cellulosique greffé par combinaison.....	55
Schéma III.5 : Mécanisme réactionnel de la croissance de la chaine macromoléculaire cellulosique.....	56

LISTE DES TABLEAUX

Tableau II.1 : Caractéristiques de polyéthylène PE-BD.....	39
Tableau II. 2: Les caractéristiques de L'acide chlorhydrique.....	40
Tableau II. 3 : Les caractéristiques de L'acide sulfurique.....	40
Tableau II.4: Caractéristiques d'acide méthacrylique.....	40
Tableau II. 5 : Les caractéristiques de potassium persulfate.....	41
Tableau II. 6 : Les caractéristiques de l'eau de javel.....	41
Tableau II. 7 : Composition des différentes formulations.....	43

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

L'un des principaux objectifs de la société actuelle est de vivre de manière saine. Cela signifie que nous devons changer notre façon d'acheter, de fabriquer et d'agir. Nous devons agir en tant que groupe et penser à l'échelle nationale plutôt qu'individuelle. L'économie circulaire est un moyen pour les entreprises, les États et la société dans son ensemble d'élaborer un plan qui peut fonctionner et durer [1]. Dans le secteur des plastiques, le modèle de production actuel, qui est rectiligne, doit être remplacé par un modèle qui ressemble davantage à un cercle. C'est pourquoi il est important de mettre en place des politiques qui créent une bonne base pour la croissance de systèmes qui traitent et manipulent mieux les déchets plastiques et les considèrent sur l'ensemble de leur cycle de vie. Même si les facteurs politiques et économiques sont très importants, la science sera probablement la force motrice du changement de modèle. Ainsi, les spécialistes des polymères proposent de nouvelles méthodes de recyclage du plastique qui sont plus efficaces, durent plus longtemps, peuvent être utilisées autant de fois que possible et peuvent être recyclées à nouveau à la fin du cycle de vie. Il est également important d'établir des règles concernant les produits qui finissent dans les mers, où ils deviennent des déchets plastiques et nuisent à l'écosystème océanique [2].

À l'échelle de production des plastiques, le poly (éthylène téréphtalate) (PET) occupe la cinquième place, à côté des polyuréthanes. Il représente environ 18 % de toutes les matières plastiques produites dans le monde [3]. En raison de ses propriétés chimiques, physiques, mécaniques et de barrières supérieures (faible perméabilité à l'O₂ et au CO₂), il s'agit d'un polyester thermoplastique largement utilisé dans divers domaines d'application, et plus de 60 % de sa production est destinée à la fabrication de tissus synthétiques et de bouteilles, qui utilisent environ 30 % de la demande mondiale de PET. La majorité de ces bouteilles de boissons ne sont utilisées qu'une seule fois, et en moyenne, seuls 17 % des déchets PET sont recyclés, ce qui provoque une pollution environnementale importante [1].

Différentes méthodes de recyclage du PET ont été mises au point au cours des deux dernières décennies afin de mettre en œuvre un système de production durable conforme au concept de l'économie circulaire. À l'heure actuelle, on distingue quatre voies de traitement des déchets de PET : le recyclage des matériaux de pré-consommation, qui sont des déchets

propres, non contaminés et de type unique, rejetés en raison de défauts de conception (recyclage primaire) ; le recyclage mécanique, dans lequel le PET doit être séparé des autres plastiques et nettoyé avant d'obtenir du PET recyclé (recyclage secondaire) ; et le recyclage chimique, qui consiste à dépolymériser le PET afin d'obtenir un produit de plus grande valeur (recyclage tertiaire), et enfin la récupération d'énergie par l'incinération de la matière organique (recyclage quaternaire) [4].

De nombreuses civilisations à travers l'histoire du monde ont utilisé avec succès le concept d'utilisation de fibres naturelles comme renforts dans les matériaux composite. cet utilisation est nécessaire pour se conformer aux nouvelles lois environnementales qui visent actuellement les industries à grand volume telles que l'industrie automobile et les industries électriques et électroniques [5]. La nature chimique différente des fibres de cellulose hydrophiles et des matrices polymères hydrophobes signifie que la force interfaciale a tendance à être faible. Pour l'amélioration de l'adhésion interfaciale entre la cellulose et la matrice thermoplastique, diverses méthodes de traitement de surface efficaces comme agents de couplage et agents de compatibilité tels que le maléate et le silane ont été utilisées pour augmenter la compatibilité entre les fibres naturelles et les matrices thermoplastiques, améliorant ainsi les performances des composites [6-9].

Les gobelets jetables en papier utilisés pour servir le café, le thé et d'autres boissons dans les points de vente connus contiennent un carton en fibre de cellulose vierge de haute qualité combiné à une fine couche interne de polyéthylène (PE). Ces types de stratifiés papier-plastique sont de plus en plus utilisés dans de nombreux produits jetables et on estime que les principales chaînes de cafés utilisent environ 500 millions de gobelets jetables chaque année. La forte liaison entre le carton en fibres de cellulose et le revêtement en polyéthylène rend les gobelets jetables et les autres types matériaux de papier-plastique difficiles à recycler. La masse totale des déchets de gobelets jetables provenant des grandes chaînes de cafés représente à elle seule plus de 6 250 tonnes, dont la majeure partie est mise en décharge ou brûlée dans des installations de production d'énergie à partir de déchets [10, 11].

Afin d'atteindre tous les objectifs mentionnés ci-dessus, le recyclage du poly (éthylène téréphtalate) PET à partir des déchets de bouteilles d'eau a été proposé, axé sur l'obtention de produits à haute valeur ajoutée, qui pourraient ensuite être utilisés pour obtenir d'autres matériaux polymères aux performances avancées. À ce propos, dans la présente étude, le PET a été recyclé, mélangé avec le polyéthylène, en soulignant les avantages et les inconvénients

de ces mélanges. De plus, l'utilisation des gobelets en papier comme fibre cellulosique renforce ces matériaux composites. Pour une étude détaillée et approfondie, ce manuscrit est divisé en trois chapitres :

- Le chapitre I ; sera consacré aux généralités et aux concepts théoriques concernant les matériaux composites.
- Le chapitre II ; est la partie expérimentale qui présente les matériaux utilisées, un protocole expérimental pour la modification chimique de la charge cellulosique et les processus de mise en œuvre pour l'élaboration des composites à base de polyéthylène/poly (éthylène téréphtalate)/ fibre cellulosique. En plus les différentes techniques utilisées dans la caractérisation de ces matériaux.
- Le dernier chapitre sera consacré à la présentation et discussion de nos résultats obtenus.

Enfin, la conclusion générale résume les résultats de base obtenus au cours de cette étude.

Référence

- [1] MARÍA DOLORES DE DIOS CAPUTTO, RODRIGO NAVARRO, JUAN LOPEZ VALENTÍN, ANGEL MARCOS-FERNANDEZ, Chemical upcycling of poly(ethylene terephthalate) waste: Moving to a circular model, *Journal of Polymer Science*,60:3269–3283, 2022.
- [2] JENNA R. JAMBECK , ROLAND GEYER, CHRIS WILCOX, THEODORE R. SIEGLER, MIRIAM PERRYMAN, ANTHONY ANDRADY, RAMANI NARAYAN, KARA LAVENDER LAW, Plastic waste inputs from land into the ocean, *Science*, 347, 768-771, 2015
- [3] M. SULYMAN, J. HAPONIUK, AND K. FORMELA, Utilization of Recycled Polyethylene Terephthalate (PET) in Engineering Materials: A Review, *International Journal of Environmental Science and Development*, 7(2), 100-108, 2016
- [4] GEORGE P. KARAYANNIDIS, DIMITRIS S. ACHILIAS, Chemical Recycling of Poly(ethylene terephthalate), *Macromolecular Material Engineering*, 292, 128–146, 2007
- [5] JIAN MIN ZHANG, TON PEIJS, Self-reinforced poly(ethylene terephthalate) composites by hot consolidation of Bi-component PET yarns, *Composites: Part A*, 41, 964–972, 2010.
- [6] KALIA S, KAITH BS, KAUR I. Pretreatments of natural fibers and their application as reinforcing material in polymer composites – a review. *Polym Eng Sci*, 49(7):1253–72, 2009.
- [7] BENDAHOU A, KADDAMI H, SAUTEREAU H, RAIHANE M, ERCHIQUI F, DUFRESNE A. Short palm tree fibers polyolefin composites: effect of filler content and coupling agent on physical properties. *Macromol Mater Eng*, 293(2):140–8, 2008.
- [8] ALSAEED T, YOUSIF BF, KU H. The potential of using date palm fibres as reinforcement for polymeric composites. *Mater Des*, 43:177–84, 2013.
- [9] ALIREZA DEGHANI A, SARA MADADI ARDEKANI A, MARIAM A. AL-MAADEED B, AZMAN HASSAN A, MAT UZIR WAHIT, Mechanical and thermal properties of date palm leaf fiber reinforced recycled poly (ethylene terephthalate) composites, *Materials and Design*, 52, 841–848, 2013.
- [10] JONATHAN MITCHELL, LUC VANDEPERRE, ROB DVORAK, ED KOSIOR, KARNIK TARVERD, CHRISTOPHER CHEESEMAN, Recycling disposable cups into paper plastic composites, *Waste Management*, 34, 2113–2119, 2014
- [11] VAN DER HARST, E., POTTING, J., 2013. A critical comparison of ten disposable cup LCAs. *Environ. Impact Assess. Rev.* 43, 86–96, 2013.

CHAPITRE I
ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

CHAPITRE I

ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

I.1. LE POLYETHYLENE TEREPHTALATE (PET)

Le poly (oxy-ethanediyl-1,2 oxycarbonyl phénylène carbonyl) est une matière plastique du groupe des polyesters aromatiques, obtenu par la polycondensation de l'éthylène glycol et de l'acide téréphtalique. Il est couramment appelé poly (éthylène téréphtalate) (PET). Le PET est produit entièrement à partir du pétrole ou du gaz naturel [1, 2].

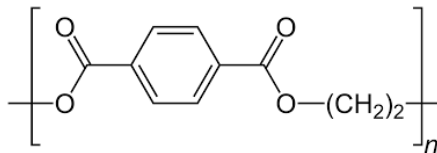


Figure I.1 : Motif de répétition du PET

II.1.1. Synthèse du PET

Les deux principaux procédés de fabrication du PET sont: la synthèse par transestérification à partir du diméthyl téréphtalate (DMT) et l'éthylène glycol (EG) et la synthèse par le procédé d'estérification à partir de l'acide téréphtalique et de l'éthylène glycol. Ces deux procédés comportent deux étapes. La première consiste en la synthèse du monomère le bis (2-hydroxyéthyl téréphtalate) (BHET) et la deuxième en la polycondensation de ce dernier en polymère [3].

I.1.1.a. Synthèse du PET par le procédé d'échange d'ester ou de transestérification

Un mélange de diméthyle téréphtalate DMT et de diol dans les proportions molaires 2,1/2,2 est chauffé en présence d'un catalyseur généralement le trioxyde d'antimoine (Sb_2O_3), à une température variant de 150 à 200°C. Le méthanol résultant sous forme de vapeur est évacué à travers un système de condensation, favorisé par le léger excès de diol. Le produit de la réaction est principalement le bis-(2-hydroxyéthyle) téréphtalate BHET qui est transféré

dans un réacteur de polycondensation opérant à une haute température et sous une pression réduite. Cette réaction se produit à une température de 270-290°C, sous une pression de 0,5-1 mmHg [4].

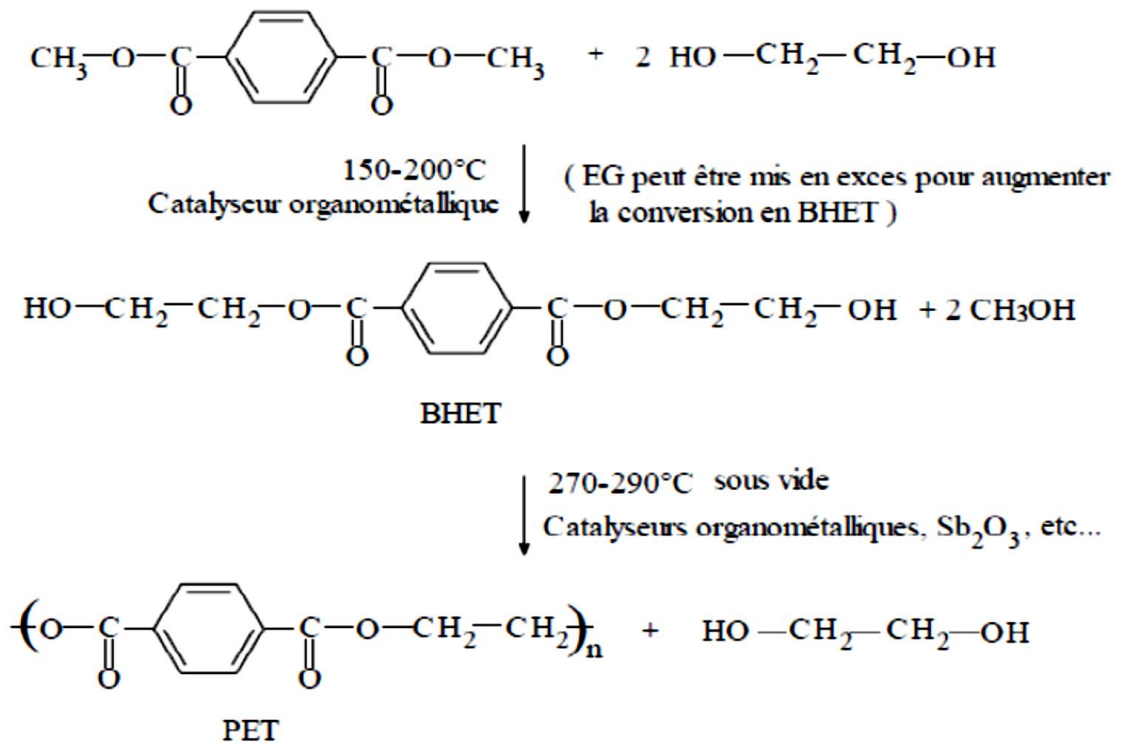


Schéma I.1. : Synthèse du PET à partir du diméthyl téréphtalate et de l'éthylène glycol

I.1.1.b. Synthèse du PET par le procédé d'estérification

La synthèse du PET est également accessible par l'estérification directe de l'acide téréphtalique et de l'éthylène glycol. Ce procédé consiste à chauffer le mélange de diacide et de diol jusqu'à la température à laquelle l'estérification se produit et donne un polyester et de l'eau [4].

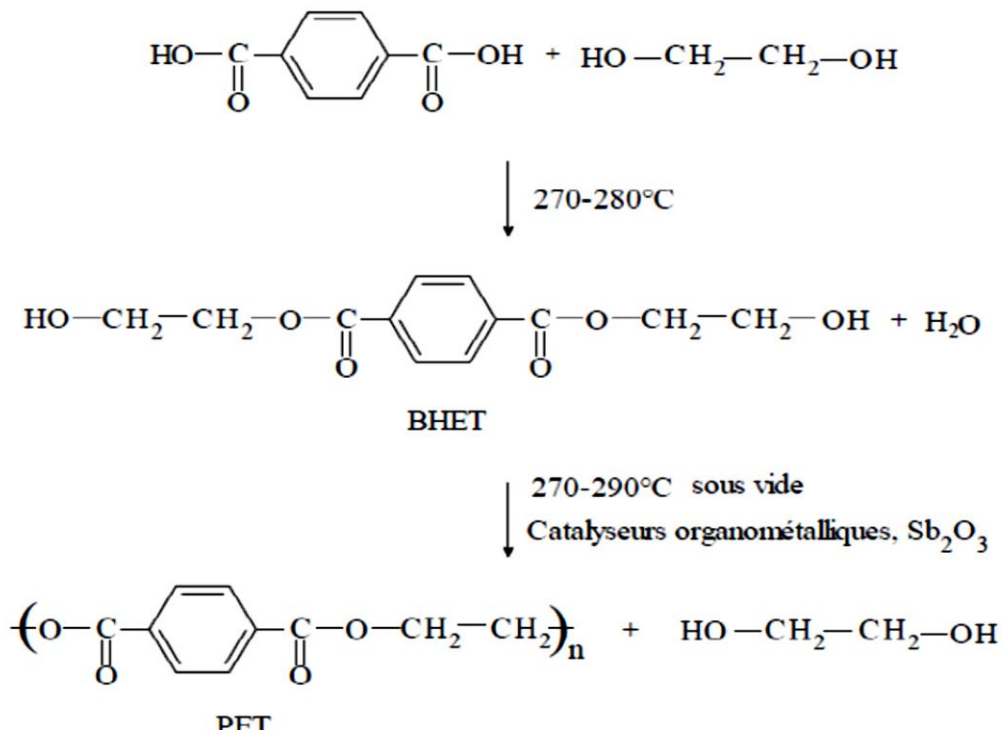


Schéma I.2 : Synthèse du PET à partir de l'acide téréphtalique et l'éthylène glycol.

I.1.2. Propriétés du PET

I.1.2.a. Propriétés physiques et chimiques

Le PET est un matériau dur présentant une bonne stabilité dimensionnelle. Il présente de bonnes propriétés barrières aux gaz (O_2 et CO_2), dont les diffusivités sont très faibles. Le PET possède une excellente résistance chimique aux acides concentrés et dilués, aux alcools, aux cétones, aux graisses et aux huiles, mais s'hydrolyse en présence de produits alcalins. Il présente une bonne résistance aux ultraviolets et une exceptionnelle transmission; son indice de réfraction se trouve dans l'intervalle 1,58 -1,64 [5].

I.1.2.b. Propriétés thermiques

Le PET peut se trouver sous la forme amorphe ou semi-cristalline. Sa densité varie de 1,30 à 1,40. L'analyse thermique du PET présente trois transitions principales. La première est la transition vitreuse, située généralement vers 80°C . La seconde transition apparaît vers 145°C est une transition exothermique, correspond à la température de cristallisation (T_c) du PET amorphe. Enfin, la troisième transition est endothermique et se situe vers $260-270^\circ\text{C}$. Elle correspond à la fusion des cristallites à la température de fusion (T_f) du PET [6].

I.1.2.c. Propriétés thermomécaniques

Le poly (éthylène téréphtalate) est principalement utilisé à la température ambiante. Il se présente dans un état vitreux et apparaît comme un matériau rigide. A la température de transition vitreuse, ses propriétés mécaniques chutent de façon importante. Au-dessus de T_g , la mobilité plus importante des chaînes permet, par exemple, l'étirage et l'orientation du polymère par soufflage lorsqu'il est amorphe. La cristallisation et l'orientation du PET au-dessus et au-dessous de T_g augmentent ses propriétés mécaniques. Lorsque le PET est amorphe, son module mécanique augmente vers 145°C, conséquence de la recristallisation pendant le chauffage [6, 7].

I.1.2.d. Propriétés rhéologiques

Le PET subit une diminution de masse moléculaire quand il est recyclé dans un système ordinaire d'extrusion. Au cours de sa transformation, les dégradations thermique et hydrolytique produisent de courtes chaînes ayant des groupements carboxyle et hydroxyle terminaux, des oligomères et des composés volatils qui catalysent la chute de la viscosité. La viscosité du PET dépend également du nombre de cycles d'injection successifs. Des études ont montré que la proportion de fin de chaînes carboxyliques augmente avec le nombre des cycles d'injection et qu'en même temps, l'indice de viscosité augmente également, traduisant une baisse de la viscosité. Ce phénomène est d'autant plus important que le PET ré-extrudé n'est pas séché avant l'extrusion, comme le montre la figure I.5 [5, 8].

I.1.3. Domaines d'applications du PET

Vu l'importance de ce polymère dans les vies quotidienne et industrielle, la capacité mondiale de sa production se développe progressivement, atteignant 74,3 millions de tonnes métrique en 2015 [9]. De par sa facilité de production et de mise en forme, sa faible densité et sa grande variété, le PET est principalement utilisé pour le domaine textile sous forme de fibres synthétiques et dans l'emballage alimentaire sous forme des bouteilles, et sous forme de film [10]. En 2018, le marché mondial de la bouteille PET atteint 17,5 Mt, soit une augmentation d'environ 2,3 % entre 2011-2018 [11].

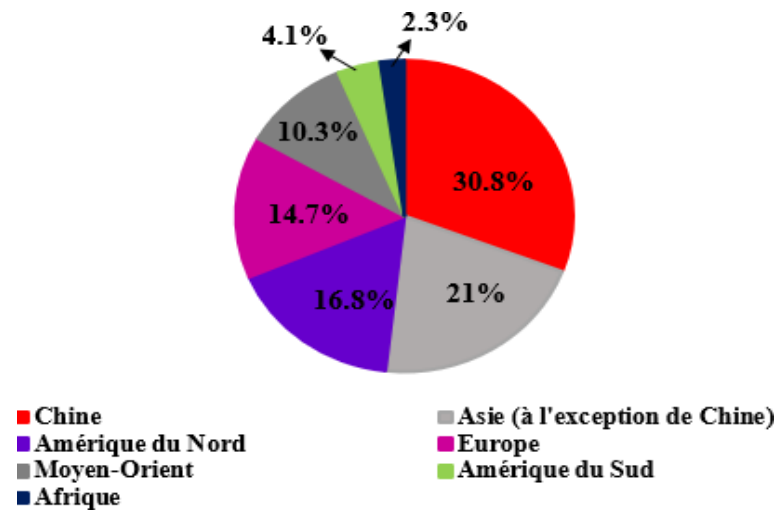


Figure I.2: Capacité mondiale pour la production de PET en 2017 selon les régions.

I.1.4. Recyclage du PET

La valorisation des matières plastiques est devenue un enjeu à la fois écologique et économique. En effet, le volume des déchets, produits par an et par habitant dans les pays développés, n'a cessé d'augmenter au cours de ces dernières années, créant une véritable problématique écologique par la pollution de l'air et des sols. Aussi, du point de vue industriel, le gisement des emballages ménagers mondial représente des millions de tonnes dont la partie majeure est des bouteilles de plastiques à recycler [12]. Selon une étude du journal The Guardian [13], plus de 480 milliards de bouteilles en plastique ont été vendues en 2016 à travers le monde, un chiffre en hausse par rapport à 10 ans plus tôt, quand environ 300 milliards ont été écoulés. Ce nombre augmente encore de 20 % en 2021 à près de 600 milliards, selon les estimations les plus récentes du rapport sur les tendances mondiales de l'emballage d'Euromonitor International. En effet, à ce rythme, la consommation annuelle de bouteilles en plastique risque de dépasser largement les efforts de recyclage et de compromettre les océans, les côtes et d'autres milieux.

Le PET, grâce à son comportement technologique et à son importance quantitative sur le marché, est un bon candidat au recyclage. Le PET est classé dans le numéro 1 dans le guide de recyclage des plastiques.



Figure I.3 : Codes d'identification des produits plastiques recyclables [127]

I.1.4.a. Les différents modes de recyclage ou valorisation

La valorisation des plastiques est accessible par trois méthodes bien distinctes. La valorisation énergétique conduit à la destruction totale du matériau. Se déroule dans une unité d'incinération, consiste à utiliser les déchets des matières plastiques souillés ou non triés et qui ne sont donc pas réutilisables comme combustibles et à récupérer ainsi l'énergie dégagée. La combustion complète du PET (800-1000°C) a pour effet de produire de l'oxygène, de l'eau et du dioxyde de carbone [12, 14]. La valorisation matière est caractérisée par deux méthodes, notamment le recyclage chimique consiste à dépolymériser le PET recyclé afin de récupérer ses monomères qui sont principalement l'acide téréphtalique, le diméthyle téréphtalate et l'éthylène glycol. La méthode permet aussi d'obtenir des oligomères par une dépolymérisation partielle ou complète du polymère [15]. Le recyclage mécanique qui consiste à utiliser les matières plastiques usagées dans la production d'un nouvel objet est une méthode simple, peu dommageable pour l'environnement et demandant peu d'investissements par rapport au recyclage chimique [16].

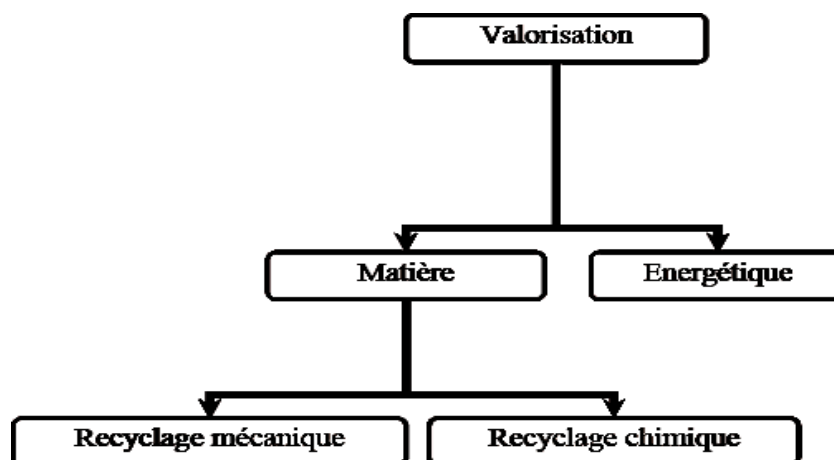


Figure I.4 : Principe de la valorisation des matières plastiques [16]

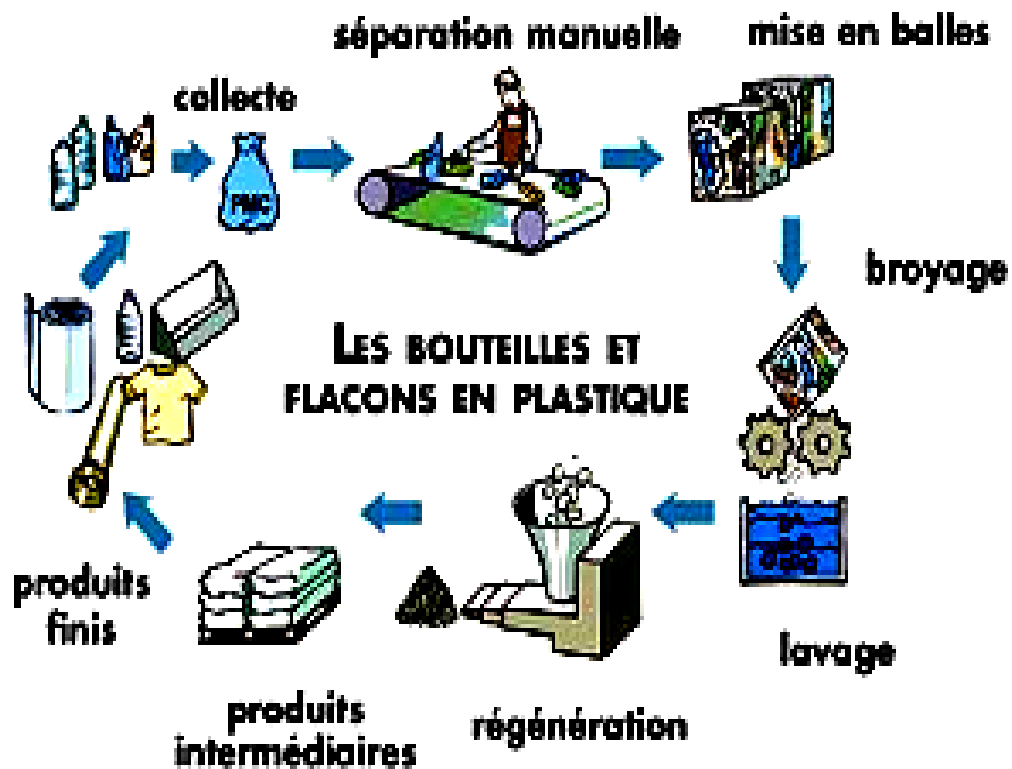


Figure I.5 : Etapes de recyclage des bouteilles en PET [17]

I.2. LE PAPIER

Le papier est un matériau complexe qui est produit en grande quantité et à des cadences élevées. Il est constitué de fibres de cellulose dont la répartition assure les caractéristiques finales du produit.

I.2.1. Structure du papier

Le papier a une surface plane et est constitué de fibres de cellulose liées entre elles. Il est généralement assimilé à un réseau contenant des fibres supplémentaires, de l'air, de l'eau et des charges. Les charges sont généralement des minéraux finement divisés tels que le carbonate de calcium (CaCO_3). Le pourcentage massique de charge utilisé peut varier de 5% à 35%, selon l'application. Celles-ci entraînent des modifications des propriétés du papier et des baisses des prix de revient. Des auxiliaires de rétention peuvent également être ajoutés pour éviter une perte excessive de composants fins (composants lignocellulosiques de petite taille appelés fines, charges, colorants) lors de l'étape de déshydratation de la formation de la feuille dans la caisse de tête [18].

I.2.1.a. Cellulose

La cellulose représente la molécule biologique la plus abondante sur terre. D'un point de vue chimique, la cellulose est une macromolécule constituée par une très longue chaîne stéréo régulière composée de maillons de glucose $C_6H_{12}O_6$. Le motif de répétition est le dimère cellobiose. Le nombre de motifs de répétition ou le degré de polymérisation varie suivant l'origine de la cellulose. Ce polymère présente un grand intérêt du point de vue industriel puisque de nombreuses fibres (coton, chanvre, jute, lin...) sont composées de cellulose [19].

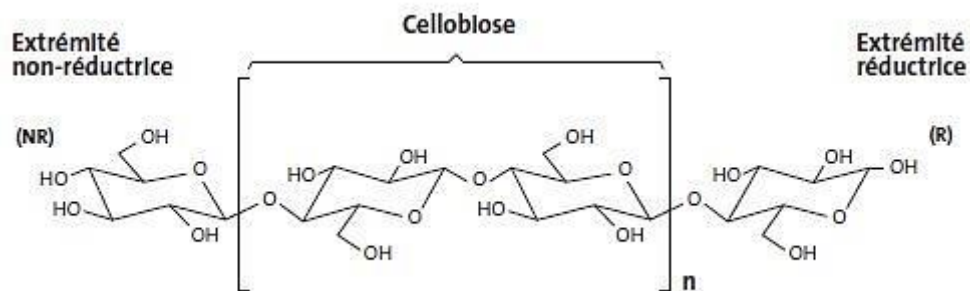


Figure I.6: Molécule de cellulose (n répétitions du motif cellobiose)

La cellulose possède une structure fibrillaire et partiellement cristalline, les microfibrilles de cellulose sont constituées de zones cristallines ordonnées et de zones amorphes totalement désordonnées [20]. Dans la zone cristalline, les chaînes cellulosiques sont disposées parallèlement les unes aux autres, liées par des liaisons hydrogènes intra et intermoléculaires. Toutes les propriétés de la cellulose sont étroitement corrélées à la forte densité des liaisons hydrogène qui se développent entre les chaînes. Les interactions moléculaires sont fortes et assurent l'essentiel de la cohésion tout en empêchant la pénétration des réactifs. Grâce à sa grande cohésion, la cellulose est insoluble dans la plupart des solvants. La cellulose est de nature très hydrophile. Le remplacement d'une partie des interactions inter-chaînes par des liaisons hydrogènes entre la cellulose et l'eau provoque une plastification du matériau et donc une diminution de ses caractéristiques mécaniques.

I.2.2. Le recyclage du papier

Si le papier contient au moins 50 % de fibres de cellulose issues de vieux papiers (post-consommation) ou de déchets industriels (pré-consommation), on parle de papier recyclable. Il existe du papier 100 % recyclé ou un mélange de fibres recyclées et de fibres vierges dans des proportions différentes. Bien entendu, le papier le plus respectueux de l'environnement sera du papier 100 % recyclé post-consommation, non désancré et non blanchi [21]. Après la collecte, les papiers et cartons sont triés, puis compactés en grosses balles. A la papèterie, ils sont réduits mécaniquement en pâte avec un apport d'eau. Celle-ci est ensuite désancrée avec du savon et de l'oxygène. Cette étape permet aussi d'éliminer les substances et les objets indésirables (colles, plastiques, agrafes), ainsi qu'une partie des fibres devenues trop courtes. La pâte blanchie est enrichie des additifs nécessaires et est répartie sur un tamis déroulant, pour former de longues feuilles, qui seront pressées, avant d'être enroulées [22].

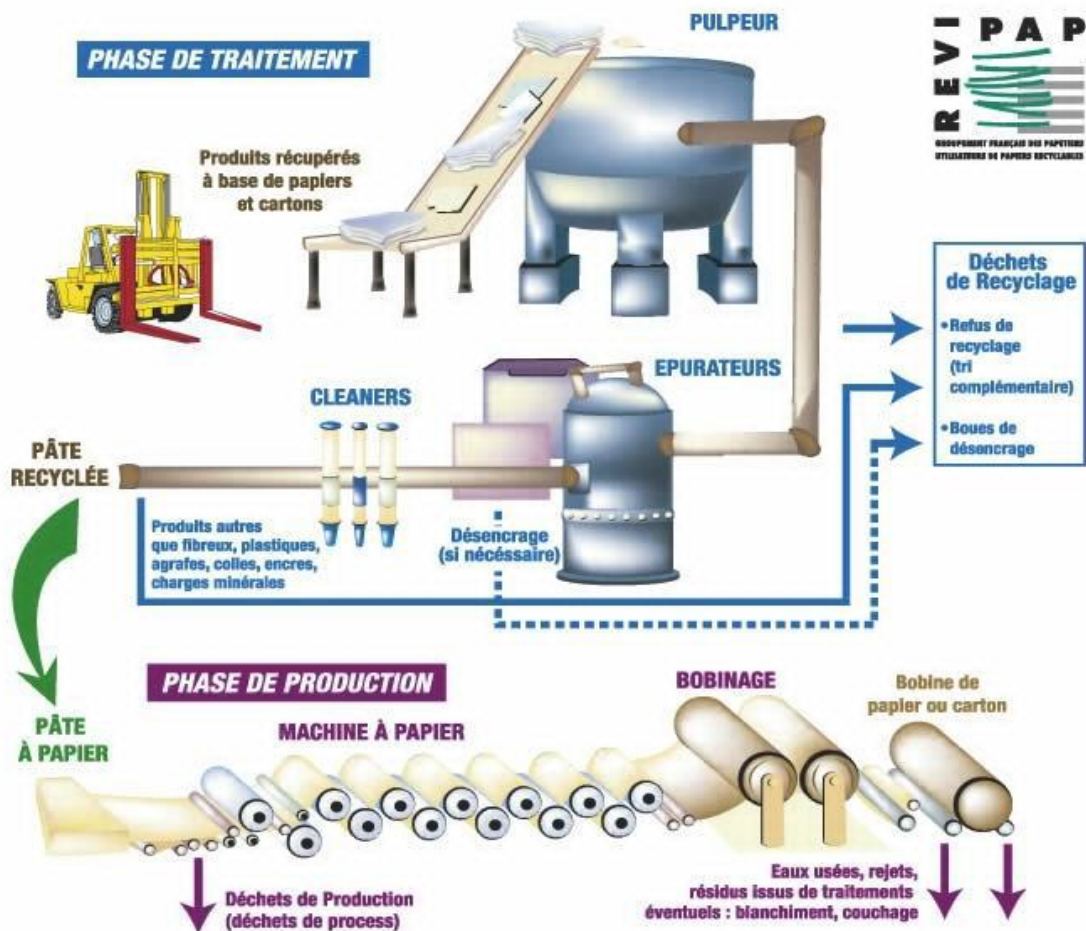


Figure I.7: Cycle de recyclage de papier [23].

I.3. LES MATERIAUX COMPOSITES A CHARGES CELLULOSIQUÉ

Un matériau composite est constitué de l'assemblage de deux matériaux ou plus de natures différentes, se complètent et permettant d'aboutir à un matériau hétérogène dont l'ensemble des performances est supérieur à celui des composants pris séparément [24]. Les composants élémentaires constitutifs d'un composite peuvent être classés en genres, matrice et agent de renforcement. La matrice est une matière jouent un rôle de liant, permettent ainsi le transfert des efforts à l'agent de renforcement (fibres, billes, microsphères, etc.) plus rigide et plus résistant [25].

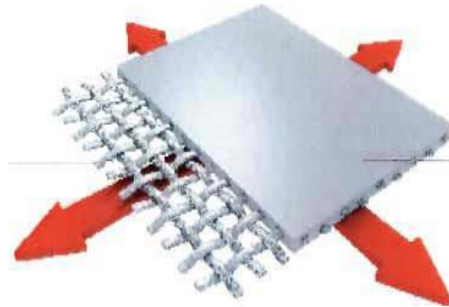


Figure I.8 : Les éléments constitutifs d'un matériau composite [25].

I.3.1. Caractéristiques d'un matériau composite

Les propriétés des matériaux composites dépendent de beaucoup de facteurs et sont différentes selon les divers types de matériau composites. Ces propriétés résultent :

- Des propriétés, de la nature et de la qualité des matériaux constitutifs.
- Des constituants, de la géométrie et de la distribution du renfort.
- De leur interaction, de l'interface matrice-renfort, [26].

Le principal intérêt de l'utilisation des matériaux composites provient de ces excellentes caractéristiques. Ils disposent d'atouts importants par rapport aux matériaux traditionnels ils apportent de nombreuses avantages fonctionnels [27] :

- Légèreté
- Grande résistance à la fatigue (durée de vie augmentée)
- Liberté de formes
- Maintenance réduite

- Faible vieillissement sous l'action de l'humidité, de la chaleur, de la corrosion
- Insensibles aux produits chimique sauf les décapants de peinture qui attaquent les résine
- Tenue aux impacts et aux chocs très moyenne
- Très forte anisotropie
- Une bonne isolation électrique

I.3.2. Paramètres affectant les propriétés des composites à renfort cellulosique

Les propriétés des composites à base de fibres de cellulose sont régies par différents paramètres : le rapport d'aspect des fibres, leur fraction volumique, leur orientation, leur dispersion, ainsi que l'adhésion fibre/matrice. Chacun de ces paramètres va avoir un lien direct sur les performances du composite, il est donc important de bien comprendre ces mécanismes afin d'en maximiser les effets.

I.3.2.a. Rapport d'aspect des fibres

Les performances mécaniques des composites dépendent étroitement de la gestion des flux d'effort au sein du matériau. Lorsque le composite est soumis à une contrainte, la matrice est la première à être affectée avant de transmettre la contrainte au renfort. Plus le flux d'effort sera soumis efficacement de la matrice vers le renfort, meilleures seront les propriétés mécaniques du composite. Pour optimiser cette gestion de flux, il faut maximiser les interactions fibre/matrice tout en améliorant la qualité de cette adhésion. Il a été démontré que plus le rapport d'aspect (longueur/diamètre) des fibres est important, meilleur est le transfert des flux d'effort au sein du matériau composite [28].

I.3.2.b. Fraction volumique des fibres

La fraction volumique des fibres est un autre paramètre important à prendre en compte. De manière générale, plus la teneur en fibres dans le composite est importante, meilleures seront les propriétés mécaniques. Néanmoins, il faut tenir compte de la longueur des fibres utilisées. Le fait de maintenir une fraction volumique élevée avec des petites fibres entraîne une augmentation du nombre d'extrémités, or ces extrémités agissent comme des initiateurs de fissures. A l'inverse, il faut éviter de travailler avec des fibres trop longues (> 9-10 mm), sous peine de les voir se replier et s'enrouler sur elles-mêmes pendant le mélange. Dans tous les cas, une valeur de fraction volumique trop importante, détériore les propriétés

mécaniques du matériau composite. Au-delà d'une certaine valeur, les fibres ont tendance à s'agglomérer, il en résulte une mauvaise dispersion. Le choix de la voie de formulation est également très important, d'autant plus que la teneur en fibres est élevée. Les forces de cisaillements induites durant le mélange doivent être suffisamment importantes et répétées pour permettre un mélange optimal des différents constituants [28].

I.3.2.c. Orientation des fibres

L'orientation des fibres a un effet significatif sur les propriétés mécaniques des matériaux composites. En effet, il est rapporté que le module d'Young, le coefficient de Poisson et la résistance à la traction des matériaux diminuent en fonction du degré d'orientation des fibres [29]. Les fibres de cellulose possèdent une importante résistance dans le sens de la longueur. Celle-ci est nettement plus faible dans les autres directions, d'où la nécessité d'aligner au maximum les fibres dans le sens de la longueur lors de la formulation des composites.

I.3.2.d. Dispersion des fibres

La dispersion des fibres de cellulose au sein de la matrice polymère est un élément clé à prendre en compte. Du fait de leur caractère polaire, les fibres ont tendance à s'agglomérer lorsqu'elles sont mélangées avec une matrice apolaire. Il en résulte un composite hétérogène, avec des zones riches en fibres de cellulose et d'autres riches en matrice, ce qui va nuire aux performances du composite. Il est donc impératif d'avoir une bonne dispersion des fibres de cellulose, celles-ci doivent être bien séparées les unes des autres et chaque fibre doit être enrobée par la matrice.

Les interactions fibre/fibre, telles que les liaisons hydrogènes, ainsi que la longueur des fibres, vont influencer directement la dispersion de ces dernières. En effet, plus la longueur des fibres est importante et plus les interactions fibre/fibre sont intenses, plus elles vont s'enchevêtrer et s'agglomérer entre elles. Le choix de la voie de formulation est important pour limiter ce genre de phénomène. Plus les forces de cisaillements et le temps de mélange sont importants, meilleure est la dispersion. Classiquement, l'utilisation d'une extrudeuse double-vis permet d'obtenir les meilleurs résultats. L'utilisation de traitements physico-chimiques ou encore la modification chimique des fibres de cellulose sont également des méthodes efficaces et couramment utilisées dans la littérature [29].

I.3.2.e. Adhésion fibre/matrice

Les propriétés mécaniques des composites à renfort de fibres de cellulose dépendent intimement de l'adhésion à l'interface fibre/matrice [30, 31]. La gestion des flux d'effort au sein du composite est améliorée lorsque l'interface fibre/matrice est bonne. Les fibres de cellulose sont riches en groupements hydroxyle, ce qui leur confère une forte polarité et un comportement hydrophile marqué. Alors que les matrices thermoplastiques, de type polyéthylène par exemple, sont hydrophobes et apolaires. Il en résulte des problèmes de compatibilité entre les deux phases et une zone interfaciale affaiblie. Afin d'améliorer l'interface fibre/matrice, il est courant d'avoir recours à des traitements visant à réduire l'énergie de surface des fibres. L'ajout d'un agent ayant des propriétés intermédiaires aux deux constituants peut également être mis en œuvre.

De manière générale, les fibres de cellulose utilisées comme renfort de composites améliorent significativement les propriétés mécaniques comparées à la matrice pure, ce qui justifie leur utilisation croissante. La rigidité des fibres permet en effet d'augmenter le module de Young ainsi que la résistance à la traction des composites.

L'interface fibres/matrice joue un rôle déterminant sur les propriétés finales des matériaux composites. Des méthodes physiques et chimiques [32], dont l'objectif est de rendre compatibles les fibres et les matrices, peuvent être utilisées pour optimiser cette interface. Ces méthodes reposent sur la modification de surface des fibres et/ou de la matrice et la mise en place de nouvelles propriétés interfaciales.

➤ Méthodes de modification par voie chimique

La modification de la surface par des méthodes chimiques a pour objectif de rendre compatibles deux matériaux. Parmi ces méthodes, on retrouve principalement, les réactions de couplage chimique (réactions de copolymérisation et/ou greffage de chaînes de polymères linéaires ou de molécules organiques simples) et les réactions d'oxydation [31].

➤ Méthodes de modification par voie physique

Les procédés physiques peuvent être utilisés sur la surface du renfort ou de la matrice pour diverses raisons :

- Nettoyage et purification de la surface.
- Oxydation et activation des sites sur la surface.

Ces méthodes entraînent un changement physique et chimique des propriétés structurales du composé. On distingue les traitements par décharges diélectriques tels que le Corona et le plasma froid et par exposition aux rayonnements laser, ultra-violet ou gamma. La plupart de ces traitements sont aussi des voies de greffage et de copolymérisation [31].

Référence

- [1] C. DUTRIEZ, « Corrélations entre les propriétés diélectriques et mécaniques des polymères Influence de la température ».Thèse de Doctorat, Ecole doctorale des Matériaux de Lyon, 2004, 192.
- [2] G. CHRETIEN, J. HATAT, « Initiation aux plastiques et composites», Ed. Technique et Documentation, Paris, 1990, pages multiples.
- [3] C. DUVAL, « Matières plastiques et environnement : Recyclage, valorisation, biodégradabilité, éco-conception », Ed. Dunod, Paris, 2004, pages multiples.
- [4] I. GOODMAN, «Polyesters», In: Encyclopedia of Polymer Science and Engineering, Vol. 12, Ed. John Wiley and Sons, New York, 1988, pages multiples.
- [5] L. GOUISSEM, Etude de l'effet des paramètres de transformation et des extenseurs de chaînes sur les propriétés du poly (éthylène téréphtalate) (PET) recyclé, thèse de doctorat université Ferhat Abbas Sétif 1, Algérie, 145p (2015).
- [6] P.Y. PENNARUN, Migration à partir de bouteilles en PET recyclé. Elaboration et valorisation d'un modèle applicable aux barrières fonctionnelles, thèse de doctorat, Université de Reims Champagne-Ardenne-France, 281p (2001),
- [7] O. ZAKI, Contribution à l'étude et à la modélisation de l'influence des phénomènes de transferts de masse sur le comportement mécanique de flacons en polypropylène, thèse dedoctorat, université Paris-Est, France, 192p (2008).
- [8] F. AWAJA, D. PAVEL, Statistical models for optimization of properties of bottles produced using blends of reactive extruded recycled PET and virgin PET, European PolymerJournal, Vol. 41, 2097 (2005).
- [9] GEYER, R., JAMBECK, J.R., LAW, K.L.,. Production, use, and fate of all plastics ever made. Sci. Adv. 3, 25–29, 2017.
- [10] PARK, S.H., KIM, S.H., Poly (ethylene terephthalate) recycling for high value added textiles. Fash. Text. 1, 1–17. 2014.
- [11] WOOD, L., Global PET Bottle Market Report 2019: Industry Trends, Share, Size, Growth,Opportunity and Forecasts 2011-2018 , 2019-2024, 2019.
- [12] LAZAREVIC, D., AOUSTIN, E., BUCLET, N., BRANDT, N., Plastic waste management in the context of a European recycling society: Comparing results and uncertainties in a life cycleperspective. Resour.Conserv.Recycl.55,246–259, 2010.

- [13] V. CHAFFRAIX, Etude de l'extrusion du polyéthylène téréphtalate et de ses mélanges non- compatibilisés avec le polyéthylène haute densité application au recyclage, thèse de doctorat, Ecole des mines de Paris, France, 217, 2002.
- [14] J. DAS ET COL. Alkaline hydrolysis of Poly(ethylene terephthalate) in presence of a phase transfer catalyst, Indian Journal of chemical technology, 14, 177 , 2007.
- [15] M. A. SILVA SPINACE , M. A. DE PAOLI, Characterization of poly(ethylene terephthalate) after multiple processing cycles, Journal of Applied Polymer Science, Vol. 80, 25 (2001).
- [16] BROWNE T.C., CROTOGINO R.H., Future directions in calendaring research, 12th Fundamental Research Symposium, 2, 1001-1036, Oxford, United-Kingdom, September 2001
- [17] <https://www.eco-nielsen.com/ecoliving.html>
- [18] E. A. Gutiérrez, Influence de facteurs abiotiques sur la régulation des paramètres microbiens impliqués dans la dégradation de la matière organique d'une litière forestière méditerranéenne, Thèse de doctorat, Université Paul Cezanne, 2007.
- [19] <https://www.recygo.fr/blog/dossier/papier-recycle>
- [20] L IMANE , Etude de la valorisation des déchets en papiers et cartons au sein de Tonic Industrie (Approche économique, sociale et écologique), mémoire, Université Mouloud Mammeri, Tizi-Ouzou, 2016
- [21] <https://le-recyclage-du-papier-55.websself.net/accueil>
- [22] F. ZHOU, G. CHENG, B. JIANG, Effect of silane treatment on microstructure of sisal fibers, Applied Surface Science., 292, 806-812, 2014.
- [23] <https://vertmongre.wordpress.com/2010/05/26/le-papier-na-pas-quune-vie/>
- [24] F. DALMASO , J. MEZIERES, Calcul des propriétés élastiques des tissus utilisés dans les matériaux composites, Institut Français du Pétrole , 1998.
- [25] Y.DJEBLOUN, étude de la rupture en mode I d'ouverture des matériaux composites, thèse, université Mohamed Khider Biskra, 2004.
- [26] M. BELGACEM, A. GANDINI, Monomers, Polymers and Composites from Renewable Resources, Elsevier (2008).
- [27] S. BEN BRAHIM, R. BEN CHEIKH, Influence of fibre orientation and volume fraction on the tensile properties of unidirectional Alfa-polyester composite, Compos. Sci. Technol. 67 , 140–147, 2007.
- [28] J.M. FELIX, P. GATENHOLM, Nature of adhesion in composites of modified cellulose fibers and polypropylene, J. Appl. Polym. Sci. 42, 609–620, 1991.

- [29] A. ALAWAR, A.M. HAMED, K. AL-KAABI, Characterization of treated date palm tree fiber as composite reinforcement, *Compos. Part B Eng*, 40, 601–606, 2009.
- [30] BLEDZKI. A. K, REIHMANNE. S, GASSAN. J, Properties and modifications methods for vetables fiber for natural fibre composites, *J. Appl. Polym. Sci*, 59, 1329-1336, 1996.
- [31] BATAILLE. P, DUFOURD. M, SAPIEHA. S, Copolymerization of styrene on to cellulose activated by Corona. *PolymerInternational*, 24, 387-391, 1994.

CHAPITRE II
MATERIAUX UTILISES
ET TECHNIQUES
EXPERIMENTALES

CHAPITRE II

MATERIAUX UTILISES ET TECHNIQUES EXPERIMENTALES

II.4. MATERIAUX UTILISE

II.4.1. Le Polyéthylène Téréphtalate

Le polymère utilisé est Le polyéthylène téréphtalate (PET), sous forme de poudre bleu .Il est obtenu par broyage des bouteilles d'eau minérale en plastique post- consommation, et la principale matière recyclée dans le monde. Le PET possède des caractéristiques spécifiques qui sont : la transparence, brillance, résistance aux chocs, il est cristalline, légèreté, solidité et longue durée de vie, possède une résistance à la traction, et à la pression et aux gaz [1].

II.4.2. Le Polyéthylène

Le polymère utilisé est le polyéthylène basse densité (PE-BD), sous forme de granulés de couleur blanche. Fourni par la société UNICAB de la zone industrielle BISKRA (Algérie). Ses caractéristiques sont résumées dans le tableau II.1.

Tableau II.1 : Caractéristiques de polyéthylène PE-BD

Propriétés	Valeur	Unité
Densité	935	Kg/m ³
Déformation de traction à la rupture	18	MPa
Allongement à la rupture	700	%
Module de flexion	700	MPa
Indice de fluidité à chaud	5	g/10min
Taille moyenne des particules	500	Micron
Résistance à l'impact Charpy	30	KJ/M ²
Densité apparente	0.37	g/cm ³
Fluidité	26	secondes

II.4.3. L'acide chlorhydrique

L'acide chlorhydrique utilisé est produit par la société «BIOCHEM Chermopharma», ses caractéristiques sont données dans le tableau II.2.

Tableau II. 2: Les caractéristiques de L'acide chlorhydrique.

Formule chimique	Masse moléculaire	Densité	Pureté
HCl	36.46 g/mol	1.18	35-38%

II.4.4. Acide sulfurique

L'acide chlorhydrique utilisé est fabriqué par la société «BIOCHEM Chermopharma». Ses caractéristiques sont données dans le tableau II.3.

Tableau II. 3 : Les caractéristiques de L'acide sulfurique.

Formule chimique	Masse moléculaire	Pureté
H ₂ SO ₄	98.08 g/mol	98%

II.4.5. Acide méthacrylique

L'acide méthacrylique utilisé a été produite par la société SIGMA-ALDRICH, ses caractéristiques sont représentées dans le tableau II.4.

Tableau II.4: Caractéristiques d'acide méthacrylique

Formule chimique	Masse moléculaire	Pureté
C ₄ H ₆ O ₂	86.0892 g/mol	99%

II.4.6. Persulfate de potassium

Le persulfate de potassium utilisé est produit par la société «BIOCHEM Chermopharma», ses caractéristiques sont données dans le tableau II.5.

Tableau II. 5 : Les caractéristiques de potassium persulfate

Formule chimique	Masse moléculaire	Pureté
$K_2O_8S_2$	270.322 g/mol	99%

II.4.7. Eau de javel

L'eau de javel (Bref) utilisé est produit par la société « Henkel », ses caractéristiques sont données dans le tableau II.6.

Tableau II. 6 : Les caractéristiques de l'eau de javel

Formule chimique	Masse moléculaire	Degré
NaClO	74,442 ± 0,002 g/mol	12° chl

II.5. TECHNIQUES EXPERIMENTALES

II.5.1. Préparation de fibre de gobelet en papier

Les gobelets en papier sont Composés à 90% de papier-carton et d'une couche de plastique (polyéthylène) de 10%, qui recouvre l'intérieur du gobelet pour le rendre étanche, les gobelets en papier nécessitent un traitement particulier mais sont parfaitement recyclables.

- Lavage avec de l'eau froide afin d'éliminer les impuretés solubles dans l'eau froide.
- Lavage avec de l'eau chaude pour éliminer les impuretés solubles dans l'eau chaude.
- Séchage à l'air libre pendant 24 heures.
- Découpage des fibres de papier à une longueur de 1 à 2 cm.



Figure II.1 : Les gobelets en papier

II.5.2. Blanchissement des fibres de papier par l'eau de javel

- Dans un bécher nous mettons 2L d'eau javel
- On place le Bécher sur une plaque chauffante pour l'augmentation de température à 50°C puis on introduit 200g des fibres de papier et on les immerge dans la solution d'eau javel, avec l'agitation pendant 2h.
- Filtration de la fibre suivie par le lavage avec l'eau distillé pour éliminer l'excès et neutraliser le pH.
- Les fibres sont ensuite placées dans une étuve à 80°C pendant 24h.



Figure II.2 : Les étapes de préparation des fibres traitées par l'eau javel.

II.5.3. Greffage chimique des fibres de papier par l'acide méthacrylique

- On dissout 2.40g de persulfate de potassium $K_2O_8S_2$ dans un bécher contenant 1.5L l'eau distillé puis on introduit 150g des fibres de papier après blanchissement.
- On place le Bécher sur une plaque chauffante pour l'augmentation de température à 80°C en ajoutant 150g d'acide méthacrylique avec l'agitation pendant 20 min.
- On laisse le mélange à l'air libre pendant 24h.
- On effectue une filtration suivie de plusieurs lavages avec de l'eau distillée jusqu'à avoir le pH neutre.
- Les fibres sont ensuite placées dans une étuve à 80°C pendant 24h.
- Après cela, dans un bécher contenant l'acétone on introduit les fibres séchées avec l'agitation de mélange pendant 30min pour les homopolymères.
- En fin filtration des fibres et le séchage dans une étuve à 80°C pendant 2h.
- Toutes les fibres sont réduites en poudre fine en utilisant un moulin à café domestique.
- Après broyage, la poudre est calibrée à travers plusieurs tamis de différents diamètres (0.212 et 0.125 mm) à fin d'obtenir :

- ✓ Fibres non traitées (FNT).
- ✓ Fibres traitées par eau de javel (FTB).
- ✓ Fibres traitées par l'acide méthacrylique (FGA).

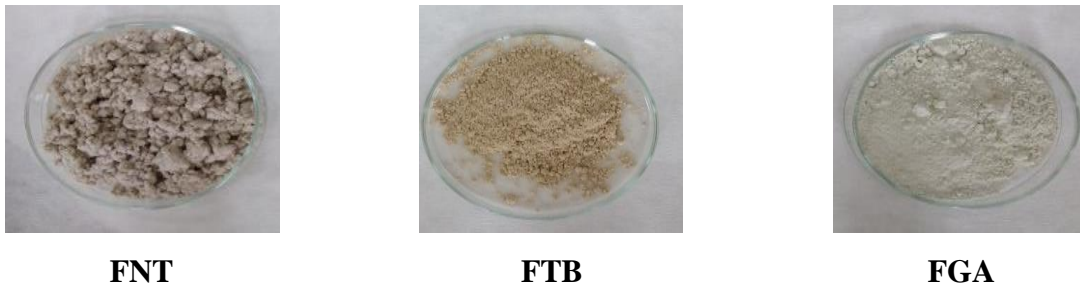


Figure II.3 : Les fibres obtenues après le tamisage

II.5.4. Elaboration des composites PE/PET/ fibres de papier

Les différentes formulations choisies pour la préparation de nos composites sont données dans le tableau Suivant:

Tableau II. 7 : Composition des différentes formulations

Formulations	La compositions en %		
	PE	PET	FIBRE
PE	100	-	-
PET	-	100	-
PE/PET	75	25	-
PE/ PET /FNT ₁	75	24	1
PE/ PET /FNT ₄	75	21	4
PE/ PET /FGA ₁	75	24	1
PE/ PET /FGA ₄	75	21	4

- **PET** : La formulation du Polyéthylène Téréphtalate non chargée.
- **PE/PET** : La formulation du mélange en Polyéthylène et Polyéthylène Téréphtalate chargées.
- **PE/PET/FNT** : La formulation du PE/PET chargées avec les fibres de papier non traite.

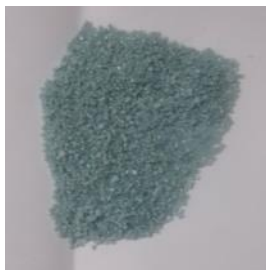
- **PE/PET/FGA** : La formulation du PE/PET chargées avec les fibres de papier greffé par l'acide méthacrylique.

II.2.4.1. Extrusion

Les mélanges précédents vont alimenter dans une extrudeuse de type PolyLab au niveau du laboratoire de génie mécanique LGM de l'université de Biskra. Les températures sont été maintenues entre 260 et 280°C.



Figure II.4 : Extrudeuse de type PolyLab.



PET



PE/PET/FNT



PE/PET/FGA

Figure II.5 : Granulés des composites de PE/PET renforcés des fibres de papier traitées et non traitées après l'extrusion.

II.2.4.2. Moulage des composites

La presse que nous avons utilisée est une presse hydraulique de type: SCHWABENTHAN POLYSTAT 300S. Le moulage des composites a été réalisé de la manière suivante :

- Les granulés obtenus par extrusion sont introduits dans un moule entre deux feuilles d'aluminium et comprimés à l'aide d'une presse à une température de 260°C et une pression de 300 bars pendant une durée de séjour temps 7 minutes.
- Le préchauffage jusqu'à ce que le mélange soit initialement fondu, et afin d'éviter la présence de bulles d'air.
- Un dégazage est effectué avant d'appliquer la pression finale.
- Enfin le refroidissement à fin d'obtenir des plaques épaisseur de 2mm.



Figure II.6: Presse "SWHWABENTHAN POLYSTAT 300S"

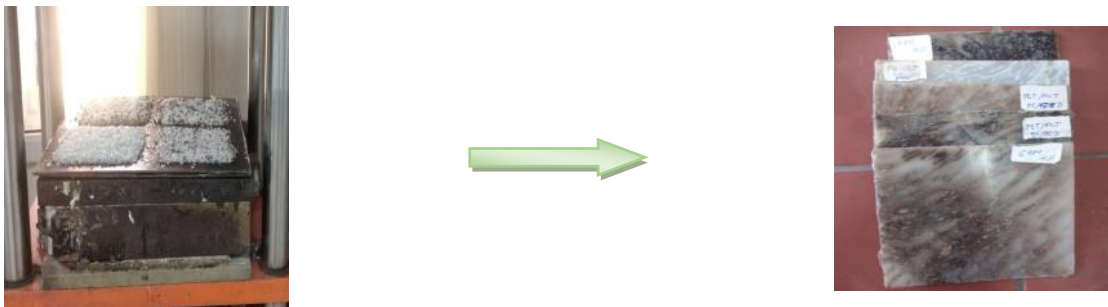


Figure II.11 : Les plaques des composites obtenus après moulage.

II.6. TECHNIQUES DE CARACTERISATION

II.3.1 Analyse spectrale par IRTF

Les analyses spectroscopiques infrarouges de notre échantillon ont été effectuées à l'aide d'un spectromètre Agilent Cary 630 FTIR au niveau du laboratoire des plateformes technologiques d'analyses physico-chimiques CRAPC Biskra. Les échantillons à analyser sont préparés sous forme des pastilles. Il s'agit d'un mélange de 0,001g de fibres

préalablement broyée (traité, ou non traité) et 0,3g de bromure de potassium KBr dans la plage de balayage comprise entre 400 et 4000 cm^{-1} .



Figure II.12 : Spectrophotomètre Agilent Cary 630 FTIR.

II.3.2. Test de dureté shore D

Des mesures de dureté Shore D ont été réalisées au laboratoire « UNICAB » à Biskra. Le test consiste à appliquer une force sur une plaque de 5 x 5 cm^2 selon NF ISO T 51-123, qui tend à pousser l'aiguille du d'uromètre Shore. Prenez la lecture directement sur l'uromètre après 15 secondes d'infiltration.



Figure II.13: Duromètre utilisé.

II.3.3. Essai de traction

Pour déterminer les propriétés mécaniques des matériaux, l'essai de traction est la méthode expérimentale la plus couramment employée. Ce test repose sur une série de relations entre les déformations, les contraintes et leur évolution dans le temps. Essentiellement, un cylindre d'une longueur prédéterminée est soumis à une force de traction jusqu'à ce qu'il se rompe, et la précision des mesures des dimensions de l'éprouvette peut affecter les résultats du test. En surveillant la force exercée par la machine de traction, notée F , et l'allongement de

l'éprouvette dans le temps, il devient évident que la force fournie augmente parallèlement à l'allongement jusqu'à atteindre un maximum, après quoi elle commence à diminuer.

Les essais de traction sont effectués à l'aide d'une machine de traction universelle INSTRON 5969.

- La vitesse de traction utilisée est égale à 5 mm/min.
- L'essai se fait à la température ambiante (laboratoire).

Pour chaque mélange on utilise trois éprouvettes et on prend les valeurs moyennes de l'allongement à la rupture et de la résistance à la traction.

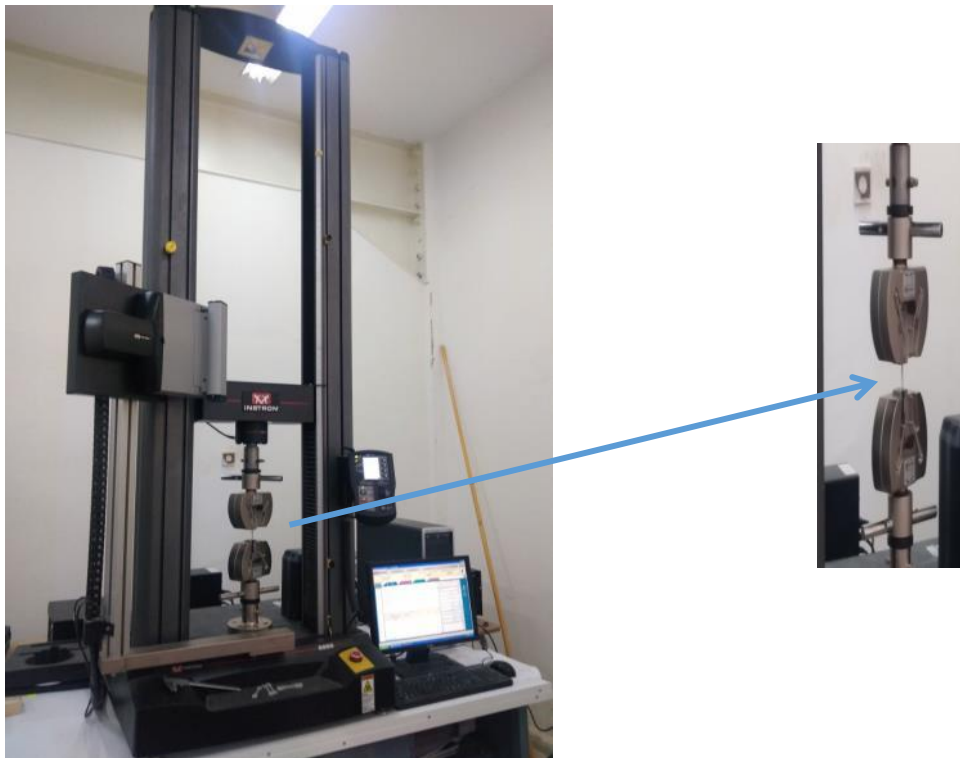


Figure II.14 : La machine de traction utilisée.

1. Test d'absorption d'eau

L'absorption d'eau des composites formulés a été réalisée selon la procédure décrite dans la norme ASTM D570. Les échantillons requis pour les essais sont découpés de chaque mélange puis ces échantillons sont ensuite placés dans de l'eau distillée à température ambiante. Quotidiennement, toutes les 24 heures, l'échantillon est prélevé et l'eau de surface est

méticuleusement éliminée à l'aide de papier absorbant. Ce processus a été répété jusqu'à ce que le poids de l'échantillon se stabilise. Le poids de l'échantillon avant immersion (m_0) et après stabilisation (m_t) ont été enregistrés.

Le taux d'absorption d'eau a été calculé suivant la formule :

$$\Delta m(\%) = \frac{m_t - m_0}{m_0} \times 100$$

- m_0 : La masse de l'échantillon avant l'immersion.
- m_t : La masse de l'échantillon après l'immersion à l'instant (t).

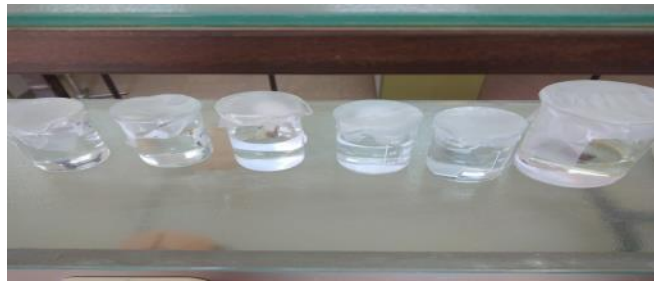


Figure II.15 : Test d'absorption d'eau.

Reference

[1] N. MEDJDOUB, « Effets du triphenylphosphite et du SEBS-g-MA sur les propriétés du système (PET/ PEHD) à base de matériaux recyclé », Mémoire de Master, Université de Setif, Algérie, 2011.

CHAPITRE III
RESULTATS ET DISCUSSIONS

CHAPITRE III

RESULTATS ET DISCUSSION

III.1. CARACTERISATION DES FIBRES DE PAPIER

III.1.1. Analyse spectroscopique infrarouge à transformée de Fourier FTIR

Les spectres infrarouge de la fibre de papier des gobelets (FNT) et greffé par l'acide méthacrylique (FGA) sont présentés sur la figure III.1. Des pics caractéristiques similaires peuvent être observés dans tous les fibres traitées et non traitées tels que des larges bandes de vibration de valence des liaisons O-H et d'élongation symétrique et asymétrique des liaisons C-H des groupes alkyle à 3399 cm^{-1} et à 2913 et 2848 cm^{-1} correspondent à l'ensemble des hydroxyles primaires et secondaires et les liaisons aliphatiques de la cellulose respectivement [1, 2]. Le pic à 1645 cm^{-1} affectée à l'eau absorbées par la fibre non traitée par suite à son caractère hydrophile très prononcé, ce pic disparu après le traitement avec l'acide méthacrylique.

Les pics à 1591 et 1501 cm^{-1} correspondents à l'élongation de la liaison C=C et confirme la présence de lignine et de son groupe aromatique dans la fibre de papier non traité. Les pics à 1372 et 1321 cm^{-1} qui sont essentiellement dues aux vibrations de déformation des groupements $-\text{CH}_2$ et $-\text{CH}_3$, contenus dans les structures de la lignine et l'hémicellulose [3]. Le pic à 1058 cm^{-1} attribué aux vibrations d'étirement des groupes hydroxyles O-H de la cellulose et de l'hémicellulose. Tous ces pics diminuent après le greffage ce qui confirme l'élimination de l'hémicellulose et de la lignine. Les pics à 892 cm^{-1} et 1058 cm^{-1} peuvent être dus à la liaison β -glycosidique et aux vibrations d'étirement C-O [4]. Le pic à 1162 cm^{-1} est dû aux vibrations d'élongation asymétriques du pont C-O-C ; ceci est attribué aux caractéristiques de la structure saccharide [5].

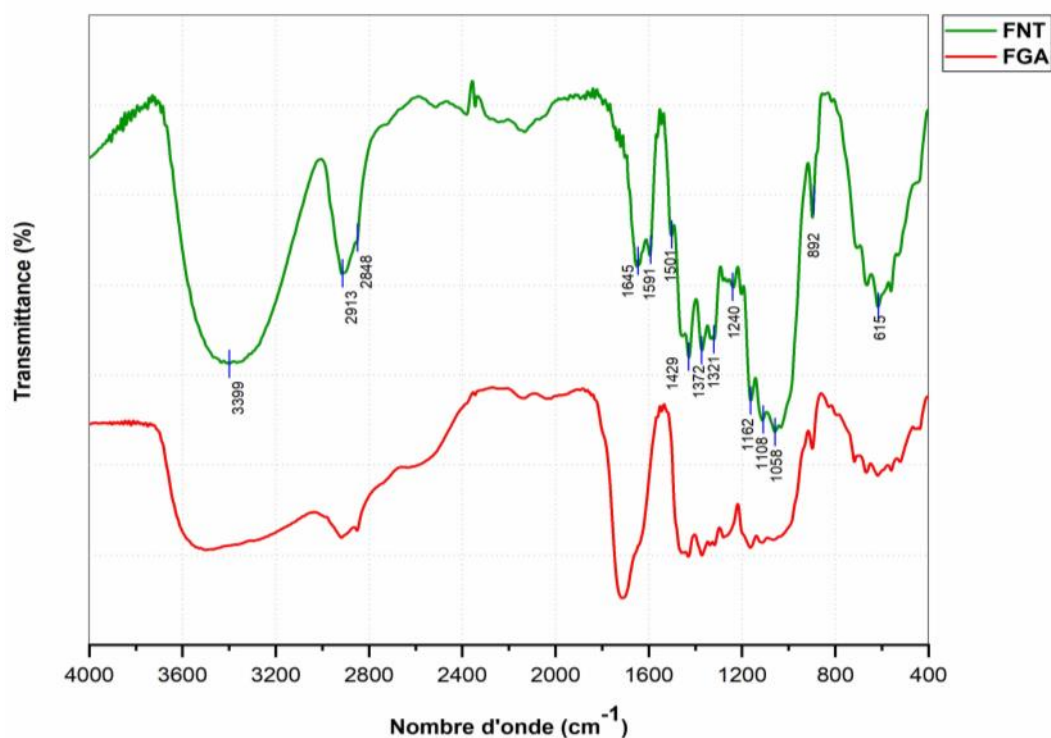


Figure .III. 2. Spectres IRTF de la fibre de papier des gobelets (FNT) et greffé à l'acide méthacrylique (FGA).

Le pic à 1429 cm^{-1} indique la vibration de flexion de la liaison O-H de l' α -cellulose [6]. Le pic à 1108 cm^{-1} correspond à la vibration de déformation des liaisons C-O-C de la cellulose et de l'hémicellulose [7]. On révèle aussi un pic d'absorption à 1240 cm^{-1} associée aux vibrations d'élongation des groupements carbonyles C=O et C-O présentés dans les hémicelluloses et lignine extractives [8]. A 615 cm^{-1} une bande fine de très faible intensité correspond à la vibration en mode flexion en dehors du plan de la liaison C-OH [9].

Par rapport au spectre des fibres cellulosiques non traitées FNT, les fibres FGA présentent un nouveau pic d'absorption à 1712 cm^{-1} , correspondant aux vibrations d'élongation du carbonyle introduites par l'acide méthacrylique [2]. Le pic à 1630 cm^{-1} correspond aux vibrations d'élongation des liaisons C=C des groupes vinyle terminaux des oligomères d'acide méthacrylique, n'ayant pas réagi [10]. L'acylation de la cellulose a été prouvée aussi par la diminution de l'intensité de la bande à 3399 cm^{-1} caractéristique des liaisons hydrogène des groupes hydroxyles O-H.

III.1.2. Mécanisme réactionnel de la polymérisation de l'acide méthacrylique sur les fibres celluloses

III.1.2.a. Amorçage

La polymérisation par greffage homogène de l'acide méthacrylique MAA sur le squelette cellulosique a été réalisée en utilisant $K_2S_2O_8$ comme initiateur radicalaire. L'initiateur persulfate se décompose par chauffage pour générer le radical anionique $KS_2O_8^-$. Ce radical anionique extrait l'hydrogène du groupe hydroxyle de la cellulose pour former des macroradicaux cellulaires [5].

En présence de monomères d'acide méthacrylique, le microradical cellulosique s'ajoute à la double liaison du monomère entraînant une liaison covalente entre le monomère méthacrylique et la cellulose avec création d'un radical libre sur le monomère ; c'est-à-dire initiation de la chaîne macromoléculaire.

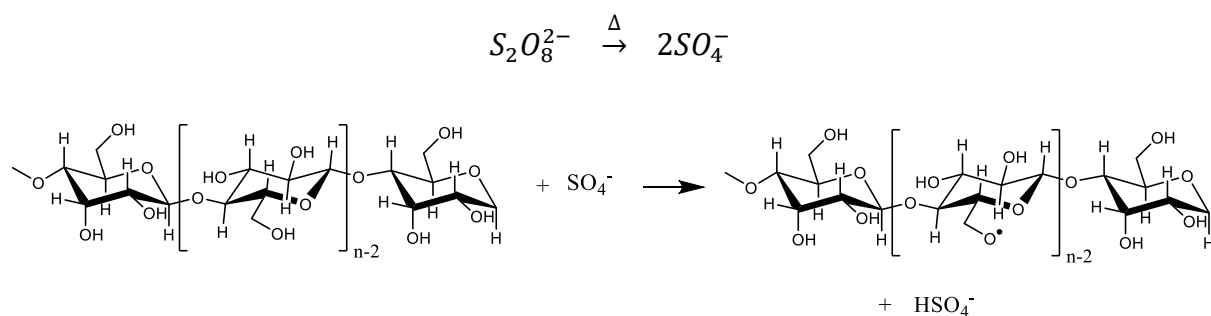


Schéma III.1 : Mécanisme réactionnel d'activation de la cellulose

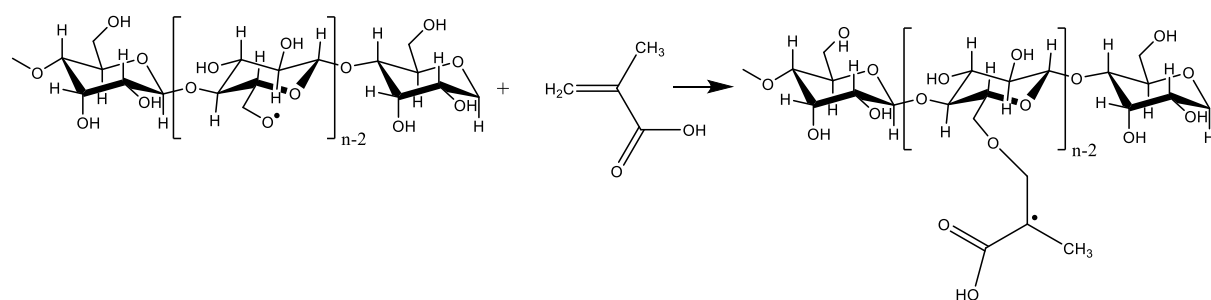


Schéma III.2 : Mécanisme réactionnel d'amorçage de l'acide méthacrylique sur la molécule de la cellulose

III.1.2.b. Propagation

Cette étape se répète en grand nombre d'additions successives de monomères méthacrylique sur macroradicaux cellulaires formés.

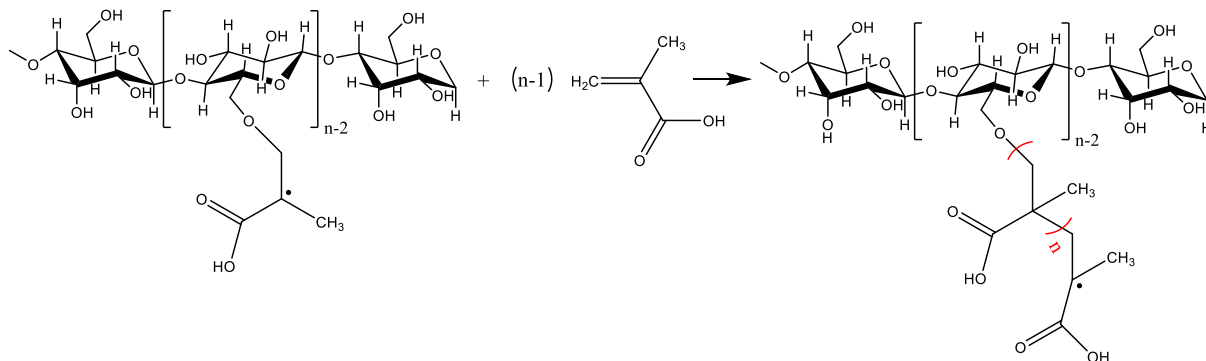
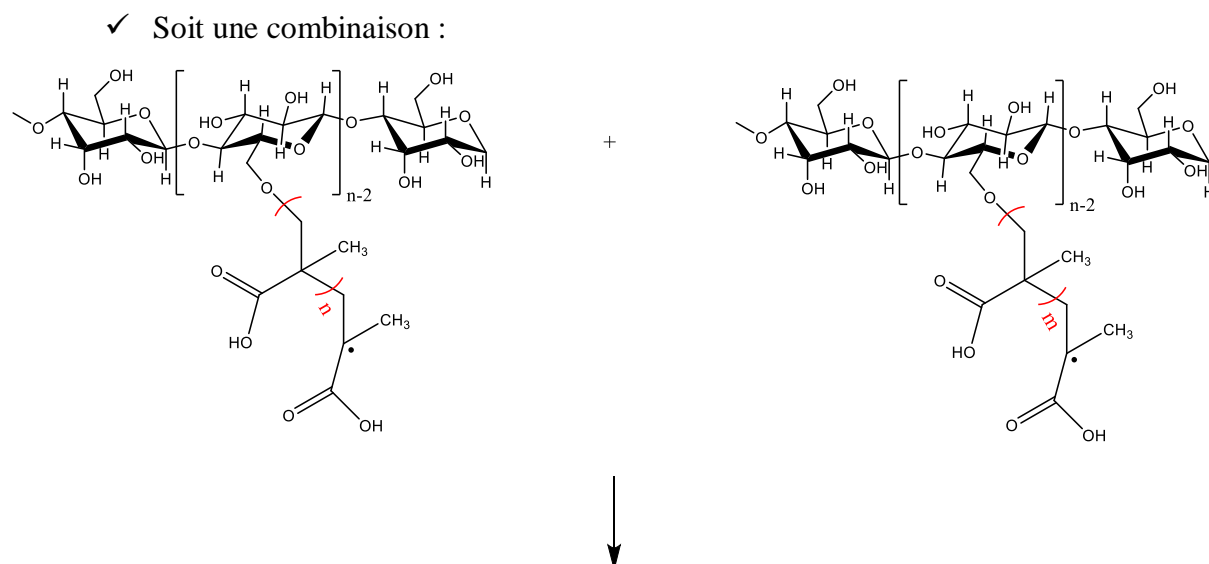


Schéma III.3 : Mécanisme réactionnel de la croissance de la chaîne macromoléculaire cellulosique

III.1.2.c. Terminaison

A ce stade la croissance de la chaîne macromoléculaire cellulosique greffée par l'acide méthacrylique s'arrête. Il y a disparition du centre actif. Les réactions de terminaison sont biomoléculaires sur deux molécules en croissance.



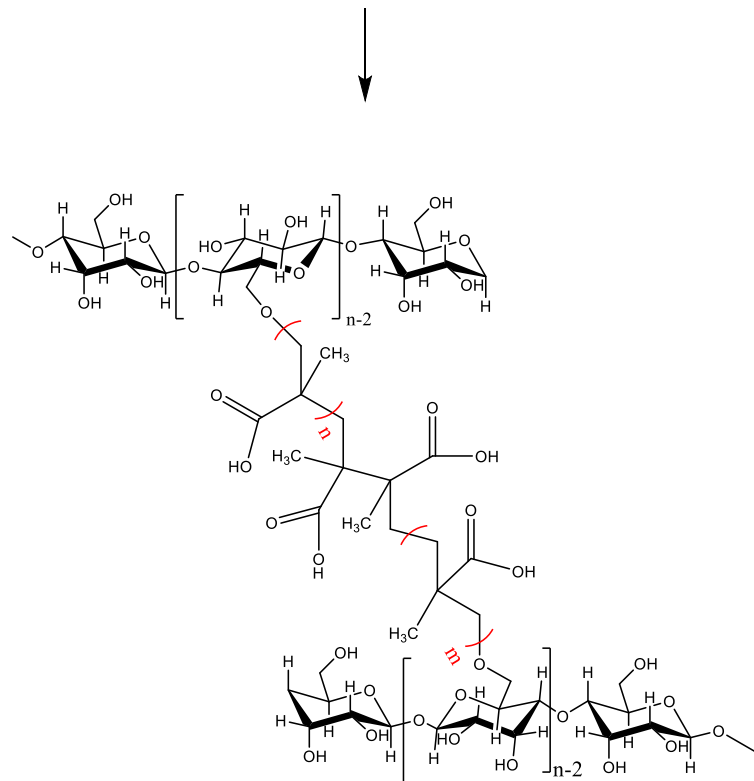
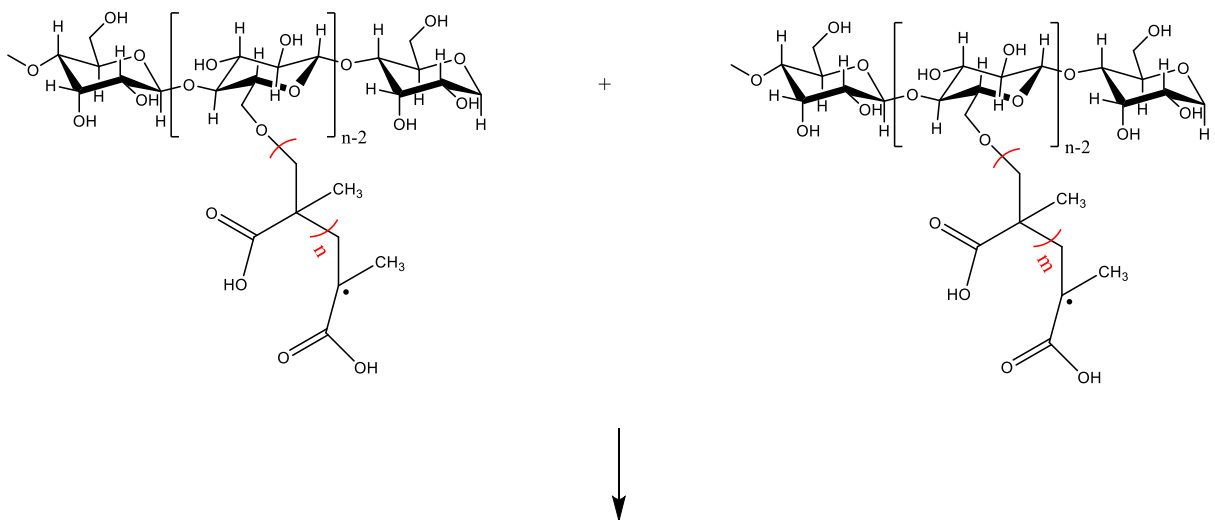


Schéma III.4 : Mécanisme réactionnel de la terminaison de la chaîne macromoléculaire cellulosique greffé par combinaison

✓ Soit une dismutation : transfert d'un atome d'hydrogène H



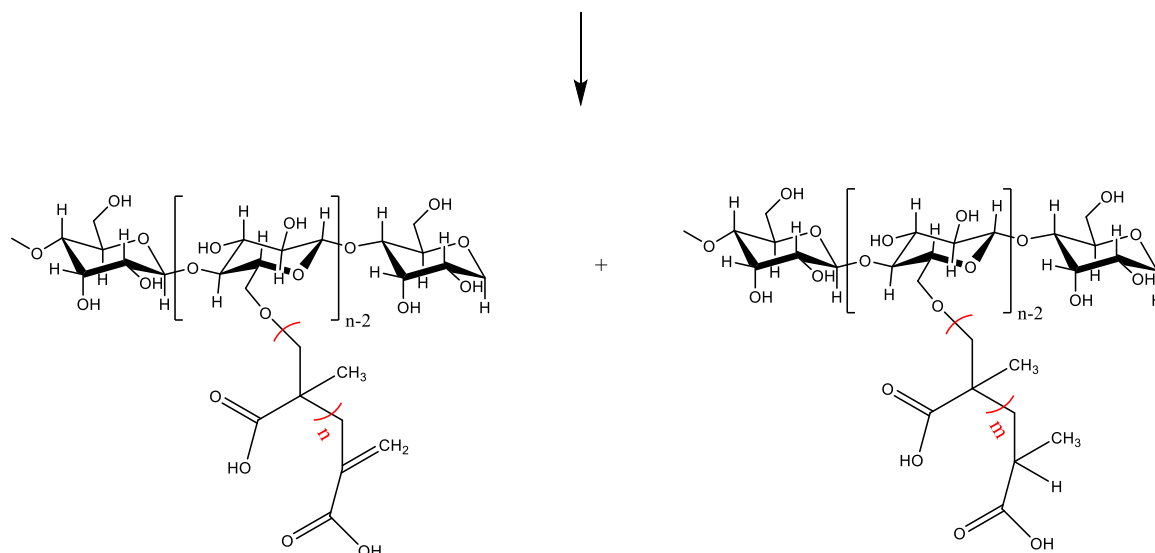


Schéma III.5 : Mécanisme réactionnel de la croissance de la chaîne macromoléculaire cellulosique

III.2. CARACTERISATION DES COMPOSITE ELABORES

III.2.1. Essai de traction

L'évolution de la contrainte et l'allongement à la rupture des composites traités et non traités est illustrée sur la figure III.2. L'ajout de 25 % de poly (éthylène téréphtalate) recyclé PET a augmenté la contrainte et l'allongement à la rupture du mélange, soit environ au moins quatre fois et double fois de la contrainte et de l'allongement à la traction respectivement de celui du PE vierge. Augmentation de la résistance à la traction des mélanges PE/PET, indiquant que la résistance élevée du PET peut renforcer la résistance à la traction du PE. Cela peut être expliqué par la dispersion plus homogène du PET dans la matrice polyéthylène, favorisant l'adhésion à la matrice [11].

La charge lignocellulosique non traitée du papier des gobelets abaisse la contrainte et à la rupture du mélange polymérique PE/PET. Où la valeur la plus élevée a été obtenue lorsque le taux de charge était d'environ 4 %. La fibre cellulosique a augmenté les extrémités de charge. Cela signifie qu'il y a des points de concentration de contraintes importants par agglomération des particules de charge, et le démouillage du polymère en créant des points de concentration de contraintes, et la présence d'air ou d'eau emprisonnés à la surface de la fibre ; sous forme de couche limite, empêche la surface de la fibre d'entrer en contact aux points de contact avec la résine, cela conduit à une mauvaise liaison interfaciale provoque des

microvides partiellement séparés entre la fibre cellulosique et le mélange polymérique PE/PET [12, 13].

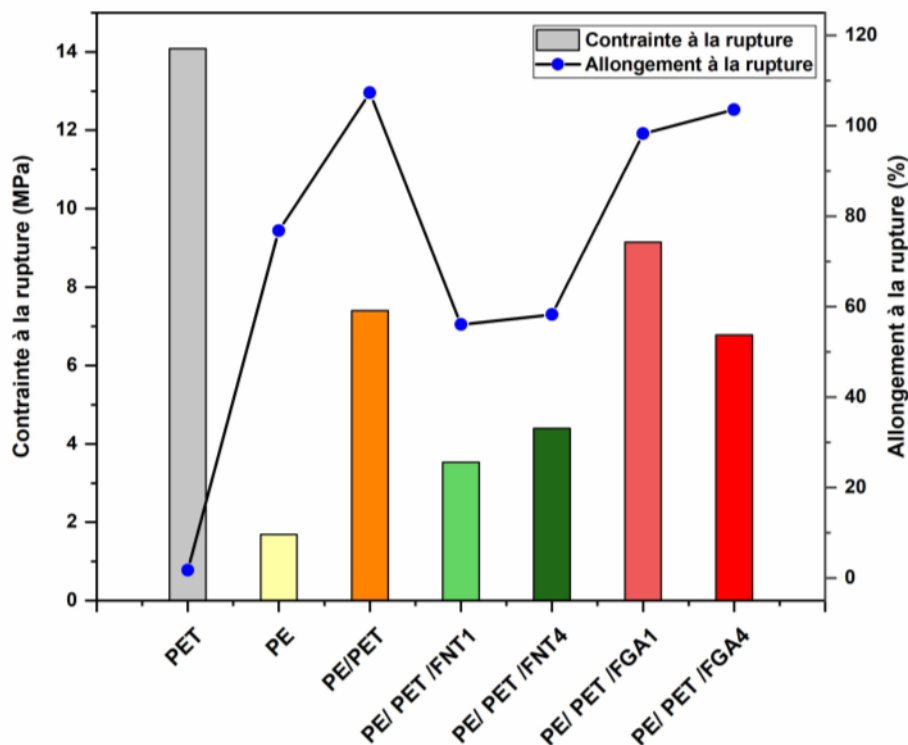


Figure III.2 : Evolution de la contrainte et l'allongement à la rupture des composites traitée et non traitée.

L'incorporation de la fibre cellulosique greffée acide méthacrylique a amélioré l'adhésion entre la fibre et le mélange PE/PET. Après modification, les fibres FGA peut obtenir une meilleure dispersion et compatibilité, ce qui peut encore augmenter la résistance à la traction du composite PE/PET à 9.15 MPa et 6.78MPa des composites PE/PET/FGA₁ et PE/PET/FGA₄ respectivement, ce qui est beaucoup plus élevé que les composites non traitées [2].

La déformation à la rupture des composites renforcés par les fibres non traitées est réduit avec l'existence de la charge. Il passe de 107.27% pour le mélange PE/PET à 56.03% et 58.27% pour les composites à PE/PET/FNT₁ et PE/PET/FNT₄ respectivement. On explique cette diminution par la fragilité du matériau du fait de la nature hydrophile de la fibre non traitée qui absorbe plus d'humidité et provoque un gonflement dans le mélange polymérique [13].

Les traitements chimiques de la charge apportent une amélioration, estimée à 98.23% et 103.58% que pour les formulations PE/PETFGA₁ et PE/PET/FGA₄ respectivement. Cette augmentation est principalement attribuée à une meilleure dispersion de la fibre traitée qui confère une certaine flexibilité au matériau [14].

La figure III.3 met en évidence l'évolution du module d'Young des composites de polyéthylène et polyéthylène téréphtalate vierge, mélanges et renforcées par les fibres cellulosiques traitées et non traitées. D'après la courbe on peut voir clairement que le modules d'Young des composites élaborés augment au fur et à mesure avec l'augmentation du taux de la charge traitées et non traitées et aussi plus important que celui du PE. Incorporation de la charge dans la matrice PE augmente la rigidité des composites. En outre Les composites PE/PETFGA₁ et PE/PET/FGA₄ marque une augmentation du module d'Young, cela peut être expliqué par la bonne orientation des particules de le charge traités. La diminution de la rigidité des composite PE/PET/FGA₄ peut être expliquée par le changement du mécanisme de déformation car le changement d'interaction ne justifie pas la diminution du module [10, 14].

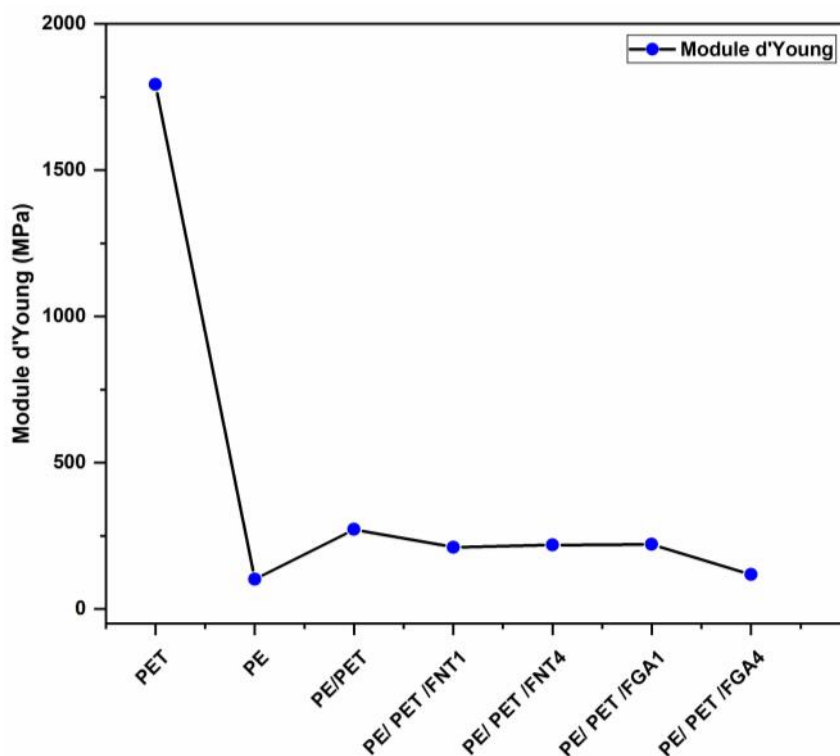


Figure III.3 : Evolution de module d'Young des composites traitée et non traitée.

III.2. 2. Test de la dureté Shore D

La dureté d'un échantillon particulier se rapporte à sa résistance à la pénétrabilité quand une charge est appliquée. La figure III.4 montre l'effet du taux de charge traité et non traité sur la dureté des composites. On observe une diminution de la dureté avec l'incorporation de la fibre non traité. Ces résultats peuvent être expliqués que l'incorporation de la fibre non traité donne des composites avec une faible adhésion interfaciale qui abaisse la dureté des composites PE/PET/FNT. La dureté est une mesure de la résistance à l'usure et à l'abrasion, puisque les matériaux durs résistent mieux aux frottements [12].

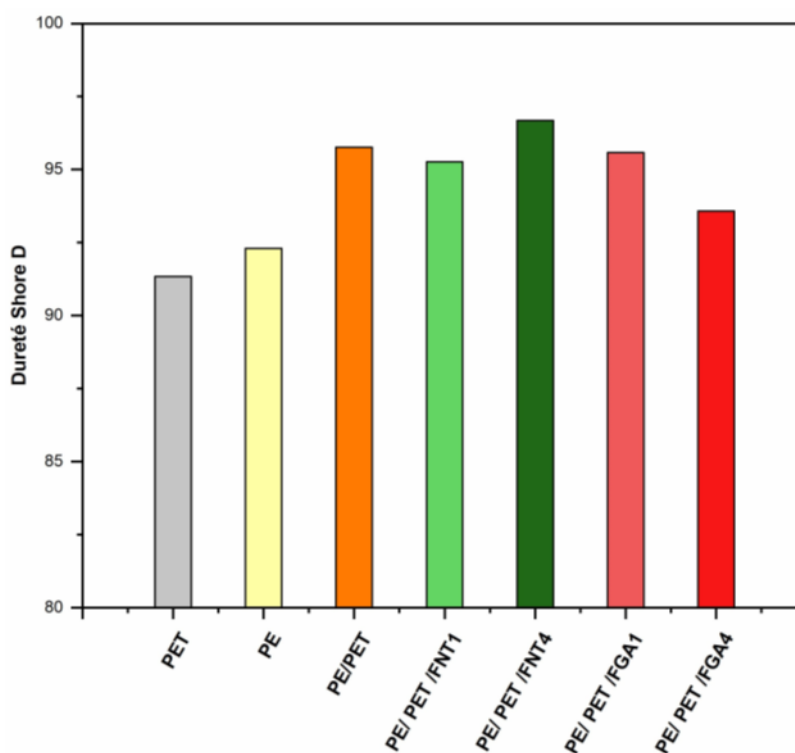


Figure III.4 : Evolution de la dureté Shore des composites traitée et non traitée.

L'incorporation de la fibre cellulosique greffé par l'acide méthacrylique FGA dans le mélange polyéthylène / polyéthylène téréphtalate PE/PET est accompagnée d'une diminution de la dureté des composites PE/PET/FGA₄ comparé au composites PE/PET/FNT₄. Cela est attribué cela à la plastification de la fibre après le traitement, ce qui rend le composite moins dur, en lui conférant des propriétés de souplesses et le caractère non cassant. Alors l'augmentation de taux de charge conduit à l'augmentation de la dureté est interprétée par la bonne dispersion de la fibre dans la matrice avec la diminution des vides et une plus forte adhésion interfaciale fibre-matrice [15, 16].

III.2.3 Taux d'absorption d'eau

La figure III.5 présente l'évolution d'absorption de l'eau des composites PE/PET/FNT en fonction du temps d'immersion dans l'eau distillée pour une période de 45 jours. Le taux d'absorption augmente avec le taux de la fibre cellulosique non traitée renforcé dans le mélange polymérique et le temps d'immersion, ce qui est tout à fait attendu car la cellulose est fortement riche en groupements hydroxyles, qui forment des liaisons hydrogènes avec les molécules d'eau (figure III.6), ce qui facilite la pénétration des molécules d'eau au profond de la fibre et entraîne un gonflement. Par conséquent, plus la concentration en groupements OH est élevée, plus le taux de fibre est élevé, ce qui augmente le taux d'absorption [4, 17]. On remarque aussi que la vitesse d'absorption d'eau des composites PE/PET/FNT est rapide, puis elle diminue au fur et à mesure que le temps augmente jusqu'à la saturation où le taux d'absorption d'eau devient constant. Pour les formulations PE/PET/FNT1 et PE/PET/FNT4, on estime les taux de gonflements maximaux à 6.823 % et 9.277 % respectivement. Pour le mélange PE/PET, on enregistre une très faible absorption d'eau due à la nature apolaire de ce mélange qui lui confère le caractère hydrophobe d'environ 0.298 % en 24 h, et ne dépasse pas 2.124 % en 20 jours.

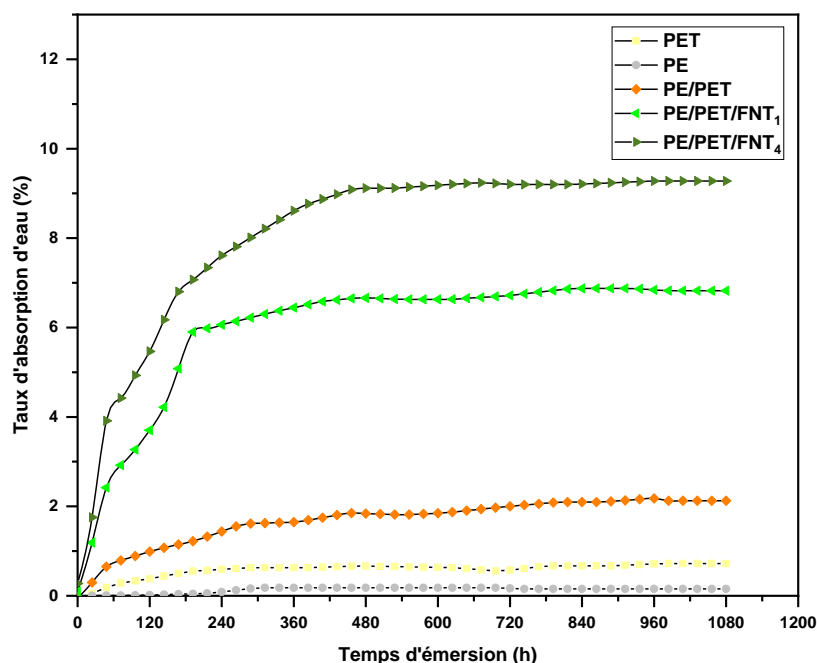


Figure III.5 : Evolution du taux d'absorption d'eau des composites renforcées par les fibres cellulosique non traitée en fonction du temps.

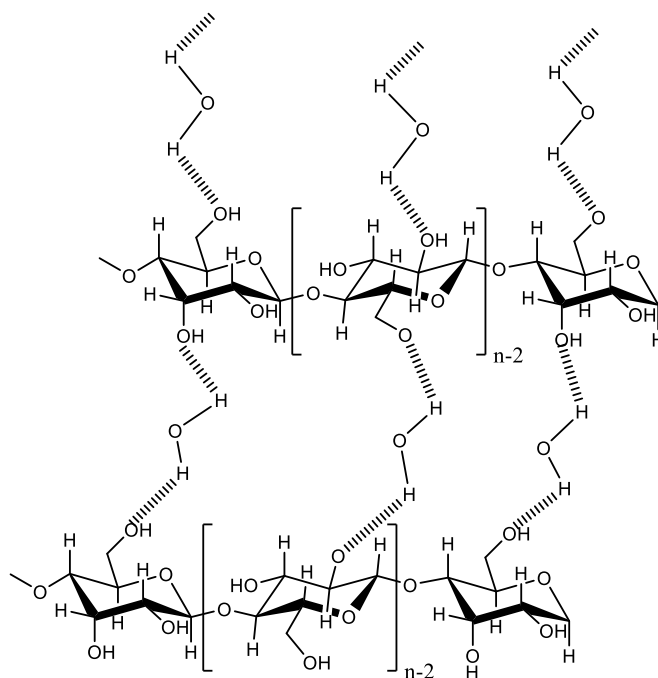


Figure III.6 : Formation des liaisons hydrogènes entre les molécules de cellulose et les molécules d'eau.

Les figures III.7 et III.8, représentent la variation du taux d'absorption d'eau des composites chargés à différents taux de charge traité et non traité à 1% et 4% en fonction du temps d'immersion dans l'eau distillée. On voit clairement que les taux d'absorption des composites sont inférieurs à ceux des composites non traitées PE/PET/FNT. Ce résultat peut être expliqué par l'augmentation de l'hydrophobicité des fibres par la diminution de la concentration des groupements OH de la fibre cellulosique lors de greffage par l'acide méthacrylique, car les groupes aldéhyde sont moins polaires que les groupes hydroxyle [18]. Ce traitement a donc amélioré la compatibilité entre le renfort et la matrice, ce qui a engendré une bonne adhésion interfaciale, se traduisant par une diminution des microvides interfaciale, et par voie de conséquence, une diminution du taux d'absorption d'eau, en lui fournissant une meilleure protection à la pénétration de l'eau à l'intérieur du composite.

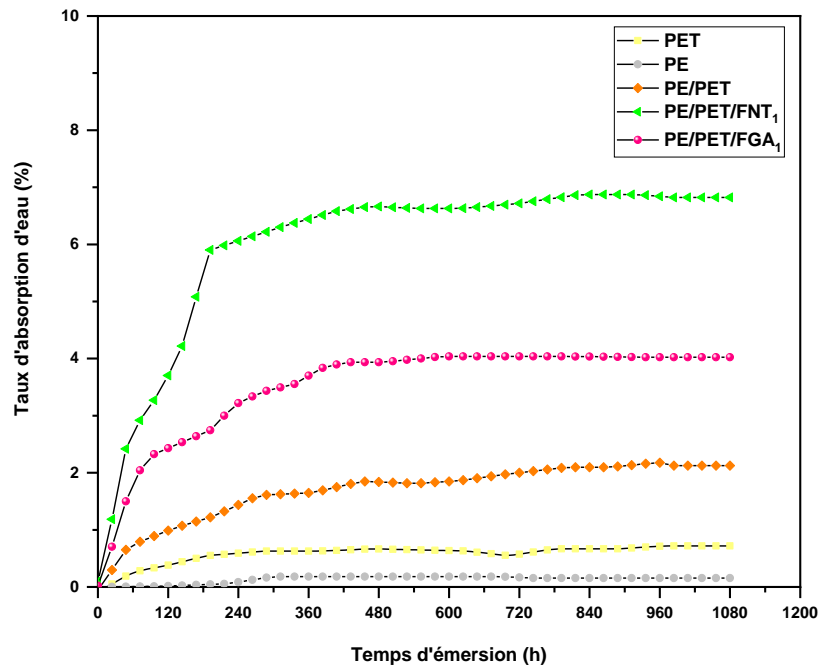


Figure III.7 : Evolution du taux d'absorption d'eau des composites renforcés par 1% de fibres cellulosique traitée et non traitée en fonction du temps.

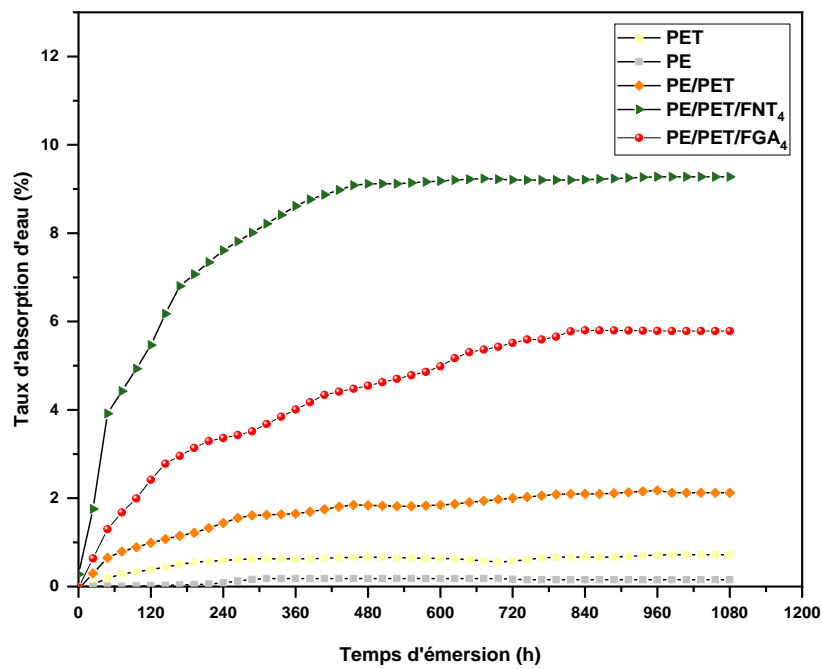


Figure III.8 : Evolution du taux d'absorption d'eau des composites renforcés par 4% de fibres cellulosique traitée et non traitée en fonction du temps.

Référence

- [1] ALEMDAR A, SAIN M, Isolation and characterization of nanofibers from agricultural residues—wheat straw and soy hulls. *Bioresour Technol* 99:1664–1671, 2008.
- [2] TAO ZHU . JIA GUO . BIN FEI . ZHENGYU FENG . XIAOYU GU . HONGFEI LI . JUN SUN . SHENG ZHANG, Preparation of methacrylic acid modified microcrystalline cellulose and their applications in polylactic acid: flame retardancy, mechanical properties, thermal stability and crystallization behavior, *Cellulose* **27**, 2309–2323, 2020.
- [3] HU Y, TANG L, LU Q, WANG S, CHEN X, HUANG B, Preparation of cellulose nanocrystals and carboxylated cellulose nanocrystals from borer powder of bamboo. *Cellulose* 21:1611–1618, 2014.
- [4] VINOD KUMAR GUPTA, SHILPI AGARWAL, PRERNA SINGH, DEEPAK PATHANIA, Acrylic acid grafted cellulosic Luffa cylindrical fiber for the removal of dye and metal ions, *Carbohydrate Polymers* 98, 1214– 1221, 2013.
- [5] T.S. ANIRUDHAN, A. R. THARUN, AND S. R. REJEENA, Investigation on Poly(methacrylic acid)-Grafted Cellulose/Bentonite Superabsorbent Composite: Synthesis, Characterization, and Adsorption Characteristics of Bovine Serum Albumin, *Ind. Eng. Chem. Res*, 50, 1866–1874, 2011.
- [6] NAGARAJAN, K. J., BALAJI, A. N., & RAMANUJAM, N. R. Extraction of cellulose nanofibers from *cocos nucifera* var *aurantiaca* peduncle by ball milling combined with chemical treatment. *Carbohydrate Polymers*, 212, 312–322, 2019.
- [7] D.DASONG, F.MIZI, Investigation of the dislocation of natural fibres by Fouriertransform infrared spectroscopy, *Vibrational Spectroscopy*, 55, 300 –306, 2011.
- [8] H. DJIDJELLI, A. BOUKERROU, R. FOUNAS, A. RABOUHI, M. KACI, J. FARENC, J.J. MARTINEZ-VEGA, D. BENACHOUR, Preparation and characterization of poly(vinyl chloride)/virgin and treated sisal fiber composites, *Journal of Applied Polymer Science*, 103: 3630-3636, 2007.
- [9] F.CARRILLO, A,X.COLOM, J,J.SUNOL J.SAURINA, Structural FTIR analysis and thermal characterisation of lyocell and viscose-type fibres, *European Polymer Journal*, 40, 2229–2234, 2004.
- [10] MARIUS STELIAN POPA, ADRIANA NICOLETA FRONE, IONUT CRISTIAN RADU, PAUL OCTAVIAN STANESCU, ROXANA TRU,SCA, VALENTIN RADI,TOIU, CRISTIAN ANDI NICOLAE, AUGUSTA RALUCA GABOR, DENIS MIHAELA PANAITESCU, Microfibrillated Cellulose Grafted with Metacrylic Acid as a Modifier in Poly(3-hydroxybutyrate), *Polymers*, 13, 3970, 2021.
- [11] ZISHOU ZHANG,CHUNGUANG WANG, KANCHENG MAI, Reinforcement of

Recycled PET for Mechanical Properties of Isotactic Polypropylene, *Advanced Industrial and Engineering Polymer Research*, 2(2), 69-76, 2019.

- [12] HALLA M. SHEHAP, MOHAMMED A. ALZUHAIRI, SARMAD I. IBRAHIM, SAIF S. HUSSEIN, Recycling of Wood – Plastic Composite Prepared from Poly (Ethylene Terephthalate) and Wood Sawdust, *Engineering and Technology Journal*, 39 (11), 1654-1662, 2021.
- [13] NUR HIDAYAH MARZUKI, MAT UZIR WAHIT, AGUS ARSAD , NORHAYANI OTHMAN, NOOR IZAN SYAZANA MOHD YUSOFF, The effect of kenaf loading on the mechanical properties of kenaf-reinforced recycled poly(ethylene terephthalate)/recycled poly(propylene) (rPET/rPP) composite, *Materials Today: Proceedings*, 39 (2), 959-964, 2021.
- [14] KOAY SEONG CHUN, SALMAH HUSSEINSYAH, HAKIMAH OSMAN, Influence of Methacrylic Acid Modification on Tensile Properties of Polypropylene/Cocoa Pod Husk Biocomposites, *Polymer-Plastics Technology and Engineering*, 54: 296–300, 2015.
- [15] J.O AGUNSOYE, S.A. BELLO, S.O. AZEEZ, A.A. YEKINNI, R.G. ADEYEMO, Recycled Polypropylene Reinforced Coconut Shell Composite: Surface Treatment Morphological, Mechanical and Thermal Studies, *International Journal of Composite Materials*, 4: 168-178, 2014.
- [16] D. BACHTIAR, M.S. SAPUAN SALIT, E. ZAINUDIN, K. ABDAN, K.H.M. DAHLAN, Effects of alkaline treatment and compatibilizing agent on tensile properties of sugar palm fiber reinforced high impact polystyrene composites, *BioResources*, 6: 4815-4823, 2011.
- [17] D. PASQUINI, E.M. TEIXEIRA, A.A. SILVA CURVELO, M.N. BELGACEM, A. DUFRESNE, Surface esterification of cellulose fibres: Processing and characterisation of low-density polyethylene/cellulose fibres composites, *Composites Science and Technology*, 68: 193–201, 2008.
- [18] STEPHANIE A. KEDZIOR, LEXA GRAHAM, CAROLYN MOORLAG, BRYNN M. DOOLEY, EMILY D. CRANSTON, Poly(methyl methacrylate)-Grafted Cellulose Nanocrystals: One-Step Synthesis, Nanocomposite Preparation, and Characterization, *The Canadian journal of chemical engineering*, 94, 811-822, 2016.

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

L'étude réalisée dans ce travail avait pour objectif d'élaborer des composites à base de mélange de polyéthylène /polyéthylène téréphtalate renforcé par des fibres cellulosique de papier des gobelets. Nous nous sommes intéressés particulièrement au problème d'adhésion à l'interface fibre /matrice. Par ailleurs, on a choisis le greffage de la fibre par l'acide méthacrylique. La mise en évidence de la modification a été examinée par l'analyse IRTF, et l'impact des traitements sur les propriétés physico-mécaniques des composites ont été de même étudiés.

Compte tenu des résultats obtenus, on peut conclure que :

- Les résultats de la spectroscopie IRTF de la fibre cellulosique greffé acide méthacrylique révèlent que la réaction de greffage a été confirmée par apparition d'un nouveau pic d'absorption à 1712 cm^{-1} , correspondant aux vibrations d'élongation du carbonyle introduites par l'acide méthacrylique. La diminution de l'intensité de la bande à 3399 cm^{-1} caractéristique des liaisons hydrogène des groupes hydroxyles O-H du à l'acylation de la cellulose. La vibration d'élongation des liaisons C=C des groupes vinyle terminaux des oligomères d'acide méthacrylique, n'ayant pas réagi été confirmé par le pic à 1630 cm^{-1} .
- Le comportement mécanique des composites PE/PET/FNT montres qu'avec l'augmentation du taux de la charge non traitée, la contrainte et l'allongement à la rupture diminuent, alors que le module d'élasticité et la dureté Shore croient progressivement. Après modification chimique, les propriétés de mécanique enregistrent des améliorations.
- Le taux d'absorption d'eau dépend du temps d'immersion, du taux de la charge et du de traitement de cellulose qui confère un caractère plus au moins hydrophobe aux matériaux, qui se traduit par une diminution du taux d'absorption d'eau.

Résumé

La cellulose est le polymère naturel le plus abondant au monde. Sa légèreté, et son module d'élasticité en font un excellent renfort en composite polymérique. Cette étude vise à examiner l'effet de l'utilisation de la cellulose des gobelets en carton pour renforcer les composites polyéthylène/poly(téréphtalate d'éthylène). Nous avons greffé de l'acide méthacrylique sur de la cellulose à caractère hydrophile en utilisant une technique de polymérisation radicalaire utilisant du persulfate de potassium comme initiateur pour surmonter sa mauvaise compatibilité avec les matrices composites non polaires. La tâche consiste à préparer des composites, en commençant par la préparation de la cellulose, en passant par la modification de surface, l'élaboration de composites et enfin la caractérisation de mélanges polymères et de leurs composites renforcés comme les tests spectroscopiques IRTF, les tests mécaniques, la dureté Shore et les tests d'absorption d'eau.

Mots-clés : polyéthylène, polyéthylène téréphtalate, matériau composite, cellulose, greffage, acide méthacrylique.

Abstract

Cellulose is the most abundant natural polymer in the world. Its lightweight, and elastic modulus make it excellent for polymer composite reinforcement. This study aims to examine the effect of using cellulose from paper cups to reinforce polyethylene/Poly(ethylene terephthalate) composites. We grafted methacrylic acid onto hydrophilic cellulose using a free radical polymerization technique using potassium persulfate as the initiator to overcome its poor compatibility with non-polar composite matrices. The task involves preparing composites, beginning with the preparation of cellulose, continuing through surface modification, composite elaboration, and finally characterization of polymeric blends and their reinforced composites like spectroscopic FTIR tests, mechanical testing, Shore hardness, and water uptake measurements.

Key words: polyethylene, poly(ethylene terephthalate), composite material, cellulose, grafting, methacrylic acid.

ملخص

السليولوز هو البوليمر الطبيعي الأكثر وفرة في العالم. معاملته خفيف الوزن والمرن يجعله ممتازاً لتقوية مركبات البوليمر. تهدف هذه الدراسة إلى فحص تأثير استخدام السليولوز من الأكواب الورقية لتقوية مركبات البوليمر إيثيلين / بولي إيثيلين تيريفثاليت. قمنا بتطعيم حمض الميثاكريليك على السليولوز المحبة للماء باستخدام تقنية بلمرة الجذور الحرة باستخدام بيرسلفات البوتاسيوم كبادئ للتغلب على توافقه الضعيف مع المصفوفات المركبة غير القطبية. يتضمن العمل تحضير المركبات ، بدءاً من تحضير السليولوز الى تعديل السطح ، ثم تحضير المركبات ، و أخيراً توصيف الخلطات البوليمرية ومركباتها المعززة مثل اختبارات الطيفية للأشعة تحت حمراء IRTF ، والاختبار الميكانيكي ، الصلابة ، و امتصاص الماء.

الكلمات المفتاحية: بولي إيثيلين ، بولي إيثيلين تيريفثاليت ، مواد مركبة ، سليولوز ، تطعيم ، حمض ميثاكريليك.