

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université Mohamed Boudiaf de M'sila Faculté des sciences

Département de chimie



Numéro d'inscription : DCH/3C/02/2020

Thèse

Présentée pour l'obtention du diplôme de

DOCTORAT LMD

Filière : Chimie

Spécialité : chimie de l'environnement

THÈME

**Elaboration et Caractérisation des Matériaux
Composites à Base des Déchets et Fibres
Végétales**

Présenté par :

Mme : **LARKAT Karima**

Soutenue le : 24/01/2026

Devant le jury composé de :

REFFAS Abdelbaki	Professeur	Président	Université de M'sila
BENYAHIA Azzedine	Professeur	Rapporteur	Université de M'sila
DEGHFEL Nadir	MCA	Co- Rapporteur	Université de M'sila
BERREDJEM Yamina	Professeur	Examineur	Université Badji Mokhtar Annaba
DJEHICHE Mokhtar	Professeur	Examineur	Université de M'sila
MELOUKI Azzedine	MCA	Invité	Université de M'sila

2025/2026

Remerciement

Ce travail de recherche, qui a marqué une étape importante dans ma vie académique et personnelle, n'aurait pu voir le jour sans l'appui et la contribution de nombreuses personnes et institutions. Je tiens à exprimer ici toute ma gratitude envers chacun d'entre eux.

Mais tout d'abord, je remercie **ALLAH**, tout puissant pour cette force intérieure qui m'a donné pour lutter contre vents et marées et d'être là aujourd'hui et je n'ai perdu ni mon âme, ni ma personnalité, et surtout pas mon humanité parce que à quoi sert les titres si on n'a pas les valeurs qui vont avec. Encore une fois merci mon dieu. En premier lieu, je souhaite remercier chaleureusement professeur **Azzedine BENYAHIA** mon directeur de thèse, pour son encadrement rigoureux, ses conseils judicieux et sa patience tout au long de ce parcours. Sa vision scientifique et son soutien constant m'ont permis de surmonter les défis rencontrés et de mener cette recherche à son terme. Ce travail n'aurait pas été possible sans son implication exceptionnelle et son inspiration intellectuelle.

J'adresse mes remerciements aussi à mon co-encadrant de thèse, **Dr. Nadir DEGHEFEL**, Maître de conférences à l'université de M'sila, pour son attention de tout instant sur mes travaux. Son énergie et sa confiance ont été des éléments moteurs pour moi.

Je suis également profondément reconnaissante envers l'université de **M'sila**, qui m'a offert un environnement académique stimulant et des ressources précieuses pour mener à bien cette étude. L'accès aux laboratoires, bibliothèques et autres infrastructures a été essentiel pour le développement de ce projet. Merci également à l'équipe administrative et technique de département de chimie, dont le professionnalisme et l'efficacité ont facilité mon travail quotidien.

Un grand merci va également à l'université de **Bartın, Turquie**, où j'ai eu l'opportunité d'effectuer un stage de recherche sous la supervision de professeur OSMAN Gencil. Cette expérience a été particulièrement enrichissante, tant sur le plan scientifique que personnel.

Je souhaite également témoigner ma gratitude aux membres de mon jury de thèse : **Pr. Reffas Abdelbaki**, président du jury, **Pr. Berredjem Yamina**, **Dr. Melouki Azzedine**, **Dr. Deghefel Nadir** et **Pr. Djehiche Mokhtar**. Leur lecture attentive, leurs critiques constructives et leurs suggestions pertinentes ont permis d'améliorer la qualité de ce travail. Leur engagement dans l'évaluation de cette thèse constitue une marque de respect et de confiance que je n'oublierai jamais.

Je voudrais également saluer l'ensemble des collègues et amis du laboratoire des matériaux inorganiques pour leur soutien moral, leurs discussions intellectuelles stimulantes et leur amitié.

Remerciement

Ils ont créé une atmosphère de travail agréable et collaborative qui a rendu cette expérience encore plus enrichissante.

Enfin, je dédie ces remerciements à tous ceux et celles qui, de près ou de loin, ont contribué à ce projet, que ce soit par leur présence, leurs idées, leur collaboration ou leur simple sourire. Chaque interaction, chaque mot d'encouragement, chaque geste de soutien a joué un rôle important dans cette réussite.

Je conclurai en disant que cette thèse n'est pas seulement le fruit de mon travail, mais aussi celui de toutes les personnes qui m'ont accompagnée sur ce chemin. Merci infiniment à vous tous.

Dédicace

À mon père, رحمه الله

À ma mère, qu'Allah lui accorde santé, bonheur et longue vie.

À mes chères sœurs et à mon frère, pour leur amour et leur soutien indéfectibles.

À tous mes professeurs, pour la lumière qu'ils ont allumée sur mon chemin.

À mes amis, pour leur présence et leur encouragement au fil des années.

À toutes les personnes qui me sont chères...

Je dédie ce travail.

Résumé

Cette étude vise à développer des matériaux composites écologiques à base d'argile verte locale renforcée par des fibres de la plante *Cynodon dactylon*, dans le cadre de la recherche de solutions durables pour améliorer les propriétés mécaniques des matériaux terreux utilisés en construction. L'argile utilisée dans cette étude se caractérise par un indice de plasticité faible (6,3 %) et une teneur élevée en calcite (38,76 %) et quartz (29,42 %), ce qui en fait une argile faiblement cohésive et de faible résistance à l'état naturel. Pour améliorer ses propriétés en tant que matrice, un mélange modifié comprenant 12 % de ciment, 9 % de chaux et 5 % de fumée de silice a été adopté. Les matériaux de renforcement étaient des fibres de *Cynodon dactylon* soumises à un double traitement chimique, comprenant un traitement alcalin au NaOH à des concentrations de 2, 4, 6 et 8 % (m/v), et un traitement oxydant au KMnO_4 à des concentrations comprises entre 0,1 % et 0,25 %. Les tests de caractérisation utilisés dans cette étude comprenaient la diffraction des rayons X (DRX), la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF), l'analyse thermique (ATG) et la microscopie électronique à balayage couplée à la spectroscopie à dispersion d'énergie (MEB-EDX). Les résultats ont montré que le double traitement des fibres améliorait nettement la pureté de leur surface et renforçait leur capacité d'adhésion à la matrice ciment-argile. Le composite préparé avec la formulation AVFT801 a présenté la meilleure performance mécanique, avec une résistance à la compression de 7,74 MPa, soit une augmentation d'environ 60 % par rapport à l'échantillon renforcé avec des fibres non traitées (3,1 MPa), tandis que la résistance à la flexion atteignait 1,89 MPa. Le composite a également montré une bonne stabilité dimensionnelle grâce à une faible teneur en humidité (1,48 %) et une porosité réduite. Ces résultats confirment que la modification chimique des fibres joue un rôle clé dans l'amélioration de l'adhésion fibre/matrice, conduisant à une amélioration significative des performances des matériaux composites à base d'argile. Ainsi, ces matériaux présentent un potentiel prometteur pour des applications dans la construction durable, notamment dans les régions utilisant des matériaux terreux locaux à faible coût et en abondance.

Mots-clés : Matériaux composites, *Cynodon dactylon*, argile, traitement alcalin et oxydant, adhésion fibre/matrice, propriétés mécaniques.

Abstract

This study aims to develop environmentally friendly composite materials based on local green clay reinforced with fibers from the *Cynodon dactylon* plant, as part of the search for sustainable solutions to improve the mechanical properties of earth-based materials used in construction. The clay used in this study is characterized by a low plasticity index (6.3%) and a high calcite (38.76%) and quartz (29.42%) content, making it a weakly cohesive clay with low strength in its natural state. To improve its properties as a matrix, a modified mixture comprising 12% cement, 9% lime, and 5% silica fume was adopted. The reinforcing materials were *Cynodon dactylon* fibers subjected to a double chemical treatment, including an alkaline treatment with NaOH at concentrations of 2, 4, 6, and 8% (w/v), and an oxidative treatment with KMnO_4 at concentrations between 0.1% and 0.25%. The characterization tests used in this study-included X-ray diffraction (XRD), Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR), thermal analysis (TGA/DTG), and scanning electron microscopy coupled with energy-dispersive X-ray spectroscopy (SEM-EDX). The results showed that the double treatment of the fibers significantly improved their surface purity and enhanced their adhesion to the cement-clay matrix. The composite prepared with the AVFT801 formulation exhibited the best mechanical performance, with a compressive strength of 7.74 MPa, an increase of approximately 60 % compared to the sample reinforced with untreated fibers (3.1 MPa), while the flexural strength reached 1.89 MPa. The composite also demonstrated good dimensional stability due to its low moisture content (1.48%) and reduced porosity. These results confirm that chemical modification of the fibers plays a key role in improving fiber/matrix adhesion, leading to a significant improvement in the performance of clay-based composite materials. Thus, these materials show promising potential for applications in sustainable construction, particularly in regions using abundant, low-cost local earth-based materials.

Keywords: Composite materials, *Cynodon dactylon*, clay, alkali treatment, fiber/matrix adhesion, mechanical properties.

ملخص

تهدف هذه الدراسة إلى تطوير مواد مركبة صديقة للبيئة تعتمد على الطين الأخضر المحلي المدعم بألياف نبات *Cynodon dactylon*، في إطار البحث عن حلول مستدامة لتحسين الخواص الميكانيكية للمواد الترابية المستخدمة في البناء. يتميز الطين المستخدم في هذه الدراسة بانخفاض مؤشر اللدونة (6.3%) وارتفاع محتواه من الكالسيت (38.76%) والكوارتز (29.42%)، مما يجعله طيناً شبيه متماسك وضعيف المقاومة في حالته الطبيعية. لتحسين خصائصه كمصفوفة، تم اعتماد مزيج معدل يتضمن 12% إسمنت، 9% جير، و5% دخان السيليكا. أما مواد التقوية فكانت ألياف *Cynodon dactylon* التي خضعت لمعالجة كيميائية مزدوجة، شملت المعالجة القلوية باستخدام NaOH بتركيز 2%، 4%، 6% و 8%، والمعالجة بالأوكسدة باستخدام $KMnO_4$ بتركيز 0.1% و 0.25% . شملت الاختبارات التشخيصية المستخدمة في الدراسة تحليل الحبيد بالأشعة السينية (DRX)، التحليل الطيفي بالأشعة تحت الحمراء (IRFT)، التحليل الحراري (ATG)، والمجهر الإلكتروني الماسح مع التحليل الطيفي بالأشعة السينية (MEB-EDX).

أظهرت النتائج أن المعالجة المزدوجة للألياف حسنت بشكل واضح نقاء السطح ورفعت قدرة الألياف على الارتباط بالمصفوفة الإسمنتية الطينية. كما سجل المركب المحضّر بالتركيب AVFT801 أعلى أداء ميكانيكي، حيث بلغت مقاومة الضغط 7.74 ميغاباسكال بزيادة تقارب 60% مقارنة بالعينة المدعمة بألياف غير معالجة (3.1 ميغاباسكال)، بينما وصلت مقاومة الانحناء إلى 1.89 ميغاباسكال. كما أظهر المركب استقراراً بُعدياً جيداً بفضل انخفاض نسبة الرطوبة (1.48%) والمسامية المنخفضة. تؤكد هذه النتائج أن التعديل الكيميائي للألياف يلعب دوراً محورياً في تعزيز الالتصاق بين الألياف والمصفوفة، مما يؤدي إلى تحسين كبير في أداء المواد المركبة الطينية. وبذلك، تظهر هذه المواد إمكانات واعدة لاستخدامها في تطبيقات البناء المستدام، خصوصاً في المناطق التي تعتمد على مواد ترابية منخفضة التكلفة ومتوفرة محلياً بكثرة.

الكلمات المفتاحية: مواد مركبة، *Cynodon dactylon*، طين، معالجة قلوية، الالتصاق بين الألياف والمصفوفة، الخواص الميكانيكية.

Table des matières

Résumé.....	iv
Abstract	v
ملخص	vi
Table des matières	vii
Liste des figures	xii
Liste des tableaux	xiv
Liste des abréviations	xv
Introduction générale	1
<i>Chapitre I : Généralités sur les fibres végétales</i>	4
I. 1. Les fibres naturelles	5
I. 1. 1. Classification des fibres naturelles	5
I. 1 .1. 1. Fibres végétales	5
I. 1. 1. 2. Fibres animales	5
I. 1. 1. 3. Fibres minérales	5
I. 2. Les fibres végétales	6
I. 2. 1. Classification des fibres végétales	6
I. 2. 2. Structure des fibres végétales	7
I. 2. 3. Composition chimique des charges végétales	8
I. 2. 3. 1. Cellulose	8
I. 2. 3. 2. Hémicelluloses	9
I. 2. 3. 3. Lignine	9
I. 2. 3. 4. Pectines	10
I. 2. 3. 5. Cires	10
I. 3. Les propriétés des fibres végétales	11
I. 3. 1. Les propriétés physiques et mécaniques des fibres végétales	11
I. 3. 2. Les applications des fibres végétales	13
I. 3. 3. Les avantages et les inconvénients des fibres végétales	14
I. 4. Modification de surface des fibres naturelles	15
I. 4. 1. Différents traitements des fibres naturelles	15
I. 4 .1. 1. Traitements physiques	15
I. 4. 1. 1. 1. Traitement au plasma	15
I. 4. 1. 1. 2. Traitement par irradiation ultraviolette	16
I. 4. 1. 1. 3. Traitement thermique	16
I. 4. 1. 1. 4. Traitement de corona	16
I. 4 .1. 2. Traitements chimique	17

I. 4 .1. 2. 1. Traitements alcalin	17
I. 4. 1. 2. 2. Traitements d'acétylation	18
I. 4 .1. 2. 3. Traitements au permanganate	18
I. 4 .1. 2. 4. Traitements aux silanes	19
I. 4 .1. 2. 5. Traitement au chlorite de sodium	20
I. 4. 1. 2. 6. Traitement de benzylation	20
I. 4. 1. 2. 7. Traitement à l'isocyanate	20
I. 4. 1. 2. 8. Traitement au peroxyde	21
I. 4. 1. 2. 9. Agents de couplage à base d'anhydride maléique	22
I. 4. 1. 2. 10. Traitement à l'acide stéarique	23
I. 4 .1. 3. Traitements biologiques	24
I. 4 .1. 3. 1. Traitement enzymatique.....	24
I. 4 .1. 3. 2. Traitement fongique	25
I. 4 .1. 3. 3. Traitement bactérien	25
I. 4. 2. Impact du traitement de surface des fibres	26
<i>Chapitre II : Les matériaux composites</i>	28
Introduction	29
II. 1. Définition d'un matériau composite	29
II. 2. Les constituants des matériaux composites.....	29
II. 2. 1. La matrice	30
II. 2. 1. 1. Matrice polymère.....	30
II. 2. 1. 1. 1. Matrices thermoplastiques	30
II. 2. 1. 1. 2. Matrices thermodurcissables.....	31
II. 2. 1. 1. 3. Matrices thermostables	32
II. 2. 1. 2. Matrices métalliques	32
II. 2. 1. 3. Matrices céramiques	32
II. 2. 1. 3. 1. Matrices inorganique	33
1. Définition de l'argile.....	33
2. Structure de l'argile.....	33
3. Classification des minéraux argileux	35
4. Propriétés physiques et chimiques de l'argile	37
5. L'application des argiles et minéraux argileux.....	37
II. 2. 2. Le renfort	38
II. 2. 2. 1. Types des renforts	38
II. 2. 3. Les charges et l'additifs.....	39
II. 2. 3. 1. Les charges	39

II. 2. 3. 2. Les additifs	39
II. 2. 4. Classification des matériaux composites	39
II. 3. Procédés de fabrication des composites.....	40
II. 3. 1. Procédés de fabrication des composites à matrice polymère (CMP).....	41
II. 3. 1. 1. Procédés avec matrices thermodurcissables	41
II. 3. 1. 2. Procédés avec matrices thermoplastiques	41
II. 3. 2. Procédés de fabrication des composites à matrice métallique (CMM)	41
II. 3. 3. Procédés de fabrication des composites à matrice céramique.....	41
II. 4. Applications des matériaux composites.....	42
II. 5. Facteurs influençant des composites à renfort naturel	42
II. 5. 1. Influence du chargement, de l'orientation et de la longueur de la fibre sur les composites	42
II. 5. 2. Influence des caractéristiques des fibres sur les composites	42
II. 5. 3. Stabilité thermique des fibres naturelles.....	43
II. 5. 4. Influence de la porosité sur les propriétés des composites	43
II. 5. 5. Comportement hygroscopique des fibres naturelles	44
<i>Chapitre III : Matériels et méthodes</i>	46
III. 1. Matériels et méthodes	47
III. 1. 1. Caractérisation de l'argile.....	47
III. 1. 1. 1. Préparation de l'échantillon argileux.....	47
III. 1. 1. 2. Détermination du pH.....	48
III. 1. 1. 3. Taux d'humidité.....	48
III. 1. 1. 4. Indice de gonflement.....	48
III. 1. 1. 5. Perte au feu.....	49
III. 1. 1. 6. Paramètres géotechnique de l'argile	49
III. 1. 1. 6. 1. Limite d'Atterberg.....	49
III. 1. 1. 6. 2. Limite de liquidité (W_l).....	49
III. 1. 1. 6. 3. Limite de plasticité (W_p).....	50
III. 1. 1. 6. 4. L'indice de plasticité (IP).....	50
III. 1. 1. 6. 5. Mesure de la taille des particules par diffraction laser	50
III. 1. 2. Traitement de fibre	51
III. 1. 2. 1. Cynodon dactylon	51
III. 1. 2. 2. Préparation des fibres de Cyandon dactylon	51
III. 1. 2. 3. Extraction des constituants des fibres de Cynodon dactylon selon la méthode de Klason.	51
III. 1. 2. 4. Traitement alcalin (NaOH) [295].....	52

III. 1. 2. 5. Traitement au permanganate (KMnO_4).....	53
III. 2. Préparation de composite.....	54
III. 2. 1. Matrice et renfort.....	54
III. 2. 2. Formulation et fabrication du composite	55
III. 3. Méthode des caractérisations.....	56
III. 3. 1. La diffraction des rayons X (DRX)	56
III. 3. 2. Fluorescence de rayon X	56
III. 3. 3. Analyse thermogravimétrique.....	56
III. 3. 4. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF).....	56
III. 3. 4. Propriétés mécaniques.....	57
III. 3. 4. 1. Essais de compression.....	57
III. 3. 4. 2. Essais de flexion	57
<i>Chapitre IV : Résultats et discussion</i>	59
IV .1. Paramètres physico-chimiques	60
IV. 1. 1. Paramètres physicochimiques.....	60
IV. 1. 2. Paramètres géotechniques de l'argile.....	61
IV. 1. 3. Granulométrie par laser	61
IV. 1. 3. Diffraction des rayons X.....	62
IV. 1. 4. Compositions chimiques	63
IV. 1. 5. Analyses thermogravimétriques	64
IV. 1. 6. Analyse par spectroscopie infrarouge.....	65
IV. 1. 7. Microscope électronique à balayage (MEB).....	66
IV .2. Caractérisations de fibre de Cynodon.....	68
IV. 2. 1. Composition chimique de la fibre de Cynodon	68
IV. 2. 2. L'effet de traitement alcalin sur la morphologie de fibre de Cynodon dactylon	68
IV. 2. 2. 1. Diffraction des rayon X	68
IV. 2. 2. 2. Analyses thermogravimétrique.....	69
IV. 2. 2. 3. Analyse par spectroscopie infrarouge	70
IV. 2. 3. L'effet de traitement au permanganate sur la morphologie de fibre de Cynodon dactylon.....	71
IV. 2. 3. 1. Diffraction des rayon X	71
IV. 2. 3. 2. Analyses thermogravimétrique.....	72
IV. 2. 3. 3. Analyse par spectroscopie infrarouge	73
IV. 2. 4. Analyse MEB-EDX des fibres de Cynodon dactylon.....	74
IV .3. Caractérisations mécaniques de composites.....	77

IV. 3. 1. Optimisation de la teneur en chaux vive	77
IV. 3. 2. Essais de compression	78
IV. 3. 3. Essais de flexion	79
IV. 3. 4. Analyse du module d'élasticité des composites à base d'argile verte renforcés par fibres de Cynodon dactylon	80
<i>Conclusion générale et perspectives</i>	82
<i>Références bibliographie</i>	87

Liste des figures

Figure I. 1. Classification des fibres végétales en fonction de leur origine.....	6
Figure I. 2. Représentation schématique de l'organisation structurale hiérarchique des fibres végétales [27].	7
Figure I. 3. Structure du bois.	8
Figure I. 4. Structure de cellulose.	9
Figure I. 5. Structure d'hémicellulose.	9
Figure I. 6. Structure de lignine.	10
Figure I. 7. Structure de pectine.....	10
Figure I. 8. Réaction alcaline d'une fibre naturelle.	17
Figure I. 9. Mécanisme réactionnel de l'acétylation des fibres naturelles.....	18
Figure I. 10. Mécanisme d'oxydation de la cellulose par le permanganate de potassium.	19
Figure I. 11. Traitement des fibres naturelles au silane.....	19
Figure I. 12. Mécanisme réactionnel de la benzoylation de fibres naturelles.	20
Figure I. 13. Mécanisme réactionnel de l'agent de couplage isocyanate avec les groupes hydroxyle de la fibre naturelle.	21
Figure I. 14. Mécanisme de fonctionnalisation des fibres naturelles par un peroxyde organique.....	22
Figure I. 15. Représentation schématique du traitement de surface par un agent de couplage à base de maléate.	23
Figure I. 16. Mécanisme de fonctionnalisation de surface des fibres par traitement à l'acide stéarique.	24
Figure II. 1. Composition d'un matériau composite.	29
Figure II. 2. Classification de différentes familles de matrice.	32
Figure II. 3. Représentation de la couche tétraédrique.....	34
Figure II. 4. Représentation des octaèdres.	34
Figure II. 5. Classification des minéraux argileux selon Grim [225].	35
Figure II. 6. Structures de base des minéraux argileux [235].	36
Figure II. 7. Utilisations des argiles naturelles dans divers domaines.....	38
Figure II. 8. Classification de différentes familles de renfort.....	38
Figure II. 9. Classification des matériaux composites basée sur la nature du renfort.	40
Figure II. 10. Représentation de renforts dans le composite : (a) Fibres continues unidirectionnelles, (b) Fibres courtes alignées, (c) Fibres continues multidirectionnelles (d), Fibres continues bidirectionnelles (e), Particules, (f) Fibres courtes aléatoires.	40
Figure II. 11. Facteurs qui influencent la performance du composite.....	44
Figure III. 1. Localisation de Soubella.....	48
Figure III. 2. Préparation et caractérisation des échantillons des argiles.	50
Figure III. 3. Protocole d'extraction des constituants des fibres de Cynodon dactylon (Méthode Klason).	52
Figure III. 4. Fibres de Cyandon traitées et non traitées.....	53

Figure IV. 1. Analyses granulométrique de l' argile.	62
Figure IV. 2. Diffractogramme des rayons X.....	63
Figure IV. 3. Thermogramme de l'argile.	65
Figure IV. 4. Spectre infrarouge de l'argile étudié.....	66
Figure IV. 5. Micrographie SEM et spectre EDS de l'argile verte.	67
Figure IV. 6. Diffractogrammes des fibres de Cynodon dactylon non traitées et traitées au NaOH.....	69
Figure IV. 7. Thermogramme des fibres de Cynodon dactylon non traité et traité par NaOH.	70
Figure IV. 8. Spectres infrarouges des fibres de Cynodon dactylon non traité et traitées par NaOH.	71
Figure IV. 9. Diffractogramme des fibres de Cynodon dactylon traités.	72
Figure IV. 10. Thermogramme des fibres de Cynodon dactylon traités.....	73
Figure IV. 11. Spectres infrarouges des fibres de Cynodon dactylon non traité et traitées par KMnO ₄	74
Figure IV. 12. MEB de : a, CDNT. b, CDA2. c, CDA4. d, CDA6. e, CDA8. f, CDA8K1 et g, CDA8K25.	75
Figure IV. 13. EDX de : a, CDNT. b, CDA2. c, CDA4. d, CDA6. e, CDA8. f, CDA8K1 et g, CDA8K25.	77
Figure IV. 14. Optimisation de la chaux par résistance à la compression.	78
Figure IV. 15. Résistance à la compression des composites renforcés par les CD traitées et non traitées.	79
Figure IV. 16. Résistance à la flexion des composites renforcés par les CD traitées et non traitées.....	80
Figure IV. 17. Module de élasticité.	81

Liste des tableaux

Tableau I. 1. Composition chimique des fibres végétales les plus utilisées.	11
Tableau I. 2. Caractéristiques mécaniques des fibres naturelles.	12
Tableau II. 1. Propriétés typiques de certaines résines thermoplastiques [63,67,83].....	30
Tableau II. 2. Propriétés typiques de certaines résines thermodurcissables (thermostat) [63,67,83]	31
Tableau III. 1. Liste des abréviations utilisées pour le traitement alcalin (NaOH).....	52
Tableau III. 2. Liste des abréviations utilisée pour le traitement au permanganate (KMnO ₄).	53
Tableau III. 3. Compositions chimiques et les propriétés physiques du ciment utilisé...	54
Tableau III. 4. Liste des abréviations utilisées pour le composites.	56
Tableau IV. 1. Paramètres physico-chimique de l'argile.....	60
Tableau IV. 2. Paramètres géotechniques de l' argile.....	61
Tableau IV. 3. Distribution granulométrie.	61
Tableau IV. 4. Compositions minéralogiques.	62
Tableau IV. 5. Compositions chimiques.	64
Tableau IV. 6. L'analyse thermogravimétrique de l' argile.	65
Tableau IV. 7. Indice de cristallinité (CrI) des fibres de Cynodon dactylon non traitées et traitées par NaOH.	69
Tableau IV. 8. Composition élémentaire des fibres de Cynodon dactylon non traitées et traitées.....	76

Liste des abréviations

ATG	Analyses thermogravimétrique
CD	Cynodon dactylon
CEC	Capacité d'échange cationique
CMC	Composites à matrice céramique
CMM	Composites à matrice métallique
CMP	Composites à matrice polymère
CrI (%)	Indice de cristallinité
CRS	Ciment résistance élevée aux sulfates
DRX	diffraction de rayons X
FRX	Fluorescence de rayons X
H (%)	Taux d'humidité
I002	Intensité du pic le plus élevé de la cellulose I
I _{am}	Intensité attribuée à la cellulose amorphe
I _g	Indice de gonflement
I _p	Indice de plasticité
IRTF	Infrarouge à Transformée de Fourier
MEB/EDX	Microscopie électronique à Balayage/ Spectrométrie de Dispersion d'Énergie des Rayons X
MTR	Moulage par Transfert de Résine
PAF	Perte au feu
UV	Ultraviolets
W _l	Limite de liquidité
W _p	Limité de plasticité

Introduction générale

Introduction générale

L'intégration des fibres végétales dans les matériaux composites suscite un intérêt croissant en raison de leurs propriétés mécaniques, environnementales et économiques avantageuses. Parmi les nombreuses fibres naturelles disponibles, celles extraites de plantes locales et abondantes représentent une ressource renouvelable prometteuse pour le développement de matériaux composites durables.

Dans ce contexte, la plante *Cynodon dactylon*, communément appelée herbe à chat ou chiendent, attire l'attention pour ses fibres ligno-cellulosiques présentant un bon équilibre entre résistance, légèreté et biodégradabilité. Ces fibres, peu étudiées jusqu'à présent, offrent un potentiel intéressant comme agent de renforcement dans des composites respectueux de l'environnement, notamment pour des applications dans le secteur de la construction.

Le présent travail vise à élaborer un matériau composite à base de fibres de *Cynodon dactylon* et à caractériser ses propriétés physico-chimiques, mécaniques et microstructurales. L'objectif est d'évaluer la pertinence de ces fibres naturelles comme renfort dans une matrice adaptée, en vue de concevoir des matériaux performants et écologiques [1,2].

Cette étude s'inscrit dans une démarche de valorisation des ressources locales à travers une approche multidisciplinaire combinant extraction et traitement des fibres, formulation de composites et analyses approfondies, afin de proposer des alternatives durables aux matériaux conventionnels.

La recherche de matériaux durables et écologiques constitue un enjeu majeur dans le contexte actuel de transition énergétique et de préservation de l'environnement. Les matériaux composites à base de fibres naturelles suscitent un intérêt croissant, notamment dans les secteurs de la construction, de l'automobile, de l'aéronautique et des biens de consommation. Ces fibres végétales, issues de ressources renouvelables, présentent plusieurs avantages significatifs : faible densité, coût réduit, biodégradabilité, disponibilité locale, et bonnes propriétés mécaniques [1,2]. Ces caractéristiques en font une alternative prometteuse aux fibres synthétiques, dont la production est énergivore et engendre des impacts environnementaux importants [3].

Parmi les fibres naturelles, les fibres ligno-cellulosiques extraites de différentes parties de plantes (tiges, feuilles, racines) se distinguent par leur structure complexe composée majoritairement de cellulose, hémicellulose et lignine, conférant à la fois rigidité et flexibilité [4,5]. Toutefois, leur utilisation industrielle reste encore limitée par des variations de qualité liées aux conditions de croissance, aux méthodes d'extraction et à leur sensibilité à l'humidité

[6]. De ce fait, la caractérisation approfondie et l'optimisation des traitements des fibres sont indispensables pour garantir les performances attendues dans les matériaux composites.

Le *Cynodon dactylon*, communément appelé chiendent, est une plante herbacée largement répandue dans de nombreuses régions du monde, notamment dans les zones arides et semi-arides. Ses fibres présentent un fort potentiel en tant que renfort naturel grâce à leur résistance mécanique et leur disponibilité abondante [7,8]. Malgré cet intérêt, les études sur la valorisation des fibres de *Cynodon dactylon* dans les matériaux composites restent rares, justifiant ainsi une exploration approfondie de leurs propriétés et de leur comportement en association avec des matrices adaptées.

L'objectif principal de cette thèse est donc d'élaborer un matériau composite innovant à base de fibres végétales de *Cynodon dactylon* et de caractériser ses propriétés physico-chimiques, mécaniques et microstructurales. Ce travail vise à évaluer la faisabilité d'utiliser ces fibres comme renfort dans une matrice terreuse ou polymère, afin de développer un matériau performant et respectueux de l'environnement, en adéquation avec les exigences actuelles en matière de construction durable [9,10].

Pour atteindre cet objectif, une approche multidisciplinaire sera adoptée, intégrant la collecte et le traitement des fibres, la formulation des composites, ainsi que des analyses détaillées par des techniques variées (microscopie, spectroscopie, essais mécaniques). Ce travail s'inscrit dans une dynamique de valorisation des ressources locales et de réduction de l'empreinte écologique des matériaux de construction, tout en répondant aux besoins croissants d'alternatives économiques et durables [11,12].

Cette thèse est structurée en quatre chapitres.

Le premier chapitre présente une synthèse bibliographique sur les fibres végétales, incluant leur classification, leur structure, leur composition chimique (cellulose, hémicelluloses, lignine, pectines, cires), ainsi que leurs propriétés physiques, mécaniques et leurs domaines d'application. Une attention particulière est portée aux traitements de surface (physiques (plasma, UV, corona, thermique), chimiques (alcalinisation, acétylation, permanganate, silanes, etc.) et biologiques (enzymatiques, fongiques, bactériens)) et à leur impact sur l'adhésion interfaciale dans les matériaux composites.

Le deuxième chapitre est consacré aux matériaux composites, en abordant leurs constituants (matrices polymères, métalliques et céramiques, notamment les matrices argileuses, renforts naturels et synthétiques, charges et additifs), leur classification, les procédés de fabrication selon le type de matrice, ainsi que les facteurs influençant les performances des composites à

renfort végétal, tels que l'orientation des fibres, leur teneur, la porosité ou encore leur comportement hygroscopique.

Le troisième chapitre détaille les matériaux et méthodes employés dans cette étude. Il décrit la caractérisation physico-chimique et géotechnique de l'argile (pH, teneur en eau, indice de gonflement, perte au feu, limites d'Atterberg, granulométrie), la préparation et les traitements appliqués aux fibres de *Cynodon dactylon* (alcalin et au permanganate de potassium), la formulation du composite (à base de ciment, chaux et fumée de silice), ainsi que les techniques de caractérisation utilisées : diffraction et fluorescence des rayons X (DRX, FRX), analyse thermogravimétrique (ATG), spectroscopie infrarouge (IRIF), et essais mécaniques de flexion et de compression.

Le quatrième chapitre présente les résultats obtenus et leur discussion critique, en mettant en relation les propriétés physico-chimiques des matériaux de base avec les performances du composite final, notamment à travers l'analyse des interactions fibre-matrice, l'influence des traitements de surface, et les réponses mécaniques et thermiques du matériau élaboré.

Enfin, une conclusion générale.

Chapitre I : Généralités sur les fibres végétales

Introduction

Les fibres végétales suscitent un intérêt croissant en tant qu'alternatives durables aux fibres synthétiques, notamment pour la conception de matériaux composites écologiques destinés à la construction. Leur faible densité, leur coût réduit et leur bon rapport résistance/poids en font des renforts prometteurs. Toutefois, leur nature hydrophile et leur faible compatibilité avec les matrices polymères hydrophobes limitent leurs performances mécaniques. Pour remédier à ces contraintes, divers traitements de surface tels que la mercerisation, l'acétylation ou les greffages au silane sont appliqués afin de réduire l'hydrophilie, d'augmenter la rugosité de surface et d'améliorer l'adhésion interfaciale. Ainsi, l'optimisation de la structure et de la surface des fibres végétales constitue un enjeu majeur pour le développement de bio-composites à hautes performances mécaniques et environnementales, répondant aux exigences de la construction durable et de l'économie circulaire.

I. 1. Les fibres naturelles

Les fibres naturelles sont des matériaux filamenteux dérivés de sources végétales et animales, capables d'être transformés en fils ou en cordes [13]. Ces fibres constituent l'un des matériaux de construction les plus répandus, car elles répondent efficacement aux critères techniques et environnementaux requis [14].

I. 1. 1. Classification des fibres naturelles

Les fibres naturelles sont des matériaux d'origine biologique, issus de sources végétales, animales ou minérales. Elles trouvent des applications variées dans des domaines tels que l'industrie textile, la fabrication de composites et l'artisanat. Selon leur provenance, elles peuvent être classées en trois catégories principales [15,16].

I. 1. 1. 1. Fibres végétales

Provenant des plantes, ces fibres sont principalement composées de cellulose. Elles se distinguent en fonction de la partie de la plante utilisée pour leur extraction (tiges, feuilles, graines, etc.) [17,18].

I. 1. 1. 2. Fibres animales

Ces fibres sont essentiellement constituées de protéines, comme la kératine ou la fibroïne, et sont obtenues à partir du pelage, des cocons ou des sécrétions d'animaux. Elles se divisent en deux groupes principaux : les fibres de laine ou de poils et les fibres de soie [19,20].

I. 1. 1. 3. Fibres minérales

Bien que moins répandues, certaines fibres naturelles sont d'origine minérale. L'exemple le plus connu est l'amiante, autrefois valorisée pour ses propriétés isolantes et résistantes au feu. Cependant, son utilisation est désormais strictement réglementée en raison de ses effets

dangereux sur la santé [19,21]. La classification de des fibres naturelles est illustrée dans la figure I. 1.

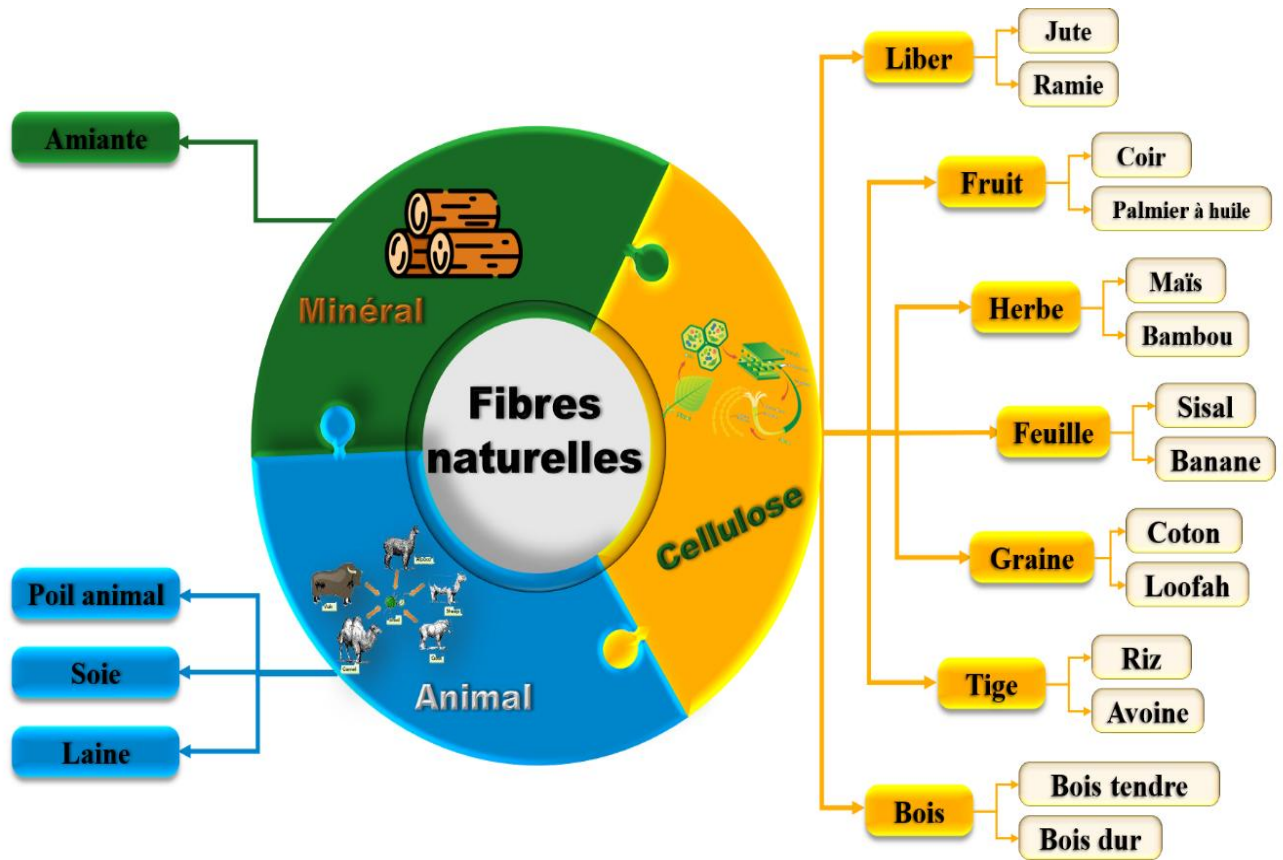


Figure I. 1. Classification des fibres végétales en fonction de leur origine.

I. 2. Les fibres végétales

Les fibres végétales sont des structures naturelles composées principalement de cellulose, d'hémicelluloses et de lignine (Figure I. 2). Elles contiennent également de petites quantités d'autres composants, tels que des extractibles non azotés, des protéines brutes, des lipides et des matières minérales. La composition précise de ces fibres dépend fortement de facteurs tels que l'espèce végétale, l'âge de la plante et la partie de la plante utilisée pour l'extraction [16,22].

I. 2. 1. Classification des fibres végétales

Les fibres végétales peuvent être classées selon différents critères. En fonction de leur origine dans la plante [23,24], on distingue les fibres de tiges (jute, lin, ramie, etc.), les fibres de feuilles (sisal, abaca, paille de graminées, etc.), les fibres de fruits (noix de coco) et les fibres de graines (coton, kapok, etc.). Sur la base de leur composition chimique, notamment leur teneur en holocellulose (cellulose et hémicelluloses) et en lignine, elles se divisent en fibres ligneuses (dures et rigides, provenant de matériaux ligneux comme le bois) et en fibres non ligneuses (douces et souples, issues de plantes annuelles comme le kénaf, le chanvre ou le jute) [23,25]. Enfin, selon leur longueur, on distingue les fibres longues, dites libériennes (provenant des tiges

ou des écorces de plantes annuelles, généralement douces), et les fibres longues lignocellulosiques (issues des feuilles, des troncs ou des enveloppes de fruits, plus dures et riches en lignine). Les fibres courtes, ou étoupes, sont des fibres lignocellulosiques associées aux fibres longues [18,26].

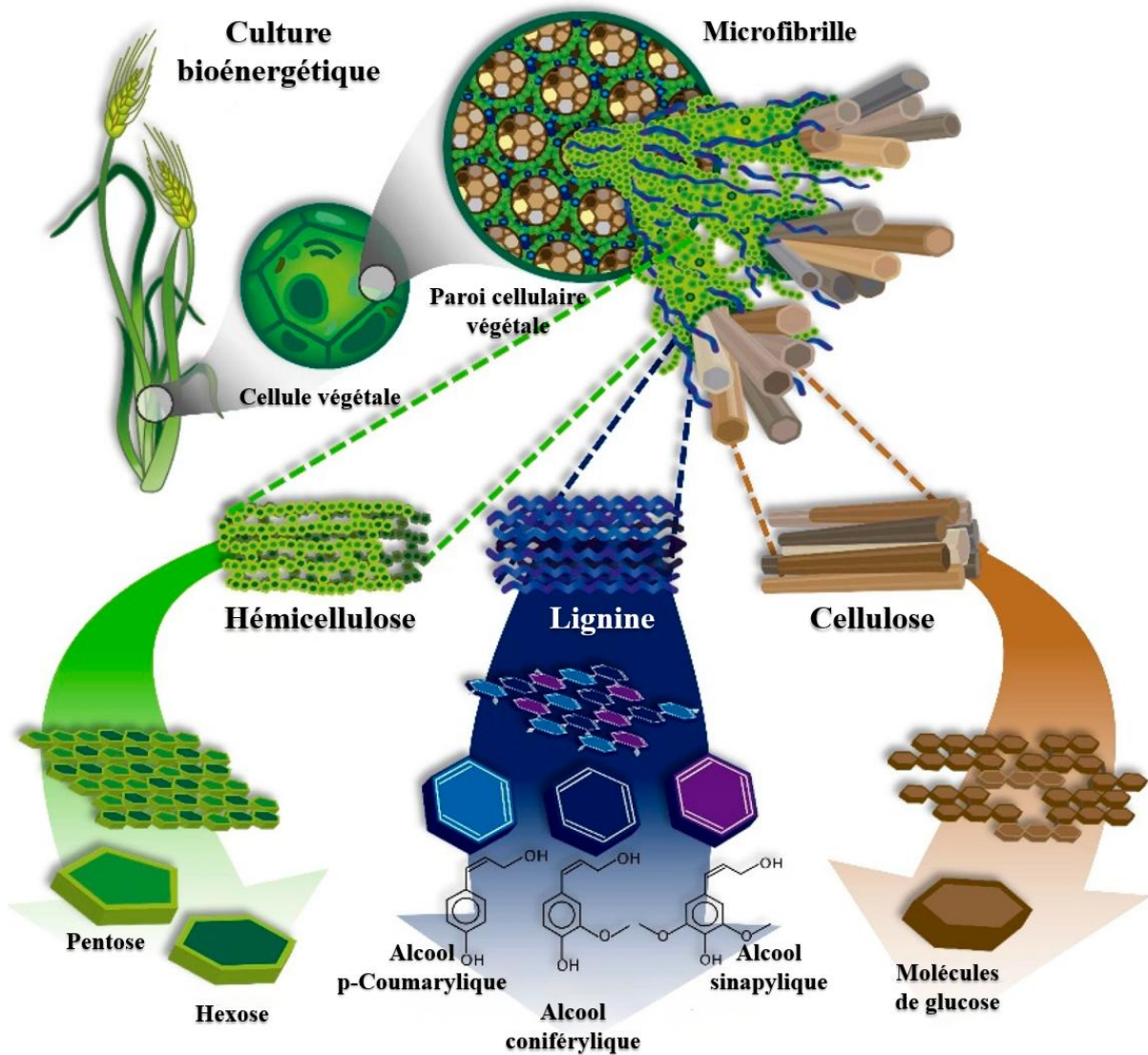


Figure I. 2. Représentation schématique de l'organisation structurale hiérarchique des fibres végétales [27].

I. 2. 2. Structure des fibres végétales

Les fibres végétales sont des composites naturels dont la structure est renforcée par des microfibrilles de cellulose partiellement cristallines, entourées d'une matrice amorphe composée de polysaccharides (hémicelluloses et pectines) (Figure I. 3) [28,29]. Cette matrice est liée à la lignine par des liaisons hydrogène et covalentes [18]. Les fibres sont constituées de plusieurs parois disposées parallèlement à leur axe, organisées en couches superposées radialement : la lamelle mitoyenne, la paroi primaire et la paroi secondaire, qui entourent un

lumen dont le diamètre varie selon l'espèce végétale. La paroi secondaire se compose de trois sous-couches de microfibrilles (S1, S2 et S3) [30]. L'orientation des microfibrilles par rapport à l'axe de la fibre définit un angle microfibrillaire, qui influence les propriétés mécaniques de la fibre. Un angle plus élevé réduit le module de Young (rigidité) tout en augmentant l'extensibilité des parois [30,31].

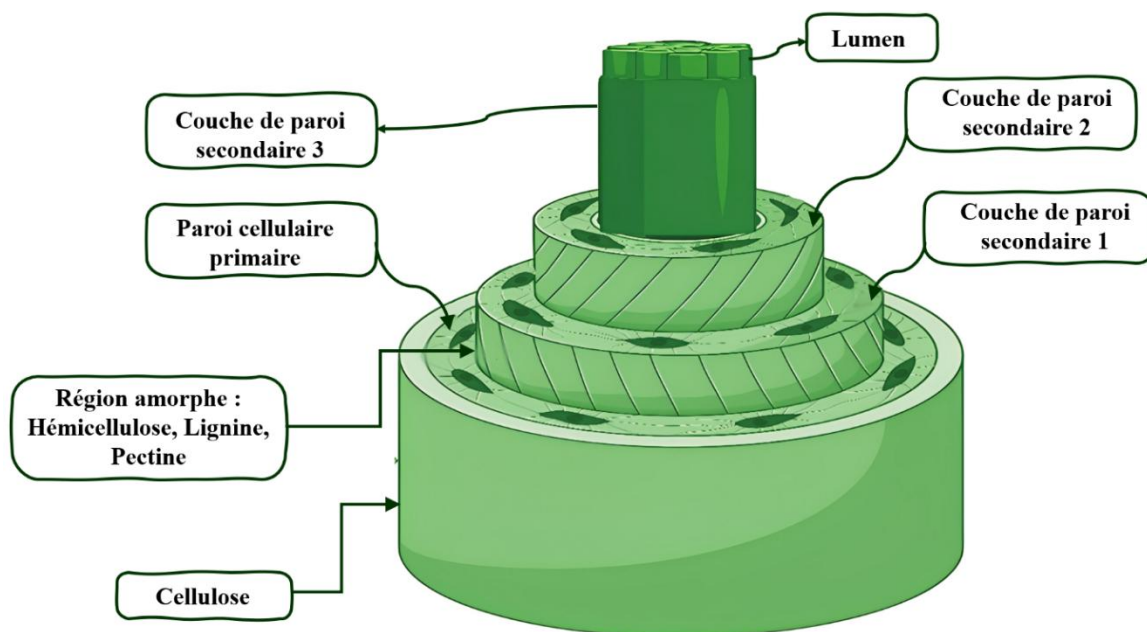


Figure I. 3. Structure du bois.

I. 2. 3. Composition chimique des charges végétales

Le bois anhydre, quelle que soit l'espèce, est constitué majoritairement de carbone (environ 50 %), d'oxygène (42 %), d'hydrogène (6 %) et d'azote (1 %). Les autres éléments chimiques, présents en quantités infimes, représentent environ 1 % de sa composition [32].

La proportion de cellulose, d'hémicelluloses et de lignine varie selon l'espèce végétale. Dans chaque fibre, la lignine sert de matrice enveloppant la cellulose, qui est une structure particulièrement rigide [33].

I. 2. 3. 1. Cellulose

La cellulose est la molécule organique la plus abondante sur Terre, synthétisée en grande quantité lors de la photosynthèse. Elle constitue le principal composant de la biomasse végétale. Sa formule chimique brute est $(C_6H_{10}O_5)_n$ [34,35]. Ce polymère linéaire est composé d'unités de D-anhydroglucopyranose reliées par des liaisons $\beta(1\rightarrow4)$ -glycosidiques [34,35] (Figure I. 4). L'unité répétitive de la cellulose est le cellobiose, formé de deux molécules de glucose. Ces unités s'assemblent en microfibrilles. La cellulose, polymère hautement cristallin, confère au bois sa résistance et sa stabilité structurelle. Sa cristallinité et l'organisation de ses microfibrilles sont déterminantes pour la rigidité et la durabilité des parois cellulaires des plantes [36–38].

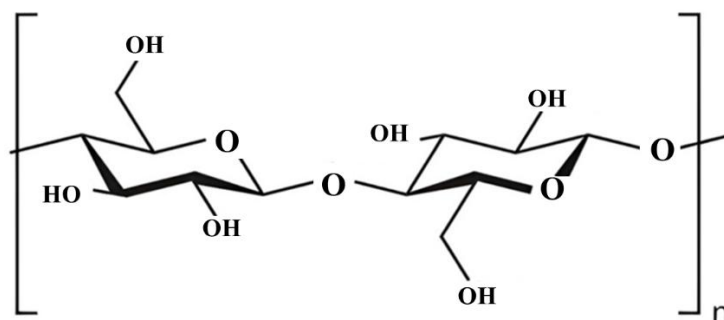


Figure I. 4. Structure de cellulose.

I. 2. 3. 2. Hémicelluloses

Les hémicelluloses sont des polysaccharides constitués d'oses à 5 et 6 atomes de carbone (Figure I. 5), formant des chaînes ramifiées relativement courtes. Elles sont étroitement associées aux microfibrilles de cellulose, qu'elles enrobent dans une matrice [39,40]. Les hémicelluloses se distinguent de la cellulose par trois aspects clés:

- Elles sont composées de sucres neutres, tels que la xylose, l'arabinose, le galactose, le glucose et le mannose [41].
- Elles peuvent inclure des acides uroniques, comme l'acide glucuronique et l'acide 4-O-méthyl-glucuronique, en proportions variables [42,43].
- Elles sont très hydrophiles, solubles en milieu alcalin et facilement hydrolysables en milieu acide, contrairement à la cellulose [44].

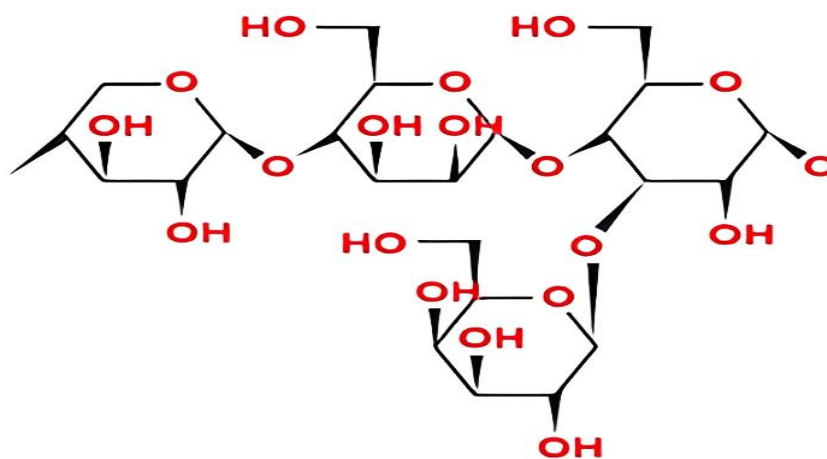


Figure I. 5. Structure d'hémicellulose.

I. 2. 3. 3. Lignine

La lignine, dont le nom vient du latin lignum (bois), est un polymère tridimensionnel (3D) de structure amorphe et de poids moléculaire élevé (Figure I. 6) [45]. Elle est essentielle pour la rigidité et le soutien structurel des plantes. Parmi les trois principaux constituants des fibres végétales (cellulose, hémicellulose et lignine), la lignine est la moins hydrophile, ce qui renforce

l'hydrophobicité des parois cellulaires [46]. De plus, la lignine présente un comportement thermoplastique : elle commence à ramollir à environ 90 °C et devient fluide à des températures proches de 170 °C [47,48].

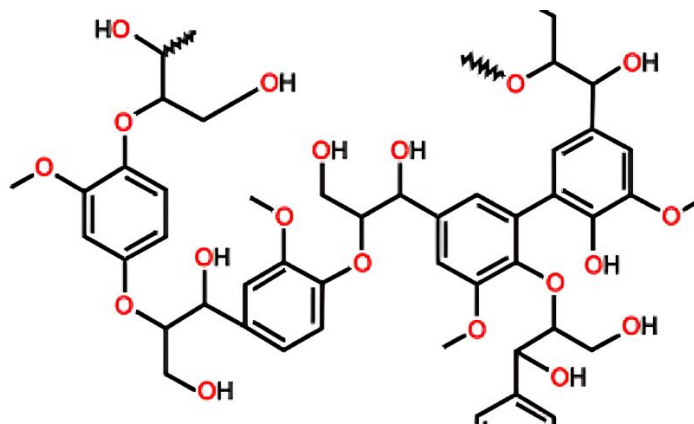


Figure I. 6. Structure de lignine.

I. 2. 3. 4. Pectines

Les pectines sont des polysaccharides acides dont la chaîne principale est constituée de monomères d'acide uronique liés par des liaisons β -(1 \rightarrow 4) (Figure I. 7) [49]. Ces monomères sont interrompus à intervalles réguliers par des unités de rhamnose, reliées par des liaisons α -(1 \rightarrow 2) et α -(1 \rightarrow 4) [50,51]. Certaines unités de rhamnose possèdent des chaînes latérales formées de sucres neutres, principalement du galactose et de l'arabinose [52]. La structure en zigzag de la macromolécule de pectine lui confère des propriétés spécifiques, essentielles à la flexibilité des parois cellulaires des plantes [53–55].

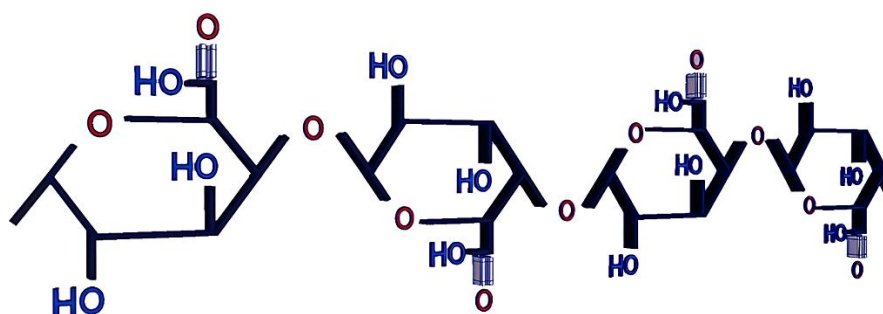


Figure I. 7. Structure de pectine.

I. 2. 3. 5. Cires

Les cires sont des constituants des fibres naturelles qui peuvent être extraits à l'aide de solvants organiques. Elles sont principalement composées d'alcools insolubles dans l'eau et de divers acides gras, notamment l'acide palmitique, l'acide oléique et l'acide stéarique [56,57].

Le tableau I. 1 présente la composition chimique de quelques fibres.

Tableau I. 1. Composition chimique des fibres végétales les plus utilisées.

Fibre	Cellulose (%)	Hémicellulose (%)	Lignine (%)	Références
Bagasse de canne à sucre	41.1-55.2	16.8-31.8	22.3-25.3	[1,58,59]
Jute	61-71	13-20.3	5-13	[60-63]
Kénaif	31-72	20-33.9	8-21.2	[1,59,60,63-69,70]
Lin	64.1-75	10.37-20.6	2-5	[71-74]
Kudzu	33	11.3	14	[68,75]
Ortie	79-83.6	6.5-12.5	35-44	[68,76]
Sisal	60-78	10-38.2	8-14	[62,67,74,77,78]
Chanvre	68-75	15-22.4	3.7-10	[63,66,69]
Coir	32-43	0.15-0.25	40-45	[58,63,67,68]
Palmier à huile	47.91-65	19.06	24.45-29	[58,66,68,79]
Ramie	61.85-85	3-7.58	0.5-9.06	[63,64,67,68]
Abaca	56-63	20-25	7-12.4	[63,67-69]
Banane	1.35	350-980	12-33.8	[74,80]
Henequen	70-77.6	4-20	8-13.1	[68,81,82]
Ananas	70-82	18	5-12.7	[63,64,67,68]
Curaua	73.6	9.9	7.5	[58,59,66]
Coque de riz	35-45	19-28	20	[58,61,63,67,69]
Paille de riz	36-57	33	8-19	[61,63,67-69]
Feuillus	31-64	25-40	14-34	[67,68,83,84]
Résineux	30-60	20-30	21-37	[63,67,68,85]
Coton	82.7-92	-	0	[68,82]
Kapok (graine)	64	13	23	[68,82]
Alfa	45	24	24	[84,86-88]

I. 3. Les propriétés des fibres végétales

I. 3. 1. Les propriétés physiques et mécaniques des fibres végétales

Les propriétés mécaniques des fibres végétales naturelles sont principalement déterminées par [89]:

- La teneur en cellulose (polymère cristallin à haute résistance).
- L'angle microfibrillaire (orientation des microfibrilles de cellulose dans la paroi secondaire S2 par rapport à l'axe longitudinal de la fibre).
- La composition chimique globale.
- La structure microscopique et la présence de défauts.
- Les dimensions cellulaires.

Les fibres avec un faible angle microfibrillaire ($<10^\circ$) présentent une résistance à la traction supérieure. La résistance mécanique est directement corrélée à la teneur en cellulose [73], tandis que la lignine influence principalement la rigidité. Ces relations sont quantifiées dans le tableau I. 2, qui compare les propriétés des différentes fibres. Les mécanismes d'usure [90,91] et de déformation sont également liés à ces paramètres structuraux [92].

Tableau I. 2. Caractéristiques mécaniques des fibres naturelles.

Fibre	Densité (g/cm ³)	Résistance à la rupture (MPa)	Module de Young (GPa)	Allongement à la rupture (%)	Références
Bambou	0,6–1,1	140–230	11–17		[68,93]
Bagasse de canne à sucre	1,2-1,5	20-290	17-27,1	1,1	[66,68,93]
Jute	1,3-1,5	385-850	10-55	1,16-8	[67,93–97]
Kenaf	0,6-1,5	215,4-1191	2,86-60	1,6-6,9	[93,94,98]
Lin	0,6-1,5	88-1600	24-80	1,2-10	[94–96,99–103]
Kudzu		130-418			[68]
Ortie		650	38	1,7	[68]
Sisal	1,3-1,5	80-840	9-38	2-25	[11,94,95,100]
Chanvre	1.4-1.6	310-900	30-80	1.6-6	[98,99,104]
Coir	1.1-1.6	106-593	1.27-6	14.21-59.9	[105]
Palmier à huile	0.7-1.55		1-9	8-25	[1]
Ramie	1.45-1.5	348-938	24.5-128	1.2-8	[68,93,94,96]
Abaca	1.5	220-980	3-12	3-10	[94,106–108]
Banane	1.35	350-980	12-33.8	3-53	[66,68,95]
Henequen	1.2-1.4	355-580	10.1-16.3	3-4.7	[59,66,68,95]
Ananas	0.8-1.6	170-1672	60-82	1-14.5	[59,66,68,94]
Curaua		170-1672			[59,84]
Coque de riz	1.4	19-135	0.3-2.6		[63,67,109,110]
Paille de riz		450	26	2.2	[63,67,83]
Feuillus	0.3-1.2		5.2-37.9		[68,85,105]
Résineux	0.3-1.5	600-1000	3.6-40	4.4	[63,78,99]
Coton	1.5-1.6	45.5-1000	5.5-12.6	3-10	[59,66,68,94,95]
Kapok (graine)	0.38	93.3			[68]
Dattier	0.9-1.2				[59,66,94]
Palmier à sucre	1291	156.96		7.98	[68,93]
Alfa	1.4	188-308	18-25	15-24	[59,66,68,94,95]

I. 3. 2. Les applications des fibres végétales

Les composites renforcés de fibres naturelles apparaissent très rapidement comme un substitut potentiel aux matériaux à base de métal ou de céramique dans des applications qui comprennent également les industries automobile, aérospatiale, marine, des articles de sport et électronique [111].

Dans des applications telles que l'automobile, l'aérospatiale, la marine, les articles de sport et l'électronique [111]. Les composites à base de fibres naturelles présentent de bonnes propriétés spécifiques, mais il existe une grande variabilité dans leurs propriétés. Leurs faiblesses peuvent être et seront surmontées grâce au développement de traitements plus avancés des fibres naturelles et de leurs composites. Leurs propriétés individuelles devraient constituer une base solide pour générer de nouvelles applications et opportunités pour les biocomposites ou les composites à base de fibres naturelles dans l'environnement des matériaux « verts » du 21^{ème} siècle [112].

L'exploitation des composites à base de fibres naturelles dans diverses applications a ouvert de nouvelles voies pour les universitaires et les industriels afin de fabriquer un module durable pour les applications futures des composites à base de fibres naturelles.

Les composites à fibres naturelles peuvent être des matériaux très rentables pour les applications suivantes [113–115] :

- Industrie du bâtiment et de la construction : panneaux pour cloison et faux plafond, panneaux de séparation, mur, plancher, fenêtre et Cadres de porte, tuiles de toit, bâtiments mobiles ou préfabriqués pouvant être utilisés en cas de catastrophes naturelles telles que inondations, cyclones, séismes, etc.
- Dispositifs de stockage : boîtes postales, silos de stockage des céréales, conteneurs de biogaz, etc.
- Mobilier : chaise, table, douche, baignoire, etc.
- Appareils électriques : appareils électriques, tuyaux, etc.
- Applications quotidiennes : abat-jours, valises, casques, etc.
- Transport : automobile et wagon de chemin de fer intérieur, bateau, etc.

Les raisons de l'application des fibres naturelles dans l'industrie automobile comprennent [113–117]:

- Faible densité : ce qui peut entraîner une réduction du poids de 10 à 30 %.
- Propriétés mécaniques acceptables, bonnes propriétés acoustiques.
- Propriétés de traitement favorables, par exemple faible usure des outils, etc.
- Options pour les nouvelles technologies et matériaux de production.

- Performance d'accident favorable, haute stabilité, moins de fragmentation.
- Équilibre écologique favorable pour la production de pièces.
- Équilibre écologique favorable pendant le fonctionnement du véhicule en raison des économies de poids.
- Avantages en matière de santé au travail par rapport aux fibres de verre pendant la production.
- Pas de dégazage des composés (contrairement au bois lié à la résine phénolique et aux pièces en fibres de coton recyclées).
- Réduction du comportement de brumisation.
- Avantages de prix pour les fibres et les technologies appliquées.

I. 3. 3. Les avantages et les inconvénients des fibres végétales

Les principaux avantages du composite de fibres naturelles sont [118–120]:

- Faible poids spécifique, résultant en une résistance et une rigidité spécifiques plus élevées que la fibre de verre.
- Il s'agit d'une source renouvelable, la production nécessite peu d'énergie et le CO₂ est utilisé alors que l'oxygène est restitué à l'environnement.
- Productible avec un faible investissement à faible coût, ce qui rend le matériau un produit intéressant pour les bas salaires pays.
- Usure réduite de l'outillage, condition de travail plus saine et aucune irritation cutanée.
- Le recyclage thermique est possible alors que le verre pose problème dans les fours de combustion.
- Bonnes propriétés d'isolation thermique et acoustique.

Les inconvénients du composite de fibres naturelles sont [121,122]:

- Propriétés mécaniques inférieures (en particulier la résistance aux chocs).
- Une plus grande absorption de l'humidité.
- Durabilité réduite.
- Faible résistance au feu.
- Variation de la qualité.
- Température de traitement maximale restreinte.
- Faible résistance microbienne.
- Faible résistance thermique.
- Cycles de l'offre et de la demande.

I. 4. Modification de surface des fibres naturelles

Ces dernières années, la recherche s'est intensifiée sur l'incorporation de fibres naturelles comme alternative aux renforts synthétiques dans les composites [123]. Ces biomatériaux présentent des atouts majeurs : légèreté, coût réduit et caractère biodégradable. Cependant, leur utilisation rencontre des limitations, notamment une affinité limitée avec certaines matrices polymères, une hygroscopicité élevée et un gonflement induit pouvant provoquer la fissuration des matrices fragiles [123,124]. Pour pallier ces inconvénients, diverses méthodes de traitement de surface ont été développées afin d'améliorer l'adhésion fibre-matrice et de réduire l'absorption d'humidité. Les fibres cellulosiques aux échelles micro et nanométriques apparaissent particulièrement prometteuses pour le développement de matériaux composites écologiques performants [121].

I. 4. 1. Différents traitements des fibres naturelles

Les traitements utilisés pour les fibres naturelles peuvent être classés en traitements physiques et chimiques.

I. 4 .1. 1. Traitements physiques

Pour exploiter pleinement les fibres cellulosiques dans des applications haut de gamme, une compréhension approfondie de leur structure et de leurs propriétés est essentielle. Ces fibres présentent une forte hydrophilie, ce qui engendre des difficultés de traitement, des performances mécaniques limitées et une structure poreuse, restreignant ainsi leurs possibilités d'ingénierie. Cette affinité pour l'eau réduit également leur utilisation dans les textiles, notamment dans les secteurs du transport et de l'emballage [125].

Les traitements appliqués aux fibres jouent un rôle crucial dans la fabrication des composites renforcés de fibres naturelles, influençant significativement leurs propriétés et leur comportement interfacial. Avant toute modification chimique, les fibres subissent souvent des traitements physiques préalables, tels que le battage, la décharge corona, le traitement plasma, le traitement thermique ou l'exposition aux ultraviolets (UV) [126].

I. 4. 1. 1. 1. Traitement au plasma

Le traitement au plasma est une approche efficace pour modifier les propriétés de surface des fibres naturelles, tout en laissant les propriétés en vrac inchangées. Les deux thérapies plasma froid et corona peuvent provoquer une décharge de plasma [127]. Les deux sont des procédures de traitement au plasma qui utilisent un gaz ionisé avec un nombre égal de particules à charge positive et négative qui interagissent avec la surface du substrat. La distinction fondamentale entre les deux types de plasmas est la fréquence de la décharge électrique [128]. Le rayonnement micro-ondes peut produire du plasma froid à haute fréquence, mais une décharge

de courant alternatif à la pression atmosphérique peut produire du plasma corona. Le type de gaz ionisé a influencé les changements de surface des surfaces en polymères synthétiques et du bois. Les modifications plasmatiques ont été récemment étudiées, ce qui comprend la puissance, la distance d'échantillonnage par rapport à la source de plasma, le temps de traitement, la stabilité du traitement plasmatique et le type de gaz [129]. Le déchargement de la couronne a été largement utilisé pour traiter les couches de pulpe avec de l'humidité teneur jusqu'à 85 %.

I. 4. 1. 1. 2. Traitement par irradiation ultraviolette

La méthode de traitement UV augmente la polarité de la surface de la fibre, ce qui entraîne une meilleure mouillabilité des fibres et une résistance accrue du composite [130,131]. UV est une technique relativement récente pour éliminer les particules de poussière des surfaces de fibres végétales [132]. Certains paramètres (type de gaz, vapeur, etc.) sont incontrôlables dans le traitement UV [132]. Les brins sont placés dans un récipient pour l'oxydation de surface des fibres pendant le traitement. En outre, le traitement UV augmente la polarisation sur la surface de la fibre, ce qui améliore la mouillabilité des fibres et accroît la résistance du polymère renforcé de fibres naturelles [1].

I. 4. 1. 1. 3. Traitement thermique

Le séchage des fibres naturelles avant la transformation est crucial pour assurer une propriété composite. Une teneur élevée en humidité des fibres peut agir comme une barrière entre la fibre et la matrice à l'interface, affectant le collage [133]. De plus, l'évaporation d'eau pendant le traitement peut entraîner formation de vides dans les composites, résultant en un réseau de défauts avec des propriétés mécaniques inférieures. Pour les composites thermodurcissables, la réaction les températures dépassent souvent le point d'ébullition de l'eau, alors que pour Les températures de traitement sont généralement supérieures à 100 C. Le la présence d'eau ou de sa vapeur pendant le traitement peut donc conduire à formation et impact négatif sur le support macroscopique et interfaciaux du composite [133,134].

I. 4. 1. 1. 4. Traitement de corona

Le traitement corona est de loin la méthode la plus intrigante pour l'actionnement de l'oxydation en surface [135,136]. Ce traitement modifie l'énergie de surface des brins de cellulose, ce qui se traduit par une meilleure adéquation entre les fibres et la matrice hydrophile [1,137]. Le traitement au plasma a réussi à éliminer les particules de poussière des surfaces des fibres, ce qui donne une meilleure surface des fibres. Pour un traitement efficace, le facteur de pression, le type de gaz et la concentration doivent tous être contrôlés avec précision [126,138].

I. 4 .1. 2. Traitements chimique

La modification chimique sur les fibres naturelles améliore l'adhérence entre la matrice et les fibres naturelles via des réactions chimiques. Des études approfondies ont été menées pour comprendre l'effet du traitement chimique sur les fibres naturelles. La nature hydrophile des fibres naturelles et la nature hydrophobe des matrices sont considérées comme deux phases différentes, entraînant une liaison faible aux interfaces des composites de fibres naturelles [1]. Le traitement chimique des fibres naturelles diminue le comportement hydrophile inhérent des fibres et améliore les propriétés d'adhérence de la matrice et de la fibre [139]. Méthodes de traitement chimique comprennent l'alcalinisation, le silane, l'acétylation, la benzoilation, le peroxyde, les agents de couplage maléylés, le chlorite de sodium, l'acrylation et le greffage d'acrylonitrile, l'isocyanate, l'acide stéarique, le permanganate, la triazine, le chlorure d'oléyle et les traitements fongiques [140,141].

I. 4 .1. 2. 1. Traitements alcalin

Le traitement alcalin utilisant NaOH, également connu sous le nom de mercerisation, est une méthode établie de traitement des fibres de cellulose. Bien qu'elle ait été Il est encore couramment utilisé dans l'industrie textile. La mercerisation consiste à exposer les fibres végétales à une solution aqueuse saturée de NaOH, qui provoque une dilatation importante et des changements dans la cellule morphologie, taille, structure et caractéristiques mécaniques [142–144] . Cette méthode est également largement utilisée pour les fibres végétales destinées au renforcement des thermodurcissables et des thermoplastiques [105,141,142,145,146]. La figure I. 8 représentée la réaction du NaOH avec des fibres de cellulose.

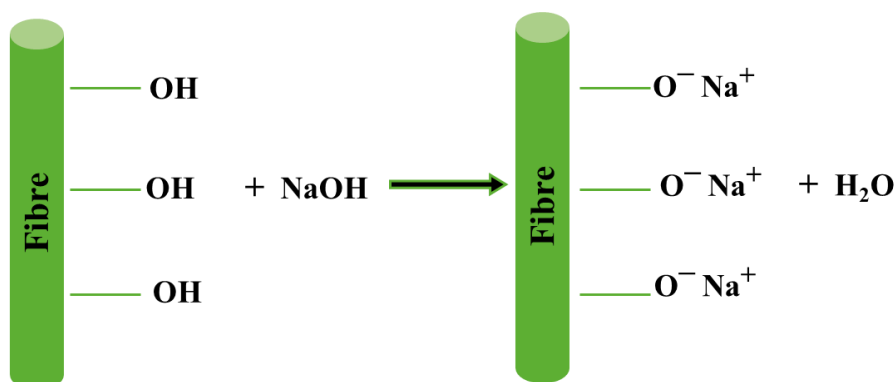


Figure I. 8. Réaction alcaline d'une fibre naturelle.

Le traitement alcalin élimine la lignine, les hémicelluloses et les pectines de la surface externe de la paroi cellulaire des fibres et active la surface des fibres. L'élimination de ces composants est nécessaire parce que, en raison de leur structure amorphe, ils augmentent la tension [143]. Le traitement alcalin augmente la rugosité de la surface de la fibre, facilitant les interactions physico-chimiques à la charge/ interface polymère [147] .

I. 4. 1. 2. 2. Traitements d'acétylation

Le traitement par acétylation est une technique couramment utilisée pour modifier l'extérieur des fibres végétales, les rendant moins hydrophiles et plus stable [148,149]. Le traitement consiste à faire réagir les fibres fonctions hydroxyle (-OH) avec des groupes acétyle ($\text{CH}_3\text{CO-}$) pour donner à la fibre une surface hydrophobe. Bien que les fonctions hydroxyle appartiennent à la composants minoritaires (hémicelluloses et lignine) et cellulose, acétique l'acide ne réagit pas facilement avec la cellulose, de sorte que l'anhydride acétique est généralement utilisé comme substitut [150,151]. Le mécanisme réactionnel de l'acétylation des fibres de cellulose, est illustré dans la figure I. 9. Avant la réaction d'acétylation, les fibres peuvent être trempées dans de l'acide acétique pour faciliter le processus. Le temps de réaction pour le traitement d'acétylation l'hygroscopicité varie de 1 à 3 h. En plus de réduire l'hygroscopicité des fibres naturelles [258,283], le traitement d'acétylation a montré améliorer leur stabilité thermique [152,153].

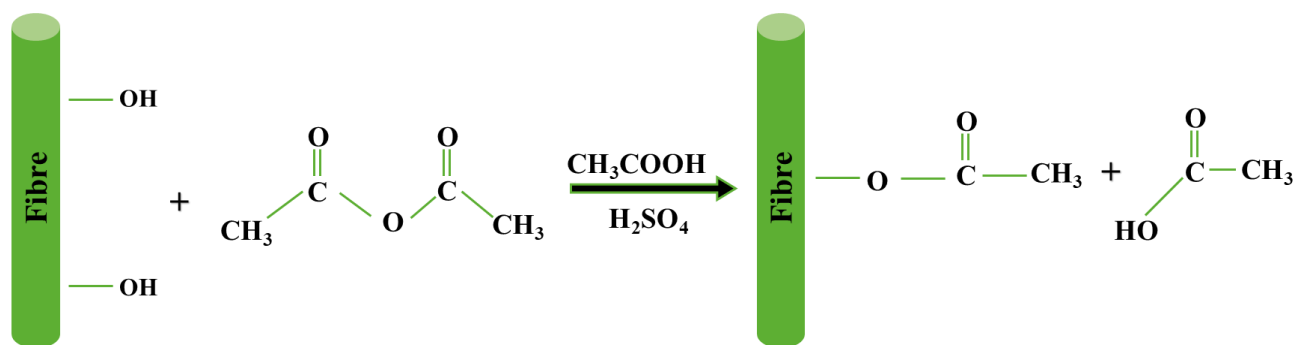


Figure I. 9. Mécanisme réactionnel de l'acétylation des fibres naturelles.

I. 4. 1. 2. 3. Traitements au permanganate

Le traitement au permanganate est un processus qui implique la création sites radicaux dans la cellulose des fibres naturelles pour augmenter sa réactivité avec la matrice polymère [125]. Ce type de traitement est généralement réalisé à l'aide d'une solution de permanganate de potassium (KMnO_4) dans Acétone à différentes concentrations et avec un temps de trempage de 1 à 3 min après un prétraitement alcalin [65,154–156]. Le mécanisme réactionnel de l'oxydation des groupements hydroxyle de la cellulose par le permanganate de potassium (KMnO_4) est représenté dans la figure I. 10.

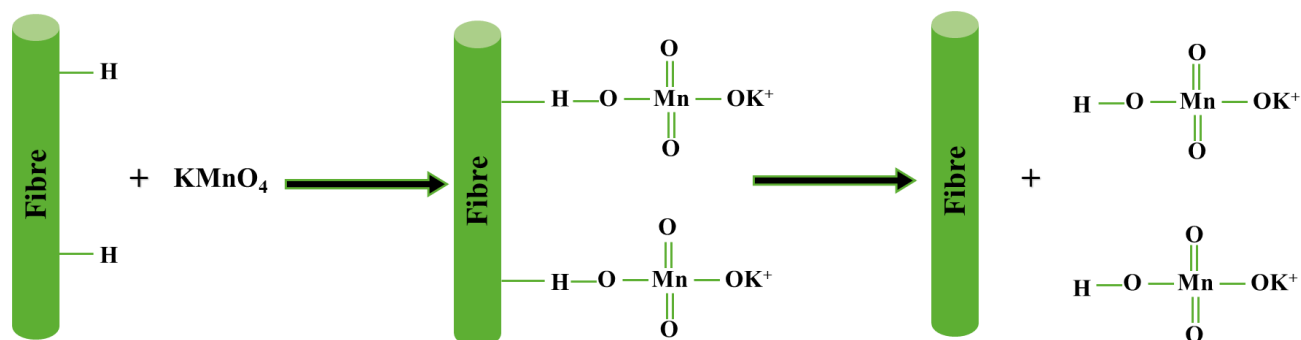


Figure I. 10. Mécanisme d'oxydation de la cellulose par le permanganate de potassium.

La production de fibres naturelles est réduite, et par conséquent, l'absorption d'eau de le composite renforcé par ces fibres est réduit. Toutefois, à la concentration concentrations supérieures à 1 %, le traitement peut induire une dégradation de fibres naturelles [65].

I. 4 .1. 2. 4. Traitements aux silanes

La modification des fibres végétales à l'aide de silanes est une technique qui a fait l'objet de nombreuses recherches [65,157,158]. Les silanes sont des composés chimiques de formule Si_nH_{2n+2} , tels que les alcoxydes de silicium, et présentent des caractéristiques hydrophiles avec différents groupes associés au silicium. Une extrémité de la molécule de silane interagit avec la fibre hydrophile et l'autre avec la matrice, agissant comme un agent de liaison entre les phases du composite. La pénétration des silanes est influencée par divers facteurs tels que le chauffage, le pH, la durée de la réaction d'hydrolyse et la fonctionnalité [152].

Le mécanisme de couplage par silane est représenté sur la figure I. 11.

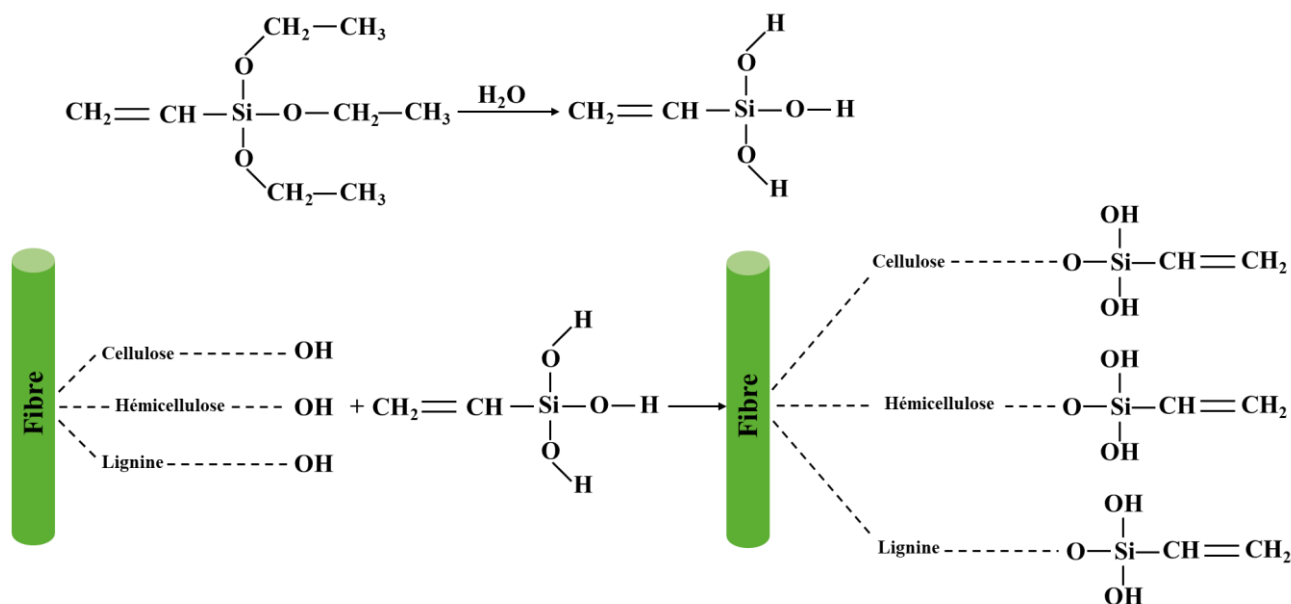


Figure I. 11. Traitement des fibres naturelles au silane.

I. 4. 1. 2. 5. Traitement au chlorite de sodium

Dans le traitement au chlorure de sodium, les fibres sont blanchies dans une solution acide à l'aide de chlorure de sodium (NaClO_2) [159]. Cette approche enlève l'humidité des fibres et augmente leur caractère hydrophobe, ce qui accroît la souplesse des fibres [65].

I. 4. 1. 2. 6. Traitement de benzylation

Le traitement par benzylation permet de réduire l'hydrophilicité des fibres naturelles tout en améliorant leur adhérence aux matrices polymères, ce qui renforce les propriétés mécaniques des composites. Il augmente également la stabilité thermique des fibres [160]. La procédure comprend d'abord une étape alcaline (NaOH) qui élimine les composés extractibles (lignine, cires, substances huileuses) et expose les groupes hydroxyle ($-\text{OH}$) à la surface des fibres [161]. Ensuite, les fibres sont soumises à une réaction avec du chlorure de benzoyle, qui remplace les groupes $-\text{OH}$ par des groupes benzoyle, greffant ainsi ce groupement aromatique sur la structure cellulosique [162]. Ce remplacement diminue significativement le caractère hydrophile des fibres et améliore leur compatibilité avec les résines époxy, favorisant une meilleure cohésion interfaciale au sein du matériau composite [65,163]. Le mécanisme réactionnel de la benzylation des fibres de cellulose, qui permet de modifier leur hydrophobicité, est illustré dans la figure I. 12.

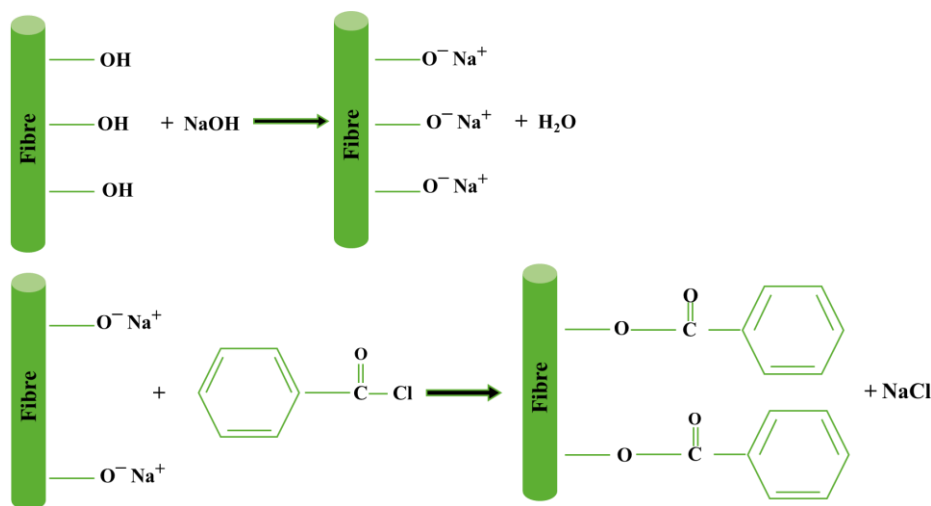


Figure I. 12. Mécanisme réactionnel de la benzylation de fibres naturelles.

I. 4. 1. 2. 7. Traitement à l'isocyanate

Le traitement des fibres naturelles à l'isocyanate améliore significativement l'adhésion interfaciale avec la matrice polymère en établissant des liaisons covalentes solides entre les deux phases [164]. Il confère également aux fibres une meilleure résistance à l'humidité [164]. Ces effets résultent de la réaction des groupements fonctionnels isocyanates ($-\text{N}=\text{C}=\text{O}$) avec les groupes hydroxyle ($-\text{OH}$) présents sur les constituants cellulosiques et ligniniques des fibres

[165]. Cette réaction chimique forme des ponts covalents stables, réduisant ainsi l'hydrophilie naturelle des fibres et renforçant la durabilité du composite dans des conditions humides [65]. Le mécanisme de couplage isocyanate avec la fibre naturelle est représenté sur la figure I. 13.

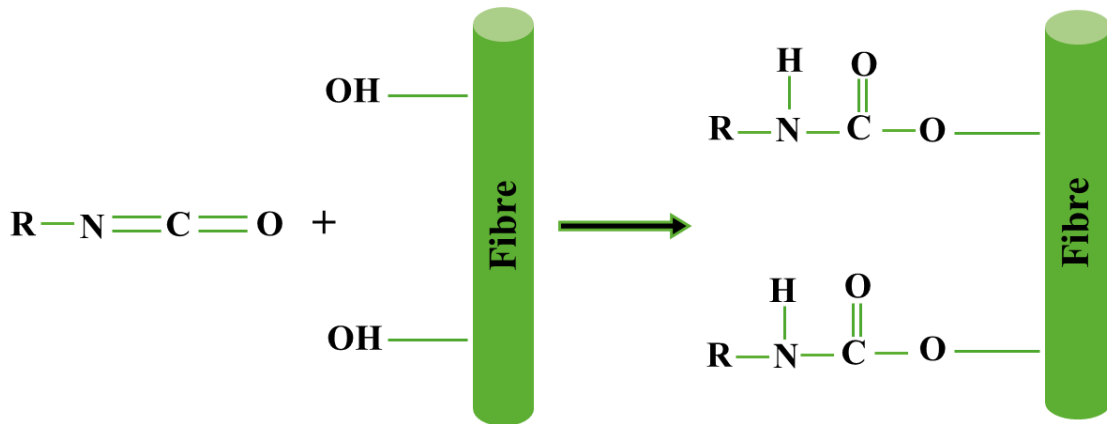


Figure I. 13. Mécanisme réactionnel de l'agent de couplage isocyanate avec les groupes hydroxyle de la fibre naturelle.

I. 4. 1. 2. 8. Traitement au peroxyde

Le traitement au peroxyde consiste à appliquer des composés peroxydés pour initier des réactions radicalaires à la surface des fibres de cellulose. Le mécanisme de modification chimique de la surface des fibres, via une réaction radicalaire initiée par un peroxyde organique, est illustré dans la figure I. 14. Ce procédé permet de réduire les impuretés (telles que la pectine), d'améliorer les propriétés mécaniques et de diminuer l'absorption d'eau des fibres [65]. Également appelé blanchiment, il modifie la structure superficielle des fibres, optimisant ainsi leur résistance et leur comportement hygroscopique [166]. L'un des mécanismes clés de ce traitement est le greffage de polyéthylène induit par le peroxyde [65]. Les radicaux libres générés par le peroxyde réagissent avec les groupes hydroxyle (–OH) présents à la surface des fibres et au sein de la matrice polymère [163]. Cette réaction forme des ponts covalents qui améliorent l'adhésion interfaciale entre la fibre et la matrice, réduisent l'absorption d'humidité et augmentent la stabilité thermique des fibres [163,166].

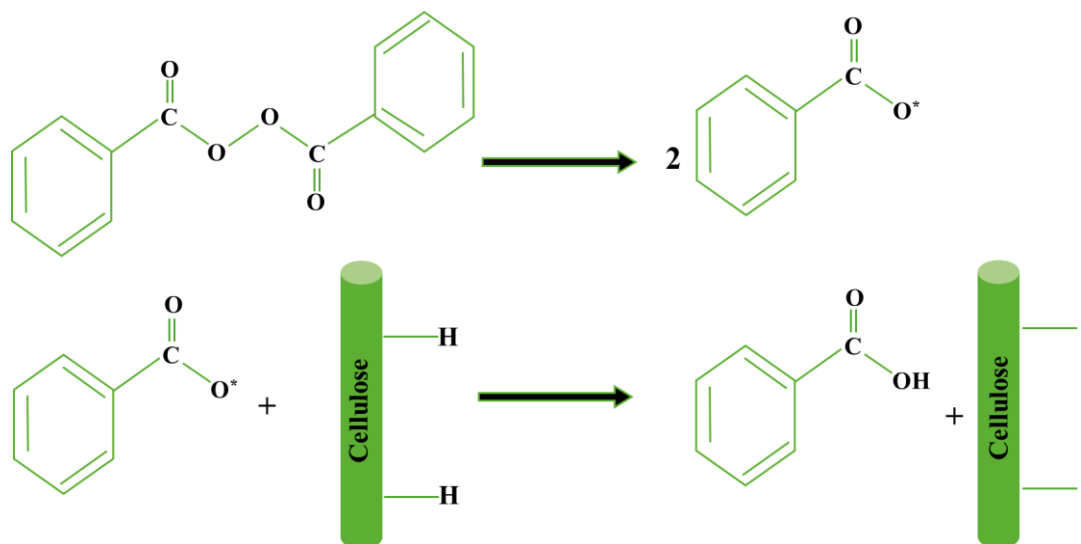


Figure I. 14. Mécanisme de fonctionnalisation des fibres naturelles par un peroxyde organique.

I. 4. 1. 2. 9. Agents de couplage à base d'anhydride maléique

Un agent de couplage est un composé servant d'interface entre les groupes hydroxyle ($-OH$) des fibres naturelles et les chaînes polymères de la matrice [167,168]. Parmi ces agents, les anhydrides maléiques greffés sur polypropylène (PP-g-MA) sont couramment employés [169]. Ils améliorent l'interaction entre la surface fonctionnalisée des fibres et la matrice en établissant des liaisons covalentes carbone-carbone avec les polymères [170]. Le mécanisme implique la réaction de l'anhydride maléique avec les groupes hydroxyle présents dans les zones amorphes de la cellulose [171,172]. Il en résulte un enrobage des fibres par des chaînes polymères, qui masquent les groupes $-OH$ et réduisent ainsi l'hydrophilie des fibres [173]. Cette fonctionnalisation favorise la formation d'une interface pontée par liaison covalente entre les $-OH$ des fibres et les fonctions anhydride, permettant un enchevêtrement mécanique efficace et une adhésion renforcée entre la fibre et la matrice [65,174]. Le mécanisme réactionnel impliqué entre le polypropylène fonctionnalisé à l'anhydride maléique et la fibre de cellulose est illustré dans la figure I. 15.

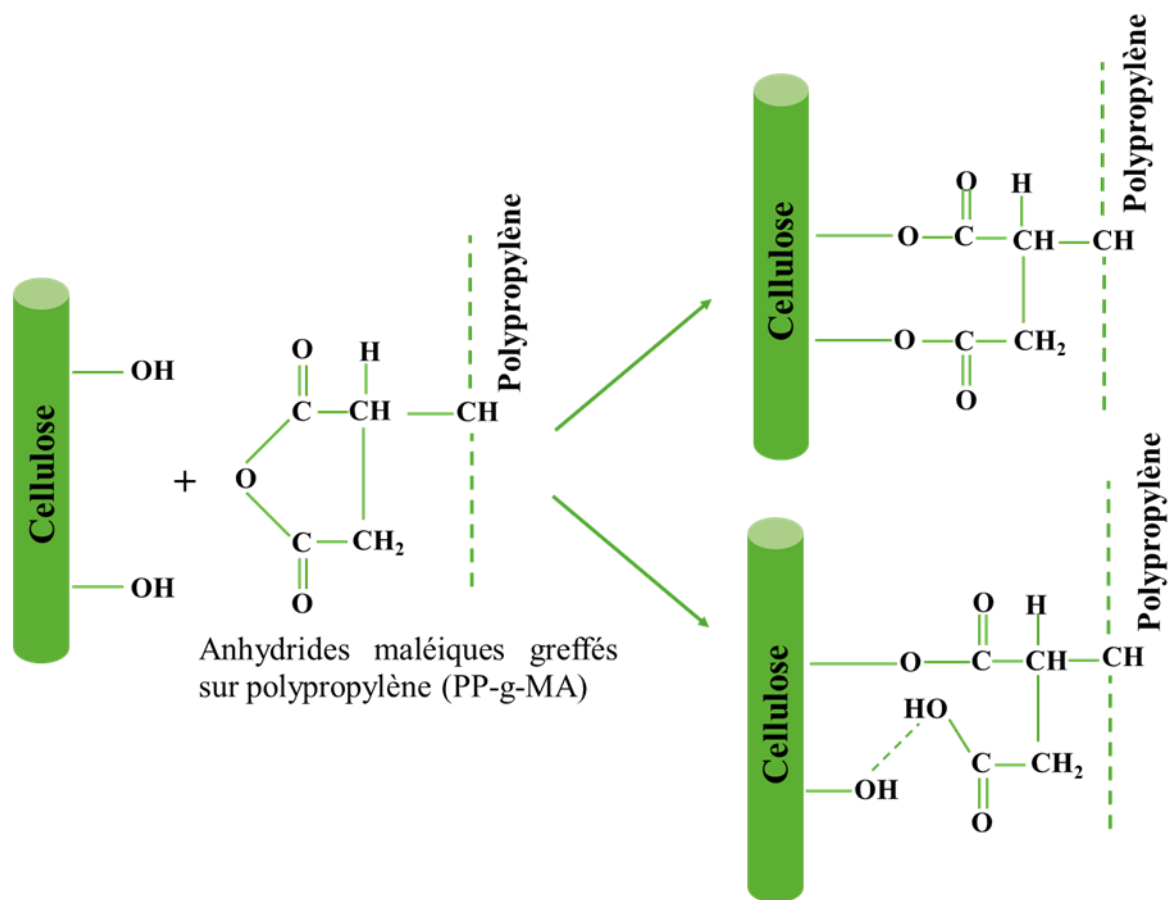


Figure I. 15. Représentation schématique du traitement de surface par un agent de couplage à base de maléate.

I. 4. 1. 2. 10. Traitement à l'acide stéarique

Le traitement à l'acide stéarique améliore la résistance à l'eau des fibres naturelles. Ce procédé repose sur la réaction des groupes carboxyle ($-COOH$) de l'acide stéarique, préalablement dissous dans de l'éthanol, avec les groupes hydroxyle ($-OH$) hydrophiles présents à la surface des fibres. Cette réaction entraîne l'élimination partielle des constituants non cristallins de la structure fibreuse, réduisant ainsi son affinité pour l'eau [175,176]. De plus, ce traitement favorise une meilleure dispersion des fibres au sein de la matrice polymère. Il induit une décomposition des faisceaux de fibres et accroît le phénomène de fibrillation [65], ce qui améliore l'homogénéité du composite et renforce l'interface fibre-matrice [177].

La figure I.16 illustre le mécanisme de modification chimique de surface des fibres naturelles par estérification avec l'acide stéarique.

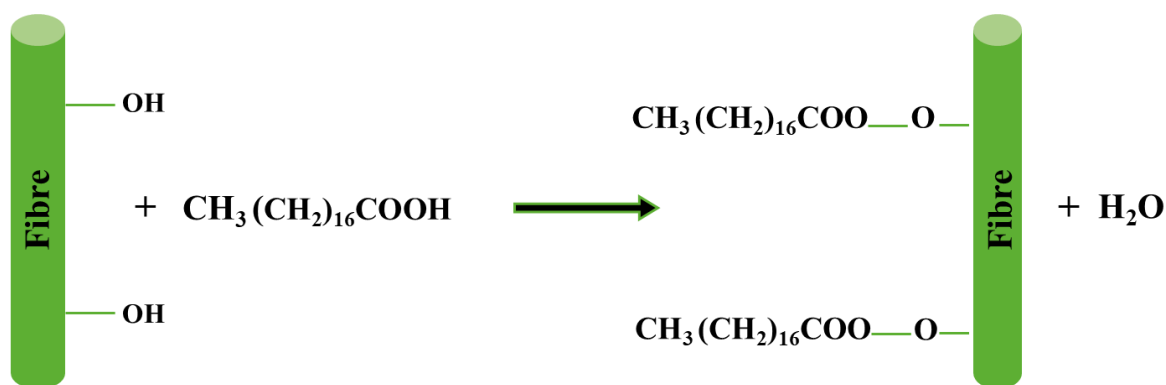


Figure I. 16. Mécanisme de fonctionnalisation de surface des fibres par traitement à l'acide stéarique.

I. 4 .1. 3. Traitements biologiques

Le traitement biologique constitue une alternative écologique et économiquement viable aux méthodes chimiques conventionnelles. Il utilise des micro-organismes naturels (bactéries, champignons) ou des enzymes spécifiques pour modifier la surface des fibres naturelles avant leur incorporation dans des composites [178]. Cette approche innovante, développée par de nombreux chercheurs, présente des avantages significatifs par rapport aux procédés chimiques et physiques : consommation énergétique réduite, élimination sélective de composés tels que la pectine et l'hémicellulose, et possibilité de recyclage des enzymes [179,180]. De plus, elle s'inscrit dans une démarche de chimie verte, limitant l'utilisation de solvants toxiques et réduisant l'impact environnemental [181].

I. 4 .1. 3. 1. Traitement enzymatique

Le traitement enzymatique est une méthode de plus en plus utilisée pour modifier les fibres naturelles, notamment dans l'industrie textile [182,183]. Cette approche bénéficie d'une excellente sélectivité, d'une haute spécificité et de conditions de traitement douces, permettant une séparation efficace des fibres de leurs constituants non fibreux. Les enzymes agissent comme des biocatalyseurs en accélérant les réactions biochimiques spécifiques à leur substrat. Leur utilisation constitue une alternative durable aux traitements chimiques classiques [181,184], réduisant ainsi l'emploi de réactifs chimiques agressifs et contribuant à la préservation de l'environnement.

L'hydrolyse enzymatique est un procédé catalytique qui dégrade les impuretés hydrophiles et non cellulosiques à la surface des fibres, améliorant ainsi leur hydrophobicité [185,186]. Les enzymes impliquées dans ce processus appartiennent principalement à deux groupes : les hydrolases (telles que les cellulases, pectinases, protéases et lipases) et les oxydoréductases (comme la tyrosinase, la laccase et la peroxydase) [183]. Ces dernières sont particulièrement étudiées pour la modification des polymères naturels [187].

I. 4 .1. 3. 2. Traitement fongique

Le traitement fongique représente une alternative écologique prometteuse pour modifier la chimie et la morphologie des fibres lignocellulosiques (LCF). Les champignons, organismes eucaryotes incluant les levures, les moisissures et les macromycètes, comptent environ 1,5 million d'espèces classées en quatre groupes principaux : ascomycètes, basidiomycètes, zygomycètes et deutéromycètes [188,189]. Des études ont démontré que les méthodes fongiques induisent des modifications similaires aux traitements chimiques, mais avec un impact environnemental réduit. Parmi les micro-organismes ligninolytiques, les basidiomycètes dits « à pourriture blanche » sont particulièrement efficaces pour le traitement des fibres naturelles [189–191]. Ils produisent des oxydases extracellulaires qui dégradent la lignine et augmentent la solubilité de l'hémicellulose, facilitant ainsi sa métabolisation. Ces enzymes agissent également sur d'autres composés aromatiques et non aromatiques [185,190]. Par ailleurs, les ascomycètes sont exploités pour leur production d'enzymes lipolytiques (lipases), capables de dégrader les composés résineux hydrophobes (acides résiniques, acides gras et matières huileuses) présents à la surface des fibres. Un effet morphologique notable réside dans la formation de micropores (piqûres) à la surface des fibres par les hyphes fongiques. Cette rugosité amplifiée améliore l'imbrication mécanique avec la matrice polymère, renforçant ainsi l'adhésion interfaciale dans les composites [189,192]

I. 4 .1. 3. 3. Traitement bactérien

Le traitement des fibres naturelles par dépôt de cellulose bactérienne (CB) est une méthode innovante qui consiste à ajouter une couche de cellulose biosynthétisée à la surface des fibres, plutôt que d'en éliminer des composants [193,194]. Divers genres bactériens notamment *Gluconacetobacter* (anciennement *Acetobacter*), *Agrobacterium*, *Aerobacter*, *Azotobacter*, *Rhizobium*, *Salmonella*, *Escherichia* et *Sarcina* [195] sont capables de produire de la cellulose en présence de fibres naturelles placées dans un milieu de culture approprié. La cellulose bactérienne se dépose alors in situ sur la surface des fibres [196]. La cellulose bactérienne possède des propriétés remarquables, notamment une grande pureté, une cristallinité élevée, une forte capacité de rétention d'eau, une excellente biodégradabilité et une biocompatibilité supérieure à celle de la cellulose d'origine végétale [197]. L'objectif principal de ce revêtement est d'améliorer l'adhésion interfaciale entre les fibres naturelles et les matrices polymères [198]. Il permet également de développer des nanocomposites hiérarchiques renforcés, aux propriétés mécaniques améliorées et à la durabilité accrue [199,200].

I. 4. 2. Impact du traitement de surface des fibres

Les traitements de surface jouent un rôle essentiel dans l'amélioration des propriétés des composites renforcés de fibres naturelles, élargissant ainsi leurs domaines d'application. Cependant, leur efficacité dépend de facteurs tels que le type de fibre, les procédés de traitement et la compatibilité avec la matrice polymère, ce qui nécessite des recherches continues pour optimiser ces méthodes [112].

De nature hydrophile, les fibres cellulosiques absorbent l'humidité atmosphérique jusqu'à atteindre un équilibre, avec des taux variant entre 5 % et 12 % [112]. Cette absorption d'eau affecte négativement l'interface fibre-matrice et les propriétés mécaniques des composites en induisant des variations dimensionnelles et en réduisant l'adhésion [201]. L'incompatibilité entre les fibres hydrophiles et les matrices hydrophobes, ainsi que la présence de cires et de pectines masquant les groupes fonctionnels réactifs, limitent l'imbrication mécanique et chimique [202].

Pour remédier à ces limitations, divers traitements chimiques et physiques sont employés. L'acétylation [203], le greffage de monomères [170], le blanchiment [166], le traitement au silane [158], la benzylation [160], le traitement à l'isocyanate [164], la mercerisation [146], le traitement plasma [127], l'oxydation enzymatique [182], et d'autres méthodes permettent d'exposer les groupes hydroxyles réactifs de la cellulose et de la lignine, d'éliminer les impuretés superficielles, et d'améliorer la stabilité thermique et l'adhésion interfaciale [204]. L'utilisation d'agents de couplage ou de compatibilisants facilite également le transfert de contraintes entre la fibre et la matrice [202].

Une interface bien conçue améliore la capacité de charge, la stabilité structurelle et les performances mécaniques globales des composites. Elle réduit l'angle de contact entre la fibre et la matrice, favorisant une meilleure mouillabilité et une réduction de la tension superficielle [205]. Ces modifications sont cruciales pour compenser la structure poreuse et la géométrie complexe des fibres végétales, qui compliquent la compréhension des phénomènes interfaciaux et limitent leur utilisation comme renforts dans les matériaux composites [206].

Conclusion

Les fibres naturelles, issues de ressources renouvelables, présentent des avantages significatifs face aux fibres synthétiques, incluant un faible coût, une légèreté remarquable et des propriétés mécaniques intéressantes. Cependant, leur utilisation dans les composites polymères se heurte à d'importantes limitations, principalement une incompatibilité chimique avec les matrices polymères hydrophobes, une sensibilité à l'humidité et une dégradation thermique. Ces défauts se traduisent par une adhésion interfaciale médiocre et des propriétés mécaniques compromises.

De plus, la variabilité de leur qualité et de leur disponibilité géographique affecte la reproductibilité industrielle. Pour pallier ces inconvénients, des traitements de surface chimiques, tels que les modifications alcalines ou au silane, sont essentiels. Ces traitements améliorent l'hydrophobicité des fibres, optimisent l'adhésion fibre-matrice et permettent une meilleure dispersion des renforts. Le développement de ces technologies de fonctionnalisation de surface constitue ainsi une voie prometteuse pour élargir les applications industrielles des composites biosourcés.

Chapitre II : Les matériaux composites

Introduction

Ce chapitre présente les fondements théoriques des matériaux composites : définition, classification, nature des constituants (matrice, renfort, charges et additifs), procédés de fabrication selon le type de matrice, ainsi que les facteurs clés influençant les performances des composites à renfort naturel, notamment la porosité, l'hygroscopicité, la stabilité thermique et, surtout, l'adhésion à l'interface fibre/matrice.

II. 1. Définition d'un matériau composite

Un matériau composite se définit fondamentalement comme un système hétérogène constitué d'au moins deux phases distinctes et synergiques : une phase continue, appelée matrice, et une ou plusieurs phases discontinues, désignées sous le terme de renfort [207,208]. La phase discontinue, généralement caractérisée par une dureté et des propriétés mécaniques supérieures (module d'Young, résistance à la traction), est dispersée dans la matrice afin d'en améliorer les performances globales [209]. La matrice, souvent plus ductile, assure la cohésion structurale, la transmission des charges au renfort, et la protection contre les agressions environnementales [210].

II. 2. Les constituants des matériaux composites

Les deux éléments fondamentaux d'un composite sont :

La matrice : Phase continue qui enrobe le renfort, assure la transmission des charges et protège contre les agressions environnementales [211].

Le renfort : Phase dispersée qui confère les propriétés mécaniques principales (rigidité, résistance) au matériau [211].

La figure II. 1 illustre schématiquement l'organisation typique de ces phases et leurs interactions.

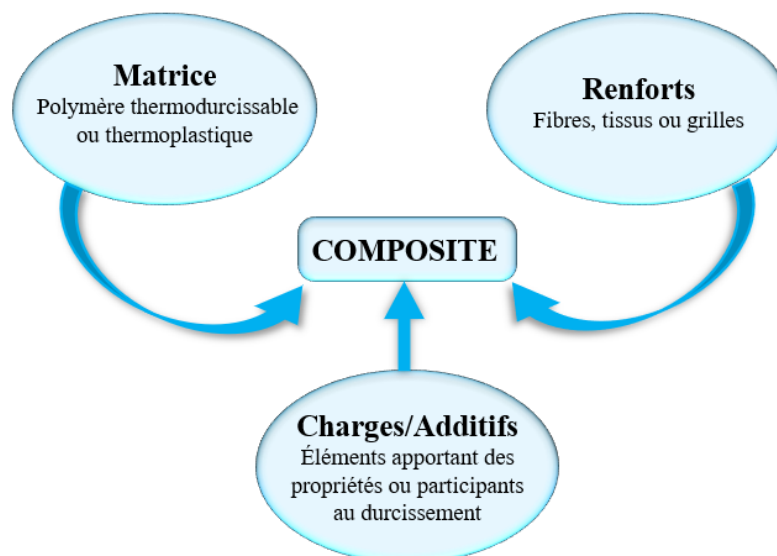


Figure II. 1. Composition d'un matériau composite.

II. 2. 1. La matrice

La matrice constitue l'un des deux éléments fondamentaux des matériaux composites. Sa fonction principale est d'assurer la cohésion structurale en maintenant le renfort en position, tout en le protégeant des agressions environnementales. Elle joue également un rôle crucial dans la transmission et la répartition des charges mécaniques vers le renfort [212]. Généralement homogène et isotrope, la matrice se décline en plusieurs familles : céramique, métallique, minérale et organique [213].

II. 2. 1. 1. Matrice polymère

Les matériaux polymères regroupent des chaînes de structures similaires, organisées de manière aléatoire (polymères amorphes) ou partiellement orientée (polymères semi-cristallins), selon les conditions de traitement [211]. Les polymères se divisent en trois classes :

Bien que les thermodurcissables dominent encore les composites, les thermoplastiques gagnent en popularité grâce aux progrès répondant à leurs limitations [214].

II. 2. 1. 1. 1. Matrices thermoplastiques

Les thermoplastiques se caractérisent par une ténacité élevée et une bonne résistance aux impacts à faible vitesse, attribuables à leur ductilité [213]. Bien que majoritairement employés dans des applications courantes ne requérant pas de hautes performances mécaniques, certains thermoplastiques techniques présentent des propriétés mécaniques remarquables et une stabilité thermique accrue. Les thermoplastiques hautes performances intègrent des cycles aromatiques conférant rigidité et stabilité thermique [215]. Le renforcement par des charges ou fibres améliore significativement leurs caractéristiques mécaniques et leur résistance au fluage [216]. Parmi les matrices standards pour applications à température ambiante, on note les polyamides PA, le polypropylène PP et le polyéthylène téréphtalate [207,217].

Le tableau II. 1 présente les propriétés typiques de certaines résines thermoplastiques couramment utilisées.

Tableau II. 1. Propriétés typiques de certaines résines thermoplastiques [63,67,83].

Résine	Densité (g/cm ³)	Résistance à la traction (MPa)	Module de traction (GPa)	Température HDT (°C)	Retrait à la cuisson (%)	Température de transition vitreuse / Tg (°C)
Acrylonitrile-butadiène-styrène (ABS, moulé)	0,88 – 3,5*	24,1 – 73,1	0,78 – 6,1	65 – 220	–	105 – 109
Polystyrène	1,02 – 1,18	17,9 – 60,7	0,3 – 3,35	62 – 98	0,002 – 0,008	83 – 100

Nylon (PA6)	1,12 – 1,14	41 – 166	2,6 – 3,2	68 – 85	0,003 – 0,015	47
Polycarbonate (PC, moulé)	0,95 – 1,51	46,1 – 93,1	1,8 – 3,0	78 – 187	–	143 – 152
Polysulfone	1,37 – 1,48	60 – 131	–	172 – 213	–	–
Polyéthylène HDPE (renforcé de verre)	0,94 – 1,53	11 – 113	0,7 – 13,6	51,7 – 127	0,001 – 0,003	–

II. 2. 1. 1. 2. Matrices thermodurcissables

Les matrices thermodurcissables constituent une classe de polymères initialement sous forme liquide ou pâteuse, qui se transforme en solides indéformables via une réaction de réticulation irréversible [213]. Cette polymérisation, souvent activée par un durcisseur, conduit à la formation d'un réseau tridimensionnel dense de liaisons covalentes, conférant au matériau son caractère insoluble et infusible. Bien que cette structure empêche un remoulage après solidification, elle est à l'origine de leurs propriétés mécaniques et thermiques généralement supérieures à celles des thermoplastiques, en faisant des matrices de choix pour les composites haute performance [213,218]. Les principaux atouts des thermodurcissables incluent une excellente résistance à la fatigue, aux chocs et à la corrosion, ainsi qu'une grande stabilité dimensionnelle [219].

Le tableau II.2 présente les propriétés physiques et mécaniques de diverses résines thermodurcissables (thermostat).

Tableau II. 2. Propriétés typiques de certaines résines thermodurcissables (thermostat) [63,67,83]

Résine	Densité (g/cm ³)	Résistance à la traction (MPa)	Module de traction (GPa)	HDT (°C)	Retrait au durcissement (%)	Température de transition vitreuse Tg (°C)
Epoxy	1,20–1,30	55–130	2,75–4,10	48	1–5	100–270
Polyester	1,10–1,43	34,5–103,5	2,10–3,45	60–205	5–12	70–120
Vinyl ester	1,12–1,32	73–81	3,00–3,50	93–135	5,4–10,3	102–150
Phénolique	1,00–1,25	30–50	~3,6	165–175	0–0,01	~260
Polyimide (PMR-15)	~1,32	~38,6	~3,9	–	0–0,006	320–330
Polyuréthane	1,10–1,50	1–69	0,069–0,69	50–205	0,02	~135

II. 2. 1. 1. 3. Matrices thermostables

Les résines thermostables, se distinguent par leurs propriétés mécaniques exceptionnelles, incluant une haute résistance à la traction, à la compression, au cisaillement et à l'impact. Leur utilisation comme matrice dans les matériaux composites est principalement motivée par leur excellente adhésion aux renforts fibreux et leur capacité à former des réseaux macromoléculaires tridimensionnels stables. Leur stabilité thermique, généralement supérieure à 200-300 °C, résulte de leur structure chimique rigide, souvent aromatique ou hétérocyclique, qui leur permet de conserver leurs propriétés mécaniques et structurales sous sollicitations thermiques sans subir de dégradation significative [220,221].

II. 2. 1. 2. Matrices métalliques

Les matrices métalliques utilisent des métaux et alliages légers à base d'aluminium, de magnésium ou de titane. Ces matériaux présentent une ténacité et une dureté supérieures aux polymères, ainsi qu'une capacité d'utilisation à températures élevées. Cependant, leur mise en œuvre nécessite des températures de traitement dépassant 600 °C, ce qui rend complexe et coûteux le renforcement par fibres continues [222].

II. 2. 1. 3. Matrices céramiques

Les céramiques sont des composés métal-non métal (oxydes, carbures, nitrures) aux propriétés mécaniques et thermiques élevées. Leur structure à liaisons ionocovalentes et leur nombre limité de systèmes de glissement expliquent leur fragilité intrinsèque. Leur point de fusion élevé et leur excellente stabilité chimique/oxydative en font des candidats idéaux pour les applications haute température [223,224]. La classification des types de matrices couramment rencontrées est donnée dans la figure II. 2.

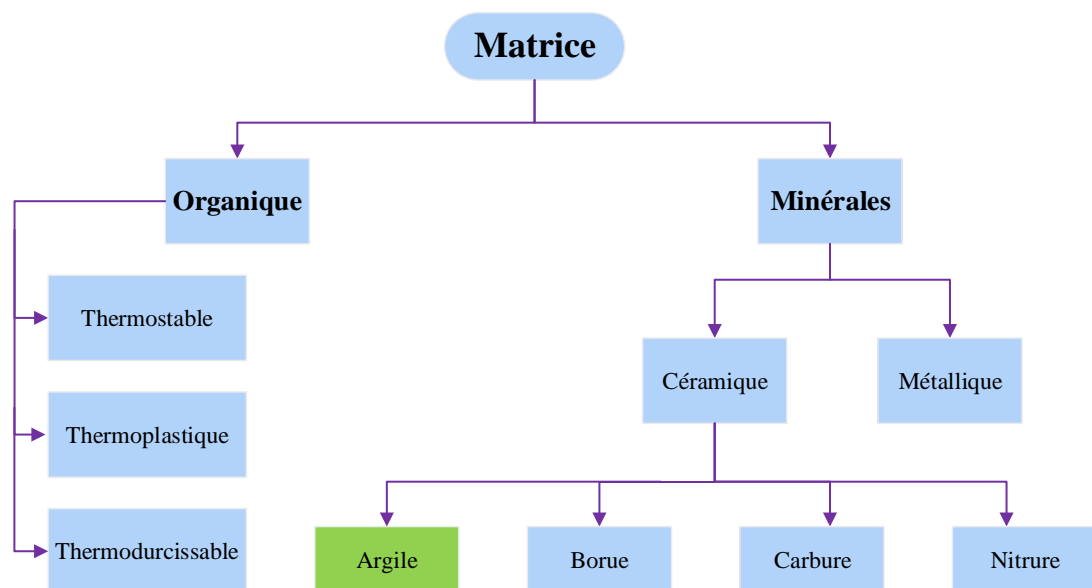


Figure II. 2. Classification de différentes familles de matrice.

II. 2. 1. 3. 1. Matrices inorganique

1. Définition de l'argile

Au sens large, les argiles désignent des matériaux naturels composés principalement de particules de taille inférieure à deux micromètres. D'un point de vue minéralogique, elles appartiennent à la famille des phyllosilicates et se caractérisent par leur structure cristalline en feuillets bidimensionnels d'aluminosilicates hydratés. Leur propriété distinctive est leur plasticité à certaines teneurs en eau, suivie d'un durcissement irréversible après séchage ou cuisson [225,226].

La définition du terme « minéral argileux » varie selon les domaines scientifiques : les géologues le restreignent aux particules de dimensions inférieures à 2-4 μm , les céramistes s'intéressent à leur comportement rhéologique en milieu aqueux, tandis que les ingénieurs civils étudient l'influence de leur composition minéralogique sur les propriétés physico-chimiques et thermiques des sols. Cette diversité d'approches reflète la complexité structurale et le large éventail de comportements de ces matériaux [225,227].

2. Structure de l'argile

À l'échelle microscopique, les minéraux argileux sont des phyllosilicates caractérisés par une structure lamellaire résultant de l'empilement de feuillets bidimensionnels. Ces feuillets, de géométrie tétraédrique (SiO_4) ou octaédrique (AlO_6), s'associent par mise en commun d'atomes d'oxygène pour former des couches élémentaires. Leur cohésion interlamellaire est assurée par des liaisons hydrogène entre les hydroxydes des feuillets octaédriques et les oxygènes tétraédriques adjacents, complétées par des interactions de Van der Waals [228]. Cet agencement définit un espace interfoliaire dont l'occupation dépend directement de la charge électrique des feuillets. L'assemblage répété de ces unités structurales (couche + espace interlamellaire) constitue la base morphologique des particules argileuses et détermine leurs propriétés physico-chimiques [229].

- **Feuillet tétraédrique**

Le feuillet tétraédrique constitue l'une des unités structurales fondamentales des argiles. Il résulte de l'assemblage de tétraèdres de coordination, où chaque cation central (généralement Si^{4+}) est entouré de quatre atomes d'oxygène (Figure II. 3). Ces tétraèdres se lient entre eux par mise en commun de trois de leurs atomes d'oxygène, formant un réseau plan hexagonal caractéristique. Le quatrième oxygène, dit apical, pointe perpendiculairement au plan et sert de lien avec le feuillet octaédrique adjacent. Des substitutions isomorphiques, comme le remplacement du silicium par de l'aluminium, y génèrent un déficit de charge positive, qui est compensé par l'adsorption de cations dans l'espace interfoliaire [226,230,231].

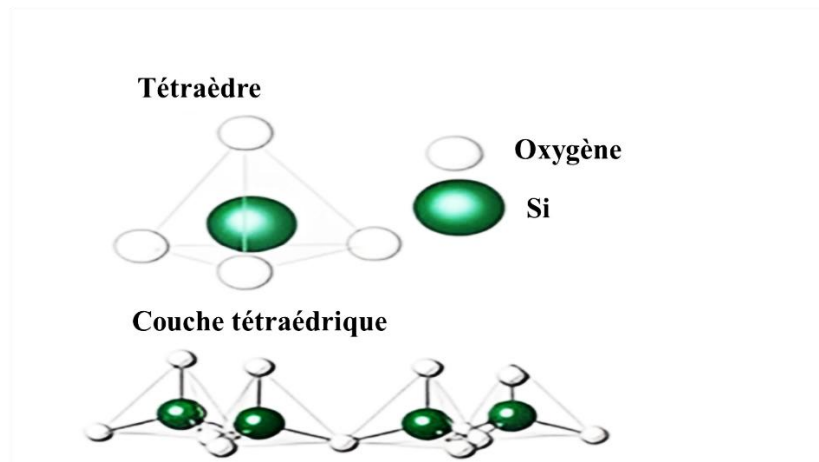


Figure II. 3. Représentation de la couche tétraédrique.

- **Feuillet octaédrique**

Le feuillet octaédrique est une structure lamellaire où chaque cation central (Al^{3+} , Mg^{2+} , $\text{Fe}^{2+/3+}$) est coordonné à six atomes d'oxygène ou groupes hydroxyle (figure II. 4). Ces octaèdres partagent leurs arêtes pour former un réseau compact. La configuration di-octaédrique apparaît lorsque deux sites sur trois sont occupés par des cations trivalents (ex: gibbsite, $\text{Al}_2(\text{OH})_6$), tandis que la structure tri-octaédrique correspond au remplissage total par des cations divalents (ex: brucite, $\text{Mg}_3(\text{OH})_6$). Des substitutions isomorphiques ($\text{Al}^{3+}/\text{Mg}^{2+}$) y génèrent un déficit de charge permanent, compensé par l'adsorption de cations compensateurs dans l'espace interfoliaire [232,233].

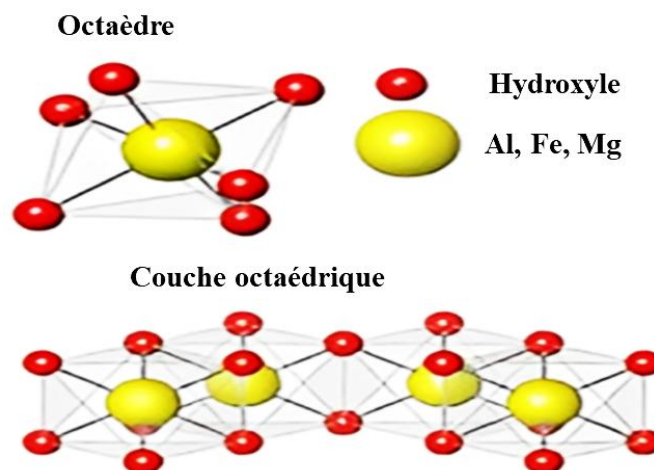


Figure II. 4. Représentation des octaèdres.

- **Couches, particules et agrégats**

La structure des minéraux argileux s'organise hiérarchiquement en trois niveaux. L'unité fondamentale est la couche, assemblage de feuillets tétraédriques et octaédriques d'une épaisseur nanométrique, séparés par un espace interfoliaire contenant parfois des cations

hydratés. L'empilement coaxial de 5 à 10 couches forme une particule primaire, stabilisée par des forces de Van der Waals et des liaisons hydrogène. Enfin, l'association aléatoire de ces particules constitue un agrégat de taille micrométrique. Cette organisation hiérarchique détermine directement les propriétés physico-chimiques de l'argile [234].

3. Classification des minéraux argileux

La diversité des minéraux argileux repose sur des variations de leur structure cristallographique et de leur composition chimique. Leur classification systématique s'appuie principalement sur des critères structuraux, notamment le nombre et la séquence des feuillets tétraédriques (T) et octaédriques (O) qui forment les couches élémentaires. Ce principe distingue fondamentalement trois types structuraux : les minéraux 1:1 (alternance T-O), 2:1 (sandwich T-O-T) et 2:1:1 (structures complexes avec couche interstitielle) [235]. Parallèlement, une classification complémentaire regroupe ces minéraux en sept familles distinctes (tKaolinite-Serpentine, Talc, Smectite, Micas, Chlorite, Vermiculite, Minéraux fibreux), intégrant des paramètres supplémentaires tels que la charge de la couche, la nature des cations et la composition de l'espace interfoliaire [228,233,236,237]

La figure II. 5 présente la classification structurale de Grim [225], un cadre fondamental pour catégoriser les minéraux argileux selon l'empilement de leurs feuillets tétraédriques et octaédriques.

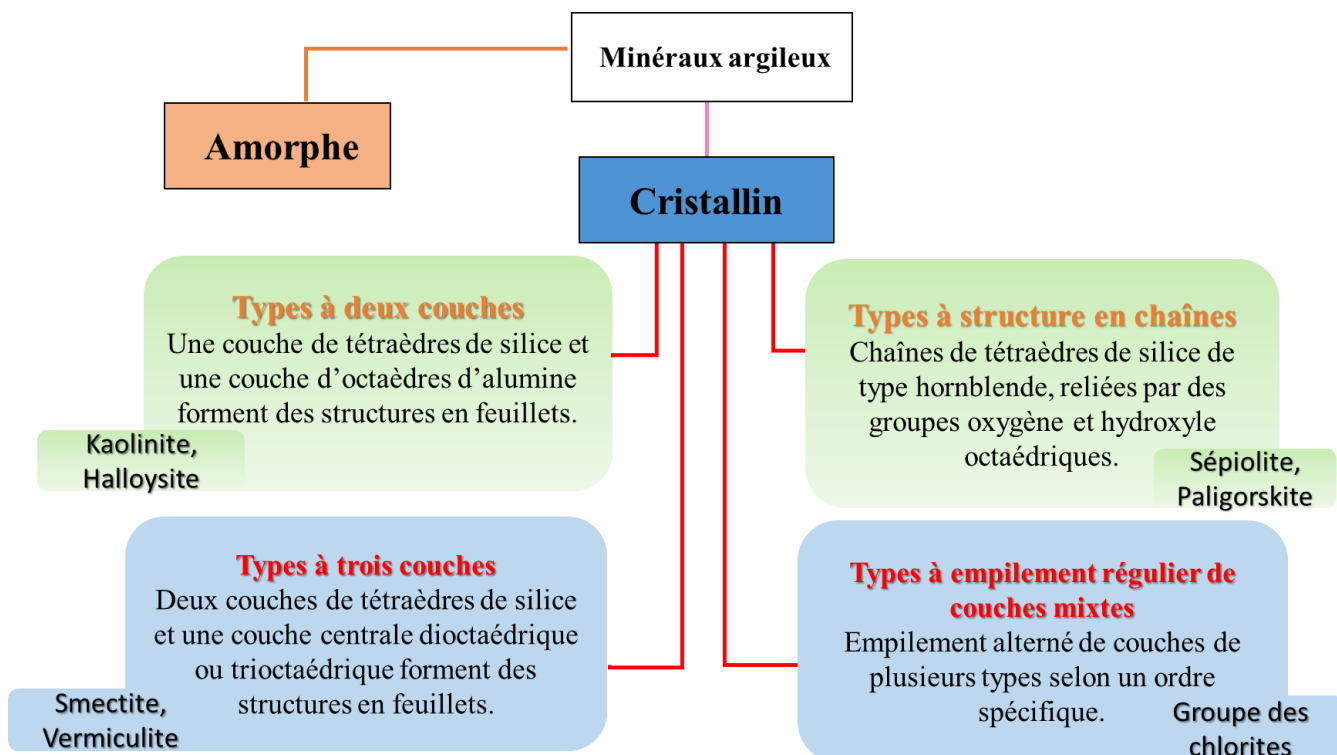


Figure II. 5. Classification des minéraux argileux selon Grim [225].

- **Classification structurale des minéraux argileux**

La classification structurale des minéraux argileux distingue quatre types fondamentaux selon l'organisation de leurs feuillets élémentaires. Le type 1:1 (kaolinite) associe un feuillet tétraédrique à un feuillet octaédrique, formant une structure stable de 7 Å rendue compacte par des liaisons hydrogène interfeuillets (figure II. 6-b) [238]. Le type 2:1 (smectites, illites) présente une architecture en sandwich (T-O-T) d'une épaisseur de 9-15 Å, où les substitutions isomorphiques génèrent une charge de couche négative (figure II. 6-a) [239]. Le type 2:1:1 (chlorites) se caractérise par une couche octaédrique supplémentaire dans l'espace interfoliaire, fixant la distance basale à ~14 Å [240]. Enfin, les minéraux interstratifiés (corrensite) résultent de l'empilement plus ou moins ordonné de couches de nature différente, conduisant à des épaisseurs variables.

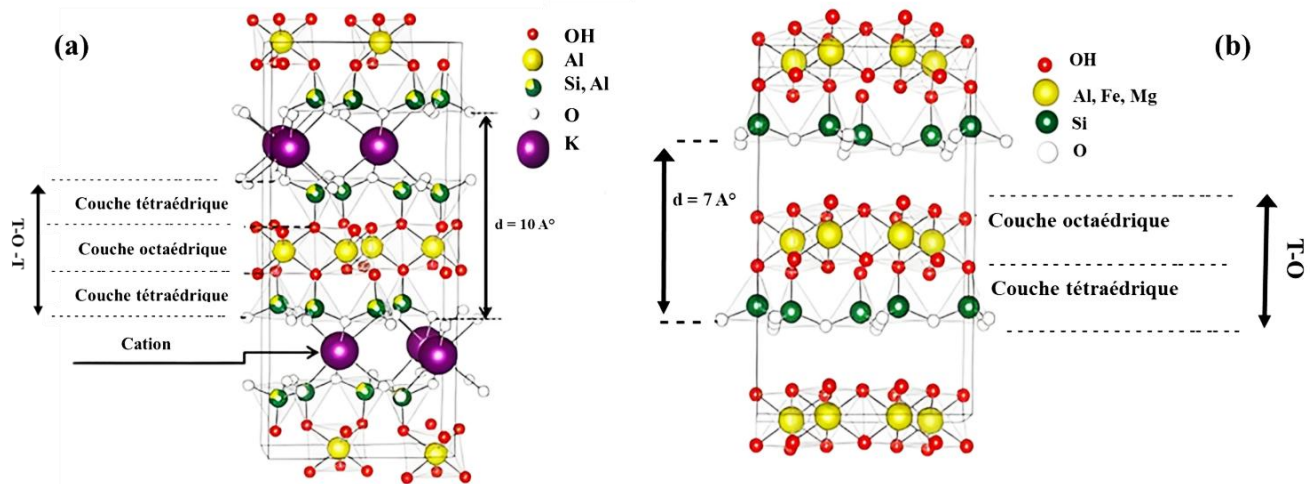


Figure II. 6. Structures de base des minéraux argileux [235].

- **Classification chromatique**

La coloration des argiles constitue un critère de classification pratique, directement lié à leur composition chimique, notamment en oxydes métalliques. Les teintes observées orientent leur valorisation vers des applications spécifiques.

Les argiles vertes, comme certaines smectites (montmorillonite), doivent leur couleur à une faible teneur en fer. Leurs propriétés adsorbantes et oxydantes les rendent efficaces pour la décontamination (élimination de polluants, virus, bactéries) et leur valent des applications en cosmétologie et en thérapie (traitement de troubles digestifs) [241].

À l'inverse, les argiles blanches (kaolinite) attestent d'une grande pureté et d'une absence d'oxydes colorants. Cette neutralité chromatique est essentielle pour leurs utilisations en cosmétique, en pharmacie et dans les céramiques de haute qualité [242].

Les pigments ferriques sont responsables des teintes rouges et jaunes que l'on observe principalement dans certaines illites, la nuance dépendant de l'état d'oxydation du fer et de la présence concomitante d'autres cations comme le magnésium [243,244].

4. Propriétés physiques et chimiques de l'argile

Les propriétés des minéraux argileux sont régies par une synergie entre leur composition chimique, leur structure cristallographique et leur morphologie particulière. Ces caractéristiques, intimement liées à leurs conditions de genèse, se manifestent par un ensemble de comportements physico-chimiques distinctifs. La compréhension de ces propriétés constitue un prérequis fondamental pour la caractérisation et la valorisation de ces matériaux dans des applications industrielles et environnementales.

Les propriétés physico-chimiques distinctives des minéraux argileux incluent [245–247]:

- La plasticité (comportement rhéologique en présence d'eau).
- La porosité et le gonflement (liés à l'adsorption d'eau dans l'espace interfoliaire).
- La surface spécifique élevée (due à leur structure lamellaire).
- La capacité d'échange cationique - CEC (propriété électrochimique de la surface).
- Les charges superficielles (déficit de charge structural).
- La conductivité électrique (fonction de la teneur en eau et en ions).

5. L'application des argiles et minéraux argileux

Les argiles et minéraux argileux présentent un large spectre d'applications industrielles en raison de leurs propriétés physico-chimiques uniques. Leur utilisation s'étend de la construction aux technologies environnementales, en passant par les secteurs pharmaceutique et cosmétique [248–251]. Dans le domaine de la construction, les argiles sont principalement utilisées comme ajouts cimentaires et dans la formulation de géopolymères. La kaolinite et les smectites, notamment la bentonite, confèrent aux matériaux une stabilité dimensionnelle, une résistance mécanique accrue et une durabilité améliorée. Leur capacité de gonflement contrôlé est exploitée pour optimiser la rhéologie des bétons et la cohésion des mortiers. Ces propriétés en font des composants essentiels pour développer des matériaux de construction performants et durables, répondant aux exigences techniques et environnementales modernes [252,253]. La figure II. 7 illustre la diversité de ces champs d'application.



Figure II. 7. Utilisations des argiles naturelles dans divers domaines.

II. 2. 2. Le renfort

Les renforts sont constitués d'un matériau présentant une rigidité et une résistance mécanique supérieures à celles de la matrice. Leur fonction principale est de conférer au composite des propriétés mécaniques élevées, particulièrement en résistance à la traction [213].

II. 2. 2. 1. Types des renforts

Le choix du renfort dépend des propriétés ciblées pour l'application. Différentes morphologies de fibres sont utilisées dans les composites avancés : fils, mèches, segments coupés, tissus et mats, chaque format étant adapté à des applications spécifiques [254]. Quatre types de fibres dominent l'industrie des composites avancés: verre, carbone, aramide et bore[68,93].

La figure II. 8 présente une classification des différents types de renforts.

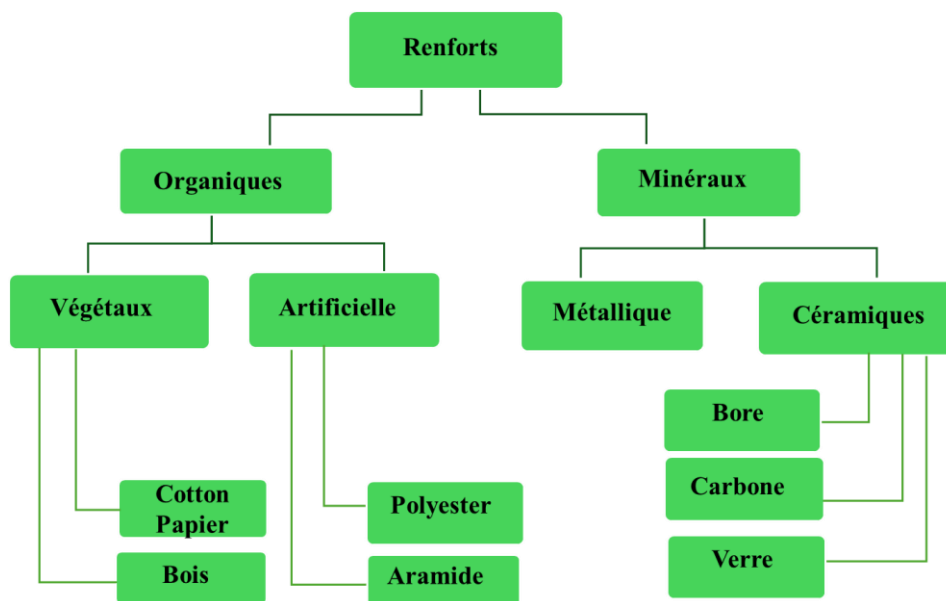


Figure II. 8. Classification de différentes familles de renfort.

II. 2. 3. Les charges et l'additifs

La formulation des résines composites peut être modulée par l'incorporation de produits spécifiques visant à optimiser leurs propriétés ou à réduire les coûts. La proportion de ces ajouts varie significativement selon leur nature fonctionnelle [255,256]:

- 1 Charges : Incorporation jusqu'à plusieurs dizaines de pourcents.
- 2 Additifs : Concentration typique de quelques pourcents ou moins.

L'objectif de ces modifications peut être :

- 1 L'amélioration des caractéristiques mécaniques et physiques.
- 2 La facilitation de la mise en œuvre et de la transformation.

II. 2. 3. 1. Les charges

L'introduction de charges renforçantes vise à améliorer les propriétés mécaniques des matrices polymères. Selon leur morphologie, ces charges se divisent en deux catégories principales, charges sphériques et charges non sphériques [255,256]. Les charges non renforçantes servent principalement à réduire les coûts de formulation tout en maintenant les performances, ou à conférer des propriétés spécifiques aux matrices polymères.

II. 2. 3. 2. Les additifs

Les additifs sont incorporés à faible concentration (généralement <5%) pour modifier des propriétés spécifiques des matrices polymères. Ils se classent en quatre catégories principales [255,256] :

- 1 Lubrifiants et agents de démoulage.
- 2 Pigments et colorants.
- 3 Agents anti-retrait et anti-fluage.
- 4 Agents anti-UV

II. 2 .4. Classification des matériaux composites

Selon la morphologie du renfort, on distingue deux familles de composites [257] :

- 1 Composites à fibres : Utilisant des fibres continues ou discontinues. L'orientation des fibres permet d'ajuster les propriétés mécaniques et de générer des comportements isotropes ou anisotropes.
- 2 Composites à particules : Les particules sont principalement utilisées pour renforcer des propriétés spécifiques (rigidité, conductivité thermique).

La figure II. 9 présente une classification systématique des matériaux composites basée sur la nature et la morphologie du renfort.

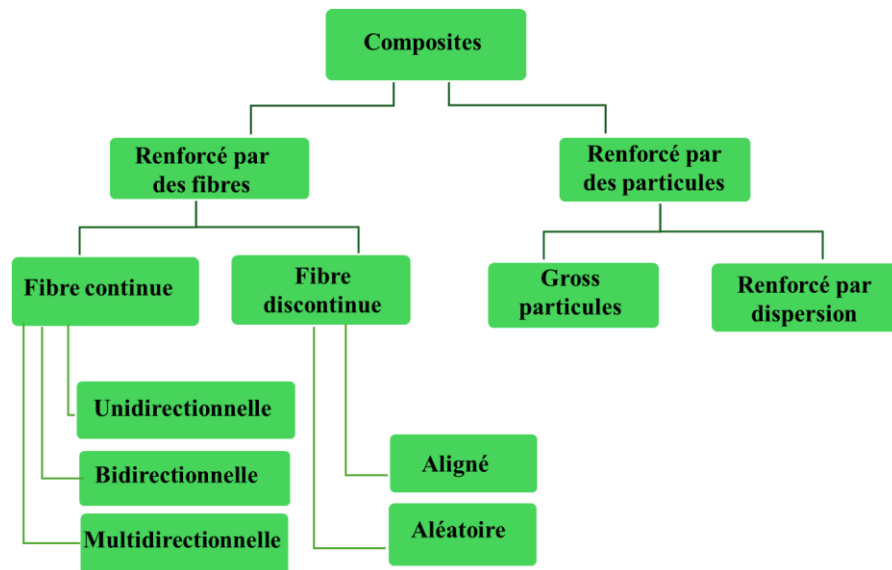


Figure II. 9. Classification des matériaux composites basée sur la nature du renfort.

La figure II. 10 illustre les différentes architectures de renforts utilisées dans les composites.

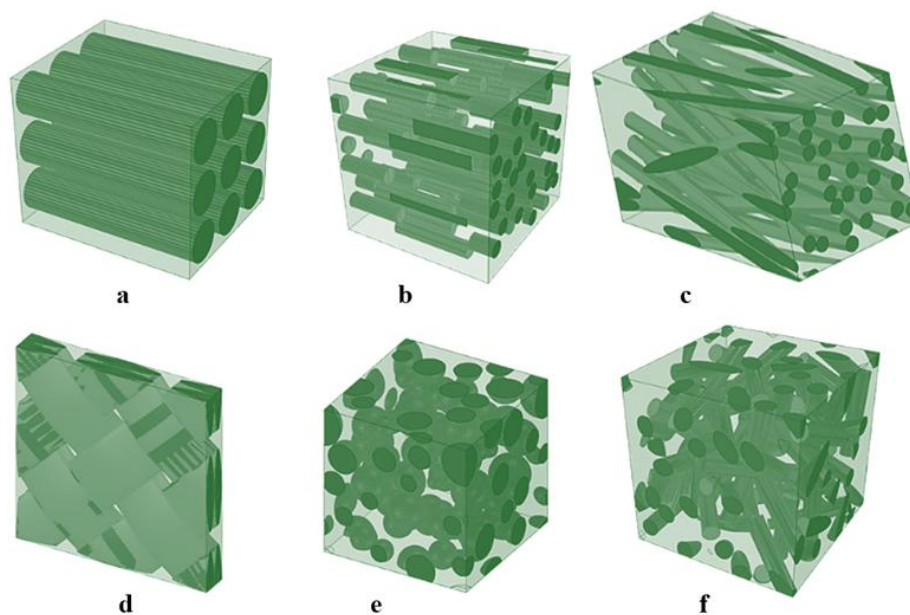


Figure II. 10. Représentation de renforts dans le composite : (a) Fibres continues unidirectionnelles, (b) Fibres courtes alignées, (c) Fibres continues multidirectionnelles (d), Fibres continues bidirectionnelles (e), Particules, (f) Fibres courtes aléatoires.

II. 3. Procédés de fabrication des composites

Le choix des méthodes de fabrication des composites dépend de multiples critères, incluant la complexité géométrique, les contraintes économiques et les propriétés finales requises. Certaines techniques conviennent à la production de série, tandis que d'autres présentent des limitations pour les formes complexes ou des coûts prohibitifs.

Une distinction fondamentale existe entre les procédés pour composites à matrice polymère (CMP) et ceux pour matrices métalliques (CMM) ou céramiques (CMC). Les CMM et CMC

nécessitent généralement des températures de traitement élevées, excluant l'utilisation des méthodes conventionnelles développées pour les CMP [207,212]. La sélection optimale implique donc une analyse systémique des paramètres opérationnels et des performances visées.

II. 3. 1. Procédés de fabrication des composites à matrice polymère (CMP)

Les techniques de fabrication des CMP se divisent en deux catégories fondamentales selon la nature de la matrice polymère :

II. 3. 1. 1. Procédés avec matrices thermodurcissables

Utilisant des résines à l'état liquide, ces méthodes permettent une mise en œuvre à température ambiante. Les principales techniques incluent [258–260]

- 1 Procédé de stratification manuelle.
- 2 Moulage par Transfert de Résine (MTR).
- 3 Moulage par compression.
- 4 Pultrusion.
- 5 Procédé d'infusion sous vide.
- 6 Traitement en autoclave.
- 7 Enroulement filamentaire.

II. 3. 1. 2. Procédés avec matrices thermoplastiques

Nécessitant des températures supérieures au point de fusion de la matrice [261,262]:

- 1 Moulage par injection.
- 2 Moulage par injection-réaction renforcé.
- 3 Thermoformage.

II. 3. 2. Procédés de fabrication des composites à matrice métallique (CMM)

Les CMM sont élaborés principalement selon [263,264] :

- 1 Moulage par agitation.
- 2 Infiltration de préformes par métal liquide.
- 3 Procédés par métallurgie des poudres.

II. 3. 3. Procédés de fabrication des composites à matrice céramique

La fabrication des CMC exige des températures de traitement élevées, ce qui exclut généralement les procédés par fusion. Les principales approches retenues combinent des techniques powder-based et des méthodes de dépôt avancées [265]. La complexité de ces procédés et leurs exigences énergétiques expliquent le coût de fabrication significativement plus élevé des CMC comparé aux PMC et MMC [266–269].

II. 4. Applications des matériaux composites

La polyvalence des matériaux composites, notamment leur rapport résistance/poids élevé, leur durabilité et leur capacité à être mis en forme pour des géométries complexes, leur confère un champ d'applications extrêmement vaste, touchant pratiquement tous les secteurs industriels (Énergie, électricité et électronique, Génie civil et bâtiment...)[270,271].

II. 5. Facteurs influençant des composites à renfort naturel

Les performances mécaniques des biocomposites sont régies par une combinaison de facteurs interdépendants. Les propriétés intrinsèques des fibres (résistance, module) et de la matrice (rigidité, ténacité) constituent les paramètres fondamentaux, la fibre assumant principalement la résistance en traction tandis que la matrice conditionne le comportement en compression et cisaillement [172]. L'efficacité de ce système est toutefois tributaire de l'adhésion interfaciale, souvent problématique du fait de l'incompatibilité chimique entre fibres hydrophiles et matrices hydrophobes. La variabilité naturelle des propriétés des fibres, leur sensibilité à l'humidité et leur dégradation thermique lors de la transformation viennent complexifier la maîtrise des propriétés finales de ces matériaux [272].

II. 5. 1. Influence du chargement, de l'orientation et de la longueur de la fibre sur les composites

Les propriétés mécaniques des composites à matrice polymère sont largement gouvernées par les paramètres morphologiques des renforts fibreux. Le pourcentage volumique, la distribution, l'orientation et les dimensions des fibres constituent des facteurs déterminants. Le transfert de charge depuis la matrice vers les fibres s'effectue principalement par cisaillement interfacial, un mécanisme dont l'efficacité dépend directement de la longueur des fibres (notion de longueur critique), de leur orientation par rapport aux sollicitations et de la qualité de l'adhésion à l'interface. L'orientation des fibres engendre une anisotropie marquée des propriétés mécaniques. Les composites unidirectionnels présentent des performances exceptionnelles dans l'axe des fibres, mais une résistance transverse réduite. À l'inverse, les composites à fibres courtes aléatoirement orientées offrent un comportement plus isotrope, mais dont la prédiction théorique s'avère complexe en raison de la distribution statistique des contraintes. L'optimisation du rapport d'aspect et de l'alignement des fibres permet d'ajuster précisément le compromis entre performances directionnelles et isotropie fonctionnelle [273–275].

II. 5. 2. Influence des caractéristiques des fibres sur les composites

La performance mécanique des biocomposites est étroitement liée aux paramètres structuraux et morphologiques des fibres végétales. Des études démontrent l'existence d'une fraction volumique optimale (environ 26-40%) [276], au-delà de laquelle les propriétés mécaniques se

dégradent en raison des dommages fibrillaires induits par les frottements internes lors de la mise en œuvre. La structure hétérogène des fibres, composée de régions cristallines (résistantes mais peu réactives) et amorphes (perméables), conditionne leur comportement. Leur hydrophilie native, attribuable aux groupes hydroxyles de la cellulose, engendre une incompatibilité avec les matrices polymères hydrophobes et une sensibilité à l'humidité, accentuée par les phénomènes de gonflement interfacial. Des traitements de surface ciblés s'avèrent donc nécessaires pour modifier leur chimie superficielle et optimiser l'adhésion fibre-matrice [134].

II. 5. 3. Stabilité thermique des fibres naturelles

La stabilité thermique des fibres naturelles constitue un paramètre critique pour leur mise en œuvre dans les procédés de transformation des polymères. Leur dégradation thermique, initiée dès 200-240°C, résulte de la décomposition différentielle de leurs constituants structuraux : les hémicelluloses, composants les plus thermosensibles, se dégradent dès 200°C, suivies par la cellulose autour de 240°C, tandis que la lignine présente un profil de décomposition plus étalé. Cette limitation thermique restreint leur utilisation aux matrices polymères dont la transformation s'effectue à basse température. Des traitements chimiques sélectifs, visant à éliminer partiellement les hémicelluloses et la lignine, permettent d'augmenter significativement la température de dégradation des fibres. Cette amélioration de la stabilité thermique élargit leur champ d'application vers des procédés industriels exigeants comme le moulage par injection et l'extrusion, tout en garantissant l'intégrité structurale des fibres durant la fabrication des composites [277].

II. 5. 4. Influence de la porosité sur les propriétés des composites

La formation de défauts de porosité constitue une limitation majeure dans les composites à fibres naturelles. Ces vides, issus du piégeage d'air ou de composés volatils lors de l'imprégnation, se localisent préférentiellement aux interfaces fibre/matrice et dans les zones riches en résine. Leur genèse est accentuée par des paramètres de transformation inadaptés, notamment des vitesses de durcissement ou de refroidissement excessives [277,278]. Au-delà d'un seuil critique estimé à 2-3% en volume, cette microporosité dégrade significativement les performances mécaniques : réduction de la résistance statique et en fatigue, augmentation de l'absorption d'humidité par création de chemins capillaires, et amplification de la dispersion des propriétés. Le contrôle rigoureux des conditions de mise en œuvre et l'optimisation des procédés d'imprégnation s'avèrent donc essentiels pour minimiser ces défauts et garantir la fiabilité des biocomposites [279].

II. 5. 5. Comportement hygroscopique des fibres naturelles

L'hydrophilie intrinsèque des fibres lignocellulosiques représente un défi majeur pour la durabilité des biocomposites. Cette affinité pour l'eau provient de l'abondance de groupes hydroxyle (-OH) dans leur paroi cellulaire, qui forment des liaisons hydrogène avec les molécules d'eau atmosphériques. Le mécanisme d'absorption, initié préférentiellement aux sections transversales des fibres, induit un gonflement différentiel à l'interface avec la matrice polymère hydrophobe [280,281]. Cette hygroexpansivité génère des contraintes internes responsables de la dégradation des propriétés mécaniques : diminution de la résistance interfaciale, apparition de microfissures matricielles et perte de stabilité dimensionnelle. Le prétraitement des fibres par séchage contrôlé et l'application de modifications chimiques visant à réduire la densité de groupes hydroxyle superficiels constituent des stratégies essentielles pour maîtriser le comportement hygroscopique et améliorer les performances à long terme des composites [282,283]. La figure II. 11 montre les facteurs qui influencent la performance composite.

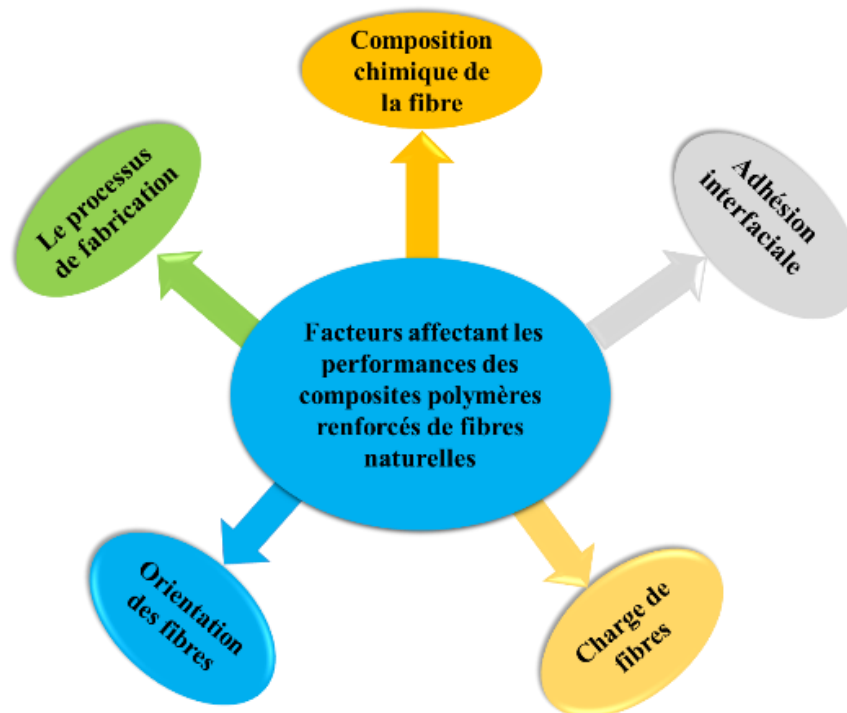


Figure II. 11. Facteurs qui influencent la performance du composite.

Conclusion

Ce chapitre a permis d'établir un cadre théorique solide sur les matériaux composites, en mettant l'accent sur les spécificités des renforts naturels et des matrices minérales à base d'argile. Il ressort clairement que la performance d'un composite dépend non seulement de la nature de ses constituants, mais aussi de leurs interactions interfaciales et de la qualité de leur

mise en œuvre. Les fibres végétales, bien que sensibles à l'humidité et à la chaleur, offrent un potentiel réel lorsqu'elles sont correctement traitées et intégrées dans une matrice adaptée. Ces éléments théoriques guident directement le choix des formulations et des méthodologies adoptées dans la partie expérimentale de cette thèse.

Chapitre III : Matériels et méthodes

Introduction

Ce chapitre décrit l'ensemble des procédures expérimentales mises en œuvre pour élaborer et caractériser les composites étudiés. Il commence par la caractérisation physico-chimique et géotechnique de l'argile utilisée comme matrice de base, incluant les mesures de pH, de teneur en eau, d'indice de gonflement, et de limites d'Atterberg. Les fibres de Cynodon dactylon sont ensuite préparées et soumises à des traitements de surface (alcalinisation au NaOH et oxydation au KMnO_4). La formulation des composites, leur mise en forme et les méthodes de caractérisation par DRX, FRX, ATG, IRTF, MEB et essais mécaniques (compression et flexion).

III. 1. Matériels et méthodes

III. 1. 1. Caractérisation de l'argile

III. 1. 1. 1. Préparation de l'échantillon argileux

Les échantillons d'argile ont été prélevés dans la région de Soubella (Figure III.1), située dans la wilaya de M'Sila, au sud de l'Algérie. Cette localité se trouve au cœur des Hauts Plateaux algériens, dans une zone géographique stratégique qui forme une charnière entre le Tell au nord et l'Atlas saharien au sud. La région de Soubella s'inscrit plus particulièrement dans le contexte géomorphologique du Hodna, dont elle partage les caractéristiques structurales et sédimentologiques.

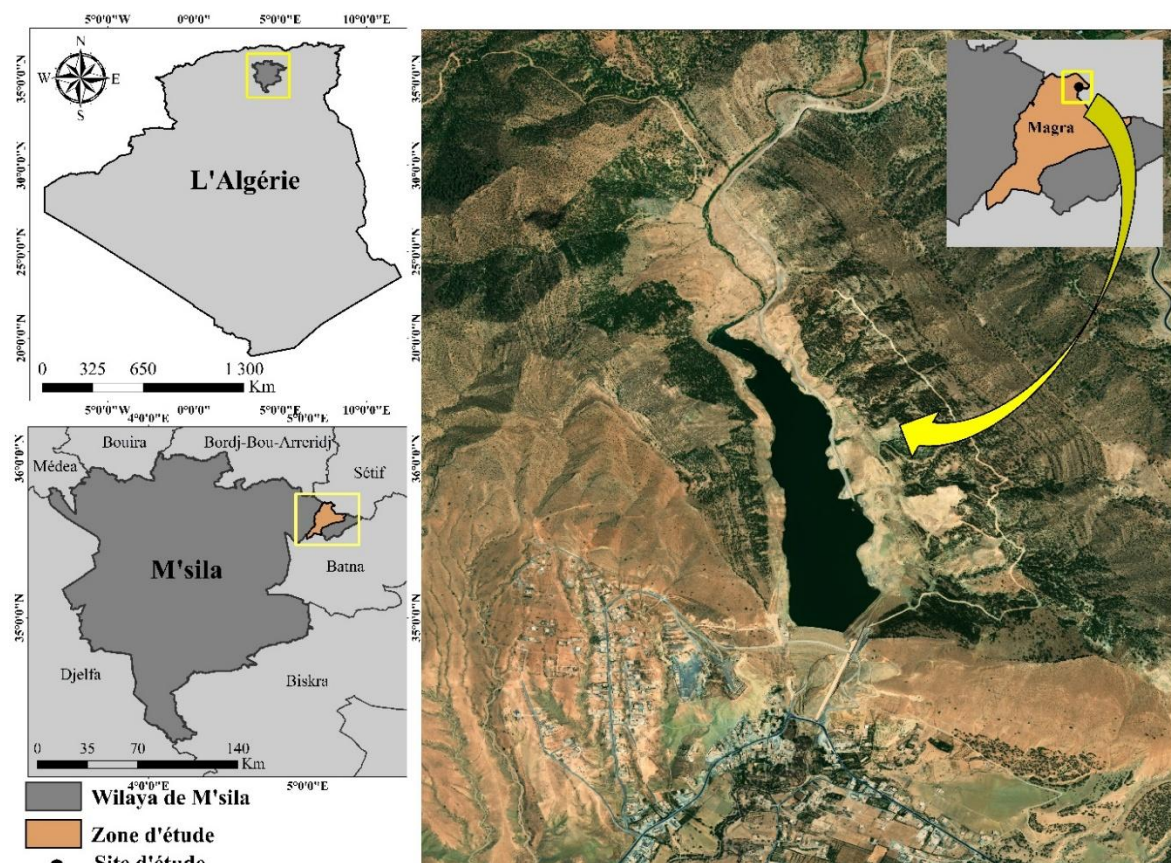


Figure III. 1. Localisation de Soubella.**Protocole de préparation des échantillons d'argile**

L'échantillon brut a été soumis à une séquence standardisée de préparation mécanique. Le protocole expérimental a comporté les étapes suivantes :

- 1 Réduction dimensionnelle des roches argileuses par concassage au mortier.
- 2 Séchage statique en étuve à 60 °C pendant 24 heures.
- 3 Broyage mécanique des fragments desséchés.
- 4 Tamisage sur tamis de 50 µm pour obtenir une fraction pulvérulente homogène.

Cette préparation rigoureuse permet d'obtenir une poudre argileuse normalisée, prérequis essentiel pour les caractérisations ultérieures.

III. 1. 1. 2. Détermination du pH

La mesure du pH est essentielle pour caractériser le comportement acido-basique des argiles en milieu aqueux. Le protocole expérimental suit la procédure normalisée suivante [284] :

- 1 Préparation d'une suspension à 10% (m/v) dans l'eau distillée.
- 2 Équilibration pendant 4 heures à température contrôlée (25 ± 1°C).
- 3 Homogénéisation par agitation magnétique avant mesure.
- 4 Lecture directe au pH-mètre (HANNA, pH210 fabriquée en Italie) étalonné.

Cette méthode permet de quantifier le potentiel d'échange ionique et les propriétés de surface de la fraction argileuse.

III. 1. 1. 3. Taux d'humidité

La quantification de l'humidité est réalisée par la méthode gravimétrique par étuvage. Le protocole consiste à soumettre l'échantillon humide à une température de 105 ± 5 °C pendant 24 heures, jusqu'à l'obtention d'une masse constante [284]. La masse sèche (M_s) ainsi obtenue correspond à la masse des particules solides après élimination complète de l'eau libre. Le taux d'humidité (W) est calculé selon la relation (1) et (2) :

$$H(\%) = \left(\frac{m_{eau}}{m_s} \right) \times 100 \quad (1)$$

$$H(\%) = \left(\frac{m_t - m_s}{m_s} \right) \times 100 \quad (2)$$

m_{eau} : masse d'eau (g).

m_s : masse de l'échantillon sec (g).

m_t : masse de l'échantillon humide (g).

III. 1. 1. 4. Indice de gonflement

La capacité de gonflement des argiles est évaluée par un essai de sédimentométrie. Le protocole expérimental suit la séquence suivante[285] :

- 1 Introduction de 50 mL d'eau distillée dans une éprouvette graduée de 100 mL.
- 2 Addition de 0,5 g d'argile et homogénéisation.
- 3 Repos de 45 minutes pour hydratation initiale.
- 4 Ajout complémentaire de 0,5 g d'argile.
- 5 Lecture du volume final après stabilisation (2 heures).

La différence volumétrique mesurée quantifie le potentiel de gonflement, lié à la pénétration des molécules d'eau dans l'espace interfoliaire des minéraux argileux.

L'indice de gonflement est mesuré par la formule (3) :

$$\text{Indice de gonflement (\%)} = \frac{(\text{volume de gonflement} \times 50)}{(50 - \text{humidité})} \quad (3)$$

III. 1. 1. 5. Perte au feu

La perte au feu (LOI, Loss On Ignition) est un essai thermogravimétrique standardisé qui quantifie la perte massique d'un matériau après calcination à 1100°C. Cette analyse mesure la teneur en constituants volatils (eau liée, carbonates, matière organique) Réalisée dans un creuset en porcelaine avec un protocole de chauffage contrôlé, cette caractérisation fournit des informations cruciales sur la composition minéralogique et la pureté des argiles[286]. En calculant la différence entre la masse initiale (P_1) et la masse après calcination (P_2), selon la formule (4) :

$$PAF = \left(\frac{P_1 - P_2}{P_1} \right) \times 100 \quad (4)$$

III. 1. 1. 6. Paramètres géotechnique de l'argile

III. 1. 1. 6. 1. Limite d'Atterberg

Les limites d'Atterberg constituent un essai géotechnique fondamental permettant de caractériser le comportement hydromécanique des sols fins. Cette analyse, réalisée selon le référentiel normatif français (NF P 94-051), détermine les teneurs en eau critiques qui délimitent les états de consistance d'un matériau [287].

III. 1. 1. 6. 2. Limite de liquidité (W_l)

Par définition, la limite de liquidité correspond à la teneur en eau pour laquelle la fermeture d'une rainure standardisée se produit en exactement 25 chocs. L'essai consiste à déposer une pâte de matériau dans une coupelle, puis à y tracer une rainure à l'aide d'un outil en V. La coupelle est ensuite soumise à des chocs répétés jusqu'à ce que la rainure se referme sur une longueur de 1 cm. La teneur en eau de l'échantillon est alors mesurée à ce moment précis, définissant ainsi la limite de liquidité du matériau.

III. 1. 1. 6. 3. Limite de plasticité (W_p)

La limite de plasticité (W_p) marque la transition entre l'état solide et l'état plastique d'un matériau. L'essai consiste à façonner une boulette de pâte, puis à la rouler manuellement sur une plaque lisse jusqu'à l'obtention d'un cylindre de $3 \text{ mm} \pm 0,5 \text{ mm}$ de diamètre et 10 cm de longueur. La limite de plasticité est définie comme la teneur en eau du rouleau lorsqu'il commence à se fissurer à ce diamètre critique.

III. 1. 1. 6. 4. L'indice de plasticité (IP)

L'indice de plasticité (IP) est une grandeur numérique fondamentale en mécanique des sols, représentant l'étendue du domaine de plasticité d'un matériau. Il se calcule par la différence arithmétique entre la limite de liquidité (W_l) et la limite de plasticité (W_p), selon la formule (5):

$$IP = W_l - W_p \quad (5)$$

Cet indice quantifie l'intervalle des teneurs en eau pour lequel le matériau présente un comportement plastique, constituant un paramètre essentiel pour la classification et l'étude du comportement rhéologique des sols argileux.

III. 1. 1. 6. 5. Mesure de la taille des particules par diffraction laser

La diffraction laser permet d'évaluer la taille et la répartition des particules dans les poudres, dans le but de prédire le comportement de la poudre lors d'un processus spécifique. Cette méthode repose sur les échanges entre un groupe de particules et le rayon laser. Le granulomètre Mastersizer modèle 3000 a été utilisé pour mesurer la taille des particules de notre matériau, avec une distribution granulométrique de 10 nm à 3,5 mm. La figure III. 2. Présenté les différentes étapes de préparations et caractérisation des argiles.

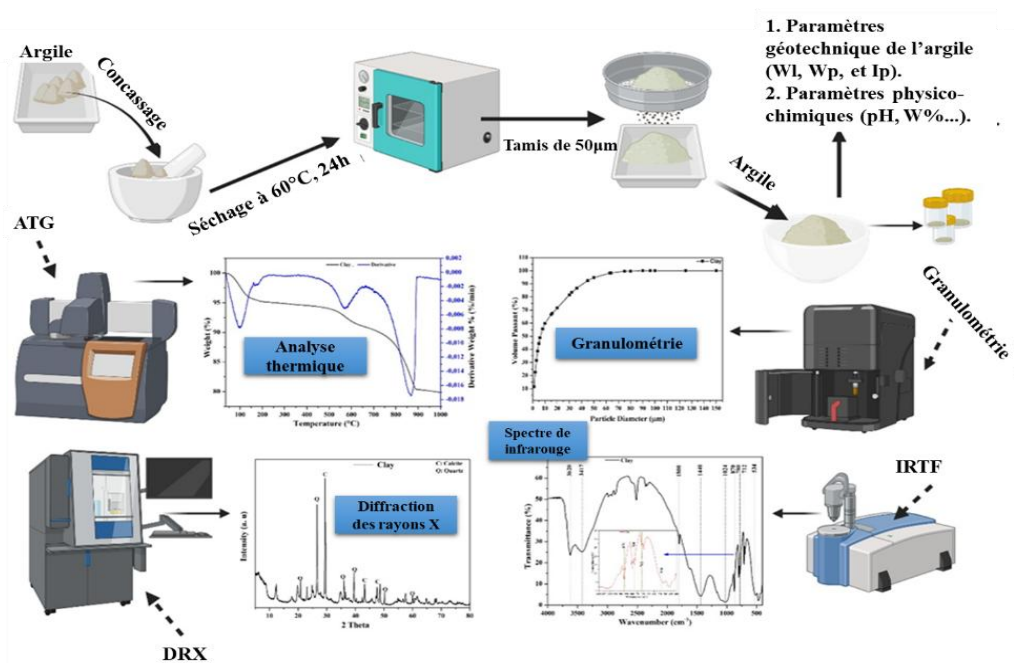


Figure III. 2. Préparation et caractérisation des échantillons des argiles.

III. 1. 2. Traitement de fibre

III. 1. 2. 1. Cynodon dactylon

Le Cynodon dactylon est une plante herbacée largement répandue dont les fibres présentent une composition organique riche en cellulose, hémicellulose et lignine [288]. Le traitement de ces fibres (dégommage, modification chimique ou physique) permet d'améliorer leurs propriétés mécaniques et hydrophobes, ouvrant ainsi des applications innovantes dans les matériaux composites [289]. Son utilisation dans l'industrie (textile, emballage, construction) offre une alternative durable aux ressources non renouvelables. Les recherches récentes soulignent son potentiel comme renfort écologique dans les biopolymères, réduisant l'impact environnemental [290]. Cependant, des défis persistent, notamment sa sensibilité à l'humidité et son adhésion limitée aux matrices synthétiques [291]. Des traitements alcalins ou à l'acide acétique améliorent ces propriétés [292]. La valorisation du Cynodon dactylon s'inscrit dans une logique d'économie circulaire, avec un marché prometteur estimé à 6,3 % de croissance annuelle pour les biocomposites [293].

III. 1. 2. 2. Préparation des fibres de Cynodon dactylon

Les fibres de Cynodon dactylon utilisées dans cette étude proviennent de la région de M'sila.

III. 1. 2. 3. Extraction des constituants des fibres de Cynodon dactylon selon la méthode de Klason.

Le protocole d'extraction des composants lignocellulosiques des fibres de Cynodon dactylon suit la méthode standardisée de Klason, adaptée à l'analyse quantitative des biopolymères. Dans un premier temps, les fibres subissent un prétraitement alcalin (1 % NaOH, 2 h à température ambiante) afin d'éliminer les cires, les graisses et autres impuretés de surface. L'holocellulose (mélange de cellulose et d'hémicelluloses) est ensuite extraite par traitement avec une solution de NaOH 1 % à 80 °C pendant 2 h, suivi d'un blanchiment itératif à l'aide d'un mélange NaClO/NaOH/acide acétique (1:1:3) jusqu'à obtention d'une pâte blanche. La cellulose pure est isolée par dissolution de l'holocellulose dans une solution de KOH 24 % pendant 17 h sous agitation, puis neutralisation, filtration et lavages successifs (eau distillée, acide acétique dilué, éthanol). Les hémicelluloses sont récupérées à partir du filtrat de cette étape, neutralisé à pH acide (acide acétique 50 %), puis précipitées et lavées à l'éthanol. La lignine résiduelle est quantifiée après hydrolyse acide en deux étapes : attaque initiale avec H₂SO₄ concentré (72 %) à 25 °C (2 h), puis dilution à 3 % et réaction en reflux à 100 °C pendant 6 h. Après filtration, lavage à l'eau chaude et séchage à 105 °C, la lignine insoluble est pesée. Enfin, les matières grasses sont extraites par solvatisation au dichlorométhane pendant 24 h, suivie d'une évaporation sous pression réduite (rotavapor) et d'une pesée du résidu [294].

La figure III. 3, présente le protocole d'extraction des constituants des fibres de Cynodon dactylon selon la méthode Klason.

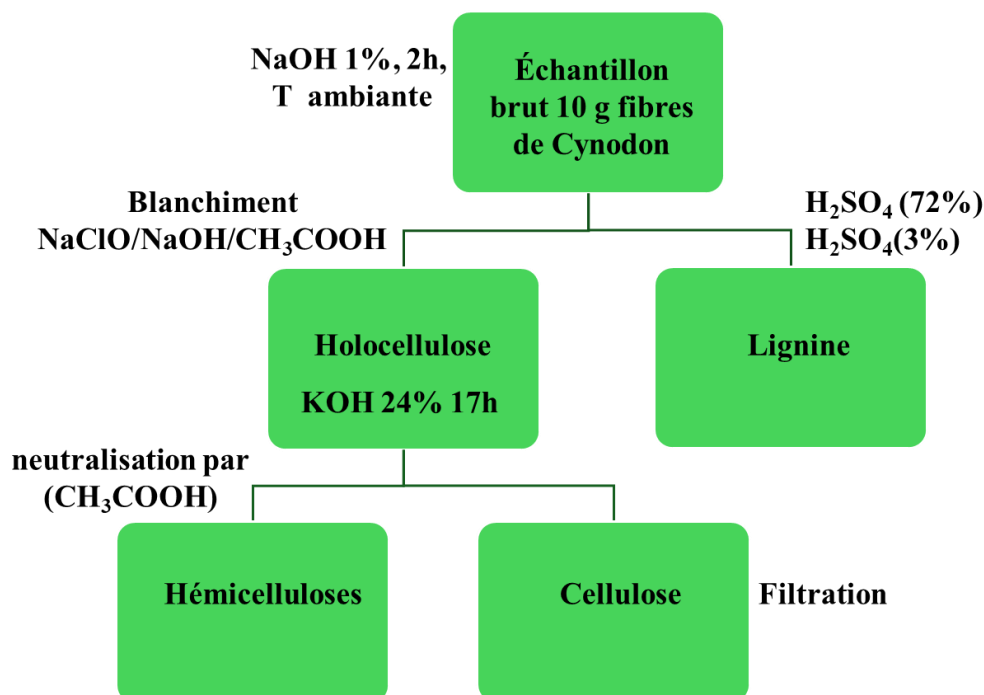


Figure III. 3. Protocole d'extraction des constituants des fibres de Cynodon dactylon (Méthode Klason).

III. 1. 2. 4. Traitement alcalin (NaOH) [295].

Les fibres de Cynodon dactylon (chiendent) coupées ont été traitées pendant 4 heures dans des solutions de NaOH ($M = 39,99 \text{ g.mol}^{-1}$, $d = 2,13 \text{ g.cm}^{-3}$, Sigma-Aldrich) à différentes concentrations (2%, 4%, 6% et 8% m/v), avec un ratio masse fibre/solution de 1:100 m/v. Après traitement, les fibres ont été lavées à l'eau (distillée ou du robinet) pour éliminer l'excès de NaOH, puis neutralisées jusqu'à $\text{pH} = 7$ en utilisant de la phénolphaléine comme indicateur. Les traces résiduelles de NaOH ont ensuite été neutralisées par immersion dans une solution d'acide sulfurique à 1% pendant 10 minutes ($M = 98,079 \text{ g.mol}^{-1}$, $d = 1,83 \text{ g.cm}^{-3}$, $p = 98 \%$, Sigma-Aldrich), suivie d'un rinçage abondant à l'eau distillée. Les échantillons ont finalement été séchés dans une étuve à 60°C pendant 6 heures. L'élimination complète de la soude a été contrôlée par test à la phénolphaléine, un indicateur colorimétrique spécifique des milieux alcalins. Le tableau III. 1 présente la liste des abréviations utilisées.

Tableau III. 1. Liste des abréviations utilisées pour le traitement alcalin (NaOH).

Abréviation	Traitement chimique utilisé
CDNT	Fibres de Cynodon dactylon non traitées.

CDA2	Fibres de Cynodon dactylon traitées par 2% de NaOH
CDA4	Fibres de Cynodon dactylon traitées par 4% de NaOH
CDA6	Fibres de Cynodon dactylon traitées par 6% de NaOH
CDA8	Fibres de Cynodon dactylon traitées par 8% de NaOH

III. 1. 2. 5. Traitement au permanganate (KMnO₄)

Les fibres traitées par NaOH ont été trempées 3 minutes dans une solution de KMnO₄ (M = 158,034 g.mol⁻¹, d = 2,7 g.cm⁻³, Sigma-Aldrich, Etats-Unis) des concentrations différentes 0.1% et 0.25% (m/v) [296], le rapport fibre/solution utilisé est 1 :100 (m/v). La figure II. 5 montre les échantillons traités et non traités de fibres de Cynodon dactylon et le tableau III. 2 présente la liste des abréviations utilisées.

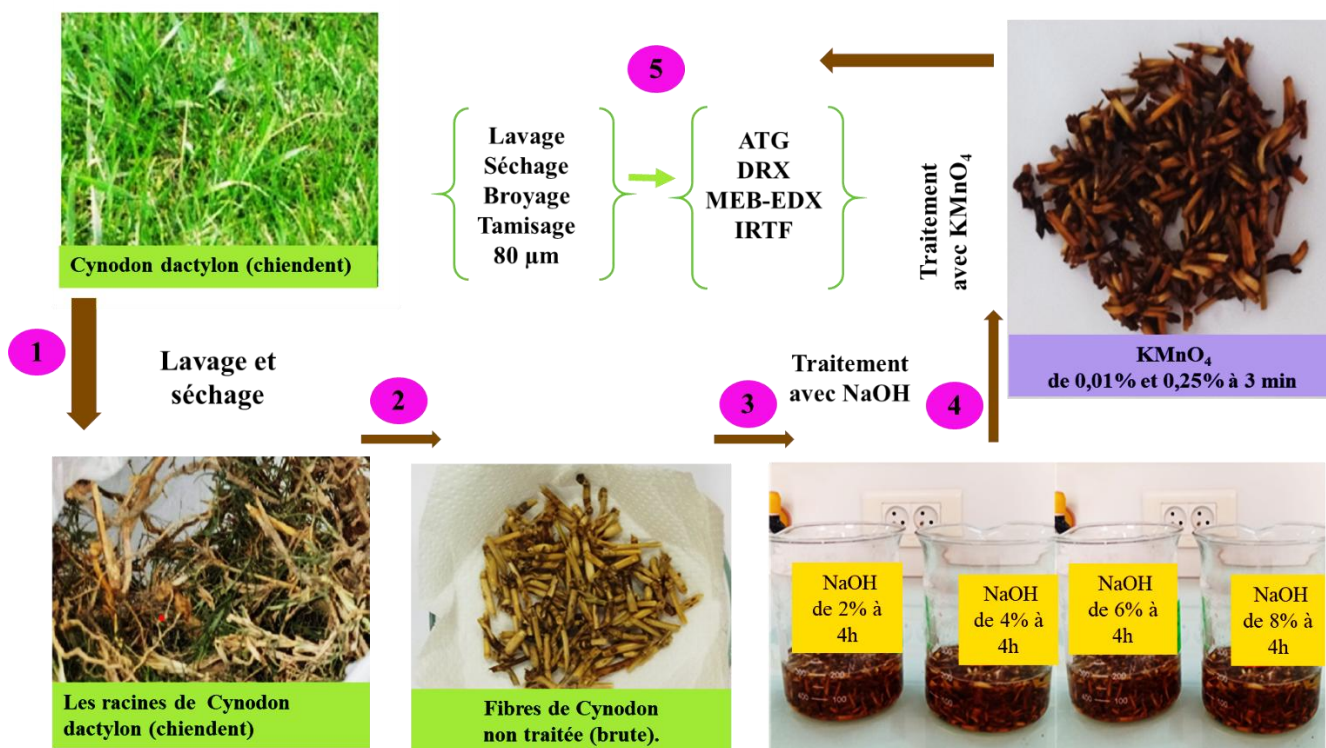


Figure III. 4. Fibres de Cynodon traitées et non traitées.

Tableau III. 2. Liste des abréviations utilisée pour le traitement au permanganate (KMnO₄).

Abréviation	Traitement chimique utilisé
CDA8K1	Fibres de Cynodon dactylon traitées par 8% de NaOH et 0.1% de KMnO ₄
CDA8K25	Fibres de Cynodon dactylon traitées par 8% de NaOH et 0.25% de KMnO ₄

III. 2. Préparation de composite

III. 2. 1. Matrice et renfort

1 Argile

L'argile utilisée est originaire de la région de Soubella (M'Sila, Algérie). Le matériau a été préalablement tamisé à 100 μm . Sa caractérisation a inclu l'analyse granulométrique selon les normes NF, la détermination des limites d'Atterberg et de l'indice de plasticité (NF P 94-051), une analyse chimique par fluorescence X (FRX) et minéralogique par diffraction des rayons X (DRX).

2 Ciment

Le ciment employé est un ciment Portland de type CEM I 42,5N-SR3, caractérisé par sa résistance élevée aux sulfates (CRS). Il a été fourni par la cimenterie de Lafarge M'Sila, Algérie. En tant que liant hydraulique principal, il a été incorporé dans les formulations composites pour assurer la cohésion matricielle et développer les résistances mécaniques initiales.

3 Chaux

La chaux utilisée dans cette étude est une chaux vive produite par l'unité de Saida en Algérie. Sa composition chimique détaillée est présentée dans le tableau III. 3. Ce liant, fabriqué spécifiquement par l'unité de chaux algérienne, fait l'objet d'une caractérisation chimique exhaustive.

4 Fumée de silice (FS)

La fumée de silice utilisée dans cette étude a été fournie par Master Builders Solutions Algeria (BASF Algérie). Ce sous-produit industriel, également désigné sous le nom de microsilice, est reconnu pour son rôle majeur dans l'amélioration de l'adhésion entre la pâte cimentaire et les granulats [297]. En raison de ses propriétés pouzzolaniques et de sa finesse particulière, elle a été incorporée en tant que substituant partiel dans la formulation de bétons à hautes performances [298]. Les compositions chimiques et les propriétés physiques du ciment, chaux et de la fumée de silice (FS) utilisés sont présentées dans le tableau III. 3.

Tableau III. 3. Compositions chimiques et les propriétés physiques du ciment utilisé.

Oxydes (%)	CaO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	MgO	SO ₃	K ₂ O	Na ₂ O	CaCO ₃	Loss	SSB(cm ² .g ⁻¹)	ρ (g.cm ⁻³)
Ciment	63,63	21,54	4,31	4,50	1,47	1,54	0,35	0,07	–	0,07	3981	3,15
FS	0,99	92,94	0,367	0,042	0,434	00	0,899	1,909	–	4,86	24000	2,20
Chaux	<83,3	<2,5	<1,5	<2	<0,5	<2,5	–	4,5 – 0,5	<10	–	–	–

5 Eau

L'eau utilisée pour la formulation des composites est une eau potable, maintenue à une température contrôlée de 20 ± 2 °C. Sa qualité est conforme aux exigences de la norme NF P 18-404, qui spécifie les critères de qualité des eaux destinées à la fabrication des bétons et mortiers.

6 Fibres de renfort

Cette étude utilise des fibres de Cyandon dactylon comme renfort. Ces fibres ont subi deux conditions distinctes : certaines ont été incorporées à l'état naturel, tandis que d'autres ont préalablement été traitées chimiquement, via une succession de bains de NaOH et de KMnO_4 , afin de modifier leurs propriétés de surface avant leur incorporation dans la matrice.

III. 2. 2. Formulation et fabrication du composite

L'argile naturelle a préalablement été tamisée à $100 \mu\text{m}$ et séchée à 65 ± 2 °C pendant 24 heures pour éliminer toute humidité résiduelle [299]. Différents pourcentages massiques de chaux vive (3%, 5 %, 7 %, 9 %, 12 %, 15% m/m) ont été incorporés afin de déterminer la teneur optimale pour la stabilisation, la résistance en compression constituant le critère d'évaluation principal. La teneur en eau du mélange a été déterminée par la formule (6) correspondant à la moyenne des limites d'Atterberg [300].

$$W(\%) = (W_l - W_p)/2 \quad (6)$$

Où,

W_l Limite de liquidité, et W_p limite de plasticité.

Le mélangeage initial des composants secs (argile et chaux) a été réalisé pendant 2 minutes, suivi de l'ajout d'eau et d'un malaxage manuel supplémentaire de 2 minutes jusqu'à l'obtention d'une pâte homogène.

Les mélanges ont été moulés manuellement dans des moules prismatiques ($4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$), séchés à l'air libre pendant 72 heures, puis démoulés et durcis pendant 7 jours à 65 °C en sacs plastiques hermétiques [301]. Une démarche similaire a ensuite été adoptée pour établir la proportion idéale de ciment dans le mélange argileux.

Pour la formulation composite, l'argile sèche a été mélangée avec 10 % de chaux vive et 5 % de fumée de silice. Les fibres, préalablement traitées au NaOH et KMnO_4 , ont été incorporées selon un protocole séquentiel : mélange initial des liants, ajout de l'eau de gâchage, incorporation des fibres et de l'argile, puis homogénéisation finale avec de la chaux pré-saturée. Trois éprouvettes ont été testées par formulation. Le tableau III. 4 présente la liste des abréviations des formulations utilisées dans ce travail.

Tableau III. 4. Liste des abréviations utilisées pour le composites.

Formulations	
AV	Argile verte + 12% Ciment+ 9% Chaux + 5% Fume de silice
AVFNT	AV + 3% Fibre de Cynodon non traité
AVFT2	AV + 3% Fibre de Cynodon traité NaOH 2 %
AVFT4	AV + 3% Fibre de Cynodon traité NaOH 4 %
AVFT6	AV + 3% Fibre de Cynodon traité NaOH 6%
AVFT8	AV + 3% Fibre de Cynodon traité NaOH 8%
AVFT801	AV + 3% Fibre de Cynodon traité NaOH 8 % et 0,1 % KMnO ₄
AVFT8025	AV + 3% Fibre de Cynodon traité NaOH 8 % et 0,25 % KMnO ₄

III. 3. Méthode des caractérisations

III. 3. 1. La diffraction des rayons X (DRX)

L'analyse par diffraction des rayons X permet d'obtenir des données sur la structure cristalline d'un matériau. Les poudres ont été analysées pour détecter les phases cristallines en utilisant un diffractomètre Brüker D8 ADVANCE, qui est fabriqué en Karlsruhe, Allemagne. En utilisant Rayonnement Cu-Ka ($\lambda = 1,5418 \text{ \AA}$). L'indice de cristallisation de la cellulose exprimé par la formule (7) [302].

$$CrI (\%) = \left(\frac{I_{002} - I_{am}}{I_{002}} \right) \times 100 \quad (7)$$

Où,

I_{002} L'intensité de cellulose.

I_{am} Indique l'intensité attribuée à la phase amorphe.

III. 3. 2. Fluorescence de rayon X

Les compositions chimiques des échantillons ont été déterminées par spectrométrie X-ray fluorescence type Bruker S8 TIGER 4 kW fabriquée en Karlsruhe, Allemagne.

III. 3. 3. Analyse thermogravimétrique

Le comportement thermique des échantillons (analyse thermogravimétrique ATG) a été réalisé à l'aide d'un analyseur TA-60 WS (Shimadzu Corp. ; Kyoto, Japon) avec une vitesse de chauffe de 10 °C/min. Les échantillons ont été examinés sous un flux d'azote (80 mL/min) sur une plage de température de 30 à 1000 °C.

III. 3. 4. Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF)

Les spectres infrarouges à transformée de Fourier (IRTF) ont été effectués à l'aide d'un appareil de type Shimadzu FTIR-8300 (Shimadzu Corp. ; Kyoto, Japon) dans la gamme des longueurs d'onde de 400 cm^{-1} à 4000 cm^{-1} .

III. 3. 4. Propriétés mécaniques

III. 3. 4. 1. Essais de compression

La caractérisation mécanique a été réalisée sur une presse automatique de compression (Automax 5, Italie) d'une capacité de 250 kN. Des éprouvettes de géométries variées (cubiques et prismatiques) ont été sollicitées en compression uniaxiale avec une vitesse de chargement constante de 0,05 kN/s. La déformation axiale a été mesurée à l'aide d'un capteur de déplacement de 20 mm de course. Conformément à la norme ASTM C39M-03, un facteur de correction de 0,87 a été appliqué pour tenir compte du rapport hauteur/diamètre non standard des éprouvettes. La résistance à la compression (R_c) a été selon la formule (8)

$$R_c = \left(\frac{F_{c \max}}{S} \right) \quad (8)$$

Où,

F_c , max la charge maximale (N).

S la surface transversale initiale de l'échantillon (mm^2).

III. 3. 4. 2. Essais de flexion

L'évaluation des propriétés mécaniques a été réalisée sur une machine de traction-compression Automax Multitest (fabriquée en Italie), d'une capacité de 100 kN. Conformément à la norme NF EN 196-1, des essais de flexion trois points ont été effectués sur des éprouvettes prismatiques de dimensions $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$, avec une vitesse de chargement constante de 0,5 mm/min. La résistance à la flexion σ_f , exprimée en MPa, est calculée par la formule (9) :

$$\sigma_f = \frac{3.F.L}{2.b.h^2} \quad (9)$$

Le module d'élasticité en flexion E_f , également en MPa, est obtenu par formule (10) :

$$E_f = \frac{F.L^3}{48.I\delta} \quad (10)$$

Où F représente la charge maximale appliquée (N), L la distance entre appuis (mm), b la largeur et h la hauteur de l'éprouvette (mm), I désigne le moment d'inertie de la section (mm^4) et δ la flèche mesurée au point d'application de la charge (mm). Ces deux grandeurs caractérisent respectivement la résistance et la rigidité du matériau sous sollicitation de flexion.

Conclusion

L'approche méthodologique adoptée dans ce chapitre repose sur une combinaison de techniques standardisées et de protocoles spécifiques adaptés aux matériaux biosourcés. La caractérisation multidimensionnelle (minéralogique, chimique, thermique, morphologique et mécanique) permet une compréhension holistique des matériaux étudiés. Les traitements appliqués aux fibres, ainsi que l'optimisation de la matrice (ciment, chaux, fumée de silice), ont été soigneusement documentés pour faciliter l'interprétation des performances mécaniques. Cette rigueur expérimentale constitue la pierre angulaire de l'analyse des résultats du Chapitre IV.

Chapitre IV :
Résultats et discussion

Introduction

Ce chapitre expose et interprète les résultats des analyses menées sur l'argile constitutive de la matrice, les fibres de *Cynodon dactylon*, traitées ou non, et les matériaux composites élaborés. La caractérisation quantitative initiale porte sur les propriétés physiques, chimiques et géotechniques de l'argile. Les fibres sont ensuite étudiées par des techniques de caractérisations avancées, incluant la diffraction des rayons X (DRX), la fluorescence X (FRX) pour l'analyse élémentaire, l'analyse thermogravimétrique (ATG) et la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (IRTF). La morphologie des fibres est approfondie par microscopie électronique à balayage (MEB). Par la suite, l'effet des traitements chimiques sur les performances mécaniques des composites est évalué via des essais de compression et de flexion. Cette démarche intégrée permet d'établir un lien entre les modifications structurales induites par les traitements et les propriétés mécaniques finales des matériaux composites.

IV .1. Paramètres physico-chimiques

IV. 1. 1. Paramètres physicochimiques

Le Tableau IV. 1 présente les caractéristiques physico-chimiques de l'échantillon d'argile étudié. La valeur du pH, égale à 7,84, indique un caractère légèrement basique, ce qui peut être attribué à la présence de sels solubles tels que les carbonates, les bicarbonates ou encore les silicates alcalins, fréquemment rencontrés dans les formations argileuses [303]. La teneur en humidité, mesurée à 1,52 %, est très faible, ce qui reflète un comportement peu hygroscopique et suggère une faible porosité accessible à l'eau à l'état ambiant [284,304]. La perte au feu (PAF), déterminée après calcination à 1100 °C, s'élève à 21,13 %. Cette valeur relativement élevée témoigne probablement de la décomposition thermique de minéraux carbonatés (comme la calcite) ainsi que de la déshydroxylation de phyllosilicates (notamment les minéraux argileux tels que la kaolinite ou la montmorillonite), phénomènes courants dans les argiles contenant des phases secondaires. Enfin, l'indice de gonflement, évalué à 3,22 %, permet, selon la classification de Holtz et al. [305], de classer cette argile comme faiblement gonflante. Cette faible expansion confirme la stabilité dimensionnelle du matériau en présence d'eau, un atout pour son utilisation dans les matériaux de construction.

Tableau IV. 1. Paramètres physico-chimique de l'argile.

Paramètre	pH	H (%)	Ig (%)	PAF
Argile verte	7.84	1.52	3.22	21.13

IV. 1. 2. Paramètres géotechniques de l'argile

Les caractéristiques de plasticité de l'argile étudiée ont été déterminées conformément aux essais normalisés d'Atterberg. La limite de liquidité (W_L) est de 24,85 %, la limite de plasticité (W_P) de 18,55 %, ce qui donne un indice de plasticité de 6,3 %. Selon la classification géotechnique d'Atterberg, un indice de plasticité inférieur à 7 % caractérise une argile très faiblement plastique, souvent classée comme sable argileux [306–308].

Cette faible plasticité peut être attribuée à la nature minéralogique de la fraction argileuse. En effet, les minéraux argileux tels que la kaolinite, l'illite et surtout la smectite présentent des comportements plastiques très contrastés en raison de leurs différences structurales et de leur capacité d'échange cationique [309]. La faible teneur en smectite dans notre échantillon expliquerait probablement cette valeur réduite d'IP. Par ailleurs, la littérature indique que les argiles dont l'indice de plasticité est inférieur à 10 % sont généralement peu adaptées à la fabrication céramique, car leur faible cohésion et leur faible retrait contrôlé augmentent le risque de fissuration pendant le séchage ou la mise en forme [310,311].

Le tableau IV.2 récapitule l'ensemble des paramètres géotechniques obtenus pour les échantillons d'argile étudiés.

Tableau IV. 2. Paramètres géotechniques de l' argile.

Paramètres	Plasticité	Liquidité	Indice de plasticité
Argile verte	18.55	24.85	6,3

IV. 1. 3. Granulométrie par laser

Le tableau IV.3 présente la distribution granulométrique cumulée de notre échantillon (voir figure IV.1). Les résultats montrent que 10 % des particules d'argile verte ont un diamètre inférieur à 0,89 μm (D10), témoignant de la présence de particules très fines. La valeur médiane (D50) est de 6,28 μm , indiquant que la moitié des particules ont un diamètre inférieur à cette taille. Par ailleurs, 90 % des particules mesurent moins de 40,6 μm (D90), ce qui traduit une distribution granulométrique relativement étendue. La surface spécifique, évaluée à 0,8371 m^2/g , est élevée, caractéristique typique des argiles, et reflète une grande surface de contact potentielle pour les réactions physico-chimiques. Cette granulométrie fine associée à une surface spécifique importante contribue favorablement aux propriétés de liaison et à la réactivité de l'argile lorsqu'elle est utilisée dans des matériaux composites.

Tableau IV. 3. Distribution granulométrie.

	D10 μm	D50 μm	D90 μm	surface spécifique $\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$
Argile verte	0.89	6.28	40.6	0.8371

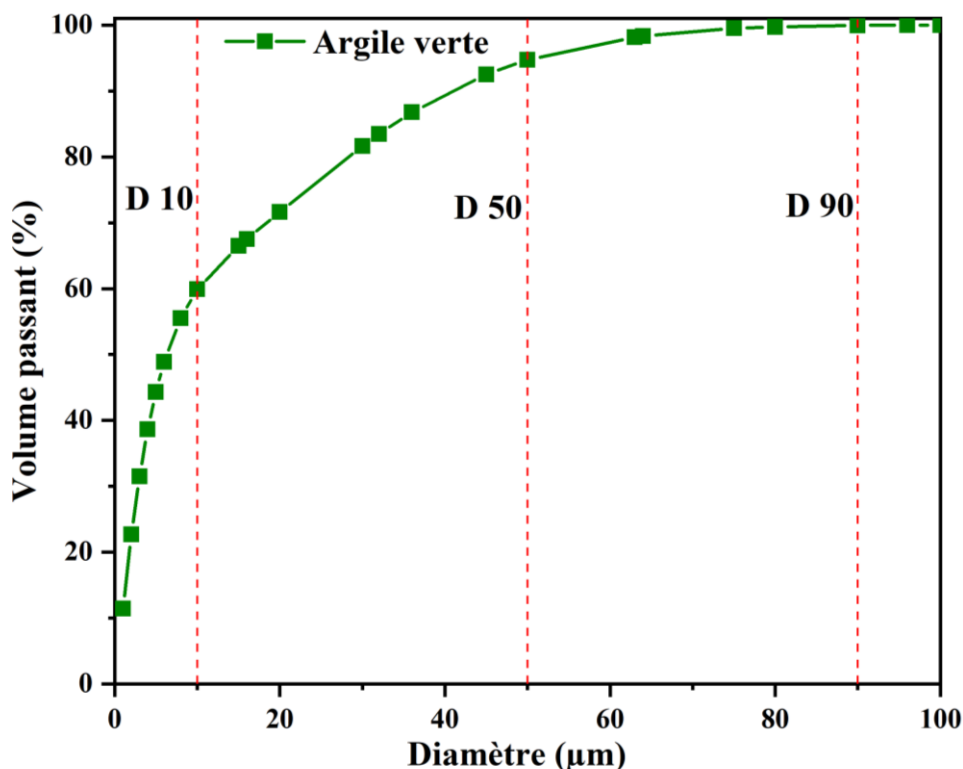


Figure IV. 1. Analyses granulométrique de l' argile.

IV. 1. 3. Diffraction des rayons X

L'analyse du diffractogramme des rayons X (Figure IV. 2) révèle la présence de deux phases minéralogiques majeures : le quartz (SiO_2) et la calcite (CaCO_3). Ces composés se manifestent par des pics de diffraction intenses et bien définis, caractéristiques de leurs structures cristallines respectives. Cette dualité minéralogique confirme le caractère hétérogène de l'échantillon étudié. Selon les résultats quantitatifs issus de la diffraction des rayons X (Tableau IV. 4), la fraction fine de l'argile contient 38,76 % de calcite et 29,42 % de quartz, qui constituent ainsi les principales impuretés non argileuses présentes dans le matériau. Ces données corroborent les observations antérieures, notamment celles relatives à la perte au feu élevée et au pH légèrement basique, tous deux indicatifs d'une forte teneur en carbonates. La présence significative de SiO_2 sous forme de quartz renforce également l'hypothèse d'une matrice argileuse diluée par des minéraux détritiques siliceux.

Tableau IV. 4. Compositions minéralogiques.

	Calcite	Dolomite	Sidérite	Ankérite	Magnésite	Quartz	Pyrite	Illite	Kaolinite	Albite	Anorthite	K-Feldspar	CO ₂ _DRX
Argile verte	38,67	0	0	0	0,29	29,38	0,2	25,06	3,01	0,93	0,12	2,33	17,16

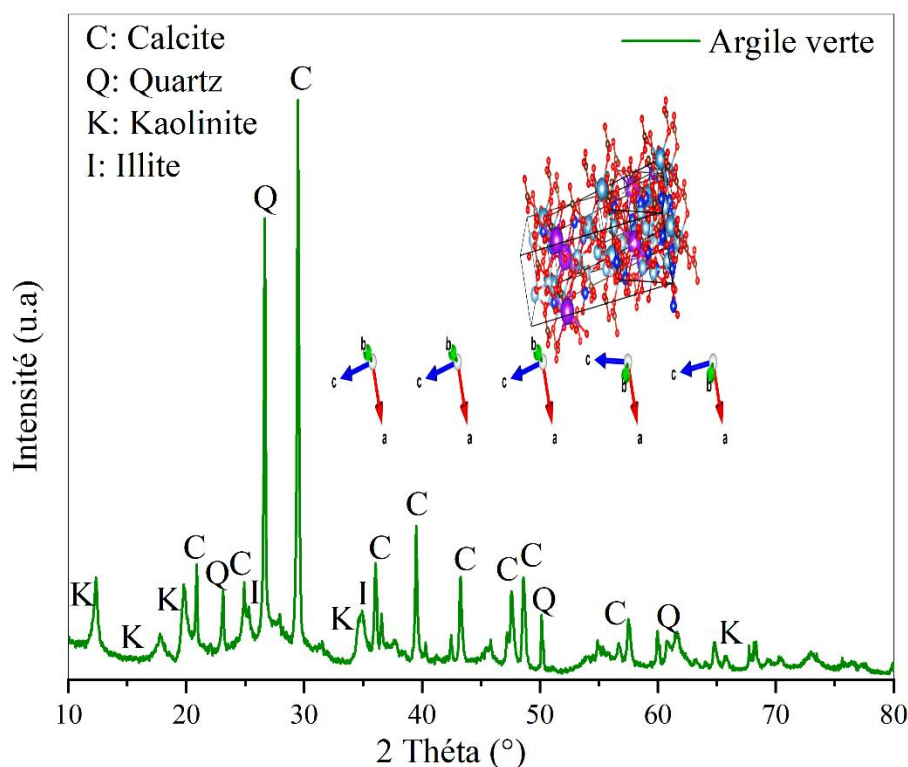


Figure IV. 2. Diffractogramme des rayons X.

IV. 1. 4. Compositions chimiques

Le Tableau IV.5 présente les résultats de l'analyse chimique élémentaire (par fluorescence X) de l'échantillon d'argile. L'interprétation de ces données montre que les oxydes majeurs sont la silice (SiO_2) et l'alumine (Al_2O_3), avec des teneurs respectives de 40,43 % et 15,43 %. Cette prédominance confirme le caractère aluminosilicaté du matériau [312,313]. Par ailleurs, la teneur élevée en oxyde de calcium ($\text{CaO} = 13,53$ %) suggère une forte présence de carbonate de calcium (calcite, CaCO_3), cohérente avec les résultats de la diffraction X et le pH légèrement basique observés précédemment. Le rapport massique $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$, égal à 0,38, est relativement faible. Bien que ce rapport soit parfois utilisé de manière empirique pour estimer la perméabilité ou la compacité d'un matériau argileux, il convient de noter qu'il ne constitue pas un indicateur direct de la perméabilité à l'eau. Cependant, sa faible valeur peut être corrélée à la faible teneur en eau à l'état naturel ($H = 1,52$ %) [314,315], qui reflète probablement une porosité réduite et une faible hygroscopicité. Le rapport molaire $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$, calculé à partir des teneurs massiques, est de 2,62. Cette valeur, légèrement inférieure à celle typiquement observée pour les bentonites (environ 2,7) [316], indique une faible substitution isomorphique de Si^{4+} par Al^{3+} dans les feuillets tétraédriques, et suggère la présence d'une proportion non négligeable de quartz (SiO_2) en tant que phase non argileuse, comme confirmé par la DRX. Enfin, la somme des autres oxydes notamment Fe_2O_3 , MgO , K_2O et Na_2O atteint 10,53 %, ce qui confirme que l'argile étudiée n'est pas pure, mais contient des minéraux accessoires ou des impuretés

détritiques [317,318]. Notons que la notation « NaO » dans les données brutes devrait être corrigée en Na₂O, conformément à la nomenclature standard des oxydes en chimie des matériaux.

Tableau IV. 5. Compositions chimiques.

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	P ₂ O ₅	K ₂ O	Na ₂ O	TiO ₂	Mn ₂ O ₃	SrO ₂	ZnO	Cr ₂ O ₃	LOSS
Argile verte	40,43	15,432	5,194	13,531	2,388	0,132	0,111	2,76	0,188	0,768	0,044	0,051	0,012	0,014	18,83

IV. 1. 5. Analyses thermogravimétriques

Le courbe d'analyse thermogravimétrique (ATG) de l'argile verte est présentée dans la figure IV.3. L'interprétation de ce thermogramme révèle plusieurs étapes de perte massique, attribuables à des phénomènes physico-chimiques distincts. Une première perte de masse, de l'ordre de 2,3 %, est observée entre 30 °C et 100 °C. Elle est attribuée à l'élimination de l'eau hygroscopique adsorbée à la surface des particules [319]. Entre 200 °C et 700 °C, une seconde diminution de masse, évaluée à 4,75 %, est principalement liée à la désorption de l'eau interfeuillet ainsi qu'à l'expulsion de l'eau capillaire résiduelle [320]. Dans la plage 300–500 °C, une légère décroissance supplémentaire peut être associée à la décomposition de la matière organique résiduelle. Cependant, la déshydroxylation de la kaolinite, qui conduit à la formation de métakaolinite, se produit typiquement entre 500 °C et 600 °C, et non entre 300 °C et 500 °C [304,321–324]. Cette réaction endothermique irréversible représente une perte massique significative, correspondant à l'élimination des groupements hydroxyles structuraux. Enfin, une quatrième perte de masse, de 0,36 %, est détectée entre 700 °C et 900 °C. Elle est attribuée à la déshydroxylation tardive de l'illite et, éventuellement, au début de la décomposition des carbonates résiduels. La transformation de l'illite à haute température peut conduire à la formation de phases comme la spinelle ou la mullite, bien que ces minéraux ne soient généralement stables qu'au-delà de 950–1000 °C [322,323,325,326]. Il est donc peu probable que ces phases soient déjà présentes à 900 °C ; la perte observée reflète plutôt la fin des réactions de déshydroxylation. Sur l'ensemble de la gamme étudiée (jusqu'à 900 °C), la perte massique totale s'élève à 20,11 %, ce qui témoigne de différences notables dans leur teneur en eau structurale, en matière organique et en minéraux hydratés. Le tableau IV. 6 présente l'analyse thermogravimétrique de l'argile.

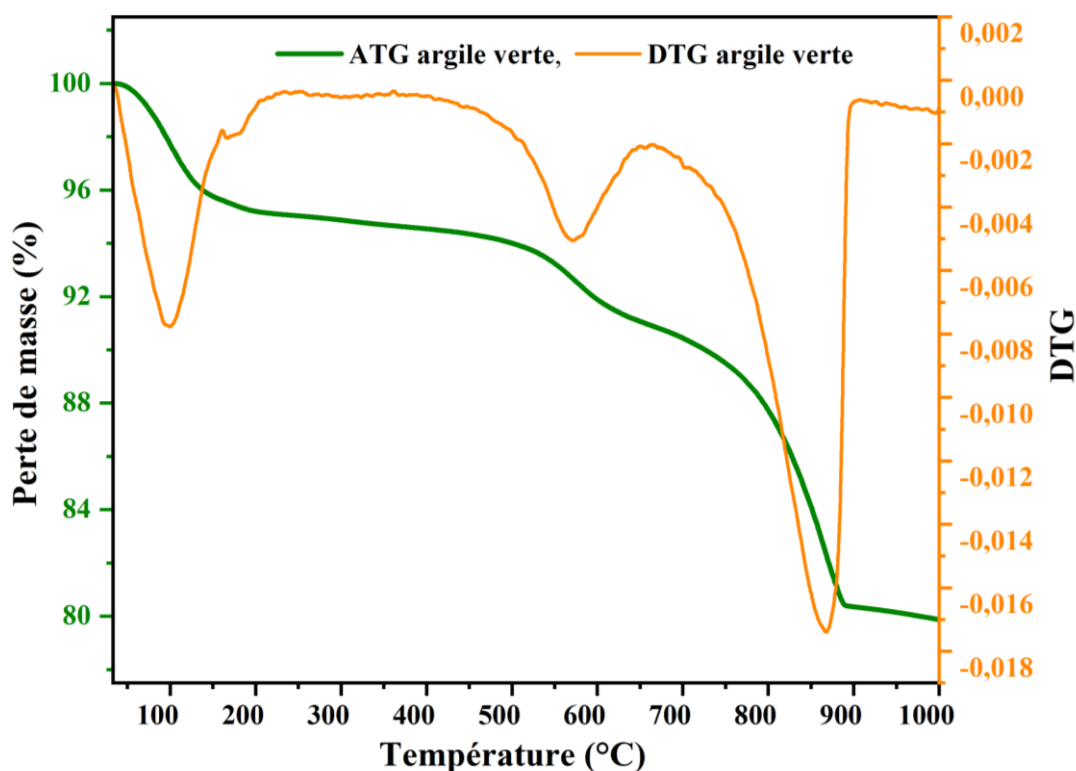


Figure IV. 3. Thermogramme de l'argile.

Tableau IV. 6. L'analyse thermogravimétrique de l' argile.

Température (°C)	Argile verte	Observations
30-100	2,3 %	Perte d'eau hygroscopique
200-700	4.75 %	Déshydroxylation de la kaolinite
700-900	10.36 %	Formation de mullite ou la Spinelle [322,323,325,326]

IV. 1. 6. Analyse par spectroscopie infrarouge

Le spectre infrarouge à transformée de Fourier (IRTF) de l'échantillon d'argile, présenté dans la figure IV. 4, révèle plusieurs bandes d'absorption caractéristiques des groupements fonctionnels présents dans les phases minéralogiques constitutives. Une large bande située dans la région $3200-3700\text{ cm}^{-1}$ est attribuée aux vibrations d'élongation des groupements hydroxyles (-OH). Plus précisément, les pics observés à 3620 cm^{-1} et 3417 cm^{-1} correspondent respectivement aux -OH structuraux de la kaolinite et à l'eau adsorbée ou interfeuillet [327]. La présence d'un pic à 1800 cm^{-1} , dans la région $1790-1815\text{ cm}^{-1}$, est attribuée aux vibrations d'élongation de la liaison C=O, probablement issues de composés carbonatés ou de matière organique résiduelle [328]. Le pic à 1440 cm^{-1} est quant à lui associé aux vibrations de déformation des groupes -CH₃, ce qui suggère une faible teneur en matière organique [329]. La bande intense située à 1024 cm^{-1} correspond aux vibrations d'élongation asymétrique des liaisons Si-O-Si, communes à la fois au quartz et à la kaolinite [324]. Les bandes observées à

780 cm^{-1} , 712 cm^{-1} et 470 cm^{-1} sont caractéristiques des vibrations de déformation des liaisons Si-O du quartz [330]. En particulier, le pic à 780 cm^{-1} est attribué aux vibrations de déformation symétrique O-Si-O [317]. Par ailleurs, les bandes situées autour de 877 cm^{-1} et 712 cm^{-1} sont typiques des vibrations de déformation (valence) du groupe carbonate (CO_3^{2-}), confirmant la présence de calcite (CaCO_3) [331]. Enfin, le pic à 798 cm^{-1} peut être attribué aux vibrations de déformation des liaisons Si-O-Al, fréquemment observées dans les phyllosilicates comme la kaolinite ou l'illite [332,333]. L'ensemble de ces signatures spectrales confirme la nature hétérogène du matériau, composé d'argile kaolinique, de quartz, de calcite et de traces de matière organique, en accord avec les résultats de la diffraction X et de l'analyse chimique.

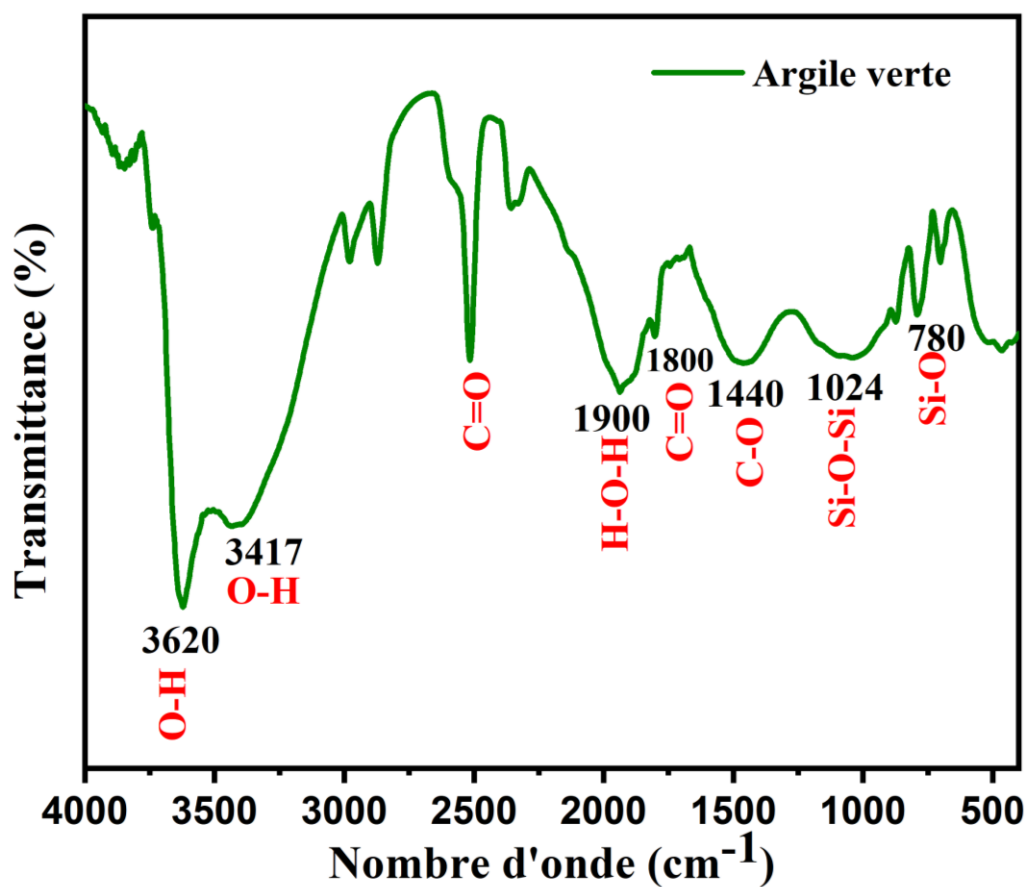


Figure IV. 4. Spectre infrarouge de l'argile étudiée.

IV. 1. 7. Microscopie électronique à balayage (MEB)

La microscopie électronique à balayage (MEB) permet d'observer la morphologie de surface et la texture de l'échantillon de l'argile, ainsi que d'identifier les assemblages minéralogiques à différentes échelles. Les micrographies obtenues à des agrandissements variés sont présentées dans les figure. IV.5.

L'analyse conjointe des images MEB et des résultats de diffraction des rayons X (DRX) confirme la présence de calcite (CaCO_3) et de quartz (SiO_2) dans l'échantillon. La calcite apparaît sous la forme d'agrégats polyédriques bien définis, de teinte claire sur les images en

électrons rétrodiffusés, tandis que le quartz se distingue par des grains anguleux ou subanguleux de petite taille, typiques des minéraux détritiques.

L'analyse élémentaire locale par spectrométrie de dispersion en énergie des rayons X (EDX), couplée à la microscopie électronique à balayage (MEB), permet d'identifier la composition chimique des différentes phases minéralogiques observées sur les micrographies. Les spectres EDX obtenus sur plusieurs zones de l'échantillon argileux révèlent une distribution hétérogène des éléments, cohérente avec les résultats de la DRX et de l'analyse chimique globale. Dans la L'argile verte (figure IV.5), l'oxygène (O) domine en masse (53,84 %) et en atomes (69,26 %), ce qui est attendu dans un matériau oxydé. La présence significative de silicium (Si : 25,51 % en masse) et de calcium (Ca : 14,41 % en masse) confirme la coexistence de quartz (SiO_2) et de calcite (CaCO_3), comme identifiés précédemment. Le magnésium (Mg : 2,30 %) et le potassium (K : 2,82 %) sont présents en traces, suggérant la présence de minéraux accessoires tels que l'illite ou la smectite. Un faible signal de fluor (F : 1,12 %) pourrait indiquer la présence de minéraux fluorés ou d'impuretés exogènes.

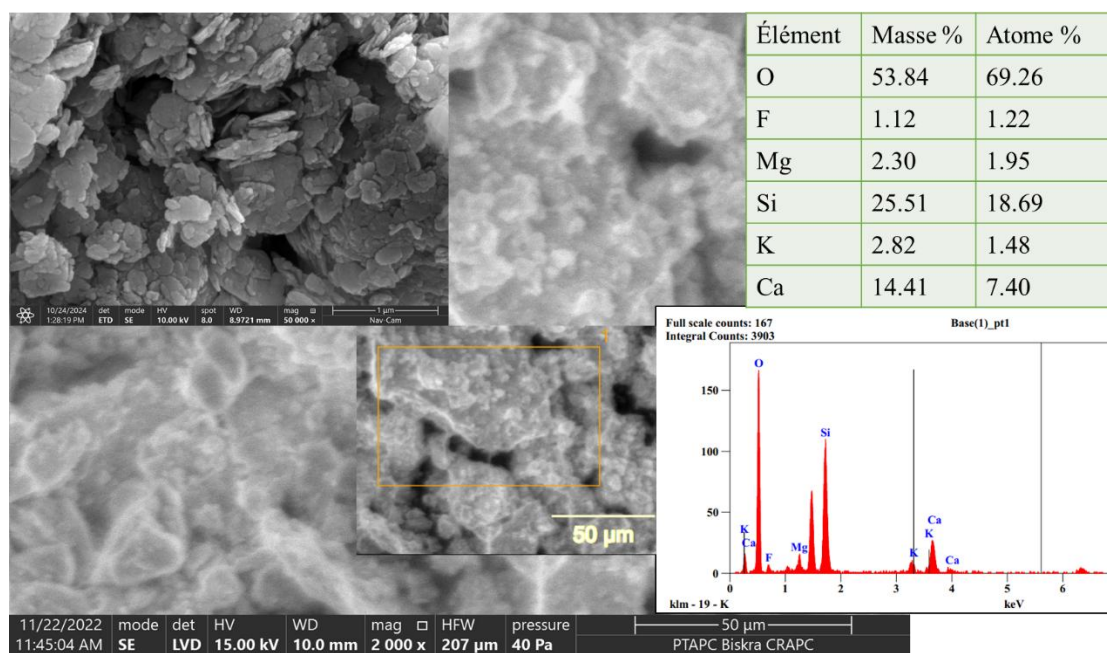


Figure IV. 5. Micrographie SEM et spectre EDS de l'argile verte.

Ces résultats EDX, combinés aux observations morphologiques de la MEB, valident la nature hétérogène de l'échantillon, composé principalement de carbonates (calcite) et de silicates (quartz, phyllosilicates). La variabilité des rapports Ca/Si entre les zones reflète la distribution non uniforme de ces phases, ce qui explique les valeurs moyennes élevées en CaO et SiO_2 obtenues en analyse chimique globale. L'absence d'aluminium (Al) détectable dans cette mesure peut être due à la faible profondeur d'analyse de l'EDX ou à la localisation de l'alumine dans des zones non analysées, notamment dans les feuilletts argileux (kaolinite, illite).

Bien que l'EDX ne permette pas d'identifier directement les phases cristallines, les proportions relatives des éléments sont cohérentes avec les minéraux identifiés par DRX, FRX et IRTF.

IV .2. Caractérisations de fibre de Cynodon

IV. 2. 1. Composition chimique de la fibre de Cynodon

L'analyse chimique des fibres extraites de Cynodon dactylon, réalisée par méthode de Kalson, révèle une composition structurale comprenant 30,88 % de cellulose, 23,84 % d'hémicelluloses et 18,64 % de lignine, totalisant ainsi une matière organique structurante d'environ 73,36 %. La densité apparente faible, évaluée à $0,9 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ via la méthode de pycnométrie à déplacement d'air, atteste d'une morphologie poreuse et d'une faible masse volumique, caractéristiques intrinsèques des fibres lignocellulosiques non ligneuses. Ces propriétés physico-chimiques, associant une teneur élevée en polysaccharides structuraux et une faible densité, confèrent à ces fibres un potentiel optimal en tant que renforts biosourcés pour des composites à matrice minérale, notamment à base d'argile, de chaux ou de ciment. Leur incorporation permet non seulement d'améliorer la résistance mécanique et la ténacité des matériaux composites grâce à une meilleure distribution des contraintes et à l'interaction fibre/matrice, mais aussi de réduire l'empreinte environnementale du matériau final par l'utilisation de ressources renouvelables.

IV. 2. 2. L'effet de traitement alcalin sur la morphologie de fibre de Cynodon dactylon

IV. 2. 2. 1. Diffraction des rayons X

La figure IV. 6 présente les diffractogrammes obtenus pour les fibres de Cynodon dactylon à l'état naturel et après traitement alcalin. Les indices de cristallinité (CrI), reportés dans le Tableau 2, mettent en évidence une augmentation significative de la cristallinité après traitement, atteignant une valeur maximale de 70,8 % pour l'échantillon CDA8. Cette amélioration progressive (CDA2 < CDA4 < CDA6 < CDA8) résulte principalement de l'élimination des constituants amorphes (lignine, pectines, hémicelluloses), conduisant à une compaction accrue des microfibrilles de cellulose et à une relaxation des contraintes internes [334,335]. L'élimination de ces composants amorphes expose également la structure fibrillaire interne et accroît la rugosité superficielle des fibres [161]. Dans le contexte d'une utilisation comme renfort dans les composites, cette modification morphologique favorise l'ancrage mécanique avec la matrice polymère, améliorant ainsi la cohésion interfaciale [1,5,203]. Les valeurs de CrI obtenues pour CDA6 et CDA8 sont comparables à celles rapportées pour d'autres fibres naturelles telles que l'herbe à éléphant (62,4 %), le lin (70 %) ou le sisal (75 %) [336,337]. Cette similarité suggère que les fibres de Cynodon dactylon présentent un potentiel prometteur en tant que renfort pour composites à matrice thermodurcissable, avec des performances mécaniques potentiellement améliorées grâce à une adhésion interfaciale optimisée [202].

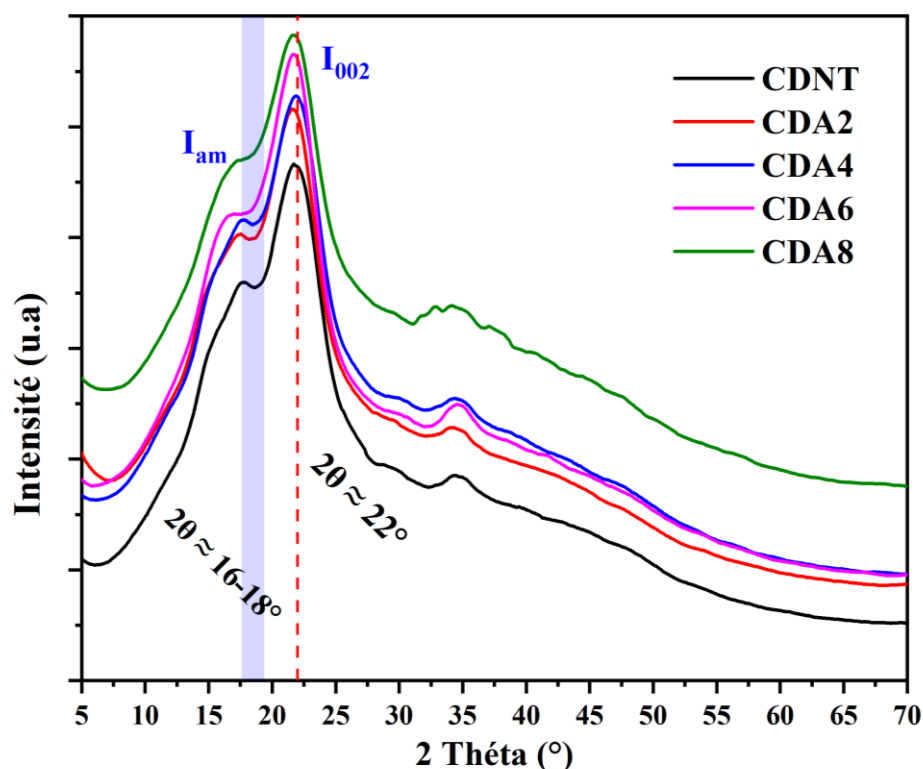


Figure IV. 6. Diffractogrammes des fibres de Cynodon dactylon non traitées et traitées au NaOH.

Tableau IV. 7. Indice de cristallinité (CrI) des fibres de Cynodon dactylon non traitées et traitées par NaOH.

Fibre	I_{002}	I_{am}	CrI(%)
CDNT	440.23	326.56	25.82
CDA2	1765.32	1079.15	38.87
CDA4	580.94	309.82	46.67
CDA6	859.50	268.72	68.73
CDA8	901.98	196.54	78.21

IV. 2. 2. 2. Analyses thermogravimétrique

L'analyse thermogravimétrique des fibres de Cynodon dactylon traitées à différentes concentrations de NaOH révèle quatre étapes de dégradation thermique (Figure IV. 7). La première phase (ambiante-190°C) correspond à l'évaporation de l'humidité résiduelle, avec une perte massique d'environ 9,03 % commune à tous les échantillons. La décomposition des hémicelluloses et de la cellulose amorphe intervient entre 200-300°C, suivie par la dégradation de la cellulose cristalline à 300-400°C. La lignine, de par sa structure complexe, se décompose progressivement au-delà de 400°C [338]. L'analyse démontre que le traitement alcalin, en éliminant progressivement la lignine, réduit la stabilité thermique des fibres tout en homogénéisant leur comportement thermique [339,340].

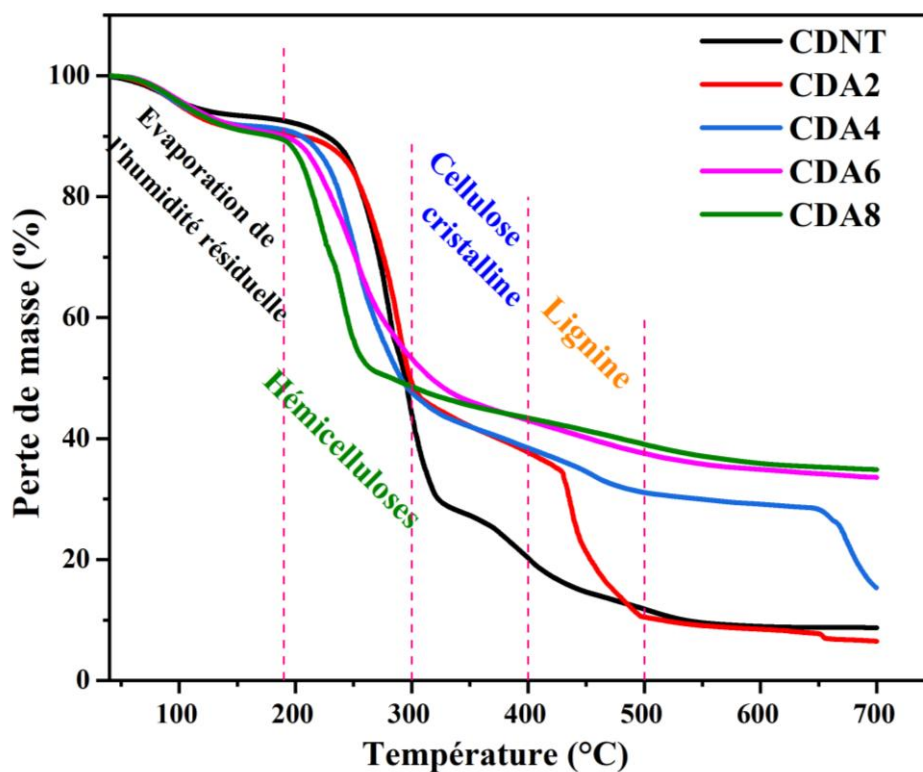


Figure IV. 7. Thermogramme des fibres de Cynodon dactylon non traité et traité par NaOH.

IV. 2. 2. 3. Analyse par spectroscopie infrarouge

La spectroscopie IRTF a permis d'identifier les groupes fonctionnels et les constituants majeurs des fibres de Cynodon dactylon avant et après traitement alcalin (figure IV. 13). La large bande observée autour de 3390 cm^{-1} est caractéristique des groupements hydroxyle (O-H) de la cellulose et des hémicelluloses [341]. Une bande d'absorption entre 2900 et 2850 cm^{-1} correspond aux vibrations d'élongation symétrique et asymétrique des liaisons C-H des chaînes alkyles de la cellulose [342,343]. Les bandes à 1630 cm^{-1} (liaison C=C) et 1370 cm^{-1} (liaison C-O) sont attribuables aux groupements acétyle de la lignine. La diminution d'intensité de ces pics dans les spectres des fibres traitées (CDA2 à CDA8) témoigne de l'élimination partielle de la lignine et des hémicelluloses. Par ailleurs, la réduction du pic à 1050 cm^{-1} (vibration C-O des hémicelluloses) confirme l'efficacité du traitement alcalin à éliminer les composants amorphes [344].

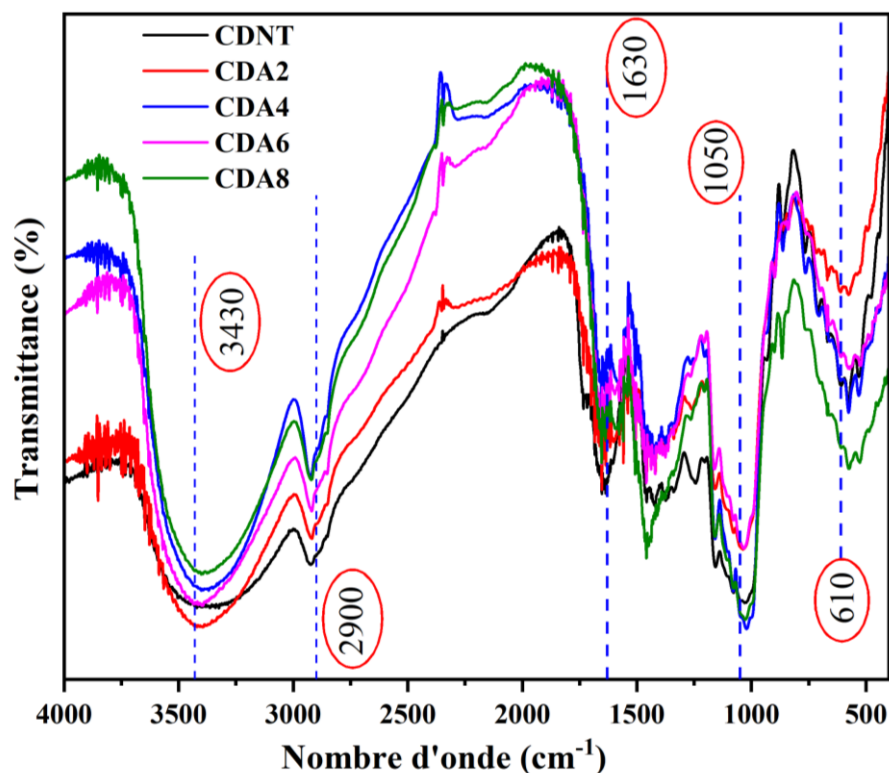


Figure IV. 8. Spectres infrarouges des fibres de Cynodon dactylon non traité et traitées par NaOH.

IV. 2. 3. L'effet de traitement au permanganate sur la morphologie de fibre de Cynodon dactylon

IV. 2. 3. 1. Diffraction des rayons X

Le diffractogramme de diffraction des rayons X (XRD) des fibres de Cynodon dactylon (Voir figure IV. 9), qu'elles soient non traitées (CDNT) ou soumises à des traitements chimiques (CDA8, CDA8K1, CDA8K25), révèle des informations significatives sur leur structure cristalline et l'impact des modifications chimiques. Les pics observés autour de $2\theta \approx 22^\circ$ correspondent aux plans cristallins (I_{002}) caractéristiques de la cellulose, tandis que la zone amorphe (I_{am}), située vers $2\theta \approx 16-18^\circ$, traduit la présence de composés non cristallins tels que la lignine et l'hémicellulose. Les fibres non traitées affichent une cristallinité modérée, suggérant une structure relativement désordonnée. Après traitement alcalin à 8 % de NaOH (CDA8), on note une augmentation notable de l'intensité du pic I_{002} accompagnée d'une diminution relative de la zone amorphe, indiquant l'élimination partielle des composants amorphes et une reconfiguration structurale favorisant une cristallinité accrue [345,346]. L'application d'un traitement oxydant supplémentaire au $KMnO_4$ (CDA8K1 et CDA8K25) intensifie davantage ces effets, notamment pour CDA8K1, où la cristallinité atteint son maximum à 78,21 %. Ce phénomène reflète une purification plus poussée des fibres par élimination des impuretés et une restructuration de la cellulose en microfibrilles plus

ordonnées[347–349]. Cette augmentation de la cristallinité est corrélée dans la littérature à une amélioration des propriétés mécaniques des fibres et à une meilleure adhésion au sein des composites à matrice polymère ou cimentaire [350]. Par ailleurs, la réduction de l'intensité du pic amorphe confirme la diminution des phases non cristallines, renforçant la cohérence structurale des fibres modifiées. Ces résultats attestent que les traitements chimiques combinés alcalins et oxydants modifient efficacement la microstructure cristalline des fibres de Cynodon dactylon, contribuant ainsi à leur potentiel d'amélioration dans les matériaux composites durables [351].

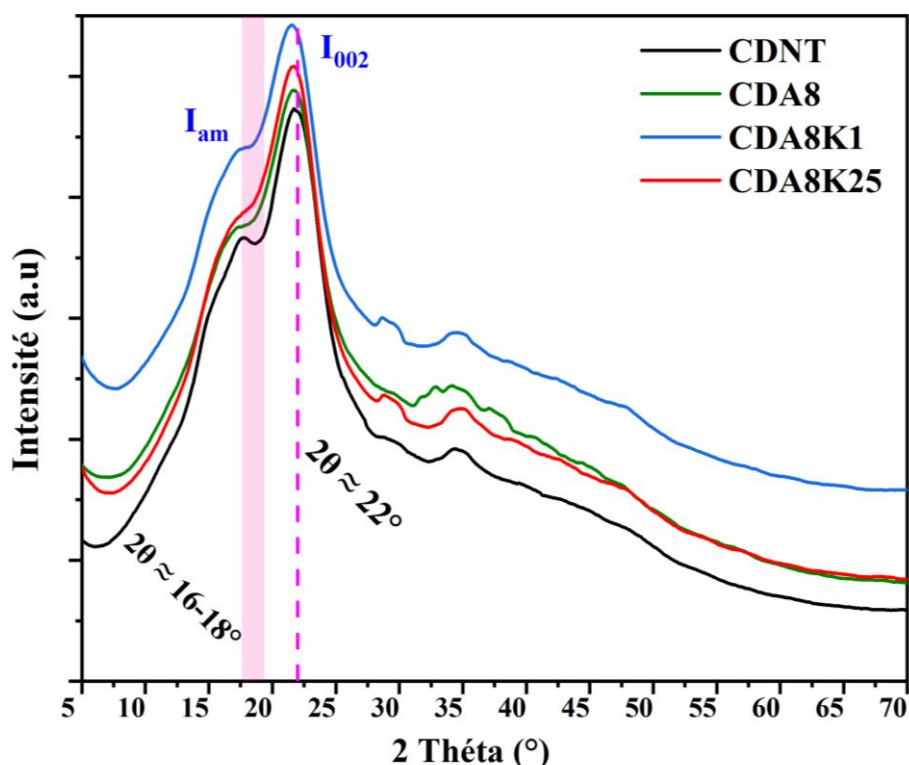


Figure IV. 9. Diffractogramme des fibres de Cynodon dactylon traitées.

IV. 2. 3. 2. Analyses thermogravimétrique

Le diagramme d'analyse thermogravimétrique (ATG) (Figure IV.10), présente la perte de masse des fibres de Cynodon dactylon en fonction de la température, permettant d'évaluer l'effet des traitements chimiques sur leur stabilité thermique. Les fibres non traitées (CDNT) montrent une dégradation progressive débutant vers 200 °C, avec une perte de masse importante jusqu'à environ 400 °C, suivie d'une masse résiduelle faible autour de 10 à 15 %, ce qui correspond à la décomposition des composants organiques naturels. En revanche, les fibres traitées avec 8 % de NaOH (CDA8) présentent une dégradation plus étalée dans le temps et une masse résiduelle significativement plus élevée (~35 %), témoignant d'une augmentation de la fraction inorganique, probablement due à l'élimination partielle des substances organiques thermiquement fragiles [352,353]. Lorsque les fibres subissent un traitement combiné alcalin

et oxydant (CDA8K1 et CDA8K25), la dégradation thermique devient plus nette et rapide à partir de 250-300 °C, avec une masse résiduelle finale réduite à environ 10 %, proche de celle des fibres non traitées [338–340]. Cette évolution suggère que le traitement oxydant améliore la pureté et homogénéise la structure chimique des fibres, rendant leur décomposition plus complète malgré une stabilité thermique apparente moindre. En somme, le traitement alcalin modifie la composition des fibres en augmentant les résidus minéraux, tandis que l'association avec un traitement oxydant affine cette modification, conduisant à une meilleure homogénéité et à une dégradation plus définie. Ces transformations thermiques indiquent des changements structuraux importants qui peuvent favoriser une meilleure adhésion fibre-matrice dans les composites, améliorant ainsi les performances mécaniques globales des matériaux étudiés [161,354].

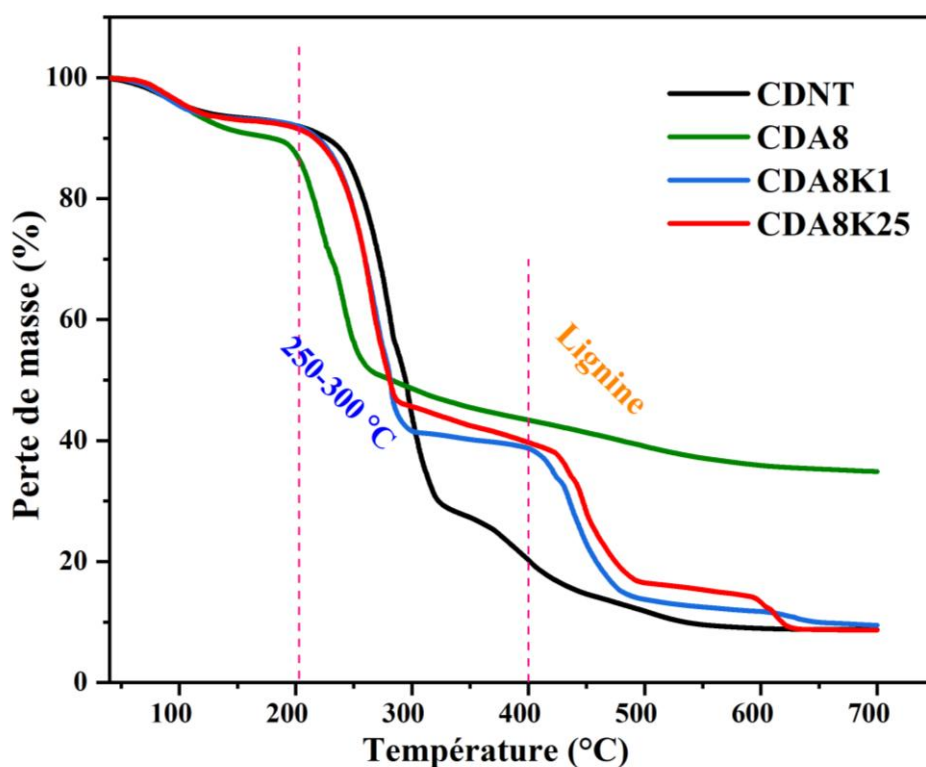


Figure IV. 10. Thermogramme des fibres de Cynodon dactylon traités.

IV. 2. 3. 3. Analyse par spectroscopie infrarouge

D'après le spectre IR présenté (Figure IV. 11), les fibres non traitées (CDNT) montrent des pics caractéristiques de la lignocellulose à 3400 cm^{-1} (groupes hydroxyle), 2920 cm^{-1} (liaisons C-H aliphatiques), 1735 cm^{-1} (groupes carbonyle des esters), et une région intense entre $1200\text{-}1000\text{ cm}^{-1}$ correspondant aux liaisons C-O de la cellulose. Le traitement alcalin (CDA8) provoque une réduction notable du pic à 1735 cm^{-1} [343,355], indiquant l'élimination partielle de l'hémicellulose et des cires de surface, tandis que l'intensité des pics à 1030 cm^{-1} augmente, révélant une exposition accrue de la cellulose cristalline. L'ajout de KMnO_4 à 0.1% (CDA8K1)

accentue ces modifications en diminuant davantage l'intensité de la bande OH à 3400 cm^{-1} par oxydation des groupes hydroxyle, créant ainsi des groupes carbonyle et carboxyle qui améliorent la réactivité de surface. Avec une concentration plus élevée de permanganate à 0.25% (CDA8K25), on observe une oxydation plus prononcée avec une réduction maximale des pics à 3400 cm^{-1} et 1735 cm^{-1} , accompagnée d'une modification de la structure cristalline visible par les changements dans la région $1200\text{-}800\text{ cm}^{-1}$. Ces traitements successifs transforment progressivement la chimie de surface des fibres, augmentant leur polarité et leur rugosité, ce qui favorise une meilleure compatibilité interfaciale dans les matériaux composites. L'efficacité du traitement combiné NaOH-KMnO₄ se manifeste clairement par l'intensification des pics cellulosiques et la disparition des composants amorphes indésirables [356,357].

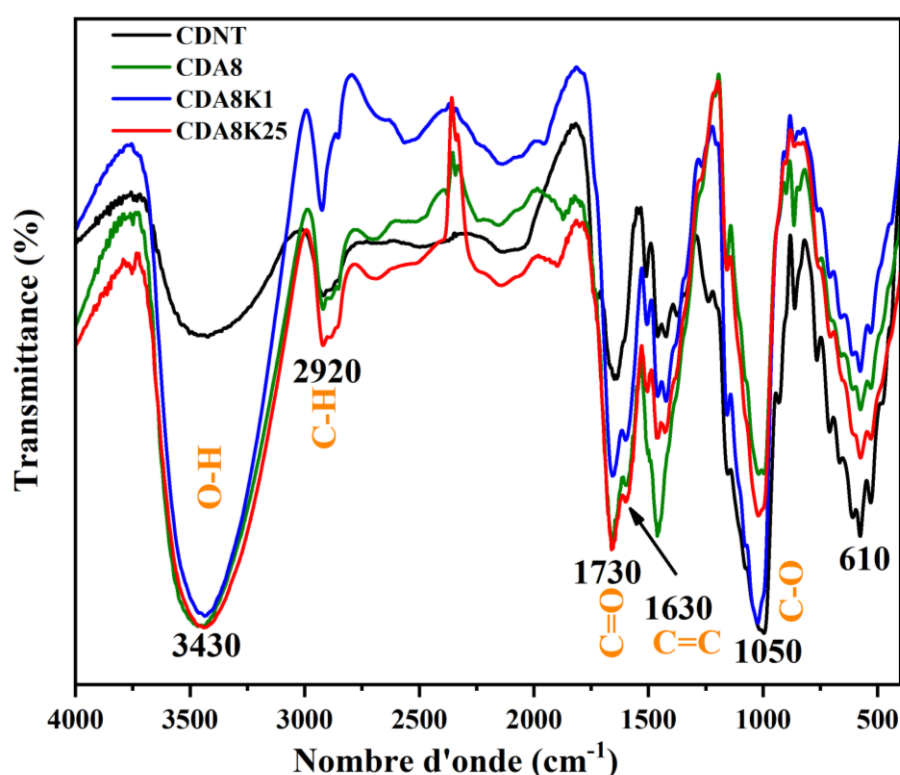


Figure IV. 11. Spectres infrarouges des fibres de Cynodon dactylon non traité et traitées par KMnO₄.

IV. 2. 4. Analyse MEB-EDX des fibres de Cynodon dactylon

La figure IV. 12 présente les micrographies obtenues par microscopie électronique à balayage (MEB) des fibres de Cynodon dactylon après traitement alcalin avec des solutions de NaOH à 2 %, 4 %, 6 % et 8 % (m/v), ainsi qu'un traitement combiné NaOH + KMnO₄ (0,1 % et 0,25 %). L'examen des images révèle une modification progressive de la morphologie de surface en fonction de la concentration en NaOH [356].

À faible concentration 2 % et 4 % (Figure. IV. 12 (b et c)), certaines impuretés telles que les cires, les huiles, les hémicelluloses, la lignine et autres composés non cellulosiques demeurent

visibles à la surface des fibres. En revanche, les fibres traitées à 6 % et 8 % de NaOH (figures 12d et 12e) présentent une surface nettement plus propre, avec une absence quasi totale de dépôts superficiels et une meilleure exposition des fibrilles individuelles. Cette évolution est attribuée à la solubilisation progressive des composants non cellulose dans la solution alcaline, conformément aux mécanismes rapportés dans la littérature [358]. En effet, la réaction d'alkalisation s'intensifie avec la concentration en NaOH, ce qui favorise l'élimination des matrices amorphes entourant la cellulose cristalline. De plus, le traitement alcalin induit une rugosité accrue de la surface fibreuse, en raison de l'ouverture de la structure et de la création de micro-cavités, ce qui améliore l'adhésion mécanique avec la matrice minérale [359–361].

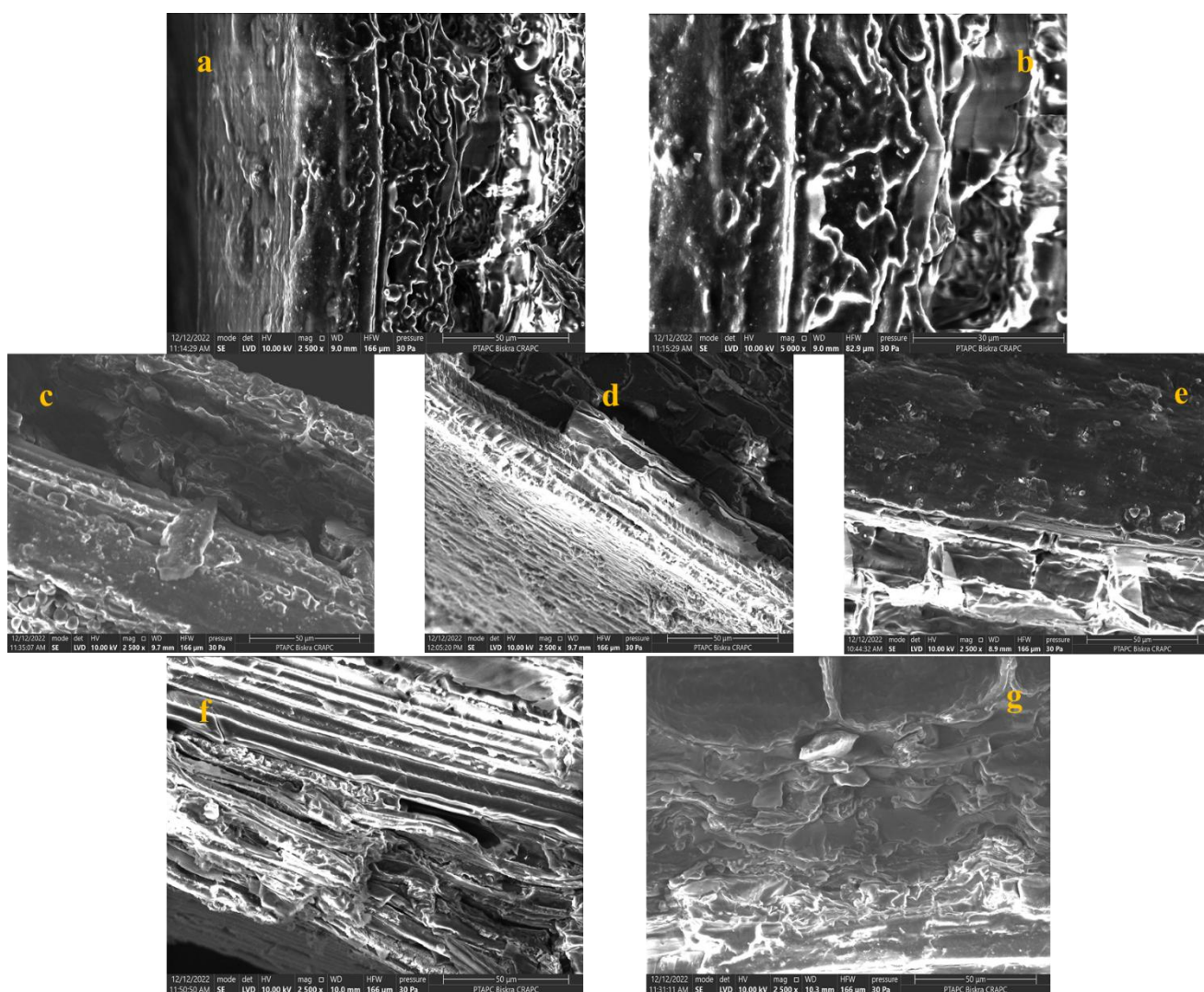


Figure IV. 12. MEB de : a, CDNT. b, CDA2. c, CDA4. d, CDA6. e, CDA8. f, CDA8K1 et g, CDA8K25.

Les fibres non traitées (Figure. IV. 12 (a)) présentent une surface lisse et recouverte de substances amorphes (cires, hémicelluloses, lignine) [356], tandis que les échantillons traités (Figure. IV. 12 (f et g)) exhibent une topographie plus rugueuse, des microfibrilles mieux exposées et des aspérités longitudinales [362]. L'action combinée du NaOH et du KMnO_4 semble avoir érodé sélectivement les constituants amorphes, rompant les liaisons inter-

polymères et augmentant la rugosité facteur favorable à l'adhésion avec la matrice. Certaines micrographies montrent également de fines dépressions ou pores à la surface des fibres oxydées, suggérant une augmentation de l'aire de contact fibre/matrice [363]. Cette morphologie texturée, attribuée à la prédominance de la cellulose, améliore mécaniquement l'interface dans les composites élaborés. Ces observations sont cohérentes avec la littérature sur les traitements de surface des fibres végétales [364].

L'analyse élémentaire par spectroscopie EDX (Tableau IV. 8 et figure IV. 13 (a, b, c, d, e, f et g)) confirme ces observations. Les spectres montrent que le carbone (C) et l'oxygène (O) constituent les éléments majoritaires dans tous les échantillons, conformément à la nature organique des fibres. Des traces de silicium (Si) et de magnésium (Mg) sont également détectées, probablement issues d'impuretés minérales résiduelles. Par ailleurs, des résidus de sodium (Na) sont clairement identifiés dans tous les échantillons traités (CDA2, CDA4, CDA6, CDA8, CDA8K1 et CDA8K25), en raison de l'utilisation de la solution d'hydroxyde de sodium (NaOH), voire de l'effet conjoint avec le permanganate de potassium (KMnO₄). La concentration en sodium augmente légèrement avec la concentration de NaOH, bien que les valeurs restent faibles, ce qui suggère un rinçage efficace après traitement [365,366].

Tableau IV. 8. Composition élémentaire des fibres de Cynodon dactylon non traitées et traitées.

Élément		C	O	Na	Mg	Si	Ca
CDNT	Masse %	40.46	57.45	–	0.71	1.39	–
	Atome %	47.86	51.02	–	0.41	0.70	–
CDA2	Masse %	39.60	57.71	–	0.26	2.43	–
	Atome %	47.09	51.52	–	0.15	1.24	–
CDA4	Masse %	38.07	52.70	–	1.01	7.00	1.22
	Atome %	46.70	48.55	–	0.61	3.67	0.45
CDA6	Masse %	37.34	52.23	–	0.30	0.76	–
	Atome %	45.87	48.17	–	0.51	1.49	–
CDA8	Masse %	35.68	62.33	–	3.62	2.35	–
	Atome %	42.80	56.13	–	5.96	4.47	–
CDA8K1	Masse %	28.64	46.37	–	2.38	9.81	12.80
	Atome %	39.41	47.91	–	1.62	5.77	5.28
CDA8K25	Masse %	37.18	44.40	6.03	1.93	7.07	3.39
	Atome %	47.27	42.38	4.00	1.22	3.84	1.29

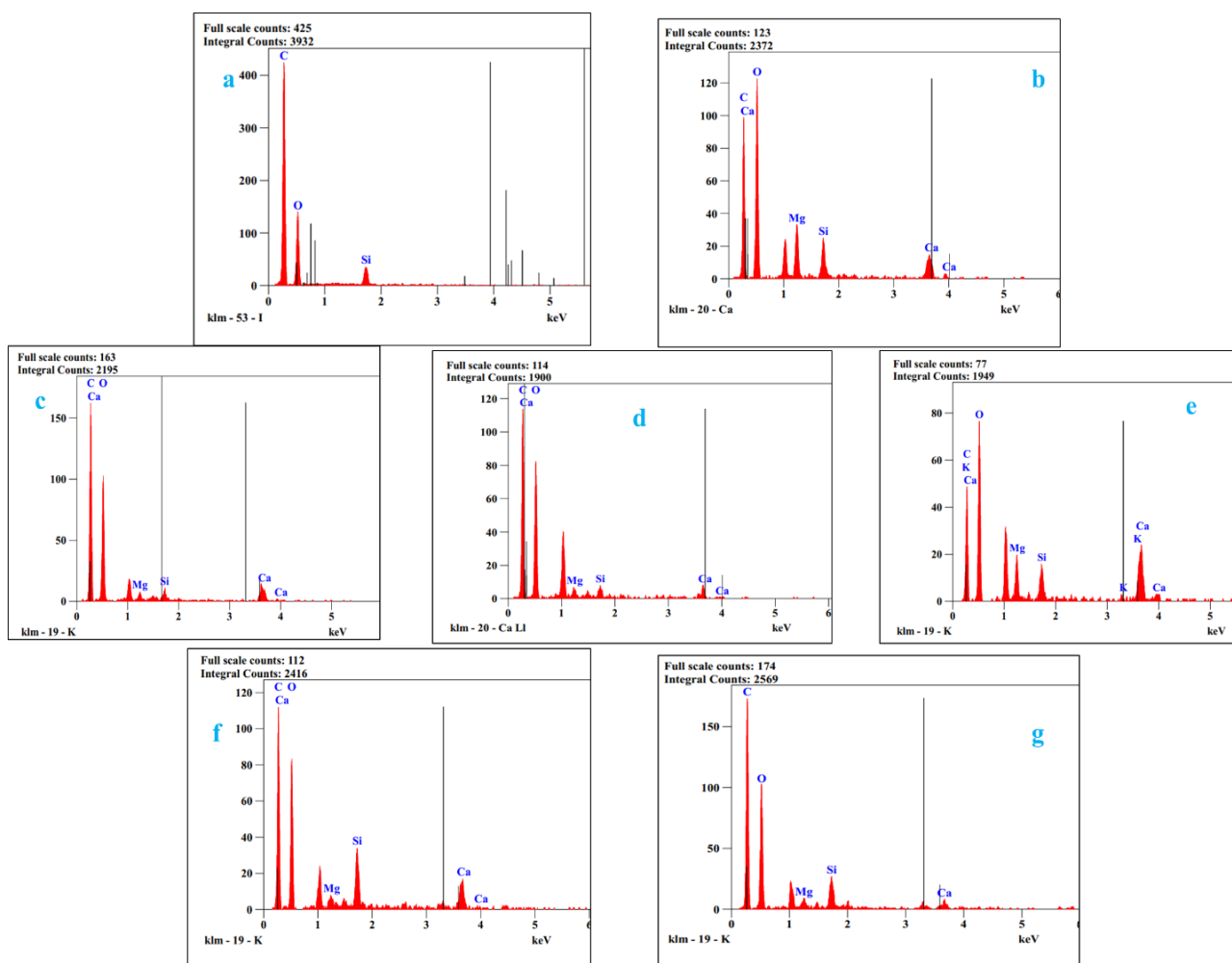


Figure IV. 13. EDX de : a, CDNT. b, CDA2. c, CDA4. d, CDA6. e, CDA8. f, CDA8K1 et g, CDA8K25.

IV .3. Caractérisations mécaniques de composites

Les performances mécaniques des différents composites élaborés ont été évaluées par des essais de résistance à la compression et de résistance à la flexion, dont les résultats sont présentés sous forme de diagrammes en barres. Chaque barre est accompagnée de barres d'erreur représentant l'écart-type des mesures, témoignant de la reproductibilité expérimentale.

IV. 3. 1. Optimisation de la teneur en chaux vive

L'optimisation de la teneur en chaux vive pour la stabilisation de l'argile repose sur l'identification du point de résistance maximale à la compression, ici atteint à 9 % (Figure IV. 14). Cette concentration correspond au seuil où les réactions pozzolaniques entre la chaux et les silicates d'alumine de l'argile sont maximales, conduisant à la formation d'un liant hydraté solide.

Au-delà de 9 %, la surdose de chaux entraîne une porosité accrue ou une désorganisation de la matrice, ce qui explique la chute de la résistance observée.

La valeur optimale de 9 % représente donc un compromis entre activation chimique suffisante et densification microstructurale, garantissant des performances mécaniques optimales.

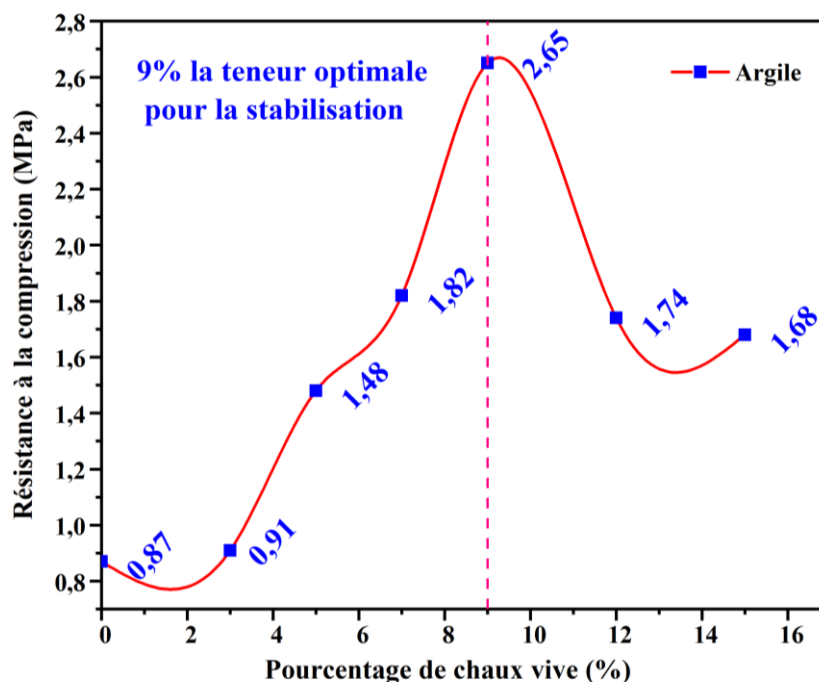


Figure IV. 14. Optimisation de la chaux par résistance à la compression.

IV. 3. 2. Essais de compression

La figure IV.12 illustre l'évolution de la résistance à la compression des composites renforcés par des fibres, qu'elles soient traitées ou non. Il apparaît clairement que cette propriété mécanique varie de manière significative en fonction de la formulation. Le matériau de référence dépourvu de fibres (AV) présente une résistance relativement faible, de l'ordre de 3,1 MPa. L'incorporation de fibres de Cynodon dactylon non traitées améliore légèrement cette valeur, qui atteint 3,58 MPa. En revanche, les composites contenant des fibres ayant subi un traitement chimique (NaOH ou KMnO_4) montrent une tendance marquée à l'augmentation de la résistance mécanique, avec un maximum enregistré pour la formulation AVFT801, atteignant 7,74 MPa, soit une amélioration de plus de 60 % par rapport à l'échantillon témoin. On observe également que :

Les composites incorporant des fibres préalablement traitées à la soude (NaOH, 8 %) présentent une amélioration notable de leurs performances mécaniques. En effet, ces matériaux atteignent une résistance à la compression d'environ 6,5 MPa, traduisant l'effet bénéfique du traitement alcalin sur l'augmentation de la rugosité superficielle des fibres, la réduction des impuretés et l'amélioration de l'adhésion fibre /matrice. Cette optimisation interfaciale se reflète directement dans le comportement mécanique global du composite.

- Les composites avec traitement alcalin + fumée de silice (ex. : AVFT801, AVFT8025) affichent les meilleures performances.

- La combinaison du traitement chimique des fibres et de l'ajout d'additifs minéraux (fumée de silice et chaux) contribue de manière significative à l'optimisation de l'interface fibre-matrice, améliorant ainsi la transmission des contraintes mécaniques à travers le composite.
- La figure IV. 12 met clairement en évidence la performance supérieure des formulations enrichies en additifs minéraux et renforcées par des fibres traitées, en particulier les formulations AVFT8 et AVFT801, dont les résistances mécaniques dépassent 6,5 MPa. L'ensemble des résultats montre que l'amélioration des propriétés mécaniques repose principalement sur deux facteurs :
 - (i) le traitement de surface des fibres végétales, qui renforce leur adhésion à la matrice, et
 - (ii) l'incorporation de fumée de silice et de chaux, permettant de densifier la matrice, de réduire la porosité et d'améliorer la cohésion globale du composite.

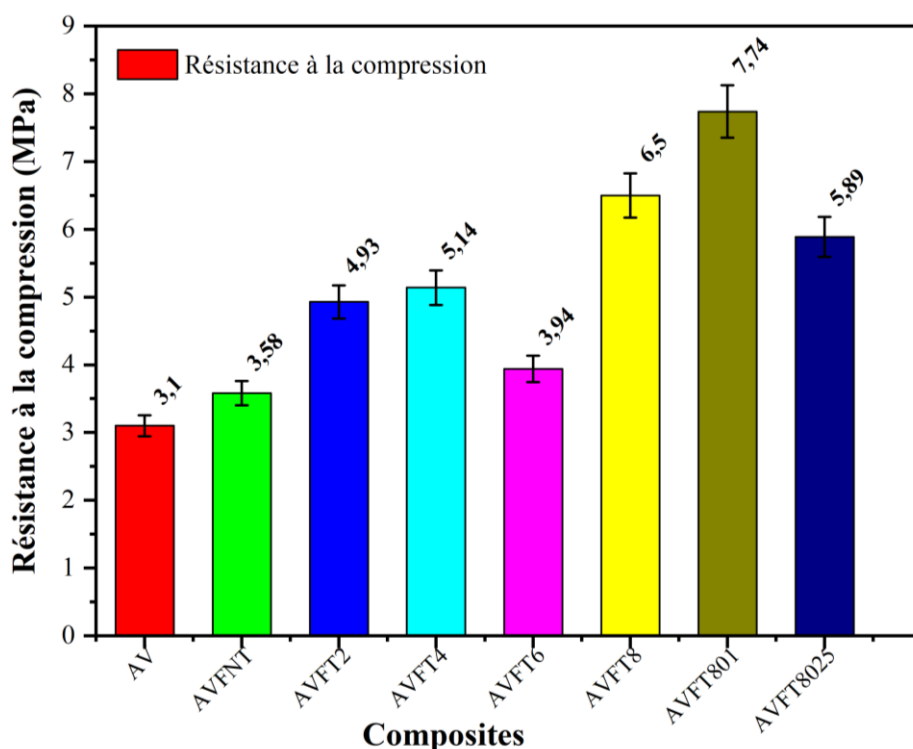


Figure IV. 15. Résistance à la compression des composites renforcés par les CD traitées et non traitées.

IV. 3. 3. Essais de flexion

D'après la figure IV. 13, le composite AVFT801 se distingue à nouveau avec une valeur maximale de 1,89 MPa, soit presque 2,5 fois supérieure à celle du témoin (0,77 MPa). Cette amélioration souligne l'effet bénéfique du traitement des fibres et de l'optimisation de la matrice. Les composites AVFT8, AVFT801 et AVFT8025 affichent également des résistances à la flexion élevées (> 1,3 MPa), confirmant que les modifications de surface des fibres et l'ajout

de fumée de silice contribuent à renforcer la ductilité et la capacité à absorber l'énergie avant rupture.

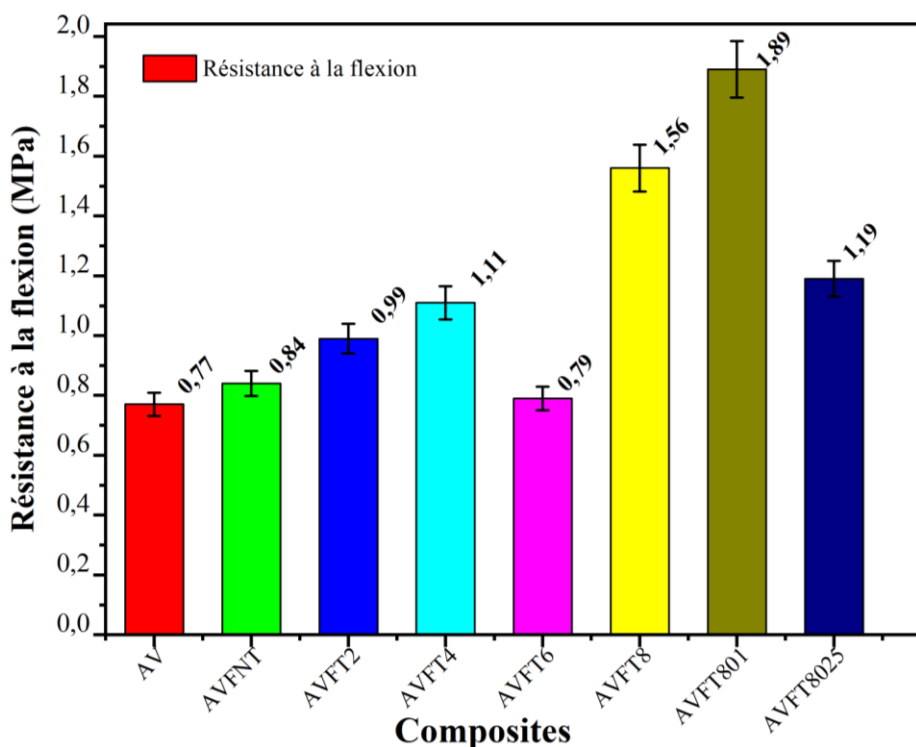


Figure IV. 16. Résistance à la flexion des composites renforcés par les CD traitées et non traitées.

IV. 3. 4. Analyse du module d'élasticité des composites à base d'argile verte renforcés par fibres de Cynodon dactylon

La figure IV. 17 illustre l'évolution du module d'élasticité de flexion pour différents composites renforcés par des fibres de Cynodon dactylon traitées et non traitées. On observe que la matrice seule (AV) présente la rigidité la plus faible, avec un module d'élasticité de 31,13 MPa. L'incorporation de fibres non traitées (AVFNT) entraîne une légère augmentation de ce module, atteignant 34,21 MPa, ce qui montre un effet modéré du renforcement. Cependant, l'introduction de fibres traitées améliore nettement la rigidité des composites, avec des modules variant entre 40,02 et 110,91 MPa selon les conditions de traitement. Les valeurs maximales sont atteintes pour AVFT801 (110,92 MPa) et AVFT8025 (71,56 MPa), indiquant que certaines conditions de traitement des fibres optimisent considérablement la performance mécanique du matériau. Cette évolution souligne l'importance du traitement des fibres, qui favorise l'adhésion fibre-matrice et renforce la structure du composite. Ainsi, le traitement approprié des fibres de Cynodon dactylon permet d'obtenir des matériaux composites beaucoup plus rigides et potentiellement mieux adaptés à des applications nécessitant une grande résistance mécanique.

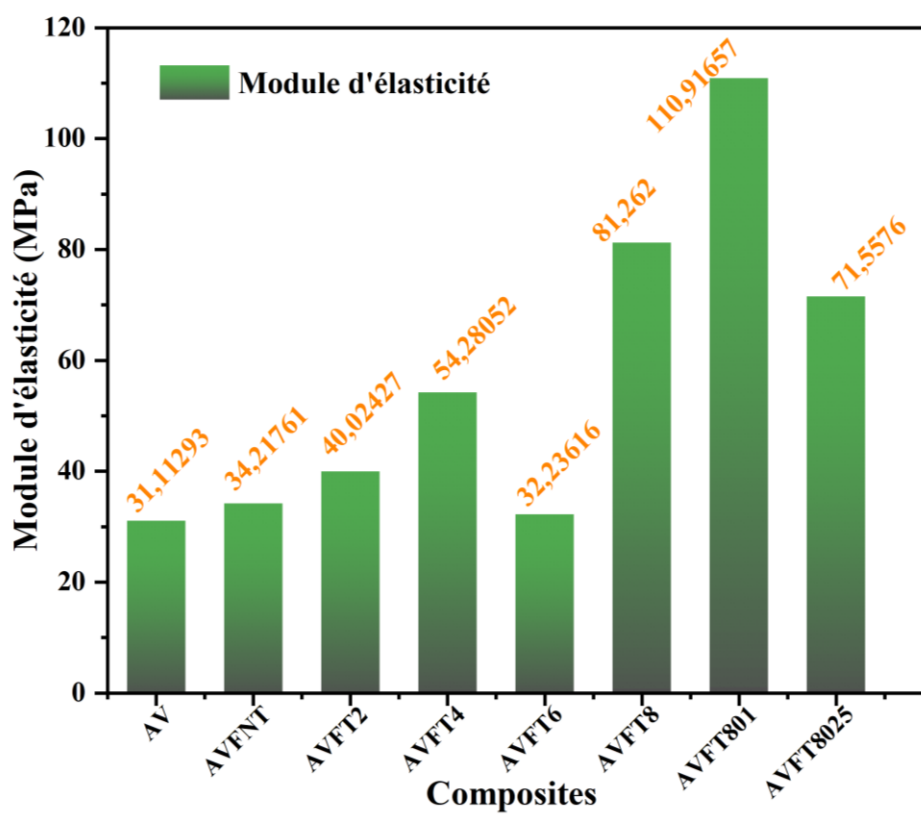


Figure IV. 17. Module de élasticité.

Conclusion générale et perspectives

Conclusion générale

L'ensemble des travaux présentés dans ce chapitre a permis de caractériser de manière approfondie les propriétés physico-chimiques, structurales et mécaniques des matériaux étudiés, à savoir une argile verte locale, les fibres naturelles de *Cynodon dactylon* et leurs composites associés. Ces analyses multidisciplinaires ont contribué à mieux comprendre les interactions complexes entre matrice argileuse et renfort fibreux, ainsi que l'impact des traitements chimiques appliqués sur les fibres.

L'argile verte analysée se distingue par un pH légèrement basique (7,84), associé à une teneur élevée en carbonates, principalement sous forme de calcite, ce qui contribue à la stabilité chimique du matériau. Sa faible teneur en eau (1,52 %) et son indice de gonflement modéré (3,22 %) confirment une bonne stabilité dimensionnelle, un critère essentiel pour son application dans des composites de construction. La granulométrie fine, avec une distribution étendue allant de 0,89 μm (D10) à 40,6 μm (D90), combinée à une surface spécifique élevée (0,8371 m^2/g), suggère une grande réactivité physico-chimique, favorisant l'adhésion et le développement d'interactions solides avec les phases organiques. Les analyses minéralogiques par diffraction des rayons X ont révélé une matrice hétérogène dominée par la calcite et le quartz, corroborées par les résultats de fluorescence X et de spectroscopie infrarouge, qui soulignent la coexistence de phases carbonatées et silicatées, ainsi que la présence résiduelle de matière organique. Par ailleurs, les analyses thermogravimétriques ont mis en évidence plusieurs étapes distinctes de décomposition thermique, associées à l'élimination de l'eau adsorbée, la déshydroxylation des minéraux argileux et la décomposition des carbonates, conférant des indications précises sur la stabilité thermique et la composition minérale du matériau.

Les fibres de *Cynodon dactylon*, quant à elles, présentent une composition chimique riche en cellulose (30,88 %), hémicelluloses (23,84 %) et lignine (18,64 %), totalisant une teneur en matière organique structurante élevée (73,36 %). Leur faible densité apparente (0,9 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$) reflète leur structure poreuse et légère, typique des fibres lignocellulosiques non ligneuses, et confère un avantage évident pour la réduction du poids des composites. Les traitements chimiques appliqués, notamment alcalins (NaOH) puis oxydants (KMnO_4), ont eu un effet déterminant sur la structure et les propriétés des fibres. Les analyses par diffraction des rayons X ont montré une augmentation significative de la cristallinité, traduisant l'élimination progressive des composants amorphes et un meilleur ordonnancement des microfibrilles de cellulose. Cette modification structurale a été confirmée par les spectres infrarouges, qui révèlent une diminution des groupes fonctionnels liés à la lignine et aux hémicelluloses, ainsi

que par les analyses thermogravimétriques qui témoignent d'une homogénéisation du comportement thermique et d'une modification de la stabilité liée à la dégradation des composants organiques. Ces changements confèrent aux fibres traitées une meilleure rugosité superficielle et une plus grande pureté, facteurs clés facilitant l'adhésion aux matrices minérales.

Les caractérisations morphologiques réalisées par microscopie électronique à balayage ont mis en évidence la texture et la composition de l'argile, ainsi que l'effet des traitements sur la surface des fibres. L'identification précise des phases minérales, corroborée par la spectrométrie EDX, a permis de confirmer la coexistence de carbonates, silicates et minéraux accessoires, ainsi que la distribution hétérogène des éléments, facteur important dans le comportement global des composites.

Les essais mécaniques effectués sur les composites renforcés par ces fibres ont mis en lumière le rôle crucial des traitements chimiques dans l'amélioration des performances. La résistance à la compression est significativement accrue dans les matériaux incorporant des fibres traitées, avec un maximum observé pour la formulation AVFT801, qui atteint 7,74 MPa, soit une amélioration notable par rapport à l'échantillon témoin. Cette progression s'explique par une meilleure cohésion interfaciale, résultant de la rugosité accrue des fibres, leur pureté améliorée et la densification de la matrice grâce à l'ajout d'additifs minéraux tels que la fumée de silice et la chaux. Les essais de flexion confirment cette tendance, avec des valeurs maximales proches de 1,89 MPa, traduisant une meilleure ductilité et une capacité accrue d'absorption d'énergie avant rupture.

En synthèse, cette étude démontre que la synergie entre une matrice argileuse stable et une fibre naturelle optimisée par traitements chimiques permet de concevoir des matériaux composites biosourcés performants, adaptés aux applications de construction durable. L'amélioration des propriétés mécaniques repose principalement sur l'optimisation de l'interface fibre-matrice, rendue possible par la modification structurale et chimique des fibres, ainsi que par la densification de la matrice minérale. Ces résultats ouvrent des perspectives prometteuses pour l'exploitation de ressources locales à faible coût, contribuant à la valorisation des fibres naturelles et au développement de matériaux composites écologiques à haute valeur ajoutée.

Perspectives

1. Optimisation des traitements de surface des fibres

Il serait pertinent d'approfondir les études sur les traitements chimiques des fibres de Cynodon dactylon, notamment en explorant d'autres agents de modification (enzymatiques, plasma, silanisation) afin d'améliorer davantage l'adhésion fibre-matrice et la durabilité des composites. L'évaluation de l'impact de ces traitements sur la résistance aux agents environnementaux (humidité, UV, agents chimiques) constituerait un axe important.

2. Études à long terme sur la durabilité et la stabilité dimensionnelle

Des investigations sur le comportement à long terme des composites, incluant des cycles d'humidification/séchage, vieillissement accéléré et résistance au gel/dégel, seraient nécessaires pour mieux appréhender la durabilité des matériaux dans des conditions réelles d'utilisation.

3. Caractérisation mécanique avancée

L'intégration d'essais mécaniques complémentaires, tels que la traction, le cisaillement interfacial fibre-matrice, et l'analyse de la résistance à la fatigue, permettrait de mieux comprendre les mécanismes de rupture et la performance globale des composites.

4. Modélisation numérique et simulation

Le développement de modèles numériques basés sur les propriétés physico-chimiques et mécaniques obtenues pourrait aider à prévoir le comportement des composites sous différentes sollicitations et à optimiser leurs formulations en fonction des usages ciblés.

5. Valorisation des fibres dans d'autres matrices

L'étude de l'incorporation des fibres de Cynodon dactylon dans d'autres types de matrices (polymères thermoplastiques ou thermodurcissables, matrices géopolymères) ouvrirait des perspectives pour diversifier les applications et améliorer les performances spécifiques.

6. Approche environnementale et économique

Une analyse complète du cycle de vie (ACV) et une évaluation économique des composites biosourcés développés permettraient de positionner ces matériaux dans une démarche de construction durable, en appréciant leur impact environnemental et leur viabilité industrielle.

7. Extension à d'autres fibres naturelles locales

Enfin, la méthodologie développée pourrait être appliquée à d'autres fibres végétales locales, favorisant ainsi la valorisation des ressources naturelles régionales et contribuant au développement de matériaux composites adaptés aux spécificités géographiques et économiques.

Références bibliographie

Références bibliographie

- [1] O. Faruk, A.K. Bledzki, H.-P. Fink, M. Sain, Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010, *Prog. Polym. Sci.* 37 (2012) 1552–1596.
- [2] M.J. John, S. Thomas, Biofibres and biocomposites, *Carbohydr. Polym.* 71 (2008) 343–364. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2007.05.040>.
- [3] A. Ashori, Wood-plastic composites as promising green-composites for automotive industries!, *Bioresour. Technol.* 99 (2008) 4661–4667. <https://doi.org/10.1016/j.biortech.2007.09.043>.
- [4] M. Jacob, S. Thomas, K.T. Varughese, Mechanical properties of sisal/oil palm hybrid fiber reinforced natural rubber composites, *Compos. Sci. Technol.* 64 (2004) 955–965. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S0266-3538\(03\)00261-6](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S0266-3538(03)00261-6).
- [5] X. Li, L.G. Tabil, S. Panigrahi, Chemical Treatments of Natural Fiber for Use in Natural Fiber-Reinforced Composites: A Review, *J. Polym. Environ.* 15 (2007) 25–33. <https://doi.org/10.1007/s10924-006-0042-3>.
- [6] A.K. Bledzki, J. Gassan, Composites reinforced with cellulose based fibres, *Prog. Polym. Sci.* 24 (1999) 221–274.
- [7] V. Kamchoom, D. Boldrin, A.K. Leung, C. Sookkrajang, S. Likitlersuang, Biomechanical properties of the growing and decaying roots of *Cynodon dactylon*, *Plant Soil* 471 (2022) 193–210.
- [8] R.K. Perumal, A. Gopinath, R. Thangam, S. Perumal, D. Masilamani, S.K. Ramadass, B. Madhan, Collagen-silica bio-composite enriched with *Cynodon dactylon* extract for tissue repair and regeneration, *Mater. Sci. Eng. C* 92 (2018) 297–306.
- [9] P. B A, A. Buradi, S. N, V.K. Vasu, J. Hatgundi, H. D, Study on characterization of mechanical, thermal properties, machinability and biodegradability of natural fiber reinforced polymer composites and its Applications, recent developments and future potentials: A comprehensive review, *Mater. Today Proc.* 52 (2022) 1255–1259. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.matpr.2021.11.049>.
- [10] O. Faruk, M.S. Ain, Biofiber reinforced polymer composites for structural applications, in: N.B.T.-D. in F.-R.P. (FRP) C. for C.E. Uddin (Ed.), Woodhead Publ. Ser. Civ. Struct. Eng., Woodhead Publishing, 2013: pp. 18–53. <https://doi.org/https://doi.org/10.1533/9780857098955.1.18>.
- [11] J. Holbery, D. Houston, Natural-fiber-reinforced polymer composites in automotive applications, *Jom* 58 (2006) 80–86.
- [12] S. Kalia, B.S. Kaith, I. Kaur, Cellulose fibers: bio-and nano-polymer composites: green chemistry and technology, Springer Science & Business Media, 2011.
- [13] A. Vazifdar, S. Debnath, Natural Fibers: A Look from a Historical Perspective, in: *Adv. Renew. Nat. Mater. Text. Sustain.*, CRC Press, 2025: pp. 1–36.
- [14] E. Choi, D.J. Kim, M. Gupta, R. Raj, T.F. Santos, C.M. Santos, Using fibers in construction, (2022). <https://doi.org/10.1088/1757-899X/1242/1/012013>.
- [15] P.R.-M. and R.P. Riba, Jordi-Roger, Rosa Cantero, Post-Consumer Textile Waste Classification through Near-Infrared Spectroscopy, Using an Advanced Deep Learning Approach, *Polymer (Guildf)*. 14 (2022). <https://doi.org/https://doi.org/10.3390/polym14122475>.

- [16] N. Mandle, D. Kumar, Exploring The Versatility of Plant Fibers: A Comprehensive Review on Biomedical Applications, *J. Ravishankar Univ.* 37 (2024) 46–59.
- [17] L.Y. Mwaikambo, M.P. Ansell, A. Dufresne, M. Hughes, C. Hill, P.M. Wild, Current international research into cellulosic fibres and composites, 6 (2001) 2107–2131.
- [18] P.L. Hurtado, A. Rouilly, V.V. Maréchal, P.L. Hurtado, A. Rouilly, V.V. Maréchal, C.R. A, A review on the properties of ceA review on the properties of cellulose fibre insulation, (2020). <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.buildenv.2015.09.031>.
- [19] T. Schiller, T. Scheibel, Bioinspired and biomimetic protein-based fibers and their applications, *Commun. Mater.* (2024) 1–18. <https://doi.org/10.1038/s43246-024-00488-2>.
- [20] T. Rijavec, Ž. Zupin, Soybean Protein Fibres (SPF), in: 2014. <https://doi.org/10.5772/19614>.
- [21] C. Guo, Insect and animal-originated fibres: silk and wool, in: *Fundam. Nat. Fibres Text.*, Elsevier, 2021: pp. 153–178.
- [22] Z. Zhang, F. Hao, D. Hu, W. Liu, X. Chen, Natural Plant Fiber-Based Materials for Packaging Applications—A Review of Recent Innovations and Developments, *Adv. Mater. Technol.* (2024) 2401020.
- [23] N.N.R. and A.S. Kalmanje Mugdha Bhat, Jyothsana Rajagopalan, Rajeshwari Mallikarjunaiah, Eco-Friendly and Biodegradable Green Composites, in: n.d. <https://doi.org/http://dx.doi.org/10.5772/intechopen.98687>.
- [24] A.R. Horrocks, An Introduction to the Burning Behaviour of Cellulosic Fibres, *JSDC* 99 (1983).
- [25] C.R. Woodings, The development of advanced cellulosic fibres, *Int. J. Biol. Macromol.* 17 (1995) 305–309.
- [26] R. Wimmer, M. Frey, M. Hausmann, T. Keplinger, G. Siqueira, T. Zimmermann, Plant-Fiber and wood-based functional materials, in: *Springer Handb. Wood Sci. Technol.*, Springer, 2023: pp. 1645–1693.
- [27] I. Elfaleh, F. Abbassi, M. Habibi, F. Ahmad, M. Guedri, M. Nasri, C. Garnier, A comprehensive review of natural fibers and their composites: An eco-friendly alternative to conventional materials, *Results Eng.* 19 (2023) 101271. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.rineng.2023.101271>.
- [28] A. Jadhav, N. Jadhav, B. Annaldewar, Natural Fiber-Based Composites and Their Applications, *Adv. Renew. Nat. Mater. Text. Sustain.* (2024) 113–135.
- [29] S. Kumar, R. Malviya, P. Uniyal, S. Srivastava, S.B. Sridhar, S.O. Rab, B. Singh, Plant Fiber Composites for Biomedical Applications: Advances and Prospective, *Curr. Pharm. Biotechnol.* (n.d.).
- [30] J. Li, J. Wang, M. Wang, J. Tie, X. Gao, Y. Wu, J. Song, C. Xia, Multiscale micromechanics modeling of viscoelastic natural plant fibers, *Front. Mater.* (2024). <https://doi.org/10.3389/fmats.2024.1422813>.
- [31] M. Lukacevic, J. Fu, Multiscale micromechanics modeling of plant fibers : upscaling of stiffness and elastic limits from cellulose nanofibrils to technical fibers, *Mater. Struct.* 2 (2023). <https://doi.org/10.1617/s11527-022-02097-2>.

- [32] S.C. Thomas, A.R. Martin, Carbon Content of Tree Tissues: A Synthesis, *Forests* 3 (2012) 332–352. <https://doi.org/10.3390/f3020332>.
- [33] F. Lemaire, A. Dartigues, L.M. Riviere, Physical and chemical characteristics of a ligno-cellulosic material, in: *Symp. Substrates Hortic. Other than Soils Situ* 238, 1988: pp. 9–22.
- [34] J.-L. Wertz, J.P. Mercier, O. Bédué, *Cellulose science and technology*, CRC Press, 2010.
- [35] C. Liebecq, U. De Likge, K.E.T. Ireland, IUPAC-IUBMB Joint Commission on Biochemical Nomenclature (JCBN) and Nomenclature Committee of IUBMB (NC-IUBMB) Newsletter 1996, *Eur. J. Biochem* 739 (1997) 733–739.
- [36] A.D. French, Glucose , not cellobiose , is the repeating unit of cellulose and why that is important, (2017). <https://doi.org/10.1007/s10570-017-1450-3>.
- [37] A.D. French, G.P. Johnson, Quantum mechanics studies of cellobiose conformations 1, 612 (2006) 603–612. <https://doi.org/10.1139/V06-050>.
- [38] D.J. Cosgrove, P. Dupree, E.D. Gomez, C.H. Haigler, J.D. Kubicki, How Many Glucan Chains Form Plant Cellulose Microfibrils ? A Mini Review, (2024). <https://doi.org/10.1021/acs.biomac.4c00995>.
- [39] G. Liao, E. Sun, E.B.G. Kana, H. Huang, I.A. Sanusi, P. Qu, H. Jin, J. Liu, L. Shuai, Renewable hemicellulose-based materials for value-added applications, *Carbohydr. Polym.* 341 (2024) 122351. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2024.122351>.
- [40] L. Guan, Y. Wang, X. Liu, L. Peng, Q. Yang, Hemicellulose modification and cell wall genetic improvement in plants, *Sheng Wu Gong Cheng Xue Bao= Chinese J. Biotechnol.* 40 (2024) 1002–1016.
- [41] J.M. Cruz-rubio, A. Riva, J. Cybulska, A. Zdunek, D. Berry, R. Loeppert, H. Viernstein, W. Praznik, F. Maghuly, Neutral and Pectic Heteropolysaccharides Isolated from *Opuntia joconostle* Mucilage : Composition , Molecular Dimensions and Prebiotic Potential, *Int. J. Mol. Sci.* 24 (2023) 3208.
- [42] A. Jakob, B. Likozar, M. Grilc, Model-Assisted Optimization of Xylose , Arabinose , Glucose , Mannose , Galactose and Real Hemicellulose Streams Dehydration To (Hydroxymethyl) Furfural and Levulinic Acid, *Chem. Eur.* 17 (2024) 1–15. <https://doi.org/10.1002/cssc.202400962>.
- [43] S. Leontakianakou, C. Grey, E.N. Karlsson, R.R.R. Sardari, An improved HPAEC - PAD method for the determination of D - glucuronic acid and 4 - O - methyl - D - glucuronic acid from polymeric and oligomeric xylan, *BMC Biotechnol.* 24 (2024) 1–10. <https://doi.org/10.1186/s12896-024-00931-9>.
- [44] J. Li, D. Yu, C. Zeng, L.I. Mosquera-Giraldo, G. Everlof, K. Foster, C. Gesenberg, Hydrolysis of cellulose acetate phthalate and hydroxypropyl methylcellulose phthalate in amorphous solid dispersions, *J. Pharm. Sci.* 114 (2025) 89–97.
- [45] R. Saadan, C.H. Alaoui, A. Ihammi, M. Chigr, A. Fatimi, A Brief Overview of Lignin Extraction and Isolation Processes : From Lignocellulosic Biomass to Added-Value Biomaterials †, *Environ. Earth Sci. Proceeding* 31.3 (2024) 1–10. <https://doi.org/https://doi.org/10.3390/eesp2024031003>.

- [46] M. Mariana, T. Alfatah, A.K.H.P. S, E. Bashir, N.G. Olaiya, A. Nuryawan, E.M. Mistar, C.K. Abdullah, S.N. Abdulmadjid, H. Ismail, A current advancement on the role of lignin as sustainable reinforcement material in biopolymeric blends, *J. Mater. Res. Technol.* 15 (2021) 2287–2316. <https://doi.org/http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>.
- [47] A. Creteanu, C.N. Lungu, Lignin : An Adaptable Biodegradable Polymer Used in Different Formulation Processes, *Pharmaceuticals* 17 (2024) 1–38. <https://doi.org/https://doi.org/10.3390/ph17101406>.
- [48] G. Rucker, L. Zhang, Comparison of the Interaction and Structure of Lignin in Pure Systems and in Asphalt Media by Molecular Dynamics Simulations, *Biomacromolecules* 25 (2024) 626–643. <https://doi.org/10.1021/acs.biomac.3c00776>.
- [49] G. Dang, J. Li, C. Yin, W. Wang, K. Zhang, R. Zhong, L. Chen, H. Zhang, M. Schroyen, Deciphering Pectin : A Comprehensive Overview of Its Origins , Processing , and Promising Utility, *ACS OMEGA* 10 (2025) 1–15. <https://doi.org/10.1021/acsomega.4c01843>.
- [50] B.M. Yapo, Rhamnogalacturonan-I : A Structurally Puzzling and Functionally Versatile Polysaccharide from Plant Cell Walls and Mucilages Rhamnogalacturonan-I : A Structurally Puzzling and Functionally Versatile Polysaccharide from Plant Cell Walls and Mucilages, *Polym. Rev.* 3724 (2011). <https://doi.org/10.1080/15583724.2011.615962>.
- [51] H. Guo, H. Li, W. Ran, W. Yu, Y. Xiao, R. Gan, H. Gao, Structural and functional characteristics of pectins from three cultivars of apple (*Malus pumila* Mill.) pomaces, *Int. J. Biol. Macromol.* 269 (2024) 132002.
- [52] C. Romanò, S.I. Awan, M.H. Clausen, Chemical synthesis of branched rhamnogalacturonan I oligosaccharides, (2024) 4–11.
- [53] J. Chen, W. Liu, C. Liu, T. Li, R. Liang, S. Luo, Pectin Modifications : A Review, *Food Sci. Nutr.* (2014) 37–41. <https://doi.org/10.1080/10408398.2012.718722>.
- [54] D. Thapliyal, S. Verma, P. Sen, R. Kumar, A. Thakur, Natural Fibers Composites : Origin , Importance , Consumption, (2023).
- [55] L.D. Talbott, P.M. Ray, Molecular Size and Separability Features of Pea Cell Wall Polysaccharides ’ Implications for Models of Primary Wall Structure, *Plant Physiol* 98 (1992) 357–368.
- [56] D. Singh, M. Sengar, T. Gupta, S. Singh, D. Singh, V. Mishra, R. Dev, B.S. Giri, Natural wax recovery from *Musa acuminata* biomass using organic solvents, *Chemosphere* 363 (2024) 142919. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2024.142919>.
- [57] R.U. Islam, T. Khan, P.M. Junaid, S. Naseem, Recent Developments in Sustainable Bio-Based Wax Nanoemulsions as Edible Coatings for Food Commodities: A Comprehensive Review, *Packag. Technol. Sci.* 37 (2024) 1175–1194.
- [58] A.S. Singha, V.K. Thakur, Mechanical properties of natural fibre reinforced polymer composites, *Bull. Mater. Sci.* 31 (2008) 791–799.
- [59] L. Mohammed, M.N.M. Ansari, G. Pua, M. Jawaid, M.S. Islam, A review on natural fiber reinforced polymer composite and its applications, *Int. J. Polym. Sci.* 2015 (2015) 243947.

- [60] A.K. Mohanty, M. and Misra, G.I. Hinrichsen, Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites: An overview, *Macromol. Mater. Eng.* 276 (2000) 1–24.
- [61] S.K. Ramamoorthy, M. Skrifvars, A. Persson, A review of natural fibers used in biocomposites: Plant, animal and regenerated cellulose fibers, *Polym. Rev.* 55 (2015) 107–162.
- [62] N. Jauhari, R. Mishra, H. Thakur, Natural fibre reinforced composite laminates—a review, *Mater. Today Proc.* 2 (2015) 2868–2877.
- [63] V. Chauhan, T. Kärki, J. Varis, Review of natural fiber-reinforced engineering plastic composites, their applications in the transportation sector and processing techniques, *J. Thermoplast. Compos. Mater.* 35 (2022) 1169–1209.
- [64] R. Kumar, S. Obrai, A. Sharma, Chemical modifications of natural fiber for composite material, *Der Chem. Sin.* 2 (2011) 219–228.
- [65] X. Li, L.G. Tabil, S. Panigrahi, Chemical treatments of natural fiber for use in natural fiber-reinforced composites: a review, *J. Polym. Environ.* 15 (2007) 25–33.
[https://doi.org/https://doi.org/10.1007/s10924-006-0042-3](https://doi.org/10.1007/s10924-006-0042-3).
- [66] K. Rohit, S. Dixit, A review-future aspect of natural fiber reinforced composite, *Polym. from Renew. Resour.* 7 (2016) 43–59.
- [67] K.N. Bharath, S. Basavarajappa, Applications of biocomposite materials based on natural fibers from renewable resources: a review, *Sci. Eng. Compos. Mater.* 23 (2016) 123–133.
- [68] Ş. Yıldızhan, A. Çalık, M. Özcanlı, H. Serin, Bio-composite materials: a short review of recent trends, mechanical and chemical properties, and applications, *Eur. Mech. Sci.* 2 (2018) 83–91.
- [69] D. Verma, S. Sharma, Green biocomposites: a prospective utilization in automobile industry, in: *Green Biocomposites Des. Appl.*, Springer, 2017: pp. 167–191.
- [70] H.M. Akil, M.F. Omar, A.A.M. Mazuki, S. Safiee, Z.A.M. Ishak, A.A. Bakar, Kenaf fiber reinforced composites: A review, *Mater. Des.* 32 (2011) 4107–4121.
- [71] V.S. Srinivasan, S.R. Boopathy, D. Sangeetha, B.V. Ramnath, Evaluation of mechanical and thermal properties of banana–flax based natural fibre composite, *Mater. Des.* 60 (2014) 620–627.
- [72] C.M. Yeng, S. Husseinsyah, S.S. Ting, A comparative study of different crosslinking agent-modified chitosan/corn cob biocomposite films, *Polym. Bull.* 72 (2015) 791–808.
- [73] V.D.S. U.S. Bongarde, Review on natural fiber reinforcement polymer composites, 3 (2014) 431–436.
- [74] F. Ahmad, H.S. Choi, M.K. Park, A review: natural fiber composites selection in view of mechanical, light weight, and economic properties, *Macromol. Mater. Eng.* 300 (2015) 10–24.
- [75] X. Luo, R.S. Benson, K.M. Kit, M. Dever, Kudzu fiber-reinforced polypropylene composite, *J. Appl. Polym. Sci.* 85 (2002) 1961–1969.
- [76] L. Bacci, S. Baronti, S. Predieri, N. di Virgilio, Fiber yield and quality of fiber nettle (*Urtica dioica* L.) cultivated in Italy, *Ind. Crops Prod.* 29 (2009) 480–484.

- [77] K. Senthilkumar, N. Saba, N. Rajini, M. Chandrasekar, M. Jawaid, S. Siengchin, O.Y. Alotman, Mechanical properties evaluation of sisal fibre reinforced polymer composites: A review, *Constr. Build. Mater.* 174 (2018) 713–729.
- [78] M. Ramesh, K. Palanikumar, K.H. Reddy, Plant fibre based bio-composites: Sustainable and renewable green materials, *Renew. Sustain. Energy Rev.* 79 (2017) 558–584.
- [79] O. Faruk, A.K. Bledzki, H. Fink, M. Sain, Progress in Polymer Science Biocomposites reinforced with natural fibers : 2000 – 2010, *Prog. Polym. Sci.* 37 (2012) 1552–1596. <https://doi.org/10.1016/j.progpolymsci.2012.04.003>.
- [80] M.S. Huda, L.T. Drzal, A.K. Mohanty, M. Misra, Chopped glass and recycled newspaper as reinforcement fibers in injection molded poly (lactic acid)(PLA) composites: A comparative study, *Compos. Sci. Technol.* 66 (2006) 1813–1824.
- [81] A. Aguilar-Rios, P.J. Herrera-Franco, A. de J Martínez-Gómez, A. Valadez-Gonzalez, Improving the bonding between henequen fibers and high density polyethylene using atmospheric pressure ethylene-plasma treatments., *Express Polym. Lett.* 8 (2014).
- [82] M.A. Fuqua, S. Huo, C.A. Ulven, Natural fiber reinforced composites, *Polym. Rev.* 52 (2012) 259–320.
- [83] M. Thiruchitrambalam, A. Athijayamani, S. Sathiyamurthy, A.S.A. Thaheer, A review on the natural fiber-reinforced polymer composites for the development of roselle fiber-reinforced polyester composite, *J. Nat. Fibers* 7 (2010) 307–323.
- [84] M. Jawaid, H.P.S.A. Khalil, Cellulosic/synthetic fibre reinforced polymer hybrid composites: A review, *Carbohydr. Polym.* 86 (2011) 1–18.
- [85] D. Dai, M. Fan, Wood fibres as reinforcements in natural fibre composites: structure, properties, processing and applications, in: *Nat. Fibre Compos.*, Elsevier, 2014: pp. 3–65.
- [86] L. Yan, B. Kasal, L. Huang, A review of recent research on the use of cellulosic fibres, their fibre fabric reinforced cementitious, geo-polymer and polymer composites in civil engineering, *Compos. Part B Eng.* 92 (2016) 94–132.
- [87] A. Komuraiah, N.S. Kumar, B.D. Prasad, Chemical composition of natural fibers and its influence on their mechanical properties, *Mech. Compos. Mater.* 50 (2014) 359–376.
- [88] L. Yan, N. Chouw, K. Jayaraman, Flax fibre and its composites—A review, *Compos. Part B Eng.* 56 (2014) 296–317.
- [89] C. Baley, *Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites*, Ed. Techniques Ingénieur, 2005.
- [90] P. Pradhan, A. Purohit, I. Mohanty, H. Jena, B.B. Sahoo, Erosion wear analysis of coconut shell dust filled epoxy composites using computational fluid dynamics and Taguchi method, *Proc. Inst. Mech. Eng. Part C J. Mech. Eng. Sci.* 237 (2023) 5653–5662. <https://doi.org/https://doi.org/10.1177/09544062231167674>.
- [91] P. Pradhan, A. Purohit, J. Singh, C. Subudhi, S.S. Mohapatra, D. Rout, B.B. Sahoo, Tribo-performance analysis of an agro-waste-filled epoxy composites using finite element method, *J. Inst. Eng. Ser. E* 103 (2022) 339–345. <https://doi.org/https://doi.org/10.1007/s40034-022-00243-7>.

- [92] E. Rogge, Extraction et étude des propriétés physiques et mécaniques des fibres d'Alfa (Esparto grass) en vue d'applications textiles, Mémoire Maîtrise Pour l'obtention Du Grade Académique Master, Génie Des Matériaux, Ec. Natl. Supérieure d'Ingénieurs Sud-Alsace (UHA, Mulhouse, Fr. Année Univ. (2010).
- [93] M.N. Norizan, M.H. Moklis, A.H. Alias, A.I. Rushdan, M.N.F. Norrrahim, K. Abdan, N. Abdullah, Treatments of Natural Fibre as Reinforcement in Polymer Composites- Short Review. *Funct, Compos. Struct* 3 (2021) 24002.
- [94] V. Rajendran, A. Krishnamoorthy, Review On Natural Fiber Reinforced Composites, *Mater. Today Proc.* 16 (2019) 897–906. <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2019.05.175>.
- [95] R. Malkapuram, V. Kumar, Y.S. Negi, Recent development in natural fiber reinforced polypropylene composites, *J. Reinf. Plast. Compos.* 28 (2009) 1169–1189.
- [96] X. Li, L.G. Tabil, S. Panigrahi, W.J. Crerar, The influence of fiber content on properties of injection molded flax fiber-HDPE biocomposites, in: 2006 ASAE Annu. Meet., American Society of Agricultural and Biological Engineers, 2006: p. 1.
- [97] D.N. Saheb, J.P. Jog, Natural fiber polymer composites: a review, *Adv. Polym. Technol. J. Polym. Process. Inst.* 18 (1999) 351–363.
- [98] R.D. Anandjiwala, S. Blouw, Composites from bast fibres-prospects and potential in the changing market environment, *J. Nat. Fibers* 4 (2007) 91–109.
- [99] F. Balo, L.S. Sua, Green Composites in Aviation: Optimizing Natural Fiber and Polymer Selection for Sustainable Aircraft Cabin Materials, *Textiles* 4 (2024) 561–581.
- [100] P. Wambua, J. Ivens, I. Verpoest, Natural fibres: can they replace glass in fibre reinforced plastics?, *Compos. Sci. Technol.* 63 (2003) 1259–1264.
- [101] H. Cheung, M. Ho, K. Lau, F. Cardona, D. Hui, Natural fibre-reinforced composites for bioengineering and environmental engineering applications, *Compos. Part B Eng.* 40 (2009) 655–663.
- [102] J. Njuguna, P. Wambua, K. Pielichowski, K. Kayvantash, Natural fibre-reinforced polymer composites and nanocomposites for automotive applications, in: *Cellul. Fibers Bio-and Nano-Polymer Compos. Green Chem. Technol.*, Springer, 2011: pp. 661–700.
- [103] T. Mukherjee, N. Kao, PLA based biopolymer reinforced with natural fibre: a review, *J. Polym. Environ.* 19 (2011) 714–725.
- [104] M.R. Sanjay, G.R. Arpitha, B. Yogesha, Study on mechanical properties of natural-glass fibre reinforced polymer hybrid composites: a review, *Mater. Today Proc.* 2 (2015) 2959–2967.
- [105] S.S. Kamath, D. Sampathkumar, B. Bennehalli, A review on natural areca fibre reinforced polymer composite materials, *Ciência Tecnol. Dos Mater.* 29 (2017) 106–128.
- [106] J.K. Pandey, S.H. Ahn, C.S. Lee, A.K. Mohanty, M. Misra, Recent advances in the application of natural fiber based composites, *Macromol. Mater. Eng.* 295 (2010) 975–989.
- [107] H. Deka, T.O. Varghese, S.K. Nayak, Recent Development and Future Trends in Coir Fiber-Reinforced Green Polymer Composites: Review and Evaluation., *Polym. Compos.* 37 (2016).

- [108] L. Mwaikambo, Review of the history, properties and application of plant fibres, *African J. Sci. Technol.* 7 (2006) 121.
- [109] K. de S. do Prado, M.A. da S. Spinacé, Characterization of fibers from pineapple's crown, rice husks and cotton textile residues, *Mater. Res.* 18 (2015) 530–537.
- [110] Z. Chen, Y. Xu, S. Shivkumar, Microstructure and tensile properties of various varieties of rice husk, *J. Sci. Food Agric.* 98 (2018) 1061–1070.
- [111] V.K. Thakur, M.K. Thakur, Processing and characterization of natural cellulose fibers/thermoset polymer composites, *Carbohydr. Polym.* 109 (2014) 102–117.
- [112] T. Gurunathan, S. Mohanty, S.K. Nayak, A review of the recent developments in biocomposites based on natural fibres and their application perspectives, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 77 (2015) 1–25.
- [113] D. Chandramohan, K. Marimuthu, A review on natural fibers, *Int. J. Res. Rev. Appl. Sci.* 8 (2011) 194–206.
- [114] M.R. Sanjay, G.R. Arpitha, L.L. Naik, K. Gopalakrishna, B. Yogesha, Applications of natural fibers and its composites: an overview, *Nat. Resour.* 7 (2016) 108–114.
- [115] J.S. Dhaliwal, *Natural fibers: applications*, IntechOpen London, UK, 2019.
- [116] A. Baltazar-Y-Jimenez, M. Sain, Natural fibres for automotive applications, in: *Handb. Nat. Fibres*, Elsevier, 2012: pp. 219–253.
- [117] R. Dunne, D. Desai, R. Sadiku, J. Jayaramudu, A review of natural fibres, their sustainability and automotive applications, *J. Reinf. Plast. Compos.* 35 (2016) 1041–1050.
- [118] S. Palanisamy, T.M. Murugesan, M. Palaniappan, C. Santulli, N. Ayrilmis, Fostering sustainability: The environmental advantages of natural fiber composite materials—a mini review, *Environ. Res. Technol.* 7 (2024) 256–269.
- [119] S. Palanisamy, K. Vijayananth, T.M. Murugesan, M. Palaniappan, C. Santulli, The prospects of natural fiber composites: a brief review, *Int. J. Light. Mater. Manuf.* 7 (2024) 496–506.
- [120] M. Chandrasekar, M.R. Ishak, S.M. Sapuan, Z. Leman, M. Jawaid, A review on the characterisation of natural fibres and their composites after alkali treatment and water absorption, *Plast. Rubber Compos.* 46 (2017) 119–136.
- [121] M.A. Ermeýdan, New Methodologies to Improve the Interfacial Interaction in Natural Fibre Polymer Composites, in: *Interfacial Bond. Charact. Nat. Fiber Reinf. Polym. Compos. Fiber-Matrix Interface Biocomposites*, Springer, 2024: pp. 23–45.
- [122] B. Mylsamy, S.K.M. Shanmugam, K. Aruchamy, S. Palanisamy, R. Nagarajan, N. Ayrilmis, A review on natural fiber composites: Polymer matrices, fiber surface treatments, fabrication methods, properties, and applications, *Polym. Eng. Sci.* 64 (2024) 2345–2373.
- [123] J. Cruz, R. Figueiro, Surface modification of natural fibers: a review, *Procedia Eng.* 155 (2016) 285–288.
- [124] I. McKay, J. Vargas, L. Yang, R.M. Felfel, A review of natural fibres and biopolymer composites: progress, limitations, and enhancement strategies, *Materials (Basel)*. 17 (2024) 4878.

- [125] F. Vilaseca, F. Corrales, M.F. Llop, M.A. Pelach, P. Mutjé, Chemical treatment for improving wettability of biofibres into thermoplastic matrices, *Compos. Interfaces* 12 (2005) 725–738.
- [126] M. Syduzzaman, M.A. Al Faruque, K. Bilisik, M. Naebe, Plant-based natural fibre reinforced composites: a review on fabrication, properties and applications, *Coatings* 10 (2020) 973.
- [127] F.R. Oliveira, L. Erkens, R. Fangueiro, A.P. Souto, Surface modification of banana fibers by DBD plasma treatment, *Plasma Chem. Plasma Process.* 32 (2012) 259–273.
- [128] B. Enciso, J. Abenojar, M.A. Martínez, Influence of plasma treatment on the adhesion between a polymeric matrix and natural fibres, *Cellulose* 24 (2017) 1791–1801. <https://doi.org/10.1007/s10570-017-1209-x>.
- [129] J.G. Haase, L.H. Leung, P.D. Evans, Plasma Pre-treatments to Improve the Weather Resistance of Polyurethane Coatings on Black Spruce Wood, *Coatings* 9 (2019). <https://doi.org/10.3390/coatings9010008>.
- [130] J. Gassan, V.S. Gutowski, Effects of corona discharge and UV treatment on the properties of jute-fibre epoxy composites, *Compos. Sci. Technol.* 60 (2000) 2857–2863. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S0266-3538\(00\)00168-8](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S0266-3538(00)00168-8).
- [131] R.M. Di Benedetto, M.V. Gelfuso, D. Thomazini, Influence of UV Radiation on the Physical-chemical and Mechanical Properties of Banana Fiber, *Mater. Res.* 18 (2015) 265–272. <https://doi.org/10.1590/1516-1439.371414>.
- [132] S. Mukhopadhyay, R. Fangueiro, Physical modification of natural fibers and thermoplastic films for composites—a review, *J. Thermoplast. Compos. Mater.* 22 (2009) 135–162.
- [133] Y. Cao, S. Sakamoto, K. Goda, EFFECTS OF HEAT AND ALKALI TREATMENTS ON MECHANICAL PROPERTIES OF KENAF FIBERS, (2016) 1–4.
- [134] M.Z. Rong, M.Q. Zhang, Y. Liu, G.C. Yang, H.M. Zeng, The effect of fiber treatment on the mechanical properties of unidirectional sisal-reinforced epoxy composites, *Compos. Sci. Technol.* 61 (2001) 1437–1447.
- [135] D. Cho, H. Kim, L.T. Drzal, Surface treatment and characterization of natural fibers: effects on the properties of biocomposites, *Polym. Compos.* (2013) 133–177.
- [136] A. Verma, A. Parashar, N. Jain, V.K. Singh, S.M. Rangappa, S. Siengchin, Surface Modification Techniques for the Preparation of Different Novel Biofibers for Composites BT - Biofibers and Biopolymers for Biocomposites: Synthesis, Characterization and Properties, in: A. Khan, S. Mavinkere Rangappa, S. Siengchin, A.M. Asiri (Eds.), Springer International Publishing, Cham, 2020: pp. 1–34. https://doi.org/10.1007/978-3-030-40301-0_1.
- [137] P. Bataille, M. Dufourd, S. Sapiaha, Copolymerization of styrene on to cellulose activated by corona, *Polym. Int.* 34 (1994) 387–391.
- [138] S. Dong, S. Sapiaha, H.P. Schreiber, Effect of corona discharge on cellulose polyethylene composites, *Polym. Eng. Sci* 32 (1992) 1737–1741.
- [139] R.D.S.G. Campilho, Natural fiber composites, CRC Press, 2015.
- [140] O. Faruk, A.K. Bledzki, H. Fink, M. Sain, Progress report on natural fiber reinforced composites, *Macromol. Mater. Eng.* 299 (2014) 9–26.

- [141] B. Singh, M. Gupta, A. Verma, Influence of fiber surface treatment on the properties of sisal-polyester composites, *Polym. Compos.* 17 (1996) 910–918.
- [142] M.Y. Hashim, M.N. Roslan, A.M. Amin, A.M. Ahmad Zaidi, S. Ariffin, Mercerization treatment parameter effect on natural fiber reinforced polymer matrix composite: A brief review, in: *Proc. World Acad. Sci. Eng. Technol., World Academy of Science, Engineering and Technology*, 2012: pp. 1638–1644.
- [143] E. Osoka, Optimum Conditions for Mercerization of Oil Palm Empty Fruit Bunch Fibre, *Int. J. Innov. Res. Comput. Sci. Technol.* 3 (2015).
- [144] V.V.D.T. Do Thi, *Matériaux composites à fibres naturelles/polymère biodégradables ou non*, (2011).
- [145] D. Ray, B.K. Sarkar, A.K. Rana, N.R. Bose, Effect of alkali treated jute fibres on composite properties, *Bull. Mater. Sci.* 24 (2001) 129–135.
- [146] L.Y. Mwaikambo, M.P. Ansell, The effect of chemical treatment on the properties of hemp, sisal, jute and kapok for composite reinforcement, *Die Angew. Makromol. Chemie* 272 (1999) 108–116.
- [147] C. Albano, M. Ichazo, J. González, M. Delgado, R. Poleo, Effects of filler treatments on the mechanical and morphological behavior of PP+ wood flour and PP+ sisal fiber, *Mater. Res. Innov.* 4 (2001) 284–293.
- [148] A.P. Haseena, G. Unnikrishnan, G. Kalaprasad, Dielectric properties of short sisal/coir hybrid fibre reinforced natural rubber composites, *Compos. Interfaces* 14 (2007) 763–786.
- [149] C.A.S. Hill, H.P.S.A. Khalil, M.D. Hale, A study of the potential of acetylation to improve the properties of plant fibres, *Ind. Crops Prod.* 8 (1998) 53–63.
- [150] M.S. Sreekala, M.G. Kumaran, S. Thomas, Oil palm fibers: Morphology, chemical composition, surface modification, and mechanical properties, *J. Appl. Polym. Sci.* 66 (1997) 821–835.
- [151] F.Z. Arrakhiz, M. El Achaby, A.C. Kakou, S. Vaudreuil, K. Benmoussa, R. Bouhfid, O. Fassi-Fehri, A. Qaiss, Mechanical properties of high density polyethylene reinforced with chemically modified coir fibers: Impact of chemical treatments, *Mater. Des.* 37 (2012) 379–383.
- [152] Y. Xie, C.A.S. Hill, Z. Xiao, H. Militz, C. Mai, Silane coupling agents used for natural fiber/polymer composites: A review, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 41 (2010) 806–819.
- [153] A. Bessadok, S. Roudesli, S. Marais, N. Follain, L. Lebrun, Alfa fibres for unsaturated polyester composites reinforcement: Effects of chemical treatments on mechanical and permeation properties, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 40 (2009) 184–195.
- [154] A. Paul, K. Joseph, S. Thomas, Effect of surface treatments on the electrical properties of low-density polyethylene composites reinforced with short sisal fibers, *Compos. Sci. Technol.* 57 (1997) 67–79.
- [155] K. Joseph, S. Thomas, C. Pavithran, Effect of chemical treatment on the tensile properties of short sisal fibre-reinforced polyethylene composites, *Polymer (Guildf)*. 37 (1996) 5139–5149.
- [156] S. Kalia, B.S. Kaith, I. Kaur, Pretreatments of natural fibers and their application as

- reinforcing material in polymer composites—a review, *Polym. Eng. Sci.* 49 (2009) 1253–1272.
- [157] R. Agrawal, N.S. Saxena, K.B. Sharma, S. Thomas, M.S. Sreekala, Activation energy and crystallization kinetics of untreated and treated oil palm fibre reinforced phenol formaldehyde composites, *Mater. Sci. Eng. A* 277 (2000) 77–82.
- [158] K.L. Pickering, A. Abdalla, C. Ji, A.G. McDonald, R.A. Franich, The effect of silane coupling agents on radiata pine fibre for use in thermoplastic matrix composites, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 34 (2003) 915–926.
- [159] J.X. Sun, X.F. Sun, H. Zhao, R.C. Sun, Isolation and characterization of cellulose from sugarcane bagasse, *Polym. Degrad. Stab.* 84 (2004) 331–339.
- [160] K.C.M. Nair, S.M. Diwan, S. Thomas, Tensile properties of short sisal fiber reinforced polystyrene composites, *J. Appl. Polym. Sci.* 60 (1996) 1483–1497.
- [161] M.M. Kabir, H. Wang, K.T. Lau, F. Cardona, Chemical treatments on plant-based natural fibre reinforced polymer composites: An overview, *Compos. Part B Eng.* 43 (2012) 2883–2892.
- [162] J. Abd Halip, L.S. Hua, Z. Ashaari, P.M. Tahir, L.W. Chen, M.K.A. Uyup, Effect of treatment on water absorption behavior of natural fiber-reinforced polymer composites, in: *Mech. Phys. Test. Biocomposites, Fibre-Reinforced Compos. Hybrid Compos.*, Elsevier, 2019: pp. 141–156. <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-102292-4.00008-4>.
- [163] B. Wang, S. Panigrahi, L. Tabil, W. Crerar, Pre-treatment of flax fibers for use in rotationally molded biocomposites, *J. Reinf. Plast. Compos.* 26 (2007) 447–463.
- [164] J. George, R. Janardhan, J.S. Anand, S.S. Bhagawan, S. Thomas, Melt rheological behaviour of short pineapple fibre reinforced low density polyethylene composites, *Polymer (Guildf)*. 37 (1996) 5421–5431.
- [165] M.S. Sreekala, M.G. Kumaran, S. Joseph, M. Jacob, S. Thomas, Oil palm fibre reinforced phenol formaldehyde composites: influence of fibre surface modifications on the mechanical performance, *Appl. Compos. Mater.* 7 (2000) 295–329.
- [166] I. Jenish, A. Felix Sahayaraj, M. Appadurai, E. Fantin Irudaya Raj, P. Suresh, T. Raja, S.H. Salmen, S. Alfarraj, V. Manikandan, Fabrication and experimental analysis of treated snake grass fiber reinforced with polyester composite, *Adv. Mater. Sci. Eng.* 2021 (2021) 6078155.
- [167] P. V Joseph, K. Joseph, S. Thomas, C.K.S. Pillai, V.S. Prasad, G. Groeninckx, M. Sarkissova, The thermal and crystallisation studies of short sisal fibre reinforced polypropylene composites, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 34 (2003) 253–266.
- [168] S.T. Georgopoulos, P.A. Tarantili, E. Avgerinos, A.G. Andreopoulos, E.G. Koukios, Thermoplastic polymers reinforced with fibrous agricultural residues, *Polym. Degrad. Stab.* 90 (2005) 303–312.
- [169] S.V. Pitchumani, M. Sivakumar, A. Sampath, V. Gopalan, Investigation into the mechanical and thermal properties of coir fibre-reinforced PVC composites using RSM-based different algorithm techniques, *Biomass Convers. Biorefinery* 15 (2025) 8403–8417. <https://doi.org/10.1007/s13399-024-05542-0>.
- [170] C. Nyambo, A.K. Mohanty, M. Misra, Effect of maleated compatibilizer on

- performance of PLA/wheat Straw-Based green composites, *Macromol. Mater. Eng.* 296 (2011) 710–718.
- [171] I. Aranberri-Askargorta, T. Lampke, A. Bismarck, Wetting behavior of flax fibers as reinforcement for polypropylene, *J. Colloid Interface Sci.* 263 (2003) 580–589.
- [172] A. Bismarck, I. Aranberri-Askargorta, J. Springer, T. Lampke, B. Wielage, A. Stamboulis, I. Shenderovich, H. Limbach, Surface characterization of flax, hemp and cellulose fibers; surface properties and the water uptake behavior, *Polym. Compos.* 23 (2002) 872–894.
- [173] C.-S. Wu, Renewable resource-based composites of recycled natural fibers and maleated polylactide bioplastic: Characterization and biodegradability, *Polym. Degrad. Stab.* 94 (2009) 1076–1084.
- [174] M.A. Fuqua, C.A. Ulven, Characterization of polypropylene/corn fiber composites with maleic anhydride grafted polypropylene, *J. Biobased Mater. Bioenergy* 2 (2008) 258–263.
- [175] N.E. Zafeiropoulos, C.A. Baillie, J.M. Hodgkinson, Engineering and characterisation of the interface in flax fibre/polypropylene composite materials. Part II. The effect of surface treatments on the interface, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 33 (2002) 1185–1190.
- [176] S.A. Paul, C. Oommen, K. Joseph, G. Mathew, S. Thomas, The role of interface modification on thermal degradation and crystallization behavior of composites from commingled polypropylene fiber and banana fiber, *Polym. Compos.* 31 (2010) 1113–1123.
- [177] G. Kalaprasad, B. Francis, S. Thomas, C.R. Kumar, C. Pavithran, G. Groeninckx, S. Thomas, Effect of fibre length and chemical modifications on the tensile properties of intimately mixed short sisal/glass hybrid fibre reinforced low density polyethylene composites, *Polym. Int.* 53 (2004) 1624–1638.
- [178] A. Geremew, P. De Winne, T.A. Demissie, H. De Backer, Treatment of natural fiber for application in concrete pavement, *Adv. Civ. Eng.* 2021 (2021) 6667965.
- [179] M. George, P.G. Mussone, D.C. Bressler, Surface and thermal characterization of natural fibres treated with enzymes, *Ind. Crops Prod.* 53 (2014) 365–373.
- [180] H.M. Brodowsky, A. Hennig, M.T. Müller, A. Werner, S. Zhandarov, U. Gohs, Laccase-enzyme treated flax fibre for use in natural fibre epoxy composites, *Materials (Basel)*. 13 (2020) 4529.
- [181] J. De Prez, A.W. Van Vuure, J. Ivens, G. Aerts, I. Van de Voorde, Enzymatic treatment of flax for use in composites, *Biotechnol. Reports* 20 (2018) e00294.
- [182] M.C. Khoathane, E.R. Sadiku, C.S. Agwuncha, Surface modification of natural fiber composites and their potential applications, *Surf. Modif. Biopolym.* (2015) 370–400.
- [183] R. Araujo, M. Casal, A. Cavaco-Paulo, Application of enzymes for textile fibres processing, *Biocatal. Biotransformation* 26 (2008) 332–349.
- [184] Y. Karaduman, D. Gokcan, L. Onal, Effect of enzymatic pretreatment on the mechanical properties of jute fiber-reinforced polyester composites, *J. Compos. Mater.* 47 (2013) 1293–1302.
- [185] D.P. Ferreira, J. Cruz, R. Fangueiro, Surface modification of natural fibers in polymer

- composites, in: *Green Compos. Automot. Appl.*, Elsevier, 2019: pp. 3–41.
- [186] R. Ahmad, R. Hamid, S.A. Osman, Physical and chemical modifications of plant fibres for reinforcement in cementitious composites, *Adv. Civ. Eng.* 2019 (2019) 5185806.
- [187] J.J. Kenned, K. Sankaranarayananasamy, C.S. Kumar, Chemical, biological, and nanoclay treatments for natural plant fiber-reinforced polymer composites: A review, *Polym. Polym. Compos.* 29 (2021) 1011–1038.
- [188] S. Kalia, K. Thakur, A. Celli, M.A. Kiechel, C.L. Schauer, Surface modification of plant fibers using environment friendly methods for their application in polymer composites, textile industry and antimicrobial activities: A review, *J. Environ. Chem. Eng.* 1 (2013) 97–112.
- [189] K.L. Pickering, Y. Li, R.L. Farrell, M. Lay, Interfacial modification of hemp fiber reinforced composites using fungal and alkali treatment, *J. Biobased Mater. Bioenergy* 1 (2007) 109–117.
- [190] Y. Li, K.L. Pickering, R.L. Farrell, Analysis of green hemp fibre reinforced composites using bag retting and white rot fungal treatments, *Ind. Crops Prod.* 29 (2009) 420–426.
- [191] J. Jayapriya, C. Vigneswaran, Process optimization for biosoftening of lignocellulosic fiber with white rot fungi and specific enzymatic systems, *J. Nat. Fibers* 7 (2010) 17–33.
- [192] S.M. Khoshnava, R. Rostami, M. Ismail, A. Valipour, The using fungi treatment as green and environmentally process for surface modification of natural fibres, *Appl. Mech. Mater.* 554 (2014) 116–122.
- [193] S. Kalia, S. Vashistha, Surface modification of sisal fibers (*Agave sisalana*) using bacterial cellulase and methyl methacrylate, *J. Polym. Environ.* 20 (2012) 142–151.
- [194] C. Vigneswaran, J. Jayapriya, Effect on physical characteristics of jute fibres with cellulase and specific mixed enzyme systems, *J. Text. Inst.* 101 (2010) 506–513.
- [195] P. Ross, R. Mayer, M. Benziman, Cellulose biosynthesis and function in bacteria, *Microbiol. Rev.* 55 (1991) 35–58.
- [196] K.-Y. Lee, A. Bismarck, Creating hierarchical structures in cellulosic fibre reinforced polymer composites for advanced performance, in: *Nat. Fibre Compos.*, Elsevier, 2014: pp. 84–102.
- [197] B.S. Hungund, S.G. Gupta, Production of bacterial cellulose from *Enterobacter amnigenus* GH-1 isolated from rotten apple, *World J. Microbiol. Biotechnol.* 26 (2010) 1823–1828.
- [198] K.-Y. Lee, S.R. Shamsuddin, M. Fortea-Verdejo, A. Bismarck, Manufacturing of robust natural fiber preforms utilizing bacterial cellulose as binder, *J. Vis. Exp. JoVE* (2014) 51432.
- [199] K.-Y. Lee, A. Delille, A. Bismarck, Greener surface treatments of natural fibres for the production of renewable composite materials, in: *Cellul. Fibers Bio-and Nano-Polymer Compos. Green Chem. Technol.*, Springer, 2011: pp. 155–178.
- [200] M. Pommet, J. Juntaro, J.Y.Y. Heng, A. Mantalaris, A.F. Lee, K. Wilson, G. Kalinka, M.S.P. Shaffer, A. Bismarck, Surface modification of natural fibers using bacteria: depositing bacterial cellulose onto natural fibers to create hierarchical fiber reinforced nanocomposites, *Biomacromolecules* 9 (2008) 1643–1651.

- [201] S. Bhardwaj, R. Sharma, Natural fibre composites—an opportunity for farmers, *Int. J. Pure Appl. Biosci* 5 (2017) 509–514.
- [202] A. Ali, K. Shaker, Y. Nawab, M. Ashraf, A. Basit, S. Shahid, M. Umair, Impact of hydrophobic treatment of jute on moisture regain and mechanical properties of composite material, *J. Reinf. Plast. Compos.* 34 (2015) 2059–2068.
- [203] M.J. John, R.D. Anandjiwala, Recent developments in chemical modification and characterization of natural fiber-reinforced composites, *Polym. Compos.* 29 (2008) 187–207.
- [204] J. Militký, A. Jabbar, Comparative evaluation of fiber treatments on the creep behavior of jute/green epoxy composites, *Compos. Part B Eng.* 80 (2015) 361–368.
- [205] T. Bai, D. Wang, J. Yan, W. Cheng, H. Cheng, S.Q. Shi, G. Wang, G. Han, Wetting mechanism and interfacial bonding performance of bamboo fiber reinforced epoxy resin composites, *Compos. Sci. Technol.* 213 (2021) 108951.
- [206] T.H. Nam, S. Ogihara, H. Nakatani, S. Kobayashi, J. Il Song, Mechanical and thermal properties and water absorption of jute fiber reinforced poly (butylene succinate) biodegradable composites, *Adv. Compos. Mater.* 21 (2012) 241–258.
- [207] M. Balasubramanian, Introduction to composite materials, in: *Fibrous Text. Mater. Compos. Appl.*, Springer, 2016: pp. 1–38.
- [208] W.D. Callister, D. Rethwisch, Characteristics, applications, and processing of polymers, *Mater. Sci. Eng. an Introd.* 8 (2018).
- [209] B.D. Agarwal, L.J. Broutman, K. Chandrashekhara, Analysis and performance of fiber composites, John Wiley & Sons, 2017.
- [210] D.B. Miracle, S.L. Donaldson, S.D. Henry, C. Moosbrugger, G.J. Anton, B.R. Sanders, N. Hrivnak, C. Terman, J. Kinson, K. Muldoon, *Composites*, ASM international Materials Park, OH, 2001.
- [211] H.S. Ashrith, T.P. Jeevan, J. Xu, A review on the fabrication and mechanical characterization of fibrous composites for engineering applications, *J. Compos. Sci.* 7 (2023) 252.
- [212] E.J. Barbero, *Introduction to composite materials design*, CRC press, 2010.
- [213] S.T. Peters, *Handbook of composites*, Springer Science & Business Media, 2013.
- [214] P.A. dos Santos, J.C. Giriolli, J. Amarasekera, G. Moraes, Natural fibers plastic composites for automotive applications, in: *8th Annu. Automot. Compos. Conf. Exhib. (ACCE 2008)*. Troy, MI SPE Automot. Compos. Div., 2008: pp. 492–500.
- [215] S.A. Baeurle, A. Hotta, A.A. Gusev, On the glassy state of multiphase and pure polymer materials, *Polymer (Guildf)*. 47 (2006) 6243–6253.
- [216] E. Lokensgard, *Industrial plastics: theory and applications*, Cengage Learning, 2016.
- [217] A. Güemes, A. Fernandez-Lopez, A.R. Pozo, J. Sierra-Pérez, Structural health monitoring for advanced composite structures: a review, *J. Compos. Sci.* 4 (2020) 13.
- [218] R. Sinha, *Outlines of polymer technology: manufacture of polymers*, PHI Learning Pvt. Ltd., 2004.
- [219] T. Iijima, T. Tochimoto, M. Tomoi, Modification of epoxy resins with poly (aryl ether

- ketone) s, *J. Appl. Polym. Sci.* 43 (1991) 1685–1692.
- [220] G. Barra, L. Guadagno, M. Raimondo, M.G. Santonicola, E. Toto, S. Vecchio Cipriotti, A comprehensive review on the thermal stability assessment of polymers and composites for aeronautics and space applications, *Polymers (Basel)*. 15 (2023) 3786.
- [221] R. Giesa, H.-W. Schmidt, High-temperature Stable Polymers, *Encycl. Mater. Sci. Technol.* (2001) 3803–3806.
- [222] F.C. Campbell, *Structural composite materials*, ASM international, 2010.
- [223] W.D. Callister, D.G. Rethwisch, *The structure of crystalline solids*, Mater. Sci. Eng. an Intr Oduction. New York John Wiley Sons, Inc (2007) 38–79.
- [224] F.C. Campbell Jr, *Manufacturing processes for advanced composites*, elsevier, 2003.
- [225] R.E. Grim, *Applied clay mineralogy*, Geol. Föreningen i Stock. Förhandlingar 84 (1962) 533.
- [226] K. Jlassi, I. Krupa, M.M. Chehimi, Overview: clay preparation, properties, modification, *Clay-Polymer Nanocomposites* (2017) 1–28.
- [227] L. Zhou, Y. He, S. Gou, Q. Zhang, L. Liu, L. Tang, X. Zhou, M. Duan, Efficient inhibition of montmorillonite swelling through controlling flexibly structure of piperazine-based polyether Gemini quaternary ammonium salts, *Chem. Eng. J.* 383 (2020) 123190.
- [228] N. Kumari, C. Mohan, Basics of clay minerals and their characteristic properties, *Clay Clay Min.* 24 (2021) 1–29.
- [229] F. Wypych, R.A. de Freitas, Clay minerals: Classification, structure, and properties, in: *Dev. Clay Sci.*, Elsevier, 2022: pp. 3–35.
- [230] F. Bergaya, G. Lagaly, *Handbook of clay science*, Newnes, 2013.
- [231] S.M.R. Shaikh, M.S. Nasser, I. Hussein, A. Benamor, S.A. Onaizi, H. Qiblawey, Influence of polyelectrolytes and other polymer complexes on the flocculation and rheological behaviors of clay minerals: A comprehensive review, *Sep. Purif. Technol.* 187 (2017) 137–161.
- [232] L. Mahouachi, T. Rastogi, W.-U. Palm, I. Ghorbel-Abid, D.B.H. Chehimi, K. Kümmerer, Natural clay as a sorbent to remove pharmaceutical micropollutants from wastewater, *Chemosphere* 258 (2020) 127213.
- [233] A.M. Awad, S.M.R. Shaikh, R. Jalab, M.H. Gulied, M.S. Nasser, A. Benamor, S. Adham, Adsorption of organic pollutants by natural and modified clays: a comprehensive review, *Sep. Purif. Technol.* 228 (2019) 115719.
- [234] L. Le Pluart, J. Duchet, H. Sautereau, P. Halley, J.-F. Gerard, Rheological properties of organoclay suspensions in epoxy network precursors, *Appl. Clay Sci.* 25 (2004) 207–219.
- [235] F. Bergaya, G. Lagaly, *General Introduction : Clays , Clay Minerals , and Clay Science*, 2nd ed., Elsevier Ltd., 2013. <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-098258-8.00001-8>.
- [236] H. Wan, A. Yan, H. Xiong, G. Chen, N. Zhang, Y. Cao, X. Liu, Montmorillonite: A structural evolution from bulk through unilaminar nanolayers to nanotubes, *Appl. Clay*

- Sci. 194 (2020) 105695. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.clay.2020.105695>.
- [237] S. Ismadji, F. Edi-Soetaredjo, A. Ayucitra, Clay Materials for Environmental Remediation, 2015. <https://doi.org/10.1007/978-3-319-16712-1>.
- [238] A.S. Al-Hussaini, A.M. Elias, M.A. Abd El-Ghaffar, New Poly(aniline-co-*o*-phenylenediamine)/Kaolinite Microcomposites for Water Decontamination, *J. Polym. Environ.* 25 (2017) 35–45. <https://doi.org/10.1007/s10924-016-0782-7>.
- [239] J.E. Gamboni, M.A. Bertuzzi, A.M. Slavutsky, Methylene Blue Sorption Phenomena onto Pectin, Brea Gum, Montmorillonite Based Hydrogels: Kinetic and Thermodynamic Assessment, *J. Polym. Environ.* 30 (2022) 4710–4725. <https://doi.org/10.1007/s10924-022-02546-7>.
- [240] Q. Xue, R. Wang, S. Liu, W. Shi, X. Tong, Y. Li, F. Sun, Significance of chlorite hyperspectral and geochemical characteristics in exploration: A case study of the giant Qulong porphyry Cu-Mo deposit in collisional orogen, Southern Tibet, *Ore Geol. Rev.* 134 (2021) 104156. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.oregeorev.2021.104156>.
- [241] B. Velde, Green Clay Minerals, *Treatise on Geochemistry* 7 (2003) 407. <https://doi.org/10.1016/B0-08-043751-6/07090-0>.
- [242] B.W. Sweeney, Effects of Streamside Vegetation on Macroinvertebrate Communities of White Clay Creek in Eastern North America, *Proc. Acad. Nat. Sci. Philadelphia* 144 (1993) 291–340. <http://www.jstor.org/stable/4065013> (accessed November 17, 2025).
- [243] S. Iftikhar, K. Rashid, E. Ul Haq, I. Zafar, F.K. Alqahtani, M. Iqbal Khan, Synthesis and characterization of sustainable geopolymer green clay bricks: An alternative to burnt clay brick, *Constr. Build. Mater.* 259 (2020) 119659. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.119659>.
- [244] S. Xiong, Z. Ding, Y. Zhu, R. Zhou, H. Lu, A ~6Ma chemical weathering history, the grain size dependence of chemical weathering intensity, and its implications for provenance change of the Chinese loess–red clay deposit, *Quat. Sci. Rev.* 29 (2010) 1911–1922. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2010.04.009>.
- [245] M. El-habacha, Y. Miyah, S. Lagdali, G. Mahmoudy, A. Dabagh, M. Chiban, F. Sinan, S. Iaich, M. Zerbet, General overview to understand the adsorption mechanism of textile dyes and heavy metals on the surface of different clay materials, *Arab. J. Chem.* 16 (2023) 105248. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.arabjc.2023.105248>.
- [246] C. Bories, M.-E. Borredon, E. Vedrenne, G. Vilarem, Development of eco-friendly porous fired clay bricks using pore-forming agents: A review, *J. Environ. Manage.* 143 (2014) 186–196. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2014.05.006>.
- [247] B. Velde, A. Meunier, *Fundamentals of Clay Mineral Crystal Structure and Physicochemical Properties BT - The Origin of Clay Minerals in Soils and Weathered Rocks*, in: B. Velde, A. Meunier (Eds.), Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2008: pp. 3–73. https://doi.org/10.1007/978-3-540-75634-7_1.
- [248] G.K. Kome, R.K. Enang, F.O. Tabi, B.P.K. Yerima, Influence of clay minerals on some soil fertility attributes: a review, *Open J. Soil Sci.* 9 (2019) 155–188.
- [249] C. Song, Y. Guan, D. Wang, D. Zewudie, F.-M. Li, Palygorskite-coated fertilizers with a timely release of nutrients increase potato productivity in a rain-fed cropland, *F. Crop. Res.* 166 (2014) 10–17.

- [250] M.I. Carretero, M. Pozo, Clay and non-clay minerals in the pharmaceutical and cosmetic industries Part II. Active ingredients, *Appl. Clay Sci.* 47 (2010) 171–181.
- [251] M. Ghadiri, W. Chrzanowski, R. Rohanzadeh, Biomedical applications of cationic clay minerals, *RSC Adv.* 5 (2015) 29467–29481.
- [252] M. Ahmad, K. Rashid, Novel approach to synthesize clay-based geopolymer brick: Optimizing molding pressure and precursors' proportioning, *Constr. Build. Mater.* 322 (2022) 126472.
- [253] N.B. Singh, Clays and clay minerals in the construction industry, *Minerals* 12 (2022) 301.
- [254] S.D. Sharma, L. Sowntharya, K.K. Kar, Polymer-based composite structures: Processing and applications, in: *Compos. Mater. Process. Appl. Charact.*, Springer, 2016: pp. 1–36.
- [255] J.-M. Berthelot, *Matériaux composite*, 5e édition, Lavoisier, Paris, 2012. www.editions.lavoisier.fr.
- [256] J.-M. Berthelot, *Mécanique des matériaux et structures composites*, Inst. Supérieur Des Matériaux Mécaniques Avancés 176 (2010).
- [257] P.K. Alagesan, Recent advances of hybrid fiber composites for various applications, *Hybrid Fiber Compos. Mater. Manuf. Process Eng.* (2020) 381–404.
- [258] A.F. Avila, D.T.S. Morais, A multiscale investigation based on variance analysis for hand lay-up composite manufacturing, *Compos. Sci. Technol.* 65 (2005) 827–838.
- [259] S.G. Advani, E.M. Sozer, *Process modeling in composites manufacturing*, CRC press, 2002.
- [260] K. Potter, *Resin transfer moulding*, Springer Science & Business Media, 2012.
- [261] K.K. Wang, Injection molding of polymers and polymer composites: process modeling and simulation, *MRS Bull.* 17 (1992) 45–49.
- [262] P.K. Mallick, *Fiber-reinforced composites: materials, manufacturing, and design*, CRC press, 2007.
- [263] T.W. Clyne, P.J. Withers, *An introduction to metal matrix composites*, Cambridge university press, 1993.
- [264] S.M. Pickard, B. Derby, The deformation of particle reinforced metal matrix composites during temperature cycling, *Acta Metall. Mater.* 38 (1990) 2537–2552.
- [265] G. Karadimas, K. Salonitis, Ceramic matrix composites for aero engine applications—a review, *Appl. Sci.* 13 (2023) 3017.
- [266] R.E. Tressler, G.L. Messing, C.G. Pantano, R.E. Newnham, *Tailoring multiphase and composite ceramics*, Springer Science & Business Media, 2012.
- [267] J.B. Stout, G.D. Pelletier, *Method for manufacturing ceramic matrix composite structures*, (2014).
- [268] K.K. Chawla, Ceramic matrix composites, in: *Compos. Mater. Sci. Eng.*, Springer, 1993: pp. 134–149.
- [269] W.G. Fahrenholtz, G.E. Hilmas, *Ultra-high temperature ceramics: materials for*

- extreme environments, *Scr. Mater.* 129 (2017) 94–99.
- [270] D. Gay, *Composite materials: design and applications*, CRC press, 2022.
- [271] M. Balasubramanian, *Composite materials and Processing*, CRC press Boca Raton, 2014.
- [272] C. Baley, Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 33 (2002) 939–948.
- [273] M. Niu, X. Liu, J. Dai, W. Hou, L. Wei, B. Xu, Molecular structure and properties of wool fiber surface-grafted with nano-antibacterial materials, *Spectrochim. Acta Part a Mol. Biomol. Spectrosc.* 86 (2012) 289–293.
- [274] R. Jeyapragash, V. Srinivasan, S. Sathiyamurthy, Mechanical properties of natural fiber/particulate reinforced epoxy composites—A review of the literature, *Mater. Today Proc.* 22 (2020) 1223–1227.
- [275] M.P. Gashti, M.P. Gashti, Effect of colloidal dispersion of clay on some properties of wool fiber, *J. Dispers. Sci. Technol.* 34 (2013) 853–858.
- [276] K.L. Pickering, G.W. Beckermann, S.N. Alam, N.J. Foreman, Optimising industrial hemp fibre for composites, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 38 (2007) 461–468.
- [277] M. Ji, F. Li, J. Li, J. Li, C. Zhang, K. Sun, Z. Guo, Enhanced mechanical properties, water resistance, thermal stability, and biodegradation of the starch-sisal fibre composites with various fillers, *Mater. Des.* 198 (2021) 109373.
- [278] A.R.G. de Azevedo, M.T. Marvila, M. Ali, M.I. Khan, F. Masood, C.M.F. Vieira, Effect of the addition and processing of glass polishing waste on the durability of geopolymeric mortars, *Case Stud. Constr. Mater.* 15 (2021) e00662.
- [279] Y. Li, Q. Li, H. Ma, The voids formation mechanisms and their effects on the mechanical properties of flax fiber reinforced epoxy composites, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 72 (2015) 40–48.
- [280] Y.Z. Wan, H. Luo, F. He, H. Liang, Y. Huang, X.L. Li, Mechanical, moisture absorption, and biodegradation behaviours of bacterial cellulose fibre-reinforced starch biocomposites, *Compos. Sci. Technol.* 69 (2009) 1212–1217.
- [281] J. Giridhar, Kishore, R. Rao, Moisture absorption characteristics of natural fibre composites, *J. Reinf. Plast. Compos.* 5 (1986) 141–150.
- [282] M.M. Kabir, H. Wang, T. Aravinthan, F. Cardona, K.-T. Lau, Effects of natural fibre surface on composite properties: A review, in: *Proc. 1st Int. Postgrad. Conf. Eng. Des. Dev. Built Environ. Sustain. Wellbeing (EddBE 2011)*, University of Southern Queensland, 2011.
- [283] N.M. Nurazzi, M.M. Harussani, H.A. Aisyah, R.A. Ilyas, M.N.F. Norraahim, A. Khalina, N. Abdullah, Treatments of natural fiber as reinforcement in polymer composites—a short review, *Funct. Compos. Struct.* 3 (2021) 24002.
- [284] N.C. Amin, Y.Y.J. Andji, M. Ake, S.F. Yolou, A.A. Touré, G. KRA, Minéralogie et physicochimie d’argiles de traitement de l’ulcère de Buruli en Cote d’Ivoire, *J. Des Sci. Pharm. Biol.* 10 (2009) 21–30.
- [285] R. Bouaziz, *L’analyse thermique.: Les changements de phase*, Gauthier-Villars, 1972.

- [286] K.L. Konan, J. Soro, J.Y.Y. Andji, S. Oyetola, G. Kra, Etude comparative de la déshydroxylation / amorphisation dans deux kaolins de cristallinité différente Comparative study of dehydroxylation / amorphization in two kaolins with different crystallinity, (2010) 29–39.
- [287] P. De Clerck, Limites D’Atterberg., Cent. Rech. Routieres, CR (1981).
- [288] N. Raman, A. Radha, K. Balasubramanian, R. Raghunathan, R. Priyadarshini, Bioactive Molecules from *Cynodon dactylon* of Indian Biodiversity, Biodivers. Biomol. Asp. Biodivers. Innov. Util. (2002) 253–256.
- [289] M.A. Söylemez, K. Özer, D. Ozer, Biofibers and their composites for industrial applications, Handb. Bioplastics Biocomposites Eng. Appl. (2023) 513–538.
- [290] N. Su, R.S. Pierce, C. Rudd, X. Liu, Comprehensive investigation of reclaimed carbon fibre reinforced polyamide (rCF/PA) filaments and FDM printed composites, Compos. Part B Eng. 233 (2022) 109646.
- [291] K. Komisarz, T.M. Majka, K. Pielichowski, Chemical and physical modification of lignin for green polymeric composite materials, Materials (Basel). 16 (2022) 16.
- [292] S. Ojha, V. Boggarapu, R. Kanakam, G. Raghavendra, P.S.C. Bose, Chemical modification and fabrication of epoxy/natural fiber composites, in: Handb. Epoxy/Fiber Compos., Springer, 2022: pp. 515–537.
- [293] G. Germano Braga, F. Assunção Rosa, J. César dos Santos, G.G. Del Pino, T.H. Panzera, F. Scarpa, Fully biobased composite and fiber-metal laminates reinforced with *Cynodon* spp. fibers, Polym. Compos. 44 (2023) 453–464.
- [294] R.D. Hatfield, H.G. Jung, J. Ralph, D.R. Buxton, P.J. Weimer, A comparison of the insoluble residues produced by the Klason lignin and acid detergent lignin procedures, J. Sci. Food Agric. 65 (1994) 51–58.
- [295] P.B. TERBARUKAN, the Effect of NaOH concentration in delignification process on microcrystalline cellulose from green algae (*Cladophora* sp.) as the renewable marine product, J. Farm. Sains Dan Komunitas 15 (2018) 68–71.
- [296] L.F. de M.S. Kataoka, M.D.P. Hidalgo Falla, S.M. da Luz, The influence of potassium hydroxide concentration and reaction time on the extraction cellulosic jute fibers, J. Nat. Fibers 19 (2022) 6889–6901.
- [297] S. Arslan, A. Öz, A. Benli, B. Bayrak, G. Kaplan, A.C. Aydın, Sustainable use of silica fume and metakaolin in slag/fly ash-based self-compacting geopolymer composites: Fresh, physico-mechanical and durability properties, Sustain. Chem. Pharm. 38 (2024) 101512. <https://doi.org/10.1016/j.scp.2024.101512>.
- [298] M.G. Alexander, B.J. Magee, Durability performance of concrete containing condensed silica fume, Cem. Concr. Res. 29 (1999) 917–922.
- [299] K. Dao, M. Ouedraogo, Y. Millogo, J.-E. Aubert, M. Gomina, Thermal, hydric and mechanical behaviours of adobes stabilized with cement, Constr. Build. Mater. 158 (2018) 84–96. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2017.10.001>.
- [300] Y. Millogo, J.-E. Aubert, A.D. Séré, A. Fabbri, J.-C. Morel, Earth blocks stabilized by cow-dung, Mater. Struct. 49 (2016) 4583–4594. <https://doi.org/10.1617/s11527-016-0808-6>.
- [301] Y. Millogo, M. Hajjaji, R. Ouedraogo, Microstructure and physical properties of lime-

- clayey adobe bricks, *Constr. Build. Mater.* 22 (2008) 2386–2392.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2007.09.002>.
- [302] M.-C. Stanciu, F. Tanasă, C.-A. Teacă, Crystallinity Changes in Modified Cellulose Substrates Evidenced by Spectral and X-Ray Diffraction Data, *Polysaccharides* 6 (2025) 30.
- [303] M. Edahbi, M. Khaddor, F. Salmoun, Caractérisation des sols du Nord du Maroc (Bassin Loukkos), *J. Mater. Environ. Sci.* 5 (2014) 2133–2138.
- [304] A.P. Rollet, R. Bouaziz, *L'Analyse Thermique (Tome 2)*, Gauthier-Villars: Paris (1972).
- [305] W. Holtz, H. Gibbs, Consolidation and related properties of loessial soils, in: *Symp. Consol. Test. Soils*, ASTM International, 1952.
- [306] M. Duriez, J. Arrambide, *Nouveau traité de matériaux de construction*, (No Title) (1962).
- [307] K.L. Konan, Interactions entre des matériaux argileux et un milieu basique riche en calcium, Thèse Dr. l'Université Limoge Fr. (2006) 1–144.
- [308] F. Guerraoui, M. Zamama, M. Ibnoussina, Caractérisation minéralogique et géotechnique des argiles utilisées dans la céramique de Safi (Maroc), *African J. Sci. Technol. Sci. Eng. Ser.* 9 (2008) 1–11.
- [309] W. Hajjaji, M. Hachani, B. Moussi, K. Jeridi, M. Medhioub, A. López-Galindo, F. Rocha, J.A. Labrincha, F. Jamoussi, Mineralogy and plasticity in clay sediments from north-east Tunisia, *J. African Earth Sci.* 57 (2010) 41–46.
<https://doi.org/10.1016/j.jafrearsci.2009.07.007>.
- [310] W.A. White, Atterberg plastic limits of clay minerals, *Am. Mineral. J. Earth Planet. Mater.* 34 (1949) 508–512.
- [311] H.B. Zghal, M. Medhioub, T. Mhiri, Characteristics of Triassic clays and properties of building ceramics, *J. Ceram. Process. Res.* 13 (2012) 202–209.
- [312] I. Özkan, M. Çolak, R.E. Oyman, Characterization of waste clay from the Sardes (Salihli) placer gold mine and its utilization in floor-tile manufacture, *Appl. Clay Sci.* 49 (2010) 420–425. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2009.08.021>.
- [313] S. Mahmoudi, A. Bennour, A. Meguebli, E. Srasra, F. Zargouni, Characterization and traditional ceramic application of clays from the Douiret region in South Tunisia, *Appl. Clay Sci.* 127–128 (2016) 78–87. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2016.04.010>.
- [314] V. Tserki, N.E. Zafeiropoulos, F. Simon, C. Panayiotou, A study of the effect of acetylation and propionylation surface treatments on natural fibres, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 36 (2005) 1110–1118.
- [315] A. Qlihaa, S. Dhimni, F. Melrhaka, N. Hajjaji, A. Srhiri, Caractérisation physico-chimique d'une argile Marocaine, *J. Mater. Environ. Sci.* 7 (2016) 1741–1750.
- [316] B. Sorgho, P. Bressollier, B. Guel, L. Zerbo, R. Ouedraogo, M. Gomina, P. Blanchart, Étude des propriétés mécaniques des géomatériaux argileux associant la décoction de *Parkia Biglobosa* (nééré), *Comptes Rendus Chim.* 19 (2016) 895–901.
<https://doi.org/10.1016/j.crci.2016.01.016>.
- [317] L.Y. Mwaikambo, M.P. Ansell, Chemical modification of hemp, sisal, jute, and kapok

- fibers by alkalization, *J. Appl. Polym. Sci.* 84 (2002) 2222–2234.
<https://doi.org/10.1002/app.10460>.
- [318] H. Sadki, K. Ziat, M. Saidi, Adsorption d'un colorant cationique d'un milieu aqueux sur une argile locale activée (adsorption of dyes on activated local clay in aqueous solution), *Environ. Sci* 5 (2014) 2060–2065.
- [319] I. Ben Salah, A. Sdiri, M.B.M. Jemai, M. Boughdiri, Potential use of the lower cretaceous clay (Kef area, Northwestern Tunisia) as raw material to supply ceramic industry, *Appl. Clay Sci.* 161 (2018) 151–162.
- [320] P.B. Arab, T.P. Araújo, O.J. Pejon, Identification of clay minerals in mixtures subjected to differential thermal and thermogravimetry analyses and methylene blue adsorption tests, *Appl. Clay Sci.* 114 (2015) 133–140.
<https://doi.org/10.1016/j.clay.2015.05.020>.
- [321] Y. Millogo, Etude géotechnique, chimique et minéralogique de matières premières argileuse et latéritique du Burkina Faso améliorées aux liants hydrauliques: application au génie civil (bâtiment et route), Univ. Ouagadougou, Burkina Faso, PhD, p 157p (2008).
- [322] P. Ptáček, D. Kubátová, J. Havlica, J. Brandštetr, F. Šoukal, T. Opravil, Isothermal kinetic analysis of the thermal decomposition of kaolinite: The thermogravimetric study, *Thermochim. Acta* 501 (2010) 24–29. <https://doi.org/10.1016/j.tca.2009.12.018>.
- [323] B. Sorgho, Caractérisation et valorisation de quelques argiles du Burkina Faso: application au traitement des eaux et aux géomatériaux de construction, (2013).
- [324] C.Y. Chen, G.S. Lan, W.H. Tuan, Microstructural evolution of mullite during the sintering of kaolin powder compacts, *Ceram. Int.* 26 (2000) 715–720.
[https://doi.org/10.1016/S0272-8842\(00\)00009-2](https://doi.org/10.1016/S0272-8842(00)00009-2).
- [325] N.S. SORO, Influence des ions fer sur les transformations thermiques de la kaolinite, Thèse Dr. l'Université Limoges Fr. (2003) 176.
- [326] G. Akçay, M.K. Yurdakoç, Nonyl- and dodecylamines intercalated bentonite and illite from Turkey, *Turkish J. Chem.* 23 (1999) 105–113.
- [327] M. GOUROUZA, A. ZANGUINA, I. NATATOU, B. Anne, Caractérisation d'une argile mixte du Niger, *Sci. Des Struct. La Matière* 1 (2013).
- [328] A. Lahsini, J. Bentama, A. Addaou, M. Rafiq, Physicochemical Characterization and Study of the Sintering of a Clay Intended for the Development of Tangential Filtration Membranes, *J. Chim. Phys* 95 (1998) 1001–1019.
- [329] A. Alemdar, M. Sain, Isolation and characterization of nanofibers from agricultural residues - Wheat straw and soy hulls, *Bioresour. Technol.* 99 (2008) 1664–1671.
<https://doi.org/10.1016/j.biortech.2007.04.029>.
- [330] A. Aarfane, A. Salhi, M. El Krati, S. Tahiri, M. Monkade, E.K. Lhadi, M. Bensitel, Etude cinétique et thermodynamique de l'adsorption des colorants Red195 et Bleu de méthylène en milieu aqueux sur les cendres volantes et les mâchefers (Kinetic and thermodynamic study of the adsorption of Red195 and Methylene blue dyes on fly ash and bot, *J. Mater. Environ. Sci* 5 (2014) 1927–1939.
- [331] J.E. Boulingui, C. Nkoumbou, D. Njoya, F. Thomas, J. Yvon, Characterization of clays from Mezafe and Mengono (Ne-Libreville, Gabon) for potential uses in fired products,

- Appl. Clay Sci. 115 (2015) 132–144. <https://doi.org/10.1016/j.clay.2015.07.029>.
- [332] L. Bouna, B. Rhouta, L. Daoudi, F. Maury, M. Amjoud, F. Senocq, M.C. Lafont, A. Jada, A. Aït Aghzzaf, Mineralogical and physico-chemical characterizations of ferruginous beidellite-rich clay from Agadir basin (Morocco), *Clays Clay Miner.* 60 (2012) 278–290. <https://doi.org/10.1346/CCMN.2012.0600305>.
- [333] V.C. Farmer, Mineralogical Society: London, (1974).
- [334] C.A. Correia, L.M. de Oliveira, T.S. Valera, The influence of bleached jute fiber filler on the properties of vulcanized natural rubber, *Mater. Res.* 20 (2017) 466–471.
- [335] R.P.G. Ranganagowda, S.S. Kamath, B. Bennehalli, A. Muddanna, D. Sampathkumar., S. Chikkol Venkateshappa, Spectral studies on chemically modified single areca fibre, *Mater. Today Proc.* 5 (2018) 28018–28025. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.matpr.2018.10.042>.
- [336] A. Arul Marcel Moshi, D. Ravindran, S.R. Sundara Bharathi, V. Suganthan, G. Kennady Shaju Singh, Characterization of new natural cellulosic fibers—a comprehensive review, in: *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, IOP Publishing, 2019: p. 12013.
- [337] B.G. Babu, D. Princewinston, S.S. Saravanakumar, A. Khan, P. V Aravind Bhaskar, S. Indran, D. Divya, Investigation on the physicochemical and mechanical properties of novel alkali-treated *Phaseolus vulgaris* fibers, *J. Nat. Fibers* 19 (2022) 770–781.
- [338] A. Chatterjee, S. Kumar, H. Singh, Tensile strength and thermal behavior of jute fibre reinforced polypropylene laminate composite, *Compos. Commun.* 22 (2020) 100483. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.coco.2020.100483>.
- [339] Y. Seki, F. Selli, Ü.H. Erdoğan, M. Atagür, M.Ö. Seydibeyoğlu, A review on alternative raw materials for sustainable production: novel plant fibers, *Cellulose* 29 (2022) 4877–4918.
- [340] J.O. Ighalo, C.A. Adeyanju, S. Ogunniyi, A.G. Adeniyi, S.A. Abdulkareem, An empirical review of the recent advances in treatment of natural fibers for reinforced plastic composites, *Compos. Interfaces* 28 (2021) 925–960.
- [341] B.S. Yew, M. Muhamad, S.B. Mohamed, F.H. Wee, Effect of alkaline treatment on structural characterisation, thermal degradation and water absorption ability of coir fibre polymer composites, *Sains Malays* 48 (2019) 653–659.
- [342] M.M. Kabir, H. Wang, K.T. Lau, F. Cardona, T. Aravinthan, Mechanical properties of chemically-treated hemp fibre reinforced sandwich composites, *Compos. Part B Eng.* 43 (2012) 159–169. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2011.06.003>.
- [343] E.U. Ikhuoria, S.O. Omorogbe, O.G. Agbonlahor, N.O. Iyare, S. Pillai, A.I. Aigbodion, Spectral analysis of the chemical structure of carboxymethylated cellulose produced by green synthesis from coir fibre, *Ciência Tecnol. Dos Mater.* 29 (2017) 55–62. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.ctmat.2016.05.007>.
- [344] A.M.M. A., R. D., S.B. S.R., P. S.R., I. S., D. D., Characterization of natural cellulosic fiber extracted from *Grewia damine* flowering plant's stem, *Int. J. Biol. Macromol.* 164 (2020) 1246–1255. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2020.07.225>.
- [345] A. Mittal, R. Katahira, M.E. Himmel, D.K. Johnson, Effects of alkaline or liquid-ammonia treatment on crystalline cellulose: changes in crystalline structure and effects

- on enzymatic digestibility, *Biotechnol. Biofuels* 4 (2011) 41.
<https://doi.org/10.1186/1754-6834-4-41>.
- [346] M. Osorio, E. Martinez, T. Naranjo, C. Castro, Recent advances in polymer nanomaterials for drug delivery of adjuvants in colorectal cancer treatment: a scientific-technological analysis and review, *Molecules* 25 (2020) 2270.
- [347] G. Bali, X. Meng, J.I. Deneff, Q. Sun, A.J. Ragauskas, The effect of alkaline pretreatment methods on cellulose structure and accessibility, *ChemSusChem* 8 (2015) 275–279.
- [348] S. Singh, S. Bhardwaj, P. Tiwari, K. Dev, K. Ghosh, P.K. Maji, Recent advances in cellulose nanocrystals-based sensors: a review, *Mater. Adv.* 5 (2024) 2622–2654.
- [349] S. Kalia, A. Dufresne, B.M. Cherian, B.S. Kaith, L. Avérous, J. Njuguna, E. Nassiopoulou, Cellulose-based bio-and nanocomposites: a review, *Int. J. Polym. Sci.* 2011 (2011) 837875.
- [350] S.R. Ferreira, M. Pepe, E. Martinelli, F. de Andrade Silva, R.D. Toledo Filho, Influence of natural fibers characteristics on the interface mechanics with cement based matrices, *Compos. Part B Eng.* 140 (2018) 183–196.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2017.12.016>.
- [351] R. Latif, S. Wakeel, N. Zaman Khan, A. Noor Siddiquee, S. Lal Verma, Z. Akhtar Khan, Surface treatments of plant fibers and their effects on mechanical properties of fiber-reinforced composites: A review, *J. Reinf. Plast. Compos.* 38 (2019) 15–30.
- [352] M.A. Mahmud, N. Abir, F.R. Anannya, A.N. Khan, A.N.M.M. Rahman, N. Jamine, Coir fiber as thermal insulator and its performance as reinforcing material in biocomposite production, *Heliyon* 9 (2023).
- [353] A. Ferrer, C. Salas, O.J. Rojas, Physical, thermal, chemical and rheological characterization of cellulosic microfibrils and microparticles produced from soybean hulls, *Ind. Crops Prod.* 84 (2016) 337–343.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2016.02.014>.
- [354] M. Mohammed, J.K. Oleiwi, A.M. Mohammed, A. Ja, A Review on the Advancement of Renewable Natural Fiber Hybrid Composites : Prospects , Challenges , and Industrial Applications A Review on the Advancement of Renewable Natural Fiber Hybrid Composites : Prospects , Challenges , and Industrial Applications, (2024).
<https://doi.org/10.32604/jrm.2024.051201>.
- [355] E. Abraham, B. Deepa, L.A. Pothan, J. Cintil, S. Thomas, M.J. John, R. Anandjiwala, S.S. Narine, Environmental friendly method for the extraction of coir fibre and isolation of nanofibre, *Carbohydr. Polym.* 92 (2013) 1477–1483.
<https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2012.10.056>.
- [356] M. Abisha, R.K. Priya, K.P. Arunachalam, S. Avudaiappan, E.I. Saavedra Flores, P.F. Parra, Biodegradable green composites: effects of potassium permanganate (KMnO₄) treatment on thermal, mechanical, and morphological behavior of *Butea parviflora* (BP) fibers, *Polymers (Basel)*. 15 (2023) 2197.
- [357] A. Kudva, M. GT, D. Pai, Influence of chemical treatment on the physical and mechanical properties of bamboo fibers as potential reinforcement for polymer composites, *J. Nat. Fibers* 21 (2024) 2332698.
- [358] A. Alawar, A.M. Hamed, K. Al-Kaabi, Characterization of treated date palm tree fiber

- as composite reinforcement, *Compos. Part B Eng.* 40 (2009) 601–606. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2009.04.018>.
- [359] P. V Vasconcelos, F.J. Lino, A. Magalhaes, R.J.L. Neto, Impact fracture study of epoxy-based composites with aluminium particles and milled fibres, *J. Mater. Process. Technol.* 170 (2005) 277–283.
- [360] L. Yan, N. Chouw, X. Yuan, Improving the mechanical properties of natural fibre fabric reinforced epoxy composites by alkali treatment, *J. Reinf. Plast. Compos.* 31 (2012) 425–437.
- [361] B.M. Esteves, H.M. Pereira, Wood modification by heat treatment: a review., *BioResources* 4 (2009).
- [362] A. Khan, R. Vijay, D.L. Singaravelu, M.R. Sanjay, S. Siengchin, M. Jawaid, K.A. Alamry, A.M. Asiri, Extraction and characterization of natural fibers from *Citrullus lanatus* climber, *J. Nat. Fibers* 19 (2022) 621–629.
- [363] A.G.N. Batara, P.S.P. Llanos, P.A.N. de Yro, G.C.D. Sanglay, E.R. Magdaluyo Jr, Surface modification of abaca fibers by permanganate and alkaline treatment via factorial design, in: *AIP Conf. Proc.*, AIP Publishing LLC, 2019: p. 30007.
- [364] K. Amutha, A. Sudha, D. Saravanan, Characterization of natural fibers extracted from banana inflorescence bracts, *J. Nat. Fibers* 19 (2022) 872–881.
- [365] P. Senthamaraiannan, M. Kathiresan, Characterization of raw and alkali treated new natural cellulosic fiber from *Coccinia grandis*.L, *Carbohydr. Polym.* 186 (2018) 332–343. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2018.01.072>.
- [366] S.A. Kavitha, R.K. Priya, K.P. Arunachalam, S. Avudaiappan, N. Maureira-Carsalade, Á. Roco-Videla, Investigation on Properties of Raw and Alkali Treated Novel Cellulosic Root Fibres of *Zea Mays* for Polymeric Composites, *Polymers (Basel)*. 15 (2023) 1802. <https://doi.org/10.3390/polym15071802>.