

MATÉRIAUX COMPOSITES À BASE DES FIBRES LIGNOCELLULOSIQUES ET DE MATRICES THERMOPLASTIQUES (PP ET PEBD)

COMPOSITE MATERIALS BASED ON LIGNO-CELLULOSIC FIBRES AND THERMOPLASTIC MATRICES (IPP AND LDPE)

Abdelkader BENDAHOU,^{a,b} Youssef HABIBI,^a Hamid KADDAMI^b et Alain DUFRESNE*^a

^aEcole Française de Papeterie et des Industries Graphiques, Institut National Polytechnique de Grenoble (EFG-INGP), BP65, 38402 Saint-Martin d'Hères Cedex, France.

^bUniversité Cadi Ayyad, Laboratoire de Chimie Bioorganique et Macromoléculaire, FST Guéliz, Avenue Abdelkrim Khattabi - BP 549 40000 Marrakech, Morocco.

Reçu le 25 mars, 2009

Les fibres lignocellulosiques du palmier dattier ont été utilisées comme renfort dans des matrices thermoplastiques (polypropylène-PP et polyéthylène basse densité-PEBD). Les fibres brutes ou compatibilisées ont été utilisées. La compatibilisation a été effectuée avec des copolymères à base d'anhydride maléique. La morphologie ainsi que les propriétés thermiques et mécaniques ont été caractérisées par microscopie électronique à balayage (MEB), analyse calorimétrie différentielle (DSC) et essais mécaniques de traction. La capacité de renforcement des fibres non modifiées dépend de la nature de la matrice polymère et du taux de cristallinité qui est le paramètre principal gouvernant le comportement du composite. La compatibilisation a permis d'améliorer les performances mécaniques pour les deux familles de composites jusqu'à une quantité critique de compatibilisant, au-delà de laquelle le taux de cristallinité du polymère diminue.

Short date palm tree lignocellulosic fibres have been used as a reinforcing phase in commodity thermoplastic matrices (polypropylene-PP and low density polyethylene- LDPE). Both unmodified and compatibilized fibres were used. Compatibilization was carried out with the use of maleic anhydride copolymers. The morphology, thermal and mechanical properties of the ensuing composites were characterized using scanning electron microscopy, differential scanning calorimetry and tensile tests. The reinforcing capability of the unmodified fibres was found to depend on the nature of the matrix and the main parameter governing the composite behaviour was the degree of crystallinity of the matrix. Compatibilization was reported to enhance the mechanical performances for both sets of composites up to a critical amount of compatibilizer beyond which the degree of crystallinity of the matrix decreases.

INTRODUCTION

Les fibres lignocellulosiques présentent de nombreux avantages par rapport aux fibres synthétiques. Le nombre de recherches récentes consacrées à l'étude des matériaux composites à base de fibres naturelles a ainsi considérablement augmenté aussi bien au niveau industriel qu'académique.¹⁻⁴ Ces recherches ont pour objectif de remplacer les fibres synthétiques comme les fibres de verres grâce à certaines propriétés spécifiques telles que le coût, la légèreté, le caractère renouvelable, la haute résistance spécifique etc.... Cependant, comparées

aux fibres synthétiques la diversité des fibres naturelles pose un problème pour les applications industrielles. En effet, les conditions climatiques, les caractéristiques du sol, la variation des saisons etc..., influencent les caractéristiques des fibres produites. Parmi les sources de fibres naturelles, très peu de travaux ont été effectués sur les fibres du palmier dattier.⁵⁻⁷ Un autre problème connu pour les composites renforcés par les fibres naturelles est la faible qualité de l'interface entre les fibres lignocellulosiques, qui sont fortement polaires et hydrophiles, et la matrice polymère, qui est non polaire et relativement hydrophobe. D'autre part, les propriétés mécaniques diminuent

*Auteur pour le corespondance : Alain.Dufresne@efpg.inpg.fr

lorsque la fraction de charges augmente.^{8,9} Le problème principal est la compatibilité interfaciale entre les fibres lignocellulosiques et les polymères thermoplastiques, qui dépend du traitement préparatoire souvent exigé afin d'augmenter l'adhérence entre les deux composants. Plusieurs stratégies ont été examinées pour améliorer l'adhérence entre les charges lignocellulosiques et la matrice polymère comme le montre une revue récente.¹⁰ La modification des fibres et/ou de la matrice se fait par des méthodes physiques et chimiques. La méthode la plus simple consiste à utiliser des copolymères greffés à base d'anhydride maléique, tels que le polypropylène maléisé en tant qu'agent compatibilisant afin d'améliorer la compatibilité interfaciale. Des améliorations des propriétés mécaniques et la résistance à l'humidité sont généralement obtenues lorsque des copolymères maléisés sont utilisés comme compatibilisant.¹¹⁻¹⁴

Le polypropylène maléisé a été employé comme agent compatibilisant pour les différents composites à base de PP comme matrice organique. Cependant, quand les composites à base de polyéthylène doivent être renforcés, le polypropylène maléique n'est pas recommandé, à cause de son incompatibilité avec le polyéthylène.¹⁵ Ainsi, l'utilisation du polyéthylène maléisé contenant des blocs d'éthylène est un meilleur choix.¹⁶ Lors de nos travaux précédents,⁷ nous avons prouvé que la modification chimique des fibres du palmier dattier avec de l'anhydride acétique permettait d'améliorer les propriétés mécanique et thermomécanique d'une matrice à base de polyépoxyde. Dans ce travail des polyoléfines ont été utilisés comme matrice pour évaluer l'effet de renforcement des fibres lignocellulosiques extraites des folioles du palmier dattier. Une étude comparative entre le polypropylène (PP) et le polyéthylène basse densité (PEBD) comme matrice est également présentée. Le PEBD est une matrice beaucoup moins employée en association avec les fibres lignocellulosiques par rapport au polypropylène (PP) ou au polyéthylène haute densité (HDPE). L'effet de l'incorporation des fibres du palmier dattier sur la microstructure, les propriétés thermiques et mécaniques a été étudié pour des fibres brutes ou bien traitées avec l'agent de couplage. On constate que le taux de cristallinité de la matrice thermoplastique joue un rôle prédominant quand à sa sensibilité à l'effet de renforcement par les fibres naturelles.

EXPÉRIMENTAL

Matériel

Matrice polymère

Le polyéthylène basse densité (PEBD) utilisé pour l'étude est le PB-608. Il a été fourni par Braskem et possède une densité de 0.915 g.cm^{-3} et un indice d'écoulement ($190^\circ\text{C}/2.16$ kilogramme) de 30g/10min. Le polypropylène utilisé pour l'étude était PP-RP 141. Il a été fourni par Braskem et possède une densité de 0.902 g.cm^{-3} et un indice d'écoulement ($190^\circ\text{C}/2.16$ kilogramme) de 40 g/10min.

Préparation des fibres

Les renforts lignocellulosiques, de 3 mm de longueur et environ 0.5 mm de largeur, ont été obtenus par broyage et tamisage des folioles de palmier. Ces fibres ont été alors extraites dans un Soxhlet à reflux par un mélange de solvant acétone/éthanol (75/25 v/v). Les fibres dépigmentées ont été ensuite séchées à 80°C pendant 2 heures. Les fibres résultantes sont désignées fibres non modifiées.

Agent de couplage

Pour chaque polymère thermoplastique nous avons préparé deux types de composites, avec et sans agent de couplage. Les agents de couplage utilisés pour les composites à base de PEBD et PP sont respectivement le PEGAM et le PPgAM. Le PPgAM utilisé est OVERAC CA 100 d'Atofina, avec un indice d'écoulement de 10g/10min et une densité de 0.909 g.cm^{-3} . PEGAM est un terpomère d'éthylène, d'acétate de vinyle et d'anhydride maléique d'Atofina, contenant moins de 2 % en poids d'AM. Son nom commercial est OVERAC EVA d'Atofina, avec un indice d'écoulement de 15 g/10min et une densité de 0.94 g.cm^{-3} .

Traitement des composites

Les composites à base de fibres de palmier dattier et de PEBD (ou PP) ont été préparés à l'aide d'un microcompounder : le 15 compounder DSM bi-vis. Les fibres sèches de palmier et l'agent de couplage ont été mélangés avec la matrice thermoplastique avec différents pourcentages afin d'étudier l'effet de la quantité de charges et d'agent de couplage sur les propriétés des composites. Pour les composites préparés sans agent de couplage la teneur en renfort a été variée de 0 à 40 % en poids. L'effet de l'agent de couplage a été étudié en choisissant une teneur de renfort constante de 30% en poids et avec une quantité d'agent de couplage variant de 0 à 20 % en poids. Les fibres de palmier et le polymère thermoplastique ont été introduits dans la chambre de mélange avec une vitesse allant jusqu'à 50 trs/min pendant 10 minutes. La température de mélange est respectivement, 150°C et 180°C pour les composites à base de PEBD et PP. Les mélanges résultants sont compressés à l'aide d'une presse sous une force de 10 tonnes et à une température de 100°C et 150°C pour les composites à base de PEBD et PP, respectivement.

Méthodes expérimentales

La microscopie électronique à balayage (MEB) a été utilisée pour étudier la morphologie des différents matériaux et observer l'interface renfort/matrice en utilisant un microscope ABT-55. Les échantillons ont été trempés dans l'azote liquide, rompus, montés sur porte échantillon, enduits avec une solution or/palladium et observés en utilisant une tension de 10 kV.

Les analyses de calorimétrie différentielle à balayage (DSC) ont été réalisées avec une DSC Mettler TA 3000 avec des échantillons d'environ 10 mg enfermés dans des capsules d'aluminium. Les échantillons ont été analysés sous

atmosphère d'argon dans un intervalle de température allant de 25 °C jusqu'à 200 °C et une vitesse de chauffage de 10 °C.min⁻¹. La température de fusion, T_F, ainsi que l'enthalpie de fusion, ΔH_m, des échantillons ont été déterminées. Le taux de cristallinité, χ_c, des échantillons a été calculé selon l'équation suivante :

$$\chi_c (\%) = \frac{\Delta H_m}{\Delta H_\infty} \times \frac{100}{1 - w_F}$$

L'enthalpie de fusion d'un polymère 100% cristallin, ΔH_∞, est de l'ordre de 280 J.g⁻¹ pour le PE^{17,18} et 180 J.g⁻¹ pour le PP¹⁹. La correction pour l'effet de dilution lié à l'incorporation de renfort dans la matrice a été réalisée en calculant l'enthalpie de fusion des composites, où W_F correspond à la teneur en renfort. La température de fusion et l'enthalpie de fusion des différents échantillons ont été déterminées à partir de la moyenne de trois mesures séparées.

Les essais de traction ont été réalisés à 25 °C en utilisant une vitesse d'étirement de 10 mm.min⁻¹ selon la norme ISO 178. Dans ces conditions le comportement mécanique est ductile, à la suite de l'apparition de la striction. Ainsi, nous déterminons la contrainte maximale, le module de Young et l'énergie absorbée par unité de volume à la limite d'élasticité. Les propriétés de rupture n'ont pas été prises à cause des résultats aléatoires obtenus. La machine d'essai est un 2/M de la société MTS (cellule de charge : 10 kN). Les échantillons sont des parallélépipèdes avec des dimensions de 40×5×1 mm³.

RÉSULTATS ET DISCUSSION

Étude Morphologique

Les figures 1 a-c et 2 a-c présentent les micrographies MEB réalisées sur les faciès de rupture des matériaux composites à base de PP et PEBD, respectivement. Les matériaux renforcés par des fibres de palmier brutes ou traitées avec l'agent de couplage ont été étudiés. Pour chaque matériau composite, deux échelles d'observation différentes ont été employées afin de montrer l'effet de l'introduction de l'agent de couplage sur l'adhérence interfaciale entre le renfort et la

matrice polymère. Pour les matériaux non renforcés, c'est-à-dire pour les matrices thermoplastiques (fig. 1-a et 2-a), la surface de rupture est plutôt lisse traduisant une rupture fragile des polymères puisque cette rupture a été réalisée à la température de l'azote liquide. En comparant ces micrographies à celles des matériaux composites, présentées sur les figures 1 b-c et 2 b-c, les fibres peuvent être clairement identifiées.

Les micrographies MEB pour les composites à base de fibres non modifiés, présentées sur les figures 1-b et 2-b pour le PP et le PEBD, respectivement, indiquent clairement que l'adhésion entre les fibres lignocellulosiques et la matrice polymère est faible. Ceci est clairement mis en évidence par l'absence de tout contact physique entre les deux composants. Les fibres sont extraites de la matrice thermoplastique après rupture du matériau. D'autre part, la rupture des échantillons n'a pas permis de casser les fibres du palmier dattier. On observe aussi l'apparition de vides sous forme des trous dus au déchaussement des fibres de la matrice. La faible polarité des matrices thermoplastiques (PEBD et PP) et l'énergie de surface élevée des fibres celluloses sont responsables du manque de compatibilité et du manque de contact entre la matrice et le renfort.

Au contraire, pour les composites modifiés c'est-à-dire pour lesquels l'agent de couplage a été introduit, les analyses par MEB montrent que ces agents améliorent l'adhésion entre la matrice polymère et les fibres de palmier (figure 1-c et 2-c). D'après, ces observations par MEB, il est prévisible d'obtenir des meilleures propriétés mécaniques pour les composites dans lesquels l'agent de couplage est introduit.

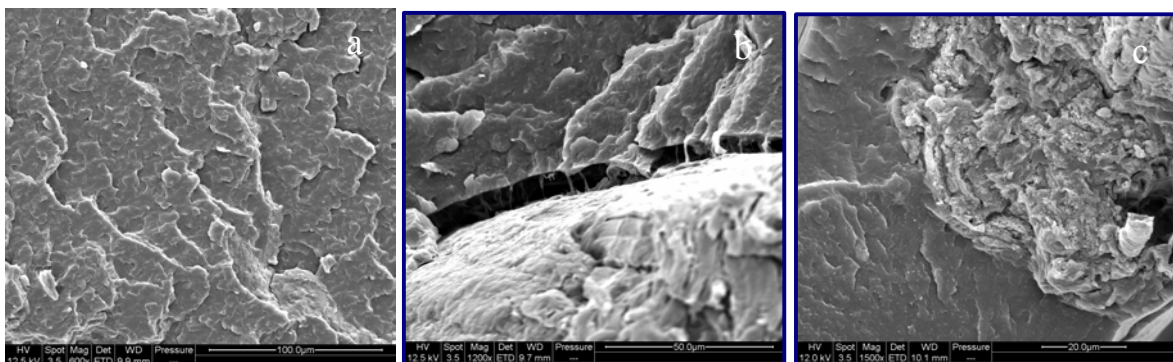


Fig. 1 – Micrographies électroniques à balayage de la surface fraîchement rompue de matériaux composites à matrice polypropylène avec (a) 0% en poids, (b) 30 % en poids de fibres de folioles du palmier dattier et (c) 30 % en poids de fibres en présence de 30 % de polyéthylène greffé anhydride maléique (PPgAM).

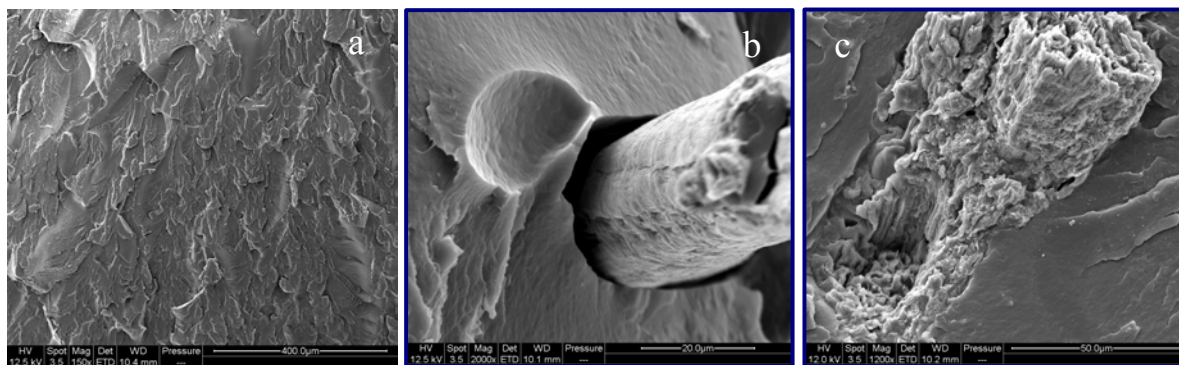


Fig. 2 – Micrographies électroniques à balayage de la surface fraîchement rompue de matériaux composites à matrice polyéthylène à base densité avec (a) 0 % en poids, (b) 20 % en poids de fibres de folioles du palmier dattier et (c) 30 % en poids de fibres en présence de 10 % de polyéthylène greffé anhydride maléique (PEgAM).

Comportement thermique

Comme nous l'avons mentionné dans la partie expérimentale, les mesures de DSC ont été réalisées afin d'étudier l'effet de l'introduction des fibres de palmier sur le point de fusion et le taux de cristallinité des matrices thermoplastiques. Les résultats en fonction de la quantité d'agent de couplage et de fibres sont rassemblés dans le tableau 1 et 2 pour les composites à base de PEBD et PP, respectivement. Le point de fusion, T_m , l'enthalpie de fusion brute et corrigée, ΔH_m et ΔH_{mc} , respectivement, et le taux de cristallinité, χ_c , sont rapportés. Dans le tableau 1 (composites à base de PEBD), on voit clairement que les valeurs de T_m et χ_c restent constantes même si on augmente la teneur en fibre lignocellulosique. Ceci est une indication que la taille et la quantité de la phase cristalline dans la matrice de PEBD n'ont pas été influencées par la présence du renfort. En ajoutant une faible quantité de compatibilisant tel que PEgAM (on suppose que les composites renforcés par 28 et 30 % en poids se comportent de la même façon), le point de fusion augmente légèrement de 103.2°C à 106.2°C. Pour une quantité plus élevée de compatibilisant, elle diminue à 104-105°C. Le taux de cristallinité augmente légèrement lorsqu'une faible quantité d'agent de couplage est introduite dans le composite et diminue par la suite de manière significative lorsqu'une plus grande quantité d'agent de couplage est introduite. Ceci montre qu'une faible quantité de PEgAM favorise la cristallisation de la matrice PEBD à cause d'une adhésion favorable.

Tableau 1

Caractéristiques de fusion des composites à base de PEBD renforcés par des fibres de palmier dattier obtenues à partir des courbes DSC : température de fusion (T_f), enthalpie de fusion exprimée en fonction du composite (ΔH_m) ou du poids de matrice (ΔH_{mc}), et taux de cristallinité (χ_c).

PP/ fibre/ compatibilisant (wt%)	T_f (°C)	ΔH_m (J/g _{composite})	ΔH_{mc} (J/g PP)	χ_c (%)
100 / 0 / 0	102	74.4	74.4	26.1
93 / 7 / 0	102	70.4	75.7	26.6
85 / 15 / 0	103	62.4	73.4	25.8
72 / 28 / 0	103	52.8	73.3	25.7
69 / 30 / 1	106	53.4	76.3	26.8
65 / 30 / 5	105	52.2	74.6	26.2
60 / 30 / 10	105	47.4	67.7	23.8
40 / 30 / 30	104	40.2	57.4	20.1

Tableau 2

Caractéristiques de fusion des composites à base de PP renforcés par des fibres de palmier dattier obtenues à partir des courbes DSC : température de fusion (T_f), enthalpie de fusion exprimée en fonction du composite (ΔH_m) ou du poids de matrice (ΔH_{mc}), et taux de cristallinité (χ_c).

PP/ fibre/ compatibilisant (wt%)	T_f (°C)	ΔH_m (J/g _{composite})	ΔH_{mc} (J/g PP)	χ_c (%)
100 / 0 / 0	148	69.7	69.7	33.6
93 / 7 / 0	150	71.5	76.9	37.1
85 / 15 / 0	150	66.0	77.7	37.5
79 / 21 / 0	150	58.2	80.9	39.0
72 / 28 / 0	148	46.4	77.3	37.3
69 / 30 / 1	149	65.2	93.2	45.0
65 / 30 / 5	150	60.2	86.0	41.6
60 / 30 / 10	151	62.6	89.4	43.1
55 / 30 / 15	153	58.1	82.9	40.0
40 / 30 / 30	155	49.9	71.3	34.4

Dans le tableau 2 (composites à base de PP), on observe un comportement différent. La température de fusion est légèrement plus importante dans les matériaux composites et ne semble pas être affectée par le taux de fibres dans le matériau composite. De la même façon le taux de cristallinité est plus important dans les composites comparativement à la matrice pure et ne semble pas être influencé par le taux de renfort. Cette augmentation du taux de cristallinité est probablement due à un phénomène de nucléation entraînant la formation d'une phase transcristalline du polymère à la surface des fibres.

Ce phénomène est d'avantage accentué en présence d'une faible quantité de compatibilisant. Ceci est probablement dû au développement de fortes interactions entre les fibres de palmier et le polymère en présence du compatibilisant.

Cependant, pour des taux d'agent de couplage plus élevés (> 5 % en poids) la température de fusion augmente et le taux de cristallinité diminue fortement. Des résultats semblables ont été rapportés par Mutjé *et al.*²⁰ mais pour des quantités de compatibilisant plus faibles.

Propriétés de traction

Les propriétés mécaniques ont été étudiées moyennant des essais mécaniques en traction appliqués sur les composites en fonction du taux de fibres et en fonction du taux de compatibilisant à taux de renfort fixe. Les différents résultats sont

présentés dans le tableau 3 pour les composites à base de PP et de PEBD. Le tableau 3 montre l'évolution du module de traction, de la contrainte maximale et de l'énergie absorbée par unité de volume à la limite d'élasticité, respectivement, en fonction de la quantité de fibres non modifiées et en fonction de la teneur en compatibilisant pour des composites renforcés avec 30% en poids de fibres.

Pour les matériaux à base de PP, ces trois paramètres tendent à diminuer en ajoutant les fibres lignocellulosiques non modifiées. Cette perte de propriétés mécaniques est en bon accord avec l'analyse microscopique qui a montré un manque flagrant d'adhésion entre la matrice de PP et les fibres non modifiées. Comme prévu lors des observations par MEB, l'introduction de compatibilisant dans la formulation entraîne une amélioration des propriétés mécaniques (tableau 3). Cette amélioration est attribuée à la meilleure adhésion obtenue suite à l'introduction de l'agent de couplage qui se traduit par un meilleur transfert de contrainte entre la matrice de PP et les renforts. Cependant, on observe clairement l'existence d'une teneur critique de compatibilisant, entre 5 et 10 % en poids, au delà de laquelle on observe une diminution des propriétés mécaniques. Cette quantité de compatibilisant est probablement suffisante pour enrober les fibres lignocellulosiques. L'excès du compatibilisant joue le rôle de plastifiant pour le système et diminue le taux de cristallinité de la matrice de PP comme dans le cas des mesures de DSC (tableau 2).

Tableau 3

Propriétés mécaniques obtenues à partir des essais de traction des composites à base de PP et de PEBD : module de Young (E), contrainte maximale (σ_y) et énergie absorbée à la limite élastique (E_y).

Fibre / compatibilizer content (wt%)	PP			PEBD		
	E (Mpa)	σ_y (Mpa)	E_y (J/mm ³)	E (Mpa)	σ_y (Mpa)	E_y (J/mm ³)
0 / 0	797±93	28±5,13	0,0027	128±29	7,61±0,1	0,0064
7.8 / 0	693±51	23±0,51	0,0018	219±37	6,47±0,47	0,0014
15 / 0	646±13	21±1,16	0,0016	232±16	5,76±0,68	0,0012
21 / 0	***	**	**	268±16	5,82±0,07	0,0007
28.4 / 0	667±93	17±0,72	0,0009	390±22	6,71±0,61	0,0005
40 / 0	750±224	18±0,39	0,001	***	***	***
30 / 0	667±93	17±0,72	0,0009	390±22	6,71±0,61	0,0005
30 / 1	1056±255	22±1,99	0,0012	458±37	7,87±0,4	0,0004
30 / 2,5	1211±231	29±0,71	0,0012	***	***	***
30 / 5	1329±155	28±2,04	0,001	389±47	10,15±0,26	0,001
30 / 10	1283±43	31±2,62	0,0014	387±16	10,45±0,39	0,001
30 / 15	1103±104	31±1,53	0,0016	***	***	***
30 / 30	805±114	18±2,53	0,0008	365±48	8,39±0,23	0,0008

L'ajout des fibres de palmier non modifiées dans la matrice de PEBD (tableau 3) provoque un comportement différent de celui des composites à base de PP. En effet, le module de traction augmente de manière significative avec l'addition de renfort. Cependant, la contrainte et l'énergie à la limite d'élasticité tendent à diminuer et à se stabiliser pour les taux élevés de renfort. Ces dernières observations sont en accord avec le manque d'adhésion entre la matrice et les renforts comme montré dans l'analyse du MEB. L'augmentation du module par l'addition de renfort est attribuée à la différence entre le module du PEBD et des fibres lignocellulosiques. Cette différence de rigidité de matrice entre le PEBD et le PP est associée au taux de cristallinité inférieur (tableaux 1 et 2).

La compatibilisation entre la matrice PEBD et les renforts lignocellulosiques par PEgAM n'a pas changé le module de traction du composite. Cependant, la contrainte et l'énergie du composite ont été augmentés. Pour les composites à base de PP on observe l'existence d'une teneur critique de compatibilisant, entre 5 et 10 % en poids, au delà de laquelle il y aura une diminution des propriétés mécaniques. Elle est associée à une diminution du taux de cristallinité de la matrice. La différence de comportement mécanique entre les composites à base de PP et PEBD a été expliquée par la différence significative du taux de cristallinité entre les deux matrices thermoplastiques. En effet, le PEBD, qui est un polymère mou à température ambiante avec un taux de cristallinité faible, est très sensible à l'introduction des fibres de palmier qui ont un module relativement plus élevé. Au contraire, l'introduction du renfort a un effet plus modeste dans le cas de la matrice PP.

Toutefois, pour les deux familles de composites, le compatibilisant a le même effet sur les propriétés mécaniques. Le module, la contrainte et l'énergie au seuil d'élasticité augmentent. Ceci est dû à l'amélioration de l'adhésion entre la matrice thermoplastique et le renfort comme confirmé par les observations MEB. En outre, pour les deux familles de composites on observe une teneur critique de compatibilisant au-delà de laquelle la dégradation des performances mécaniques se produit. Elle est attribuée à un effet de plastification induisant une diminution du taux de cristallinité de la matrice pour les deux familles de composites.

CONCLUSIONS

La morphologie et les propriétés thermiques et mécaniques du PP et du PEBD renforcés avec des fibres lignocellulosiques extraites des folioles du palmier dattier ont été étudiées. En dépit d'une structure chimique semblable, ces deux polymères thermoplastiques ont des structures physiques différentes. Le PP est formé de chaînes linéaires et présentes un taux de cristallinité relativement élevé, tandis que le PEBD est un polymère ramifié avec un taux de cristallinité faible. Les mesures de DSC montrent que le taux de cristallinité de PP augmente suite à l'ajout de renfort et que celui de PEBD reste constant. Le taux de cristallinité des composites à base de PP augmente en ajoutant une faible quantité de compatibilisant, puis diminue pour des quantités plus élevées. Pour les composites à base de PEBD, le taux de cristallinité reste constant et diminue pour une quantité de compatibilisant supérieure à 10 % en poids. Ceci a été attribué à la difficulté de cristallisation des chaînes branchées de PEBD.

Pour les deux familles de composites il a été montré que l'adhésion interfaciale a été sensiblement améliorée en utilisant un compatibilisant. D'autre part, au delà d'un taux critique de compatibilisant, on a observé une diminution du taux de cristallinité. Des différences dans les performances mécaniques des deux composites à base de matrice thermoplastiques ont été également observées. Le module des composites à base de fibres non modifiées et de PP reste constant lors de l'ajout du renfort tandis que pour les composites à base de PEBD le module augmente d'une manière significative. L'étude de l'effet du compatibilisant sur les propriétés mécaniques montre que, pour les deux familles de composites, les propriétés mécaniques ont été améliorées quand on ajoute le compatibilisant dans la formulation jusqu'à une quantité critique déterminée par DSC.

Remerciements : Les auteurs remercient le Centre National Marocain de la Recherche Technique et Scientifique (CNRST) pour son aide financière dans le cadre d'un programme PROTARS, le Centre Français National de la Recherche Scientifique (CNRS) dans le cadre d'un programme PICS (# 824), l'AUF (Projet de Coopération Scientifique Interuniversitaire) et le Ministère Français des Affaires Etrangères (programme Corus 6046). Mme Bertine Khelifi (EFGG-INPG) est remerciée pour son aide dans les analyses par microscopie électronique à balayage MEB.

REFERENCES

1. A. K. Bledzki et Gassan, *Prog. Polym. Sci.*, **1999**, *24*, 221.
2. S. J. Eichhorn, C. A. Baillie, N. Zafeiropoulos, L. Y. Nwaikambo, M. P. Ansell, A. Dufresne, K. M. Entwistle, P. J. Herrera-Franco, G. C. Escamilla, L. Groom, M. Hugues, C. Hill, T. G. Riaes et P. M. Wild, *J. Mater. Sci.*, **2001**, *36*, 2107.
3. Eco-composites, A special issue of *Compos. Sci. Technol.*, **2003**, *63*, 1-112, a collection of 14 publications all dedicated to cellulose-based composite materials.
4. A. K. Mohanty, M. Misra et L. T. Dzral, "Natural fibres, biopolymers, and biocomposites", CRC Press, 2005.
5. B. F. Abu-Sharakh et H. Hamid, *Polym. Degrad. Stab.*, **2004**, *85*, 967.
6. K. Al-Kaabi, A. Al-Ahanbashi et A. Hammami, *Polym. Compos.*, **2005**, *26*, 604.
7. H. Kaddami, A. Dufresne, B. Khelifi, A. Bendahou, M. Taourirte, M. Raihane, N. Issartel, H. Sautereau, J. F. Gérard et N. Sami, *Composites: Part A: Applied Science and Manufacturing*, **2006**, *37*, 1413.
8. H. S. Yang, H. J. Kim, J. Son, H. J. Park, B. J. Lee et T. S. Hwang, *Compos. Struct.*, **2004**, *63*, 305.
9. S. Y. Lee, H. S. Yang, H. J. Kim, C. S. Jeong, B. S. Lim et J. N. Lee, *Compos. Struct.*, **2004**, *65*, 459.
10. M. N. Belgacem et A. Gandini, *Compos. Interfaces*, **2005**, *12*, 41.
11. M. N. Anglès, J. Salvado et A. Dufresne, *J. Appl. Polym. Sci.*, **1999**, *74*, 1962.
12. D. F. Caulfield, D. Feng, S. Prabawa, R. A. Young et A. R. Sanadi, *Die Angew. Makromol. Chem.*, **1999**, *272*, 57.
13. M. E. Malainine, M. Mahrouz, M. et A. Dufresne, *Macromol. Mat. Eng.*, **2004**, *289*, 855.
14. H. Faria, N. Cordeiro, M. N. Belgacem, et A. Dufresne, *Macromol. Mat. Eng.*, **2006**, *291*, 16.
15. S. M. Lai, F. C. Yeh, Y. Wang, H. C. Chan et H. F. Shen, *J. Appl. Polym. Sci.*, **2003**, *87*, 487.
16. T. J. Keener, R. K. Stuart et T. K. Brown, *Composites: Part A*, **2004**, *35*, 357.
17. K. Sirisinha et D. Meksawat, *J. Appl. Polym. Sci.*, **2004**, *93*, 1179.
18. M. Bengtsson et K. Oksman, *Compos. Sci. Technol.*, **2006**, *66*, 2177.
19. A. Arbeláiz, B. Fernandez, J. A. Ramos et I. Mondragon, *Thermochemica Acta*, **2006**, *440*, 111.
20. P. Mutjé, A. Lopez, M. E. Vallejos, J. P. Lopez et F. Vilaseca, *Composites: Part A*, **2007**, *38*, 369.