

UNIVERSITÉ D'ORLÉANS**ÉCOLE DOCTORALE Matériaux - Sciences de la Terre et de l'Univers****Laboratoire de Mécanique Gabriel Lamé****THÈSE présentée par :****Chafic ACHOUR**soutenue le : **24 Octobre 2023**pour obtenir le grade de : **Docteur de l'Université d'Orléans**Discipline/ Spécialité : **Génie Civil****Etude multi-échelles du Gonflement – Retrait des matériaux
biosourcés****Thèse dirigée par :****Mme Naima BELAYACHI****M. Sébastien REMOND**

Professeur, Université d'Orléans, directeur de thèse

Professeur, Université d'Orléans, co-directeur de
thèse**JURY :****M. Ouali AMIRI****M. Eric Garcia DIAZ****Mme Fouzia
KHADRAOUI****M. Frederic
BECQUART****Mme Naima
BELAYACHI****M. Sébastien REMOND**

Professeur, Université de Nantes,

Professeur, Ecole des mines d'Ales

Maître de conférences-HDR, Builders
ingénieurs

Maître de conférences, IMT Nord Europe

Professeur, Université d'Orléans

Professeur, Université d'Orléans

Président**Rapporteur****Rapporteur****Examineur****Directeur de
thèse****Co-directeur de
thèse**

Chafic ACHOUR

Etude multi-échelles du Gonflement – Retrait des matériaux biosourcés

Résumé :

Le présent travail de thèse se concentre sur une étude approfondie du comportement de gonflement et de retrait des matériaux biosourcés, en tenant compte des variations d'humidité relative et en mettant en lumière des méthodes et protocoles de mesures pour ces nouveaux matériaux fortement hétérogènes. L'objectif fondamental est d'examiner ces phénomènes à différentes échelles, en commençant par une analyse microscopique des granulats végétaux.

Les analyses microscopiques ont révélé que la moelle de tournesol présente un gonflement moyen de gonflement de 42%, suivie de la paille de blé avec 24%, puis la paille de colza avec 16,6%, et enfin l'écorce de tournesol avec 5% entre des taux d'humidité relative de 12% et 90%. Dans cette perspective, deux traitements préalables ont été utilisés pour réduire les variations dimensionnelles : le bicarbonate de sodium et le chlorure de sodium. Le protocole de traitement a été optimisé en examinant l'influence de la durée du traitement et du rinçage sur le gonflement et le retrait des granulats. Les résultats mettent en évidence une efficacité différenciée du traitement au bicarbonate de sodium par rapport au chlorure de sodium, réduisant le gonflement des granulats de plus de 60%. En revanche, le chlorure de sodium ne le réduit que de 20%. Cette différence est attribuée à la modification des constituants chimiques des granulats induite par le traitement, réduisant voire éliminant les constituants responsables du caractère hydrophile des granulats.

Une contribution significative de cette thèse réside dans la conception et la réalisation d'un dispositif expérimental novateur, à savoir un banc d'essai permettant la mesure sans contact des déplacements à l'échelle macroscopique des matériaux hétérogènes. L'utilisation de capteurs laser de déplacement a permis de mesurer les déplacements de ces matériaux sous des conditions climatiques extrêmes, en particulier en appliquant des protocoles de vieillissement accéléré impliquant des cycles d'immersion/séchage et d'humidification/séchage. Les résultats montrent que le comportement de gonflement et de retrait des biocomposites varie en fonction du type de granulats utilisés. L'analyse des résultats a révélé un comportement opposé entre l'épaisseur et la hauteur des biocomposites en réponse à la variation d'humidité. Pendant la phase d'humidification, la hauteur se rétracte et l'épaisseur gonfle, tandis que pendant la phase de séchage, la hauteur gonfle et l'épaisseur se rétracte. Une compétition entre le gonflement interne des granulats du biocomposite et l'effet gravitationnel de l'eau est en jeu qui par conséquent influence le comportement mécanique des biocomposites.

En outre, cette recherche se penche également sur le comportement complexe des biocomposites recouverts d'un enduit de protection et la compréhension des phénomènes de gonflement et de retrait dans le cas du système isolant-enduit. À l'aide du banc d'essai équipé des capteurs laser de déplacement, une série d'expériences a été entreprise pour évaluer l'impact de ces phénomènes sur les biocomposites étudiés et leur interaction avec l'enduit. Le rôle de l'enduit dans la limitation des déformations dues au gonflement et au retrait est établi, bien que des variations des déformations différentielles et de la potentialité de formation de fissures entre le biocomposite et l'enduit soient observées.

Dans un contexte plus général, ce travail offre une contribution pionnière à la compréhension avancée des variations dimensionnelles des matériaux biosourcés face aux variations d'humidité et à leur interaction avec des revêtements de protection. Les implications de cette recherche vont au-delà de la sphère académique, puisqu'elles suscitent des perspectives prometteuses pour l'application pratique de ces matériaux dans des environnements réels de construction.

Mots clés : Granulats végétaux – Gonflement – Retrait – Traitement – Biosourcés

Multi-scale study of Swelling – Shrinkage of Bio-based Materials

Summary:

This doctoral study focuses on an in-depth investigation of the swelling and shrinkage behavior of biobased materials, taking into account variations in relative humidity and highlighting measurement methods and protocols for these highly heterogeneous new materials. The fundamental objective is to examine these phenomena at different scales, starting with a microscopic analysis of plant aggregates.

Microscopic analyses revealed that sunflower pith exhibited an average swelling of 42%, followed by wheat straw with 24%, then rapeseed straw with 16.6%, and finally sunflower husk with 5% between relative humidity levels of 12% and 90%. In this context, two pre-treatments were employed to reduce dimensional variations: sodium bicarbonate and sodium chloride. The treatment protocol was optimized by studying the influence of treatment duration and rinsing on the swelling and shrinkage of aggregates. The results highlight differential effectiveness between sodium bicarbonate and sodium chloride treatments, with the former reducing aggregate swelling by over 60%, whereas the latter reduces it by only 20%. This disparity is attributed to the modification of aggregate chemical constituents induced by the treatment, reducing or eliminating components responsible for hydrophilic behavior.

A significant contribution of this thesis lies in the design and implementation of an innovative experimental setup, namely a testing enabling contactless measurement of macroscopic displacements of heterogeneous materials. The use of laser displacement sensors facilitated the measurement of material displacements under climatic conditions, particularly through accelerated aging protocols involving immersion/drying and humidification/drying cycles. The results demonstrate that the swelling and shrinkage behavior of biocomposites varies based on the type of aggregate used.

The analysis revealed an opposing behavior between biocomposite thickness and height in response to humidity variation. During the humidification phase, height contracts and thickness expands, while during the drying phase, height expands and thickness contracts. A competition between internal swelling of the biocomposite aggregates and the gravitational effect of water is at play, consequently influencing the mechanical behavior of biocomposites.

Furthermore, this research delves into the complex behavior of biocomposites coated with a protective coating and seeks to understand swelling and shrinkage phenomena in the insulation-coating system. Using the testing equipped with laser displacement sensors, a series of experiments were conducted to assess the impact of these phenomena on the studied biocomposites and their interaction with the coating. The role of the coating in limiting deformations due to swelling and shrinkage is established, although variations in differential deformations and the potential formation of cracks between the biocomposite and the coating are observed.

In a broader context, this work offers pioneering insight into the advanced understanding of dimensional variations in response to humidity changes and their interaction with protective coatings in biobased materials. The implications of this research extend beyond the academic realm, as they hold promising prospects for the practical application of these materials in real construction environments.

Keywords: Plant Aggregates – Swelling – Shrinkage – Treatment – Bio-based

Remerciements

Ce travail de thèse doctoral a été réalisé au Laboratoire de Mécanique Gabriel Lamé (LAME) à l'Université d'Orléans.

Je souhaite exprimer ma profonde gratitude à toutes les personnes qui ont contribué à la réussite de cette thèse. Ce travail n'aurait pas pu aboutir sans le soutien de Madame Naima BELAYACHI et de Monsieur Sébastien REMOND. Je les remercie pour leur encouragement et pour m'avoir accompagné tout au long de mon parcours à Polytech Orléans, durant mon master recherche à l'Université d'Orléans et pendant ma thèse au laboratoire LAME.

Je remercie également vivement les membres du jury pour l'immense honneur qu'ils m'ont fait en évaluant mon travail de thèse : M. Eric Garcia DIAZ, Professeur des universités, École des Mines d'Alès ; Mme Fouzia KHADRAOUI, Maître de conférences-HDR, Builders Ingénieurs ; M. Ouali AMIRI, Professeur des universités, Université de Nantes ; et M. Frédéric BECQUART, Maître de conférences, IMT Nord Europe.

Je tiens à manifester ma reconnaissance la plus sincère à ma directrice de thèse, Madame Naima Belayachi, pour l'excellence de son encadrement scientifique, sa disponibilité, ses précieux conseils, ses compétences, son soutien indéfectible, ainsi que pour ses qualités humaines qui m'ont été d'une aide précieuse tout au long de cette thèse. Je remercie également chaleureusement mon co-directeur de thèse, Monsieur Sébastien Remond, pour ses compétences, son suivi enrichissant au quotidien, et ses qualités scientifiques et humaines.

Je tiens également à remercier l'université d'Orléans et le laboratoire LaMé pour les ressources mises à ma disposition et le cadre de travail exceptionnel.

Je n'oublie pas ma famille et mes ami(e)s, pour leur patience, leur soutien moral et leurs encouragements **constants tout au long de cette aventure. Leur présence a été essentielle pour mener à bien ce projet.**

À toutes et à tous, merci infiniment.

Table des matières

Liste des figures.....	iv
Liste des tableaux.....	x
Introduction générale.....	1
Chapitre I : Etat de l’art sur les matériaux biosourcés et leurs propriétés vis-à-vis de l’humidité	6
I.1 Introduction.....	6
I.2 Compositions des matériaux biosourcés : rôle du liant	7
I.3 Granulats végétaux.....	8
I.3.1 Structuration des parois cellulaires et composition biochimique.....	10
I.3.2 Influence de la composition chimique sur les propriétés des granulats.....	14
I.4 Caractéristiques principales des matériaux biosourcés : mécaniques et thermiques.....	15
I.5 Sensibilité aux conditions d’humidité	17
I.6 Mode de fixation de l’humidité.....	18
I.7 Hystérésis et comportement hygroscopique	19
I.7.1 Cas des granulats végétaux	20
I.7.2 Cas des matériaux biosourcés	21
I.8 Traitement des fibres : changement microstructuraux et influence sur le comportement hydrique	22
I.8.1 Types de traitements des granulats :	23
I.9 Gonflement et retrait	29
I.9.1 Mécanismes d'absorption d'eau et gonflement des granulats végétaux	29
I.9.2 Influence des composants des granulats végétaux sur le gonflement	30
I.9.3 Effets du cycle de gonflement et retrait sur les granulats végétaux.....	31
I.9.4 Impact des cycles humidification et séchage sur l'interface granulats-liant	33
I.10 Mesure des déformations des granulats végétaux et biocomposites.	34
I.10.1 Echelle microscopique.....	34
I.10.2 Echelle macroscopique.....	38
I.11 Mesure et quantification du gonflement et retrait des granulats végétaux	41
I.12 Notion du coefficient d’hygro-expansion.....	43
I.13 Conclusion	45
II.1 Introduction.....	47
II.2 Matériaux de l’étude	47
II.2.1 Les granulats.....	47
II.2.2 Caractéristiques des granulats	48

II.2.3	Produit de traitement.....	50
II.2.4	Matériaux biosourcés biocomposites	50
II.2.5	Matériaux avec enduit de protection.....	51
II.3	Etude des variations dimensionnelles des granulats	52
II.3.1	Préparation des granulats	52
II.3.2	Conditions de conservation.....	53
II.3.3	Observations microscopiques	53
II.3.4	Méthode d'analyse et de calcul	56
II.3.5	Quantification des composants chimiques des granulats.....	57
II.4	Variation dimensionnelle des composites	59
II.4.1	Principe de la mesure du banc d'essai développé	59
II.4.2	Conditions de conservation.....	61
II.4.3	Méthodologie de mesure	62
II.4.1	Implantation des points de mesure	65
II.4.2	Analyse des données et quantification du gonflement et retrait	66
II.5	Variation dimensionnelle du système composite-enduit	67
II.5.1	Conditions de conservation.....	67
II.5.2	Analyse des données et quantification des variations dimensionnelles.....	69
II.6	Conclusion	71
III.1	Introduction.....	73
III.2	Mesure du gonflement et retrait des granulats non traités	73
III.2.1	Variations morphologiques des granulats en fonction de l'humidité.....	73
III.2.2	Quantification du gonflement et retrait en fonction de l'humidité relative.....	79
III.2.3	Détermination du coefficient de l'hygroexpansion des granulats végétaux	80
III.3	Traitement des granulats végétaux en vue de réduire leur sensibilité aux variations d'humidité	82
III.4	Optimisation du protocole de traitement.....	83
III.4.1	pH des solutions de traitement des granulats	84
III.4.2	Absorption d'eau	85
III.4.3	Effet du temps d'immersion.....	87
III.4.4	Effet des cycles d'humidification et de séchage.....	90
III.5	Etude du gonflement et retrait des granulats traités	91
III.5.1	Détermination du coefficient hygro-expansion et hygro retraction.....	91
III.5.2	Impact des cycles répétés d'immersion et de séchage sur le gonflement-retrait	94
III.5.3	Effet des traitements sur les microorganismes.....	96
III.5.4	Effet du liant d'enrobage sur le comportement de gonflement-retrait	97

III.6	Conclusion	99
Chapitre 4 : Nouvelle méthode d'analyse et de compréhension des variations dimensionnelles des matériaux biosourcés.101		
IV.1	Introduction.....	101
IV.2	Etude préliminaire.....	101
IV.2.1	Rappel de la méthodologie de mesure	101
IV.2.2	Réponse des biocomposites	102
IV.3	Effet de la morphologie des biocomposites.....	106
IV.4	Effet des variations d'humidité relative	107
IV.5	Modélisation 3D à partir des mesures ponctuelles.....	113
IV.6	Absorption d'eau pendant le gonflement et le retrait.....	115
IV.7	Simulation numérique du test du gonflement et détermination du coefficient d'hygro expansion	116
IV.7.1	Configuration étudiée.....	116
IV.7.2	Résultat de la simulation	118
IV.8	Conclusion	120
Chapitre 5 : Influence de l'enduit de protection sur le gonflement retrait : expérimentation à l'échelle du système biocomposite-enduit122		
V.1	Introduction.....	122
V.2	. Résultats de cycle d'humidification séchage.....	122
V.2.1	Variations dimensionnelles du biocomposites avec enduit : cas sans recouvrement en aluminium.....	123
V.2.2	Comparaison du comportement du biocomposites revêtus d'enduit avec et sans recouvrement en aluminium.....	129
V.2.3	Variations dimensionnelles de l'enduit	130
V.3	. Gonflement-retrait : effet des Cycles immersion-séchage	132
V.4	. Conclusion	136
Conclusions générales et perspectives137		
Bibliographie.....141		

Liste des figures

Figure I. 1 : Exemple d'un matériau biosourcé développé au laboratoire Gabriel Lamé (Ismail, 2020)	8
Figure I. 2 : Images en coupe SEM de (a) chènevotte, (b) chènevotte de lin, (c) paille d'orge, (d) paille de blé, (e) moelle de tournesol, (f) paille de colza, (g) rafle de maïs, (h) balle de riz, (i) tige de miscanthus [7], longitudinale (j) et images transversales (k) de la chènevotte [49] [50].	9
Figure I.3 : Microstructure des fibres naturelles: tige de bois d'après [59]	11
Figure I. 4 : Composition en coupe transversale et dans le sens longitudinal d'une fibre élémentaire de bois [59].	11
Figure I.5 : Structure de cellulose [63]	12
Figure I. 6 : Structure de l'hémicellulose [59]	12
Figure I. 7 : Structure de lignine [63]	13
Figure I. 8 : Caractéristiques de la masse volumique et de résistance à la compression mécanique des divers biocomposites à base de différents liants et granulats	16
Figure I. 9 : Masse volumique et conductivité thermique des divers biocomposites a base de différents liants et granulats.	17
Figure I. 10 : Image SEM de la surface d'une fibre de lin après vieillissement à 20°C et 100% HR pendant (a) 1jour, (b) 7 jours et (c) 4 semaines [95]	18
Figure I. 11 : Etapes de remplissage d'un pore [98]	19
Figure I.12 : Schéma de principe du réseau poreux [98]	20
Figure I. 13 : les courbes d'isotherme de sorption et de désorption pour les trois échantillons de paille de blé (s1, s2 s3) de blé [17]	20
Figure I. 14 : Les courbes d'isotherme de sorption et de désorption pour la paille de blé et la paille d'orge [17]	21
Figure I. 15 : Isotherme d'adsorption et désorption de différentes formulations à base de granulats végétaux	22
Figure I. 16 : Cliché MEB de la vue longitudinale de la fibre (a) non traité, (b) T-24 h, (c) T-120 h et (d) T-240 h [127]	27
Figure I. 17 : Mécanisme de gonflement de la paroi cellulaire du bois (source : www.workshopcompanion.com 05/10/2018)	29
Figure I.18 : Nombre de HB^{CC} (à gauche) / HB^{WW} et HB^{CW} en fonction de la teneur en eau (m) d'après Chen et al. [145]	30
Figure I.19 : Hystérésis dans le gonflement induit par la sorption, cas de la cellulose [145].	31
Figure I. 20 : Variations dimensionnelles de la section transversale de la paille de colza traité (RV), et non traite (RU) et de la chanvre traité (HV), et non traité (HU) [147]	32
Figure I. 21 : Observation au MEB de l'interface liant/chènevotte du béton de chanvre vieilli. [35]	33
Figure I. 22 : Schématisation du phénomène d'osmose [156]	33
Figure I. 23 : Évolution des vides interfaciaux après immersion et séchage : Impact du gonflement des fibres dans un composite lin-époxy[157]	34
Figure I. 24 : Faisceaux de fibre de jute à l'état a) sec et b) après deux semaines en immersion dans l'eau [163]	35
Figure I. 25 : (a) Image au MEB en coupe transversale d'une fibre de lin [164] et (b) représentation schématique de la section apparente et résistive	35
Figure I. 26 : Mesure de l'aire de la section transversale (S_c) à partir de la moyenne de cinq diamètres fixés à des intervalles d'angle de 36° et aire de la section transversale (S_r) mesurée par analyse d'image de micrographies électroniques à balayage [167]	36
Figure I.27: Micrographies SEM d'une fibre de lin élémentaire à différentes abscisses (1 mm, 7 mm, 9 mm et 14 mm respectivement de gauche à droite)	37

Figure I.28 : Profil du diamètre d'une fibre élémentaire de lin illustrée à Figure I.27 sur toute sa longueur [174]	37
Figure I. 29 : Image MEB d'un faisceau de fibres de sisal en fonction du nombre de cycle de mouillage/séchage: (a) 0, (b) 5 et (c) 10 cycles [177]	38
Figure I. 30 : (a) Principe du dispositif de système d'analyse dimensionnelle des fibres et (b) diamètres minimum, maximum et moyen le long d'un faisceau de fibres de palmier, mesurés avec le dispositif FDAS [179]	38
Figure I. 31 : a) mesures effectuées sur le béton de chanvre et b) pourcentage de gonflement des mesures en fonction de l'humidité relative [24]	39
Figure I. 32 : Reconstruction en a) 3D du béton de chanvre et b) 2D pour un échantillon de dimension réduite le plan (x, y) [50]	40
Figure I. 33 : Coupes obtenues par tomographie à rayons X du béton de chanvre (taille du voxel de 17,1 μm) (a) 0% RH (b) 85% RH [50]	40
Figure I. 34 : l'évolution du gonflement médian de la section transversale des différents faisceaux de fibres végétales en fonction de leur teneur en eau à 23 °C : (i) gonflement microscopique des parois cellulaires et de la lamelle moyenne dû à la sorption de l'eau liée, (ii) gonflement macroscopique lié à la déformation anisotrope de la section transversale des faisceaux de fibres libérées, éventuellement induite par la pression hydrique de l'eau libre dans les pores et le lumen.[181]	42
Figure I.35 : Evolution du gonflement radial en fonction de la teneur en eau (de l'isotherme de sorption) [183]	44
Figure II. 1 : Les différents granulats étudiés, a) paille de blé, b) paille de colza, c) écorce de tournesol et d) moelle de tournesol	48
Figure II. 2 : Analyse microscopique des granulats marquant la forte porosité a) Paille de blé b) Paille de colza and c) écorce de tournesol d) moelle de tournesol	49
Figure II. 3 : Le moule utilisé pour la fabrication des échantillons 10x10x10cm ³	50
Figure II. 4 : Représentation de l'application de l'enduit de protection sur un bicomposite	52
Figure II. 5 : Vue de face et vue de dessus des 4 types de granulats préparés sur le support a) paille de blé, c) paille de colza, c) écorce de tournesol et d) moelle de tournesol	53
Figure II. 6 : Cycle d'humidification et de séchage des granulats végétaux	53
Figure II. 7 : Protocole expérimental d'exposition des granulats dans la chambre climatique : image de gauche, analyse microscopique : image de droite	54
Figure II. 8 : Délimitation des contours des granulats pour les mesures de surface	56
Figure II. 9 : Illustration des étapes suivies selon le protocole expérimental développé par l'AGPF 2012 et 2015 pour la quantification de la biomasse.	58
Figure II. 10 : Principe de fonctionnement du capteur laser de déplacement dont la marge de mesure est de 20 mm	60
Figure II. 11 : A gauche, la conception initiale du banc d'essai et à droite, la mise en application de la structure	60
Figure II. 12 : Protocole expérimental pour la mesure sans contact des déplacements dans les biocomposites	62
Figure II. 13 : Epaisseur du solide utilisé pour l'initialisation des capteurs laser de déplacement	62
Figure II. 14 : Détermination de la longueur (a) Lt et (b) Ht	63
Figure II. 15 : Détermination de la longueur lx	64
Figure II. 16 : Détermination de la hauteur Hz de l'échantillon	64
Figure II. 17 : Illustration des points des mesures de points laser	65
Figure II. 18 : Analyse tridimensionnelle d'un échantillon à l'aide de mesures de déplacement par laser	66
Figure II. 19 : a) Biocomposite avec enduit, b) Biocomposite avec enduit recouvert d'aluminium	67

Figure II. 20 : Schéma du protocole d'immersion et de séchage	69
Figure II. 21 : Représentation des points de mesures sur les différentes faces du biocomposite avec de l'enduit	70
Figure II. 22 : Mesures dans les différentes dimensions (z'oz, x'ox, y'oy)	70
Figure II. 23 : Adaptation du capteur laser de déplacement pour les mesures de déplacements des échantillons recouverts d'enduit avec ruban adhésif en aluminium	71
Figure II. 24 : Représentation schématique des objectifs suivis pour élaborer le programme expérimental de la thèse.	72
Figure III. 1 : Superposition d'un même brin de paille de blé dans le sens transversal dans deux conditions à 12% et à 55% HR.....	74
Figure III. 2: Section transversale d'un brin de paille au cours d'un cycle d'humidification et de séchage	74
Figure III. 3 : Les différentes formes de la section transversale de la paille de blé à 90%HR a) elliptique, b) des brins c) semi-elliptique	75
Figure III. 4 : Sections transversale de la paille de colza à travers un cycle d'humidification et de séchage	75
Figure III. 5 : Sections transversale de l'écorce de tournesol pendant un cycle d'humidification et de séchage	76
Figure III. 6 : Visualisation de la morphologie d'un échantillon de moelle de tournesol pendant un cycle d'humidification- séchage.....	76
Figure III. 7 : Visualisation de la morphologie d'un échantillon de moelle de tournesol prélevé dans la région gonflée située à la périphérie, à travers un cycle d'humidification et de séchage	77
Figure III. 8 : Régions de gonflement et de retrait de la moelle de tournesol	77
Figure III. 9 : a) principe d'identification du comportement de gonflement retrait des granulats via le capteur laser de déplacement, b) les spots lumineux des capteurs sur la moelle de tournesol, c) les résultats des variation dimensionnelles	78
Figure III. 10 : Coupe transversale d'une tige de tournesol, montrant la distinction entre la moelle périphérique (Z1) et le cœur (Z2).....	79
Figure III. 11 : Les variations dimensionnelles des granulats par rapport à l'état initial HR de 12%, en fonction de l'humidité relative	80
Figure III. 12 : Evolution du gonflement transversal en fonction de la teneur en eau des quatre différents granulats entre RH12%-90%.....	81
Figure III. 13 : Teneur en eau obtenue à partir du cycle d'humidification entre RH 12-90 % pour la moelle de tournesol, la paille de blé, la paille de colza, l'écorce de tournesol	81
Figure III. 14 : Protocole de l'étude de l'efficacité du traitement.	83
Figure III. 15 : Principe du cycle répétitif d'humidification et séchage	84
Figure III. 16 : Mesure du pH de différents granulats traités avec une solution de NaHCO_3 pendant plusieurs jours.....	85
Figure III. 17 : Mesure du pH de différents granulats traités avec une solution de NaCl pendant plusieurs jours.....	85
Figure III. 18 : Mesure du pH de différents granulats non traités au fil des jours.....	85
Figure III. 19 : La teneur en eau en fonction du temps de traitement pour les granulats de paille de blé	86
Figure III. 20 : Différence de mesure entre l'état initial avant traitement et après traitement des brins de paille de blé extraits par jour.	86
Figure III. 21 : Mesure du pH des granulats traités au NaHCO_3 après plusieurs rinçages.....	88
Figure III. 22 : Mesure du pH des granulats traités au NaCl après plusieurs rinçages.....	88

Figure III. 23 : Changement de couleur après 3 jours de la paille de blé non traitée, traitée au NaCl et au NaHCO_3 (de gauche à droite)	88
Figure III. 24 : Le processus de rinçage et la variation de couleur des granulats traités à l'écorce de tournesol avec NaHCO_3 (de gauche à droite).....	89
Figure III. 25 : Disparition du sel au cours du temps pour les granulats traités au NaHCO_3	89
Figure III. 26 : Surfaces des granulats traités : a) et c) avant rinçage et b) après 5 minutes de rinçage pour NaCl et d) après 20 minutes de rinçage pour NaHCO_3	90
Figure III. 27 : Variations dimensionnelles de la paille de blé pour les granulats traités au NaHCO_3 , les granulats traités au NaCl et les granulats non traités au cours de 4 cycles d'humidification (humidité à 90%) et séchage (sec)	91
Figure III. 28 : Variations dimensionnelles des granulats par rapport à l'état initial HR de 12%, en fonction de l'humidité relative	92
Figure III. 29 : Comparaison des pourcentages de gonflement (RH12%-90%) et de retrait (RH90%-12%) entre les 4 granulats étudiés (SP : moelle de tournesol, WS : paille de blé, RS : paille de colza, SB : écorce de tournesol).....	92
Figure III. 30 : Cycle d'humidification (humidité 90%) et de séchage(sec) de la paille de blé traitée avec NaHCO_3 , NaCl et non traitée	95
Figure III. 31 : Teneur en eau obtenue à partir du schéma d'humidification entre HR 12-90%. pour SP : moelle de tournesol, WS : paille de blé, RS : paille de colza, SB : écorce de tournesol).....	96
Figure III. 32 : Aspect des différents granulats à 90% d'humidité, de haut en bas, paille de blé, paille de colza, écorce de tournesol et moelle de tournesol	97
Figure III. 33 : Gonflement libre des granulats et gonflement des granulats enrobés de liant (SP : moelle de tournesol, WS : paille de blé, RS : paille de colza, SB : écorce de tournesol).....	98
Figure III. 34 : Observations microscopiques d'un granulat d'écorce de tournesol enrobé de liant avec la même zone d'observation pour chaque niveau d'humidité révélant la fissuration.	98
Figure III. 35 : Observations microscopiques des granulats incorporés dans le liant a) paille de blé, b) paille de colza, c) écorce de tournesol et d) moelle de tournesol	99
Figure III. 36 : Interface entre deux granulats de paille de blé liés par un liant lorsque l'humidité relative passe de 12 % à 90 % et de 90 % à 12 %	99
Figure IV. 1 : Banc de mesure développé (a), mesures des dimensions de l'échantillon dans les directions latérales (b) et verticale (c)	102
Figure IV. 2 : (a) État initial de l'échantillon dans le récipient expérimental, (b) ajout de l'eau dans le bac contenant l'échantillon (c) et (d) absorption de l'eau par capillarité par l'échantillon	103
Figure IV. 3 : Variation dimensionnelle du composite à base de paille placé dans un récipient transparent : de 0 à 4 heures : variation entre T60°C-HR0% à T23°C-HR55%, et de 4heures à 20h : adsorption d'eau.....	104
Figure IV. 4 : (a) Etat initial : le point A est situé sur une face latérale pour la mesure de la variation horizontale et le point B situé sur la face de dessus pour la mesure de la variation verticale, (b) Rotation du biocomposite, (c) Le point A représente la variation dimensionnelle verticale et le point B représente la variation dimensionnelle horizontale.	105
Figure IV. 5 : Effet de la rotation de l'échantillon sur les variations dimensionnelles dans les directions horizontale et verticale.	105
Figure IV. 6 : Variation de la hauteur du biocomposite	107
Figure IV. 7 : Pourcentage de variation de l'épaisseur par rapport à 12% de HR entre 12-55%, 12-90% et par rapport à 90% de HR entre 90-55% et 90-12% (moyenne dans les deux directions horizontales)	108
Figure IV. 8 : Pourcentage de variation de hauteur entre 12-55%, 12-90% et entre 90-55% et 90-12% dans la direction Hz pour le biocomposite à base de la paille	108

Figure IV. 9 : Comportement des biocomposites en réponse à l'humidification.....	109
Figure IV. 10 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur des biocomposites par rapport à l'état initial HR de 12%, en fonction de différents niveaux d'humidité relative.....	111
Figure IV. 11 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur des biocomposites par rapport à l'état initial HR de 12%, en fonction de différents niveaux d'humidité relative.....	112
Figure IV. 12 : (a)-(b) Définir les coordonnées des points, (c) dessiner le contour et (d) générer le contour.....	113
Figure IV. 13 : Représentation en facettes du biocomposite : Variation de surface due au gonflement inégal	114
Figure IV. 14 : Variation de volume entre 12%HR et 90%HR, et réciproquement : Comportement dimensionnel du biocomposite en réponse aux changements d'humidité	114
Figure IV. 15 : Absorption de l'eau en phase d'humidification HR12-90% exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et relâchement de l'eau en phase de séchage hydrique HR90-12% exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR.....	116
Figure IV. 16 : Représentation visuelle montrant un maillage extrêmement fin de l'échantillon.	117
Figure IV. 17 : Image en 2D illustrant un exemple de simulation numérique mettant en évidence la réduction de la hauteur et le gonflement des côtés.....	119
Figure IV. 18 : Résultat de la simulation numérique en passant de HR12% et HR 90%.....	119
Figure V. 1 : Exposition des échantillons de matériaux biosourcés avec et sans recouvrement en aluminium lors de cycles d'humidification et de séchage	123
Figure V. 2 : Mesure de l'épaisseur de l'échantillon avec enduit dans la direction perpendiculaire de l'enduit	124
Figure V. 3 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur du biocomposite avec enduit de protection : x'ox (perpendiculaire à l'enduit) lors de la phase d'humidification de 12% à 90% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et de séchage de 90% à 12% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR.....	124
Figure V. 4 : Mesure de l'épaisseur de l'échantillon avec enduit dans la direction perpendiculaire de l'enduit	125
Figure V. 5 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur du biocomposite avec enduit de protection selon y'oy (parallèle à l'enduit) lors de la phase d'humidification de 12% à 90% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et de séchage de 90% à 12% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR.....	126
Figure V. 6 : Représentation des points de mesures à HR90% du biocomposite avec enduit	127
Figure V. 7 : Détermination des longueurs des biocomposites	127
Figure V. 8 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur du biocomposite à base de paille de blé avec et sans enduit de protection lors de la phase d'humidification de 12% à 90% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et de séchage de 90% à 12% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR.....	128
Figure V. 9 : Illustration schématique du comportement du biocomposites sans enduit (a) et (b) et avec enduit (c) et (d) entre l'état initial et final respectivement	129
Figure V. 10 : Schéma illustratif de la méthode de mesure des variations dimensionnelles sur les échantillons recouverts d'un ruban adhésif en aluminium.....	129
Figure V. 11 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur des biocomposites à base de paille de blé avec enduit de protection sans et avec recouvrement selon différente hauteur lors de la phase d'humidification de 12% à 90% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et de séchage de 90% à 12% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR.....	130
Figure V. 12 : Détermination des longueurs de l'enduit	131

Figure V. 13 : Variations dimensionnelles de l'enduit de protection lors de la phase d'humidification de 12% à 90% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et de séchage de 90% à 12% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR	131
Figure V. 14: Variations dimensionnelles entre l'état initial sec et après chaque cycle d'immersion et de séchage de l'épaisseur à une hauteur de 9.5 cm (sur le biocomposite à base de paille de blé)	133
Figure V. 15 : Variations dimensionnelles entre l'état initial sec et après chaque cycle d'immersion et de séchage de l'épaisseur à une hauteur de 9.5 cm (sur le biocomposite à base de paille de colza)....	133
Figure V. 16: Variations dimensionnelles entre l'état initial sec et après chaque cycle d'immersion et de séchage de l'épaisseur à une hauteur de 8 cm (enduit/biocomposite à base de paille de blé).....	134
Figure V. 17 : Variations dimensionnelles entre l'état initial sec et après chaque cycle d'immersion et de séchage de l'épaisseur à une hauteur de 8 cm (enduit/biocomposite à base de paille de colza)	134
Figure V. 18 : (a) et (c) Vue de face des fissures entre l'enduit et le biocomposites des deux faces et (b) vue de dessous des fissures entre l'enduit et le biocomposites.....	135

Liste des tableaux

Tableau I. 1 : Principales caractéristiques de la chaux Tradical PF70 [35].....	8
Tableau I. 2 : masse volumique et porosité de certains granulats végétaux	10
Tableau I. 3 : Composition chimique (%massique) de différentes fibres végétales.....	14
Tableau I. 4 : Propriétés mécaniques de quelques fibres naturelles [58] [63] E: module de Young, A: allongement à la rupture en traction, σ contrainte à la rupture en traction	14
Tableau I. 5 : Modification des compositions biochimique de fibres de chanvre [106].....	24
Tableau I. 6 : Constituants chimiques des fibres d'agave americana traitées et non traitées [119]	25
Tableau I. 7 : Variabilité des taux de gonflement des granulats biosourcés en fonction de l'humidité relative et de la méthode de caractérisation.....	42
Tableau I. 8 : Coefficients de dilatation thermique et hygroscopique radiale de la fibre simple de lin	44
 Tableau II. 1 : Propriétés des granulats utilisés	 48
Tableau II. 2 : la masse volumique ρ (Kg/m ³) des biocomposites à base de différentes matières premières végétales et chaux : paille de blé (PbC), paille de colza (PcC), moelle de tournesol (MTC), écorce de tournesol (ETC), et mélange moelle et écorce de tournesol (METC).	51
 Tableau III. 1 : coefficients d'hygroexpansion et rétraction des granulats traités par rapport à ceux non traités	 93
Tableau III. 2 : Composants chimiques des granulats traités et non traités associés à l'expansion et à la rétraction hydrique (SP : moelle de tournesol, WS : paille de blé, RS : paille de colza, SB : écorce de tournesol).....	93
 Tableau IV. 1 : Dimensions des biocomposites non traités après démoulage à base de WS : paille de blé, WR : paille de colza, SB : écorce de tournesol, SP : Moelle de tournesol, SPB : moelle et écorce de tournesol	 106
Tableau IV. 2 : Coefficient hygroexpansion des biocomposites en fonction du module de Young ...	120

Introduction générale

Face aux défis environnementaux actuels, le secteur du bâtiment est confronté à la nécessité urgente de réduire son impact environnemental global. Cette recherche d'une empreinte plus légère englobe divers aspects, dont la consommation d'énergie, les émissions de gaz à effet de serre, l'exploitation excessive des ressources granulaires, la dépense significative d'énergie pour la fabrication des matériaux, la gestion des déchets, ainsi que les besoins énergétiques liés au chauffage et au refroidissement des bâtiments.

Pour répondre à ces exigences et de dépasser les critères établis par la Réglementation Environnementale 2020 (RE2020), une série d'actions prioritaires a été identifiée. Ces actions mettent en avant la nécessité d'explorer et de développer de nouveaux matériaux de construction à faible impact environnemental. Dans ce contexte, les écomatériaux jouent un rôle crucial en proposant des alternatives durables dans le domaine de la construction. Les écomatériaux se distinguent par leur origine axée sur le recyclage, utilisant des matières premières récupérées à faible impact environnemental. Cette approche permet non seulement de réduire la dépendance aux matériaux traditionnels, mais aussi de limiter la surconsommation de ressources naturelles, de déchets générés et de réduire l'énergie de transformation et de fabrication. Le recyclage des déchets de déconstruction ainsi que la valorisation de certains produits industriels et agricoles en sont des exemples concrets.

Au cœur de ces initiatives se trouvent les matériaux biosourcés qui, en englobant les matières premières végétales, jouent également un rôle central dans cette transition. Issus généralement de co-produits ou de résidus agricoles, ces matériaux présentent une voie alternative intéressante pour réduire notre empreinte écologique. En utilisant des ressources issues des co-produits ou déchets agricoles, les matériaux biosourcés offrent une solution à la fois durable et innovante pour la construction. Leur utilisation contribue à la valorisation de matières souvent sous-exploitées, tout en offrant des avantages en termes de performance environnementale et d'efficacité énergétique. En mettant en avant ces matériaux à faible impact, la construction durable peut franchir une nouvelle étape vers un avenir plus respectueux de l'environnement.

Ces matériaux biosourcés, en plus de leur origine renouvelable, se distinguent par les propriétés des fibres ou granulats végétaux variant selon leur disponibilité locale. Dans le cadre des projets et programmes de recherche financés par la région Centre-Val de Loire [1] [2] [3], plusieurs matériaux à base de résidus agricoles abondants dans la région comme la paille de céréales, le tournesol, ou le colza ont été développés. Le choix du liant et du type de granulat ouvre un éventail large de perspectives pour le développement de matériaux biosourcés. Le mélange des granulats végétaux avec différents liants tels que la chaux, la terre ou des mélanges préformulés offre une variété de propriétés mécaniques, thermiques et hydriques. Notamment, le liant à base de chaux et de pouzzolane, connu sous le nom de Tradical PF70, est largement adopté dans les matériaux biosourcés en raison de ses avantages. Il facilite le mélange et encourage la carbonatation avec la chaux aérienne, ce qui contribue à améliorer les propriétés mécaniques et la durabilité des matériaux. Ainsi, les matériaux qui adoptent ce liant montre leur aptitude à soutenir des charges, y compris leur propre poids, ainsi qu'à garantir une durée de vie

considérable [4] [5]. Il convient de souligner que les propriétés mécaniques et hygrothermiques des bétons biosourcés sont influencées par divers facteurs, parmi lesquels se trouvent les caractéristiques des granulats, la nature du liant et son dosage [6] [7] [8].

Cependant, malgré la reconnaissance croissante des performances thermiques et hydriques des matériaux biosourcés pour à la fois réduire la consommation énergétique des bâtiments et assurer le confort de l'occupant, leur utilisation reste encore limitée. Un premier facteur limitant est l'absence de normes spécifiques et de règles d'application adaptées à ces matériaux. En France, depuis 2007, des directives professionnelles ont été élaborées pour régir la construction en béton de chanvre (Association construire en chanvre & Fédération Française du Bâtiment, 2009). Ces directives constituent le principal cadre de référence pour la mise en œuvre de bétons biosourcés et font actuellement l'objet d'une mise à jour. Elles ont pour objectif d'assurer la qualité et la durabilité des bâtiments construits avec du béton de chanvre, et ont été rédigées par un groupe d'experts à partir de leur expérience dans ce domaine. Ces directives ont été approuvées par l'APAVE, le Conseil des professions de la Fédération Française du Bâtiment (FFB) et la Commission Prévention Produit (C2P) de l'Agence Qualité Construction (AQC). Cette lacune dans la réglementation entrave leur utilisation généralisée et freine leur intégration dans les pratiques de construction courantes. Une approche intégrée et coordonnée entre les instances réglementaires, les chercheurs et les acteurs de l'industrie permettrait de favoriser une transition vers une utilisation plus répandue et durable des matériaux biosourcés dans le secteur du bâtiment. Une évolution réglementaire visant à établir des références techniques précises et des critères de performance clairs faciliterait l'intégration des matériaux biosourcés dans les pratiques de construction.

Pour garantir leur adaptation aux exigences du contexte climatique changeant, il est indispensable de poursuivre les recherches et les innovations technologiques visant à améliorer la compréhension du comportement de ces matériaux biosourcés. Des recherches scientifiques approfondies ont été menées afin d'étudier leurs propriétés fonctionnelles ainsi que leur durabilité face à différentes conditions climatiques [9]. Il est important de considérer que la durabilité de ces matériaux peut être affectée par des conditions environnementales et accidentelles changeantes telles que des inondations, des dégâts des eaux, des incendies ou encore des variations sévères de température et d'humidité. Pour garantir la durabilité et les performances de ces matériaux, il est essentiel de comprendre en profondeur leur comportement et en particulier son interaction avec l'humidité. En effet, les bétons biosourcés sont reconnus pour leur fort potentiel hygroscopique [10] [11] ce qui leur permet d'agir comme des régulateurs d'humidité passifs grâce à leur perméabilité inhérente à la vapeur d'eau. De plus, du fait de la chaleur latente associée aux processus d'adsorption et de désorption, ces matériaux pourraient également être exploités comme des systèmes passifs de régulation thermique. Par ailleurs, en raison des processus d'adsorption et de désorption impliquant des changements de chaleur latente, il est possible d'exploiter ces matériaux comme systèmes de régulation thermique passive [12]. Leur caractère perméable leur confère la capacité de permettre le passage de la vapeur, ce qui leur permet d'ajuster les niveaux d'humidité environnants. La régulation thermique passive se réfère à l'utilisation de matériaux et de systèmes qui sont conçus pour réguler naturellement la température à l'intérieur d'un espace sans avoir recours à des sources

d'énergie externes. Ces systèmes exploitent donc les propriétés thermiques et hydriques des matériaux biosourcés, pour maintenir une température confortable et stable, contribuant ainsi à réduire la consommation d'énergie pour le chauffage et le refroidissement des bâtiments.

Par contre, une longue exposition à l'humidité peut provoquer la formation et la croissance de microorganismes [13] [14]. De plus, en raison de leur sensibilité aux changements d'humidité, ces matériaux peuvent subir des variations dimensionnelles, ce qui peut entraîner des fissurations [5] et des problèmes de mise en œuvre. Parallèlement, l'absorption d'eau importante, peut aussi réduire directement leurs propriétés mécaniques [15] [16].

C'est dans ce contexte que s'inscrit mon projet de thèse, financé par la région Centre Val de Loire et intitulé "Étude multi-échelles du gonflement-retrait des matériaux biosourcés". Ce projet a pour objectif d'analyser et comprendre le phénomène de gonflement-retrait à l'échelle du granulat végétal, des matériaux biocomposites, et ensuite d'évaluer son impact sur les isolants revêtus d'un enduit de protection. L'objectif principal de cette approche est de mener une évaluation complète qui englobe à la fois les aspects microscopiques et macroscopiques du gonflement et du retrait. À l'échelle microscopique, cette évaluation repose sur l'utilisation du microscope optique et se concentre sur l'analyse détaillée des variations dimensionnelles qui sont influencées par les propriétés hygroscopiques et biochimiques. Parallèlement, à l'échelle macroscopique, les variations dimensionnelles des granulats ont un impact sur la réponse globale des biocomposites. Pour quantifier ces variations à grande échelle, nous concevrons un banc d'essai utilisant des capteurs laser de déplacement permettant de réaliser une mesure sans contact prenant en compte la forte hétérogénéité de ces matériaux biosourcés. Nous examinerons ensuite les traitements appliqués aux granulats pour améliorer leurs propriétés, ainsi que la méthode de quantification de leurs composants chimiques pour mettre en évidence leur influence sur la réduction des variations dimensionnelles.

La démarche scientifique de ces travaux de thèse est structurée autour de cinq chapitres :

Le premier chapitre propose une revue de littérature approfondie sur le phénomène de gonflement et de retrait des granulats végétaux, en mettant l'accent sur leurs compositions biochimiques. Le chapitre met en exergue la sensibilité de ces granulats aux conditions hygrothermiques, telles que la température et l'humidité. Ces granulats végétaux sont fortement sensibles aux conditions hygrothermiques qui peuvent affecter la structure et la composition des granulats végétaux, ce qui peut à son tour affecter leur capacité de gonflement et de retrait des granulats et des biocomposites. Le chapitre aborde également les propriétés principales des matériaux biosourcés dans les travaux de développement et de caractérisation, en mettant l'accent sur les granulats végétaux. Le chapitre souligne ensuite l'influence de la composition chimique des granulats végétaux sur leur gonflement, avec une attention particulière accordée aux polysaccharides tels que la cellulose, l'hémicellulose et la pectine. Les propriétés de ces composés peuvent avoir un impact significatif sur la capacité des granulats végétaux à absorber et retenir l'eau, ce qui peut affecter leur volume et leur forme. Le chapitre aborde également les différentes méthodes de traitement des granulats végétaux ainsi que les techniques de mesure des déformations microscopiques et macroscopiques des granulats végétaux proposées dans la littérature.

Le deuxième chapitre de cette étude se consacre à la présentation des granulats végétaux étudiés, suivi d'une présentation de la méthode utilisée pour la fabrication de matériaux biosourcés (les biocomposites) en utilisant ces granulats comme matière première. Cette approche comprend différentes étapes, dont la formulation, le processus de fabrication et les conditions de conservation. Ces différentes étapes s'appuient sur des recherches précédentes menées au Laboratoire LaMé au sein de l'équipe génie civil [1] [2] [3]. De plus, ce chapitre explore en détail les méthodes de caractérisation développée dans le cadre de ce travail dans le but de quantifier les variations dimensionnelles des granulats à l'échelle microscopique et des matériaux biocomposites à l'échelle macroscopique.

Le troisième chapitre est consacré aux résultats de caractérisation des quatre granulats étudiés. La première partie se concentre sur la mesure du gonflement et du retrait des granulats non traités. Nous examinons les variations dimensionnelles observées lors des cycles d'humidification et de séchage, tout en identifiant les facteurs qui influencent ces variations. La deuxième partie de l'étude porte sur l'amélioration du protocole de traitement en étudiant son effet sur la réduction du comportement hygroscopique des granulats. Enfin, la troisième partie présente les résultats du traitement sur les granulats avec une comparaison avec les granulats non traités. Cette comparaison nous permet d'évaluer l'impact réel du traitement sur le comportement des granulats végétaux face à l'humidité. L'effet du traitement sur la composition chimique à l'origine des changements de comportement est également mis en évidence à la fin de ce chapitre.

Le quatrième chapitre est concentré sur une analyse minutieuse des variations dimensionnelles des biocomposites à une échelle macroscopique. En utilisant le dispositif développé muni de capteur laser de déplacement, nous évaluons les déplacements des biocomposites à grande échelle en exposant ces matériaux à différentes plages d'humidité dans des conditions hygrothermiques contrôlées. Cette approche permettra d'investiguer le comportement des biocomposites face aux variations d'humidité en proposant une méthodologie de traitement des résultats obtenus. Au cours de cette analyse, des paramètres essentiels tels que la précision des mesures et la reproductibilité des résultats seront examinés. Une modélisation réalisée en utilisant le logiciel AutoCAD permet d'obtenir une visualisation plus précise des variations dimensionnelles à différentes plages d'humidité relative. Parallèlement, nous mettons en lumière les relations existantes entre les variations dimensionnelles observées et les propriétés mécaniques des matériaux. Cela est réalisé à travers une modélisation numérique utilisant le logiciel COMSOL Multiphysics.

Dans le cinquième et dernier chapitre de cette étude, une attention spécifique est accordée à l'évaluation de l'impact du gonflement-retrait des biocomposites sur leur comportement lorsqu'ils sont revêtus d'un enduit. L'objectif ici est de reproduire le comportement des biocomposites à l'échelle d'une paroi en les recouvrant d'un enduit de protection. Les variations dimensionnelles induites par le phénomène de gonflement-retrait peuvent potentiellement influencer l'interface entre le matériau et l'enduit. Pour aborder ces éventuels problèmes, une série d'expériences est menée pour analyser les interactions entre le biocomposite et l'enduit. Les échantillons sont soumis à des cycles d'humidification et de séchage. Cette démarche permet de mesurer les changements dimensionnels qui se produisent dans différentes plages

d'humidité relative. De plus, des cycles d'immersion et de séchage répétitifs sont réalisés pour analyser les réactions et les comportements des échantillons sous ces conditions, en mettant particulièrement en lumière l'interaction entre l'enduit et le matériau biocomposite.

Chapitre I : Etat de l'art sur les matériaux biosourcés et leurs propriétés vis-à-vis de l'humidité

I.1 Introduction

Les granulats végétaux présentent des propriétés attrayantes pour diverses applications. En particulier, leur faible conductivité thermique grâce à leur forte porosité leur confère une capacité d'isolation thermique efficace, permettant de réduire les pertes de chaleur et de maintenir une température confortable à l'intérieur des bâtiments [17] [18]. Ils offrent également une isolation acoustique favorable, limitant la propagation du bruit à travers les structures [4] [19]. En plus, leur capacité à réguler l'humidité ambiante contribue à créer un environnement intérieur sain et confortable [20]. Les propriétés des granulats végétaux offrent aux matériaux biosourcés des caractéristiques exceptionnelles.

Cependant, malgré ces avantages, leur utilisation est limitée en raison de leur comportement particuliers en cas de variation des conditions environnementales [21]. En effet, bien que la grande porosité des granulats offre une capacité d'absorption et un stockage rapide de l'humidité, très intéressant pour le confort hygrothermique, cela conduit à une instabilité dimensionnelle des biocomposites en raison du gonflement et du retrait qui n'est pas encore évalué et maîtrisé [22].

Une étude de mesure des variations dimensionnelles des granulats végétaux et de l'interaction entre la matrice liante et ces granulats est importante dans le contexte des biocomposites [23]. Le liant joue un rôle essentiel dans la cohésion des particules du matériau biosourcé en limitant le gonflement et le retrait des granulats [24]. Cependant, malgré cette action de liaison, des fissures peuvent apparaître dans le matériau biosourcé en raison de ce phénomène de gonflement et du retrait des granulats végétaux. Cette observation est étayée par les études de durabilité de sous l'action de l'humidification et du séchage [5]. Cela souligne l'importance de mieux comprendre et contrôler ces phénomènes pour améliorer la durabilité et les performances mécaniques des matériaux biosourcés pour une utilisation dans des conditions d'usage avec un fort gradient.

Le processus d'absorption de l'humidité dans les matériaux hydrophiles est complexe et implique des changements continus dans la structure des granulats en raison du gonflement influencé par divers facteurs tels que la composition chimique, la morphologie, la taille des pores et la structure [25]. Pour mieux comprendre le processus de gonflement, les chercheurs étudient souvent le gonflement et l'absorption d'eau des quatre composants primaires des granulats, à savoir la cellulose, l'hémicellulose, la lignine et la pectine.

Pour rendre l'utilisation de ces ressources végétales plus compétitive, il est essentiel de bien comprendre et maîtriser leurs propriétés morphologiques, physico-chimiques et mécaniques. Cette compréhension approfondie permettra de prédire le comportement des biocomposites à court terme pendant la phase de fabrication, ainsi que leurs performances en service.

Ce premier chapitre sera consacré à la présentation de l'état de l'art de la fabrication des matériaux biosourcés ainsi qu'à leurs propriétés fonctionnelles qui les positionnent en tant que

matériaux alternatifs pour l'isolation, respectueux de l'environnement. Plus précisément, une attention particulière sera accordée à l'influence des propriétés hygroscopiques sur le comportement, allant de l'échelle microscopique des granulats végétaux à l'échelle macroscopique des matériaux biosourcés. Une analyse approfondie des divers traitements appliqués aux granulats végétaux sera exposée, mettant en évidence leur impact sur les propriétés d'absorption d'eau des granulats dans le but de réduire les taux de gonflement et de retrait. De plus, les méthodes de mesure utilisées pour quantifier les déformations résultantes des phénomènes de gonflement et de retrait seront étudiées. Cela inclura des approches pour évaluer les déformations à l'échelle microscopique des granulats ainsi qu'à l'échelle macroscopique des biocomposites.

I.2 Compositions des matériaux biosourcés : rôle du liant

Un matériau composite est formé par l'association d'un renfort et une matrice qui, lorsqu'ils sont combinés, offrent des propriétés améliorées par rapport à celles des matériaux individuels. L'analyse approfondie des matériaux de construction biosourcés nécessite une compréhension détaillée des interactions qui se produisent à différentes échelles, de la microstructure à l'échelle macroscopique de l'échantillon ou de la paroi. Au niveau microscopique, les granulats végétaux composés de sous-produits agricoles sont mélangés à un liant, l'ensemble contribuant à la complexité et à la variabilité de la microstructure. Indépendamment de son type, la matrice ou le liant joue un rôle dans la protection et la préservation de la configuration géométrique. Elle lui confère ainsi des caractéristiques mécaniques, hydriques et thermiques [26].

Différents types de liants ont été développés pour la fabrication de matériaux biosourcés, incluant le Tradical PF70 [27], le Tradichanvre [28], le batichanvre [29], le Tradical HB[30], ainsi que des mélanges comprenant de la chaux et des ciments, de la chaux et du laitier granulé de haut fourneau, et de la chaux et du metakaolin. La fabrication des matériaux biosourcés implique la considération de différents rapports, tels que le rapport liant-eau et le rapport liant-granulat. Un rapport liant-eau adéquat garantit une bonne hydratation du liant, ce qui favorise la réaction chimique nécessaire pour renforcer la cohésion interne du matériau. Cependant, un excès d'eau peut entraîner une réduction de la résistance et de la durabilité du matériau [18]. Le rapport liant-granulat, quant à lui, concerne la proportion de granulats dans le mélange. L'optimisation des rapports permet de maximiser les propriétés mécaniques souhaitées, telles que la résistance à la compression, la résistance à la flexion ou la résistance à la traction. Cependant, une mauvaise proportion entre les granulats, le liant, l'eau et les additifs peut entraîner divers problèmes, tels qu'une faible compacité, une réduction de la résistance structurelle ou des variations dimensionnelles indésirables. Afin d'obtenir des matériaux biosourcés de haute qualité, il est important d'optimiser leur formulation selon l'utilisation souhaitée structurelle ou d'isolation [3].

Cela nécessite une approche expérimentale et numérique ainsi que des essais préliminaires pour déterminer les proportions optimales de liant, d'eau et de granulats, en fonction des propriétés recherchées [31] [32] [4]. En ajustant judicieusement ces rapports, il est possible de développer des matériaux biosourcés durables, résistants et adaptés aux besoins spécifiques de construction et d'autres applications, Figure I. 1.



Figure I. 1 : Exemple d'un matériau biosourcé développé au laboratoire Gabriel Lamé (Ismail, 2020)

En effet, La nature du liant possède une influence considérable sur la résistance des matériaux biosourcés. D'après Nguyen [33], il trouve des valeurs à 28 jours autour de 120 MPa pour des bétons à base de PF70 et de chaux hydraulique NHL3,5Z, mais cette valeur diminue jusqu'à 90 MPa pour du ciment CPA CEM I et encore plus pour la chaux hydraulique NHL2, qui présente un module de déformation autour de 45 MPa. Nguyen explique que le comportement inattendu du module du béton de ciment est probablement dû à une mauvaise hydratation à cause de l'absorption d'eau des granulats. Collet et al. [34] trouvent des valeurs beaucoup moins élevées et très proches entre elles, entre 30 et 42 MPa, pour des bétons avec trois liants différents : PF70, ciment naturel et PLA.

Dans cette étude, le liant utilisé, ainsi que les ratios de constituants sont tirés des formulations optimisées par Ismail [5] [1]. Les biocomposites de cette étude sont réalisés en utilisant du liant à base de chaux Tradical PF70, qui comprend 75 % de chaux aérienne, 15 % de chaux hydraulique et 10 % de pouzzolane. Ses performances sont fournies respectivement dans le Tableau I. 1. L'utilisation d'un liant riche en chaux aérienne, diminue la sensibilité à l'eau pendant le processus de prise.

Tableau I. 1 : Principales caractéristiques de la chaux Tradical PF70 [35]

Coefficient de conductivité thermique	$\leq 0,2$
Densité	$0,62 \pm 0,02$
Silice soluble	$\leq 10\%$
Teneur en CO₂	$\leq 8\%$
Adjuvants	$\leq 0.5\%$
Rétention d'eau	$\geq 75\%$
Granulométrie	90 μm
Traction/Flexion	$\geq 1.43 \text{ N/mm}^2$
Compression	$\geq 4.3 \text{ N/mm}^2$

I.3 Granulats végétaux

Divers granulats végétaux sont étudiés pour fabriquer des matériaux biosourcés tels que le chanvre [36], le lin [37], l'herbe à éléphant [38], le tournesol [39], le palmier dattier [40], le

liège [41], la paille de colza [42], la paille de riz [43], la paille d'orge [44] et la paille de blé [3]. Ces granulats présentent une structure cellulaire et une porosité importante, étendue, interconnectée et complexe qui par conséquent permet le transfert massif de l'eau au sein de la microstructure. Une porosité importante peut être observée de manière plus précise à l'échelle intra-particulaire comme le montre la Figure I. 2. La taille des pores dans un granulat végétal peut être comprise entre quelques nanomètres et plusieurs millimètres. Il en résulte une faible masse volumique apparente des granulats végétaux et une architecture complexe marquée par une porosité multi-échelle. Brouard [45] étudie la moelle de tournesol, écorce de tournesol et paille de colza, et détermine une porosité ouverte de 98.87%, 88.53% et 94.06% respectivement. Les images obtenues au microscope à balayage montrent que l'écorce de tournesol contient des pores de dimensions de l'ordre de 10 μm tandis que les pores contenus dans la moelle de tournesol ou de colza ont des structures alvéolaires pour des dimensions supérieures à 100 μm . Niez [47] a étudié la moelle de tournesol et détermine une porosité ouverte de 97.1%. Dans une autre recherche qui concernait un mortier à base de chènovette, Collet et al. [48] rapportent une porosité totale de 76.5% dont 70.6% est ouverte. Ismail (Ismail, 2020) a estimé une porosité de la coupe horizontale de la paille de blé de 51%.

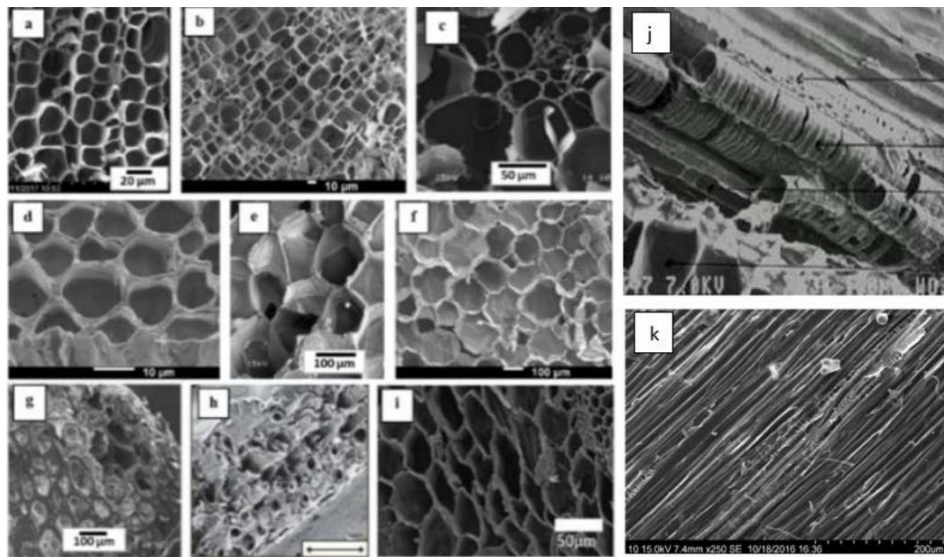


Figure I. 2 : Images en coupe SEM de (a) chènovette, (b) chènovette de lin, (c) paille d'orge, (d) paille de blé, (e) moelle de tournesol, (f) paille de colza, (g) rafle de maïs, (h) balle de riz, (i) tige de miscanthus [7], longitudinale (j) et images transversales (k) de la chènovette [49] [50].

Ces observations donnent une idée de la forme de la porosité de chaque granulat végétal. Le Tableau I. 2 résume la densité et porosité des granulats végétaux. Cette porosité tubulaire permet la circulation de la sève lorsque la plante est en croissance. Après le séchage, ils se remplissent d'air, ce qui entraîne une porosité intra-particulaire importante, expliquant notamment la capacité d'isolation des matériaux de construction biosourcés. Ce sont donc des matériaux très poreux, une caractéristique qui jouera un rôle primordial dans leur comportement hygrothermique.

Tableau I. 2 : masse volumique et porosité de certains granulats végétaux

Granulat	Masse volumique (Kg/m ³)	Porosité (%)	Références
Paille de blé	29.3	96.3	[17]
	46.13		
Moelle de tournesol	15.9	98.87	[45]
Ecorce de tournesol	129	88.53	
Paille de colza	64.9	94.06	
Chanvre	114.2	92.4	[51]
	102.8	93	[27]
Chênovette		92	[46]

I.3.1 Structuration des parois cellulaires et composition biochimique

Les composants des granulats végétaux agissent en complémentarité pour maintenir l'intégrité structurale de la paroi et de la membrane cellulaire, ce qui est vital pour la survie et la croissance des plantes dans leurs environnements respectifs. Ainsi, la composition et la structure varient en fonction de la partie considérée. Les différents composants biochimiques des parois cellulaires exercent une influence variable sur les propriétés des granulats. Les résultats de la quantification des différents constituants biochimiques varient en raison des différences entre les plantes. Les parts de cellulose, d'hémicellulose et de lignine relevées dans les fibres végétales varient fortement en fonction de l'espèce. Au niveau de l'espèce elle-même, les compositions biochimiques dépendent de l'organe dont les fibres sont issues [52], du stade de développement [53] et des conditions de croissance des plantes [54] [55] [56] et de la méthode de mesure [53].

La microstructure des fibres naturelles est remarquablement complexe, car elle présente une hiérarchie de différentes microstructures [57]. Chaque fibre simple, également appelée cellule allongée, possède un diamètre d'environ 10-20 μm et est constituée d'une phase de cellulose microfibrillaire ainsi que d'une phase matricielle composée principalement d'hémicellulose (une forme ramifiée de cellulose à faible poids moléculaire) et de lignine (un composé phénolique aromatique). Les microfibrilles, d'un diamètre d'environ 3-10 nm, sont formées par l'arrangement de 30 à 100 molécules de cellulose en chaîne étendue. L'orientation optimale des microfibrilles et une concentration élevée de cellulose sont essentielles pour conférer de bonnes propriétés mécaniques à la fibre [58].

Pour mieux visualiser cette structure, la Figure I.3 présente un exemple de la microstructure d'un granulat végétal, le bois. Le bois possède une structure hiérarchique poreuse qui s'étend de l'échelle nanométrique des parois cellulaires à l'échelle macroscopique de la tige. Les fibres élémentaires sont constituées de deux types de parois : la paroi primaire et la paroi secondaire. La paroi primaire est fine et flexible, ce qui permet la croissance cellulaire tout en fournissant un soutien structurel à la fibre. En revanche, la paroi secondaire, qui est rigide, confère aux fibres végétales leurs propriétés mécaniques élevées. La paroi primaire est composée d'hémicellulose, de pectines, de protéines et de microfibrilles de cellulose désordonnée, ce qui la rend relativement souple. La paroi secondaire est composée de trois sous-couches : S1, S2 et

S3. Elle contient les mêmes constituants que la paroi primaire, mais avec une plus grande quantité de cellulose et de lignine. Les microfibrilles de cellulose sont présentes dans les sous-couches S1, S2 et S3 de la paroi secondaire.

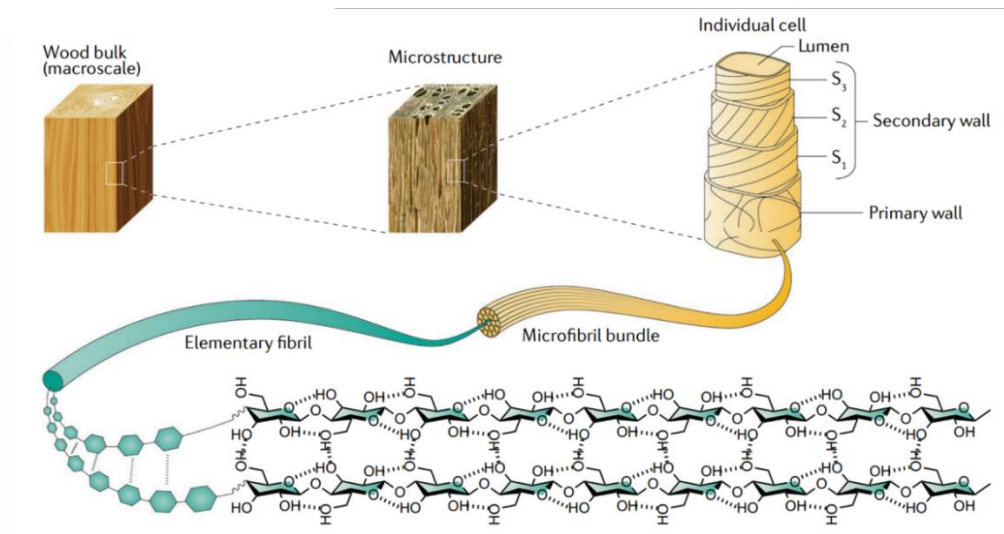


Figure I.3 : Microstructure des fibres naturelles: tige de bois d'après [59]

Les parois cellulaires rigides des granulats végétaux englobent de divers éléments tels que l'hémicellulose, la lignine et une partie de la pectine, qui forment un composite naturel à base de fibrilles, dont les propriétés sont déterminées par l'orientation des fibrilles de cellulose alignées intégrées dans la matrice de lignine et d'hémicellulose.

La Figure I. 4 illustre la composition en coupe transversale et dans le sens longitudinal d'une fibre élémentaire de bois. Les hémicelluloses se lient à la cellulose par des liaisons hydrogène, agissant comme des agents de réticulation entre les microfibrilles de cellulose et formant le réseau cellulosique-hémicellulosique, considéré comme le composant structural principal de la cellule fibreuse. Par ailleurs, le réseau hydrophobe de lignine agit comme un agent de couplage et en renforçant la résistance du réseau cellulosique-hémicellulosique.

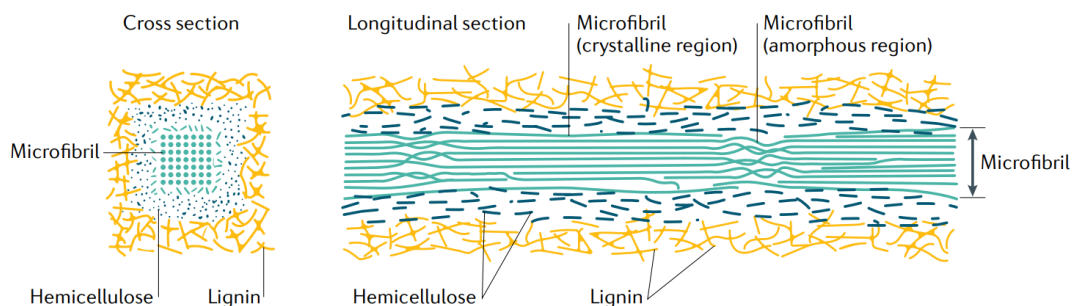


Figure I. 4 : Composition en coupe transversale et dans le sens longitudinal d'une fibre élémentaire de bois [59]

I.3.1.a Cellulose

La cellulose est le composé le plus présent dans la quasi-totalité des fibres végétales (50% de la biomasse). Il s'agit d'un polymère linéaire formé d'unités d'anhydroglucose reliées par des liaisons β -1,4. Elle est organisée en microfibrilles de 18 à 36 chaînes de cellulose au sein

des parois végétales. Grâce à un module élastique théorique estimé à 137 Pa [60] et un taux de cristallinité relativement élevé (de l'ordre de 55 à 60 % [61]), les microfibrilles de cellulose apportent à la fibre végétale une bonne rigidité [62]. Elles sont insolubles dans l'eau mais hydrophiles grâce aux nombreuses fonctions hydroxyles présentes sur la chaîne illustrée dans la Figure I.5.

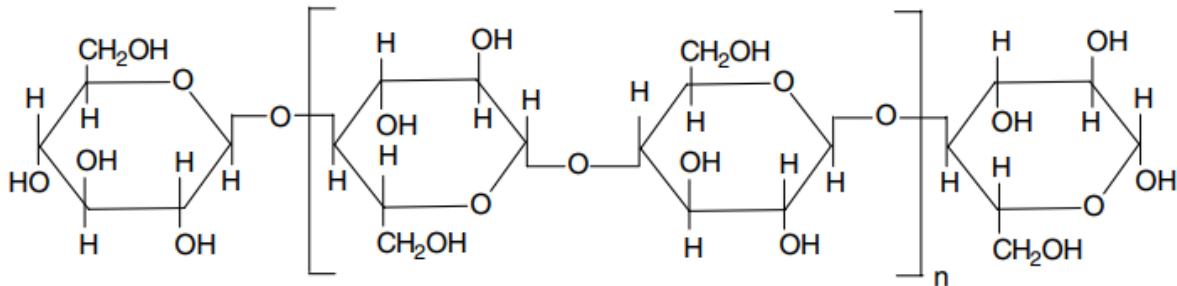


Figure I.5 : Structure de cellulose [63]

I.3.1.b Hémicellulose

Les hémicelluloses ont une fonction dans les propriétés élastiques de la fibre cellulosique parce qu'ils renferment un liant amorphe. C'est le constituant responsable de l'élasticité mécanique des fibres. L'hémicellulose est aussi un polysaccharide (Figure I. 6) mais composé de plusieurs monosaccharides, comme le fructose, le mannose ou le glucose, mais aussi d'acides uroniques. L'hémicellulose entoure les microfibrilles et les lie entre elles. Elle sert d'interface entre la cellulose et la lignine et il est difficile d'isoler les hémicelluloses sans les modifier. Les hémicelluloses ont une faible stabilité thermique et peuvent être facilement hydrolysées par un acide dilué ; elles sont très solubles dans les solutions alcalines et sensibles aux attaques fongiques. Elles sont insolubles dans l'eau à pH neutre mais soluble à pH basique. La cellulose et l'hémicellulose sont majoritairement présentes dans les parois primaires et secondaires pour former une cellule. Les hémicelluloses sont des polymères fortement hydrophiles [64], essentiellement responsables de l'absorption d'eau dans les parois cellulaires ce qui en fait parfois un point faible pour la préparation du béton.

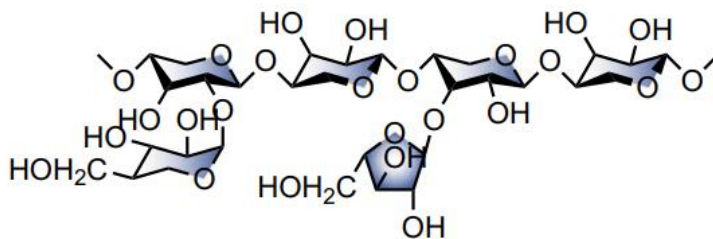


Figure I. 6 : Structure de l'hémicellulose [59]

I.3.1.c Lignine

La lignine est une substance aromatique condensée hydrophobe de haut poids moléculaire dont la composition et la structure varient d'un type de plante à l'autre. La lignine rend la paroi cellulaire hydrophobe et sa présence peut contribuer à protéger les matériaux lignocellulosiques de la dégradation microbienne. La structure, et donc la réactivité de la lignine, diffère non seulement entre les types de plantes, mais aussi entre les tissus végétaux, les types de cellules

et les couches de la paroi cellulaire. En raison de sa structure sophistiquée (Figure I. 7) comportant un mélange de groupements aromatiques et phénoliques, la lignine peut être impliquée dans de nombreuses réactions telles que l'hydrogénolyse, l'hydrolyse, la condensation et l'oxydation [65]. Elle résiste à l'hydrolyse acide, est soluble dans les solutions alcalines chaudes, oxydable et condensable avec le phénol. Ses principales fonctions sont d'apporter de la rigidité [66], une imperméabilité à l'eau [65] et une grande résistance à la décomposition. La lignine exerce des fonctions d'adhésion, de renforcement et de durcissement au sein de la fibre ligno-cellulosique [67]. En général, les fibres ayant une faible teneur en cellulose possèdent au contraire une teneur élevée en lignine [68].

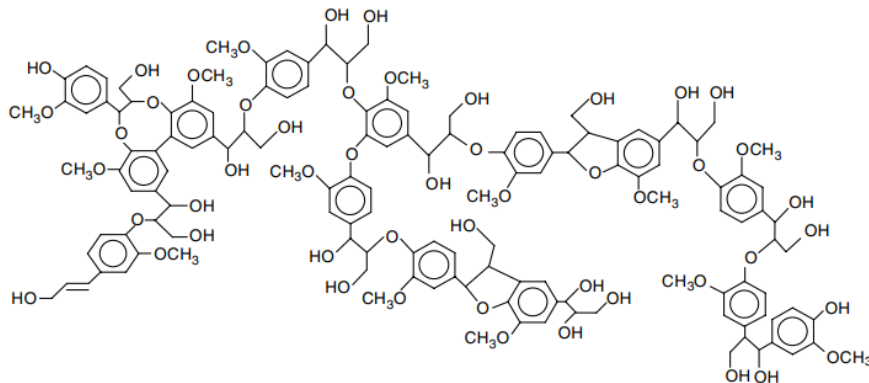


Figure I. 7 : Structure de lignine [63]

I.3.1.d Pectine

La pectine est un polymère amorphe formé de plusieurs saccharides. De quantité relativement faible dans les fibres de renfort, car dégradée au cours du procédé de rouissage, elle se situe principalement au sein de la lamelle moyenne et de la paroi primaire assurant la cohésion des fibres élémentaires au sein du faisceau. Elles ont un effet sur la croissance et la porosité de la plante. La prolifération d'acides pectiques est à l'origine de l'arrêt de croissance de la plante. [69] [70].

Bourmaud et al [71] ont souligné récemment le fait que les caractéristiques structurales des parois cellulaires ne sont pas généralisables pour toutes les espèces végétales. En effet, le nombre de couches, l'orientation des microfibrilles, le sens de l'hélice, la taille du lumen, et la morphologie (taille et forme) constituent selon les auteurs des caractéristiques intrinsèques spécifiques liées aux origines botaniques et aux variétés végétales [71] [72]. A travers des représentations schématiques des parois cellulaires, les auteurs sont parvenus à mettre en évidence ces différences de microstructures entre les plantes.

Le Tableau I. 3 présente les proportions de cellulose, hémicellulose, et de lignine pour différentes espèces végétales. D'autres composants secondaires tels que diverses matières extractibles et les cendres complètent leur composition chimique. Les parts de cellulose, d'hémicellulose et de lignine relevées dans les fibres végétales varient fortement en fonction de l'espèce.

Tableau I. 3 : Composition chimique (%massique) de différentes fibres végétales

Granulat	Cellulose (%)	Hémicellulose (%)	Lignine (%)	Références
Paille de blé	38	36	22	[73]
	38	29	15	[74]
	33,2	24	15,1	[75]
	28,8	39,1	18,6	[76]
	43.04	29.66	5.24	[77]
Paille de colza	36	37	24	[73]
	37,6	31,4	21,3	[75]
	53.06	18.13	9.63	[77]
Moelle de tournesol	23.3	5	21.64	[78]
Ecorce de tournesol	30.3	18.1	41.7	[78]
Lin	60-81	14-19	2,-3	[79] [80]
Chanvre	70-92	17-22	3,-5	[54] [79] [80]
Sisal	67-88	10,-14	8,1-11	[54] [79] [80]
Coir	32-43	15-25	40-45	[54] [80] [81]
Chenevotte	50.2+-1.8	24.1+-1.8	12.4+1	[82]

I.3.2 Influence de la composition chimique sur les propriétés des granulats

Les compositions chimiques des granulats jouent un rôle déterminant sur leurs propriétés. En effet, des caractéristiques telles que le module de Young, la résistance à la traction, la résistance à la compression et à la flexion sont toutes influencées par la composition chimique des granulats.

Les fibres naturelles végétales possèdent des propriétés qui dépendent de leur teneur en cellulose [83], qui est un polymère qui offre une résistance mécanique très élevée. À titre d'exemple, les fibres libériennes de lin, de chanvre ou de jute présentent une orientation des microfibrilles de cellulose par rapport à l'axe longitudinal de la fibre comprise entre 6 et 11° [21] [58], tandis que le sisal et le palmier présentent une orientation de 20° et 45° respectivement [58]. Les études menées par certains auteurs sur l'influence de l'angle microfibrillaire sur les propriétés mécaniques des fibres végétales en tension ont permis de montrer qu'une diminution de l'angle microfibrillaire augmenterait la rigidité et la résistance à la rupture [65] [71]. Si cet angle est faible, les propriétés en traction de la fibre sont plus élevées. Le Tableau I. 4 synthétise les propriétés en traction de différentes fibres naturelles, ainsi que leur teneur en cellulose et leur angle microfibrillaire.

Tableau I. 4 : Propriétés mécaniques de quelques fibres naturelles [58] [63] E: module de Young, A: allongement à la rupture en traction, σ_u contrainte à la rupture en traction

Fibres	Cellulose(%)	Amf (°)	E(Gpa)	A(%)	σ_u(mpa)	P(g/cm³)
Lin	64-71	10	27-91	1.6-5.9	531-3282	1.53
Chanvre	78	6.2	35	1.6	389	1.07
Jute	61-71	8	26.5	1.5-1.8	393-773	1.44

Sisal	67-78	20	9-21	3-7	350-700	1.45
Coco	43	45	4-6	15-40	131-175	1.15
Coton	85-90	-	5.5-12.6	7.8	287-597	1.5-1.6

I.4 Caractéristiques principales des matériaux biosourcés : mécaniques et thermiques

Les propriétés des matériaux biosourcés dépendent fortement du type du liant, du granulat, et de leur composition et mode de fabrication. Nombreuses études de la littérature se sont intéressées à leur développement et caractérisation. Pour leur application en tant que matériaux isolants, le béton à base de végétaux requiert une résistance mécanique minimale afin d'être autoportant et de supporter les contraintes lors du transport et de la mise en place.

Des études précédemment rapportées ont montré que la résistance à la compression et le module de Young du béton à base de végétaux diminuaient en fonction de la fraction massique/volumique de l'agrégat végétal [84] [37] [85]. Ces résultats ont été attribués à l'impact de la porosité des agrégats ajoutés, réduisant la résistance mécanique et la rigidité du composite. Niyigena et al. [86] ont supposé que l'augmentation de la teneur en agrégats améliore la surface spécifique des agrégats, ce qui entraînait une faible liaison à l'interface entre le liant et les particules végétales, réduisant ainsi la résistance à la compression. Nguyen et al. [33] ont observé une augmentation de la résistance à la compression due à l'augmentation du niveau de compactage à l'état initial, ce qui a également réduit la porosité.

En raison de leur nature hétérogène, les matériaux biosourcés présentent souvent des propriétés mécaniques anisotropes. Les propriétés des matériaux biosourcés dépendent de manière importante des propriétés et des performances des particules qui les composent. Selon les études menées par Gross & Walker [10] et Hanley & Pavía [87], il est bien établi que les bétons végétaux ont une résistance intrinsèquement inférieure à celle du béton ordinaire. Cependant, les effets de divers paramètres sur cette propriété ont également été étudiés, notamment la masse volumique, le type de liant, le rapport de mélange, le niveau de compactage. Les deux graphiques, Figure I. 8 et Figure I. 9, synthétisent les données concernant la densité, la résistance à la compression et la conductivité thermique.

Il convient de souligner que dans plus de cas, plus la masse volumique est importante, plus la résistance à la compression est grande et inversement. Un nombre considérable de matériaux exhibe une résistance à la compression inférieure à 0,5 MPa, ce qui les exclut des catégories Classe-III et Classe-II, conformément à la classification fonctionnelle établie par la RILEM (RILEM, 1978).

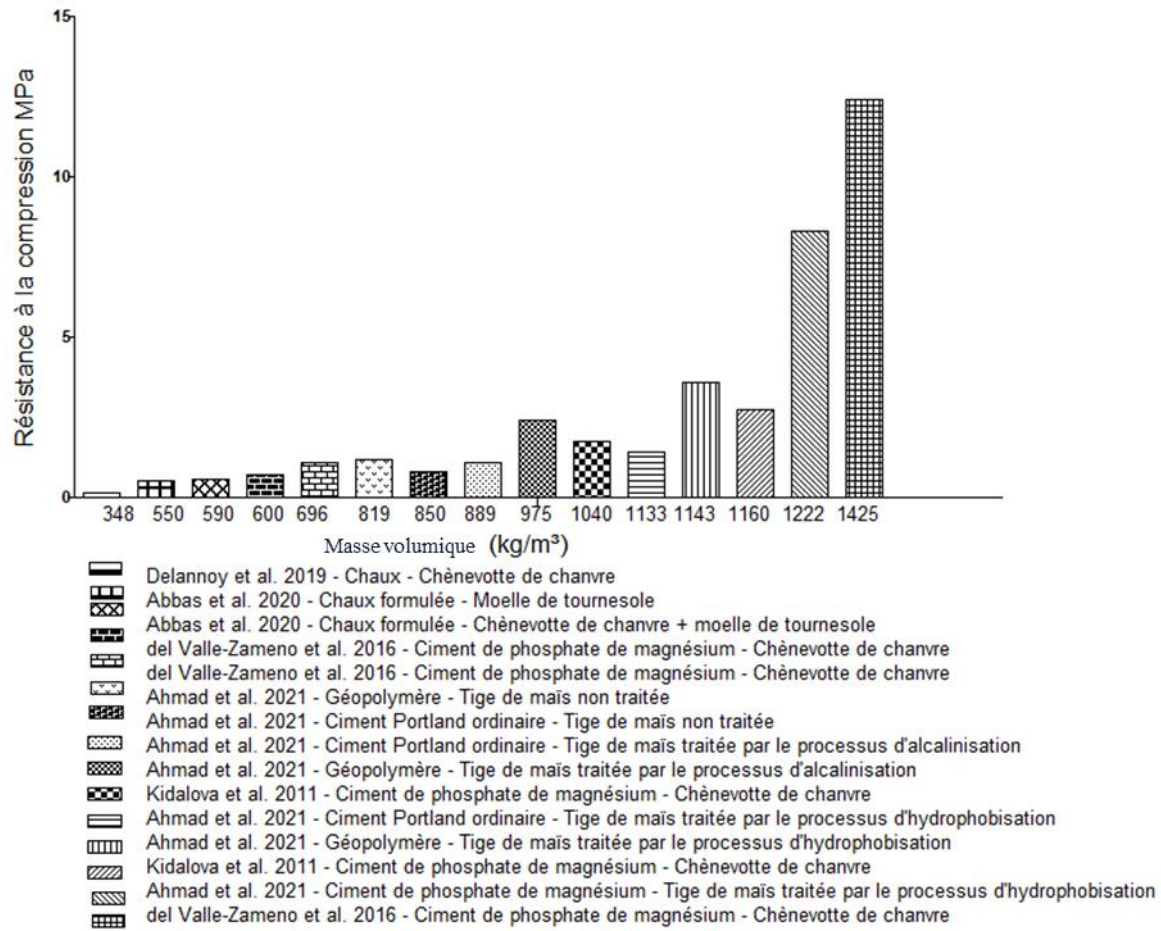


Figure I. 8 : Caractéristiques de la masse volumique et de résistance à la compression mécanique des divers biocomposites à base de différents liants et granulats

Les matériaux biosourcés se distinguent principalement par leur capacité à offrir une isolation thermique efficace. De plus, l'arrangement des fibres résultant de la compression des bétons végétaux influe sur leur conductivité thermique, comme en témoignent les observations de Nguyen et al. [88]. Cette orientation des fibres responsable de l'anisotropie de la structure poreuse engendre des variations de conductivité thermique entre les directions parallèle et perpendiculaire à la compression, un phénomène également rapporté par Dinh et al. [89] et Picandet [90].

Il est à noter que la masse volumique semble être le paramètre exerçant l'influence de manière significative les propriétés thermiques [2]. De nombreuses explications sont disponibles pour ce phénomène. Tout d'abord, l'ajout d'agréats végétaux poreux augmente la porosité du composite, ce qui améliore à son tour ses performances thermiques. Simultanément, une augmentation de la quantité d'agréats diminue la quantité de liant, qui est un bon conducteur thermique ; diminuant ainsi la conductivité thermique du composite. En effet, une masse volumique importante implique la présence d'un volume d'air réduit dans le matériau, ce qui engendre une faible conductivité thermique, comme indiqué par Collet et Pretot [91] et Walker et al. [18]. Les données illustrées dans la Figure I. 9 confirment que la conductivité thermique mesurée des bétons végétaux se situe généralement dans la plage de 0,054 à 0,265 W.m⁻¹.K⁻¹, en accord avec les observations provenant de diverses études antérieures.

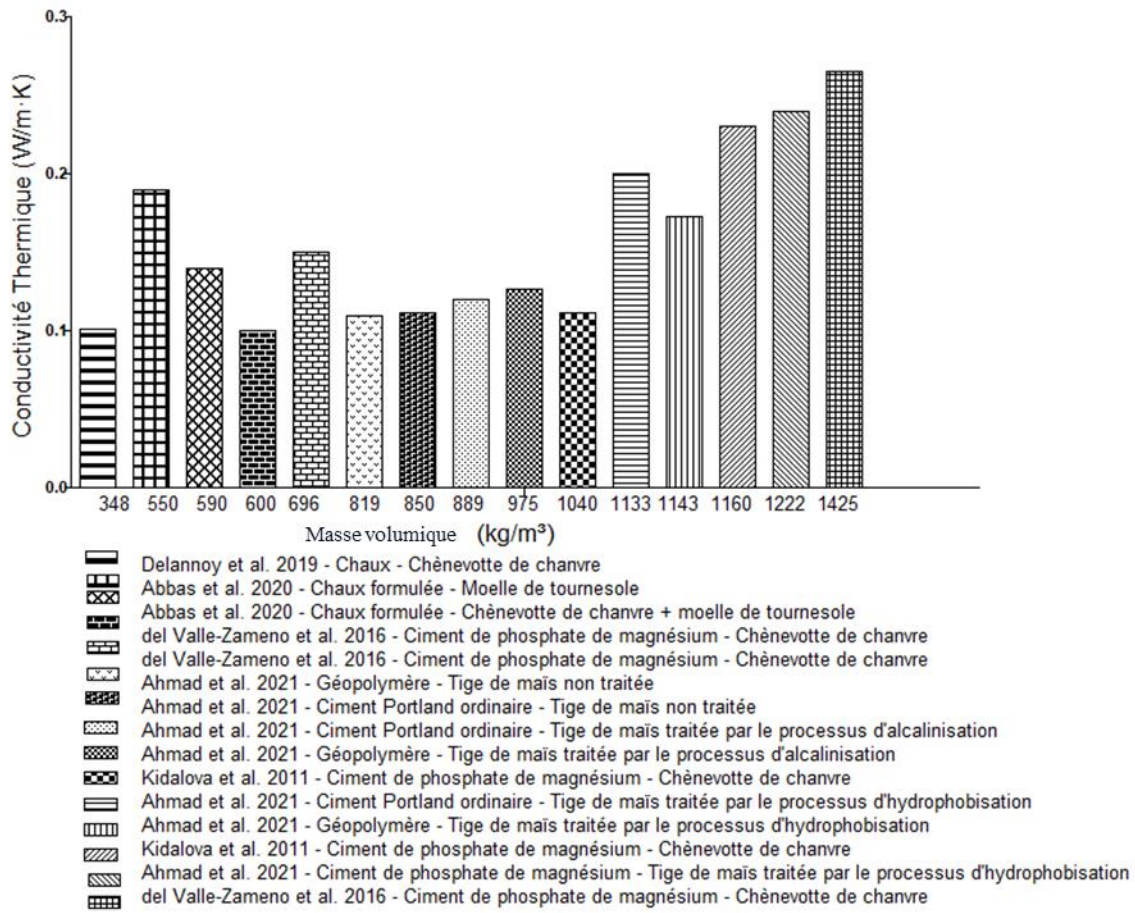


Figure I. 9 : Masse volumique et conductivité thermique des divers biocomposites a base de différents liants et granulats

I.5 Sensibilité aux conditions d'humidité

Les matériaux hygroscopiques sont capables de fixer et de stocker de l'eau en fonction des conditions d'humidité. Cette capacité est régulée par la distribution de la taille des pores [14]. Selon de nombreuses études de la littérature, les matériaux biosourcés sont des matériaux fortement hygroscopiques grâce à la fois au liant et aux particules végétales. [92]. Cela signifie qu'ils sont capables d'adsorber l'excès d'eau de l'environnement (sous forme de vapeur qui se condense dans certaines conditions) et de désorber cette eau lorsque l'environnement est plus sec. Cette capacité naturelle de régulation de l'humidité est un atout majeur car elle contribue à des conditions intérieures plus saines et plus confortables pour les occupants.

Lorsque des molécules d'eau sont introduites dans la structure tridimensionnelle du matériau, un processus appelé plastification peut se produire. La plastification se réfère à un changement dans les caractéristiques du matériau, le rendant plus flexible et malléable. Ce phénomène est engendré par la rupture des liaisons secondaires qui existent entre les chaînes moléculaires à l'intérieur du matériau. Ces liaisons secondaires, telles que les liaisons van der Waals ou les liaisons hydrogène, contribuent à la stabilité de la structure du matériau en maintenant les chaînes moléculaires ensemble. Par conséquent, la déformation du matériau s'accroît. Cette rupture permet la formation de liaisons hydrogène entre les molécules d'eau et les groupes

hydrophiles du granulat, ce qui augmente la mobilité des chaînes macromoléculaires et affecte directement les propriétés physico-chimiques et mécaniques des granulats. Par conséquent, l'exposition des bio-composites à une forte humidité conduit à une augmentation de la conductivité [45] thermique accompagnée par une diminution de la résistance mécanique [5].

Ahmad et al. 2021 [93] ont remarqué que la teneur en eau a un impact significatif sur la conductivité thermique des bétons végétaux. Avec l'augmentation de la teneur en eau interne des échantillons, la conductivité thermique de tous les bétons végétaux a augmenté de 2,5 à 4,5 fois, passant de conditions séchées aux conditions de saturation totale (de 0% à 100% de teneur en eau). De manière similaire, les travaux de Brouard [2] ont mis en évidence une augmentation de la conductivité thermique des biocomposites composés de paille de colza et de moelle de tournesol à mesure que l'humidité relative augmentait. En effet, une augmentation de la teneur en eau entraîne une plus grande quantité d'eau dans les porosités de l'échantillon, remplaçant l'air [94]. Par conséquent, comme l'eau a une conductivité thermique plus élevée que l'air, la conductivité thermique du matériau augmente.

Dans une étude réalisée par Thuault et al. [95] la résistance à la traction d'une fibre de lin atteint une valeur maximale de 900 MPa pour une humidité relative de 68% HR. Au-delà de cette valeur d'humidité relative, la résistance à la traction a chuté à 780 MPa pour une humidité relative de 85% HR. Selon les chercheurs, ces variations de résistance sont attribuées à des modifications de la microstructure des parois cellulaires des fibres de lin dues à l'absorption d'eau. En effet, des observations au microscope électronique à balayage (MEB), comme illustré sur la Figure I. 10, ont montré que, après une journée d'exposition à une humidité relative de 100% HR, l'eau pénètre dans la fibre jusqu'à atteindre la paroi primaire. Au bout de 7 jours, des cloques apparaissent à la surface de la fibre, et après 4 semaines, la paroi cellulaire se fissure.

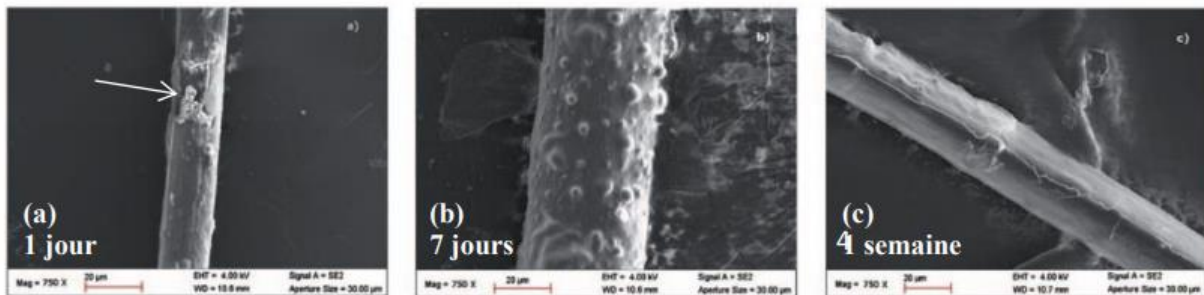


Figure I. 10 : Image SEM de la surface d'une fibre de lin après vieillissement à 20°C et 100% HR pendant (a) 1jour, (b) 7 jours et (c) 4 semaines [95]

I.6 Mode de fixation de l'humidité

Il existe deux mécanismes fondamentaux de fixation de l'humidité, qui se traduisent par une adsorption en surface et une condensation capillaire. Ce processus est très dépendant de la taille des pores. La biomasse présente une porosité très élevée. Ces spécificités se traduisent par des performances hygrothermiques très intéressantes [96]. La forte porosité de ces granulats permet à l'eau de pénétrer facilement dans la cellule. Il est donc important de distinguer les pores de petite taille (moins de 100 nm), où la fixation de l'humidité par adsorption et capillarité est

importante (domaine hygroscopique), et des pores de grande taille (plus de 100 nm, domaine non hygroscopique). Ces derniers ne sont pas très sensibles à la fixation de l'humidité.

L'adsorption physique peut être décomposée en trois phases distinctes traduisant le comportement du matériau à l'échelle microscopique. Ces trois étapes sont schématisées sur la Figure I. 11. L'adsorption monomoléculaire se produit lorsque des molécules individuelles d'eau sont adsorbées à la surface du matériau poreux, généralement en raison des forces d'interaction faibles entre les molécules d'eau et les sites actifs de la surface. L'adsorption polymoléculaire se produit lorsque plusieurs couches de molécules d'eau sont adsorbées, formant ainsi des structures multicouches à la surface du matériau poreux. La condensation capillaire, quant à elle, se produit lorsque les molécules d'eau adsorbées se condensent et forment un pont liquide dans les pores étroits du matériau poreux, séparé de la phase gazeuse environnante [97] [98].

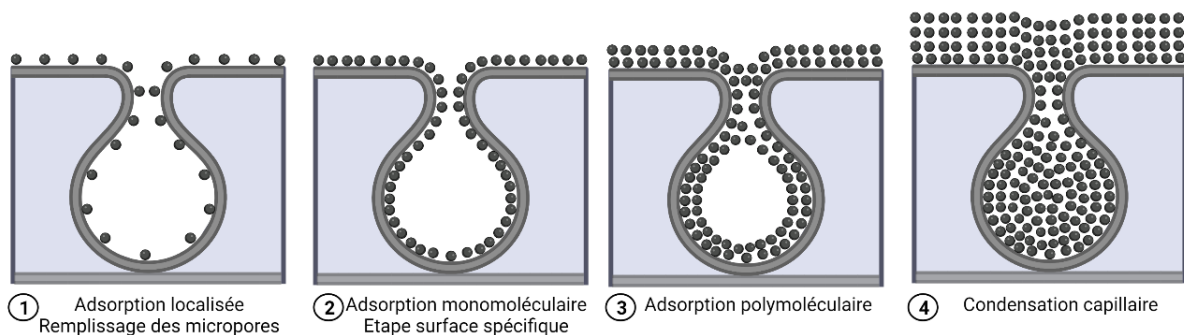


Figure I. 11 : Etapes de remplissage d'un pore [98]

Quand les molécules d'eau se fixent physiquement sous l'effet des forces de Van Der Waals sur la surface totale de pores sous l'effet de l'humidité relative à température constante, on parle du phénomène d'adsorption de surface. La condensation capillaire se traduit par le remplissage des pores. Le pouvoir de stockage de l'humidité se traduit par les courbes de sorption du matériau à température constante, qui illustrent la variation de la teneur en eau du matériau en fonction de l'humidité relative de l'air ambiant.

I.7 Hystérésis et comportement hygroscopique

L'existence de liaisons hydrogène différenciées entre les phases de sorption et de désorption d'eau dans la cellulose amorphe a été clairement démontrée. Elle provoque une hystérésis microscopique des granulats. Au cours de l'adsorption monomoléculaire, les molécules d'eau sous forme liquide recouvrent la surface des pores en une couche de l'épaisseur d'une molécule où elles sont retenues sous l'effet des forces de Van der Waals. Ensuite, quand le taux d'humidité relative de l'air ambiant augmente, de nouvelles couches de molécules d'eau se fixent à la première, entraînant le passage d'une adsorption monomoléculaire à une adsorption polymoléculaire. Pour une humidité relative maximale, les couches polymoléculaires se regroupent et constituent un pont liquide séparé de la phase gazeuse par un ménisque. Les forces capillaires maintiennent l'eau à la surface des pores, ce qui entraîne le remplissage des pores les plus fins, puis des plus gros, aboutissant à un phénomène de condensation capillaire. Le décalage entre les courbes de sorption et de désorption s'explique couramment par un effet bouteille d'encre,

Figure I.12. Le remplissage d'un pore de faible diamètre empêchera le remplissage d'un pore adjacent de plus grand diamètre, ce qui aura pour effet de piéger l'air. Pendant la désorption, la libération d'un pore de grand diamètre commence seulement lorsque l'humidité relative est suffisamment basse pour permettre au pore de plus petit diamètre de se vider.

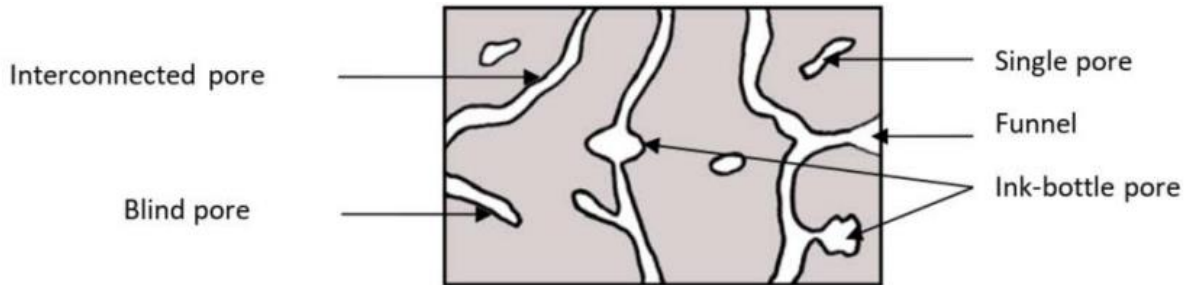


Figure I.12 : Schéma de principe du réseau poreux [98]

I.7.1 Cas des granulats végétaux

Des disparités se manifestent entre les processus d'adsorption d'eau et de désorption, engendrant un schéma d'hystérésis intrinsèquement lié aux propriétés hygroscopiques du matériau [17]. En effet, l'étude menée par Bouasker et al. [17] a porté sur un type de granulat identique (paille de blé), toutefois, différents échantillons de paille de blé ont été considérés. La représentation graphique présentée dans la figure ci-dessous met en évidence un comportement similaire des échantillons issus de la paille de blé lorsque ces derniers atteignent leur saturation (adsorption : courbe en pointillés). Néanmoins, lors du processus de désorption, qui consiste en la libération de l'eau adsorbée depuis la surface d'un matériau, des différences de comportement se manifestent parmi les trois échantillons, bien qu'ils appartiennent au même type de matériau.

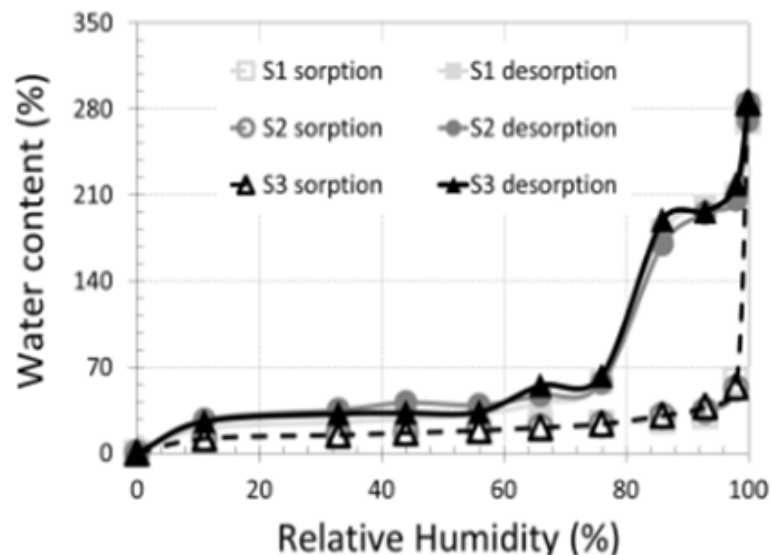


Figure I. 13 : les courbes d'isotherme de sorption et de désorption pour les trois échantillons de paille de blé (s1, s2 s3) de blé [17]

Le comportement hystérétique diffère selon le type de granulats considéré. Dans le cas spécifique de la paille d'orge, la cinétique de désorption (comme illustrée dans la (Figure I. 14)

se caractérise par une évolution plus lente par rapport à la paille de blé, particulièrement lorsque l'humidité relative se rapproche de la saturation. De plus, des différences substantielles se dessinent entre les courbes de sorption et de désorption pour chaque variété de matériau. Ce phénomène est également remarquable dans d'autres granulats végétaux. Dans l'étude menée par Laboral Preneron et al. (Laborel-Préneron et al., 2018) qui portait sur la caractérisation de la paille d'orge, du chanvre et des épis de maïs, les chercheurs ont conclu à l'existence d'une hystérésis entre les isothermes de sorption et de désorption. Cette observation semble être influencée par la teneur en lignine des fibres naturelles, comme indiqué par Hill et al. dans leurs travaux [99].

Une capacité de sorption élevée pourrait entraîner une régulation efficace de l'humidité si la cinétique de sorption-désorption s'avérait rapide. Cette amélioration contribuerait à équilibrer l'humidité de l'air intérieur, créant ainsi un environnement plus confortable pour les occupants [99].

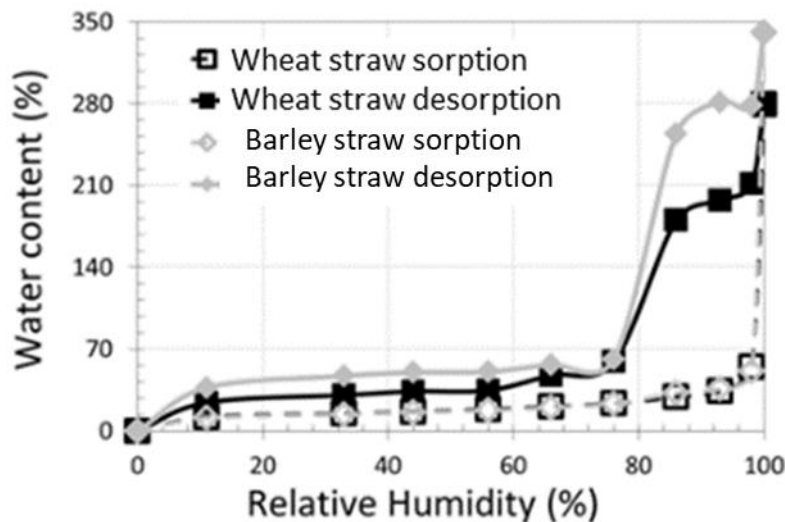


Figure I. 14 : Les courbes d'isotherme de sorption et de désorption pour la paille de blé et la paille d'orge [17]

I.7.2 Cas des matériaux biosourcés

Le comportement hydrophile des biocomposites provient essentiellement des granulats utilisés dans leur formulation. La présence de composants hydrophiles est à l'origine de la forte absorption d'eau des matériaux biosourcés. Ces constituants ont la capacité d'interagir avec l'eau et de former des liaisons hydrogène, ce qui conduit à une sensibilité accrue des matériaux biosourcés à l'eau. Les courbes d'isotherme d'adsorption et désorption possèdent une allure caractérisée par une montée très faible, puis elle varie rapidement pour atteindre une humidité relative maximale, typiquement trouvée par le résumé de la littérature [4] [5] [100] [101] illustré dans la Figure I. 15.

Quand le matériau biosourcé est en phase de désorption, il est soumis à une diminution progressive de l'humidité relative de l'air dans lequel il est stocké. Les variations d'humidité générées par des étapes graduellement croissantes puis décroissantes aboutissent à la formation

d'une courbe isotherme de sorption-désorption. Cette courbe distincte confère au matériau poreux son propre profil hydro-structurale caractérisant ses propriétés en termes de réactivité vis-à-vis de l'humidité [20]. L'allure de l'adsorption et de la désorption présente une hystérésis remarquable pour les matériaux à base de granulats végétaux [102] [20] [103]. La teneur en eau varie à une humidité relative donnée, en fonction de la phase d'adsorption ou désorption.

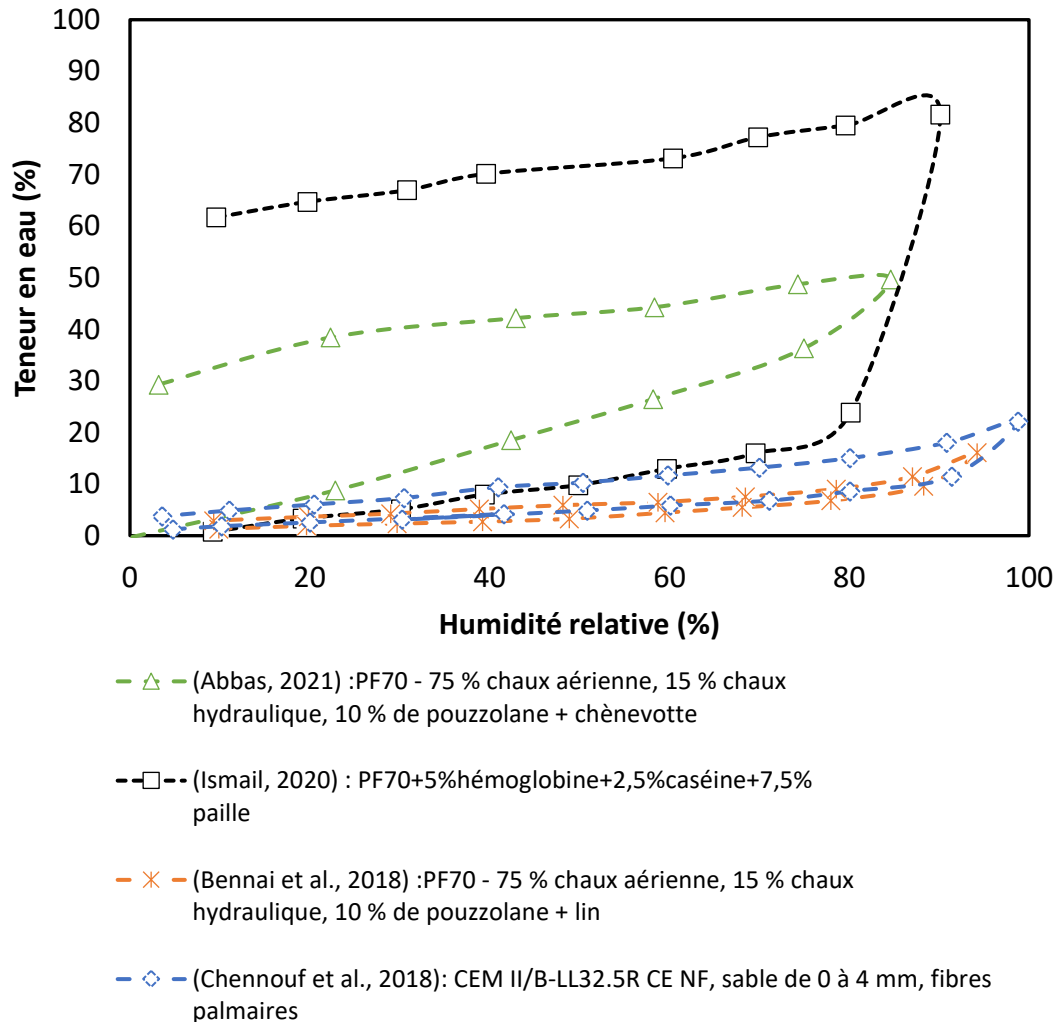


Figure I. 15 : Isotherme d'adsorption et désorption de différentes formulations à base de granulats végétaux

I.8 Traitement des fibres : changement microstructuraux et influence sur le comportement hydrique

Les fibres lignocellulosiques se distinguent par leur structure cristalline. Les groupes hydroxyles fortement hydrophiles et l'hémicellulose, la lignine, la pectine et d'autres substances cireuses présentes dans ces régions cristallines et amorphes vont réduire la compatibilité avec la matrice hydrophobe [104] [105]. Ces composants peuvent avoir des effets significatifs sur les propriétés hydriques des granulats. La cellulose apporte la résistance et la rigidité nécessaires aux fibres naturelles, alors que l'hémicellulose est responsable de l'absorption de l'humidité et de la dégradation thermique des fibres. La lignine apporte également la rigidité du granulat et présente une hydrophobicité plus marquée.

Cette section abordera les traitements utilisés pour modifier la composition chimique des granulats et améliorer leur caractère hygroscopique. L'objectif est de choisir un traitement écologique et d'investiguer les effets de ce traitement sur le gonflement et le retrait en réduisant l'absorption d'eau. La teneur en hémicellulose peut être modulée pour réduire la rétention d'eau et, par conséquent, affecter le comportement de gonflement et de retrait des granulats. Des traitements utilisant des solutions salines peuvent augmenter la teneur en cellulose en éliminant partiellement l'hémicellulose [106].

I.8.1 Types de traitements des granulats :

L'un des mécanismes permettant de changer le comportement des matériaux à base de cellulose d'hydrophiles en hydrophobes implique une modification chimique visant à bloquer les groupes hydroxyles de la paroi cellulaire, réduisant ainsi les sites de sorption d'eau. Néanmoins, cela affecte leur comportement en causant parfois des dommages soit des granulats, soit des bio-composites résultants. La modification des compositions chimiques des granulats naturels est un outil essentiel pour améliorer leur comportement hygroscopique. Pour réduire la quantité d'eau absorbée, il existe un grand nombre de traitements dans la littérature, en fonction du problème spécifique et du résultat souhaité. Le traitement des granulats, par un traitement chimique ou physique, améliore les propriétés mécaniques, structurelles ou hygroscopiques en modifiant leurs composants chimiques. À cet égard, les études sur la modification des composants sont généralement basées sur l'utilisation de groupes fonctionnels hydroxyles capables de changer la composition de la microstructure des granulats [107]. De cette manière, la tendance à absorber l'humidité est réduite et par conséquent, le comportement de gonflement et retrait. La concentration des additifs, le temps de traitement, la température et le pH de la solution sont des facteurs importants qui agissent sur la modification de la paroi cellulaire des granulats et influence de manière importante le résultat. Dans le but de poursuivre la recherche sur les méthodes de traitement, le présent travail vise à trouver une technique qui pourrait réduire la quantité d'hémicellulose tout en maintenant un taux élevé de lignine, ce qui permettrait de diminuer la rétention d'eau.

I.8.1.a Traitement alcalin

Le traitement chimique avec de l'hydroxyde de sodium (NaOH) est une méthode couramment utilisée pour traiter la surface des fibres naturelles [108]. Cependant, son utilisation excessive a été remise en question et des recherches ont été menées pour déterminer son utilité en tant que pré-traitement ou traitement principal, [110] [111] [112]. Il a été constaté que des concentrations plus élevées de NaOH améliorent les caractéristiques de surface des fibres en éliminant la couche cireuse et en améliorant l'adhérence entre la fibre et la matrice [113] [114]. Cependant, des concentrations élevées peuvent endommager la fibre. Il est donc important de contrôler la concentration du NaOH pour éviter d'endommager la fibre, et une concentration de 6% est souvent considérée comme optimale pour obtenir de bonnes propriétés de surface et de résistance des fibres tout en réduisant la rétention d'eau.

Pejic et al. [106] se sont intéressés à modifier la concentration des composants chimiques par des traitements chimiques des fibres de chanvres. Le traitement par NaOH élimine les hémicelluloses en fonction de la concentration utilisée. Le traitement par NaClO₂ élimine la lignine avec un pH 4 selon différentes concentrations. Le Tableau I. 5 présente les compositions

chimiques et les modifications résultants des traitements. La sorption de la vapeur d'eau commence par la formation d'une monocouche, où une molécule d'eau est liée à chaque groupe hydroxyle accessible et se poursuit par la formation d'une multicouche dont l'épaisseur augmente progressivement. Les changements dans la sorption d'humidité des fibres de chanvre modifiées reflètent les changements dans la composition chimique, la cristallinité et la structure des pores. Les résultats obtenus par les tests d'évaluation de la modification de l'absorption d'eau des fibres par la méthode de remontée capillaire, sorption d'humidité et pouvoir de rétention d'eau ont révélé les rôles respectifs des hémicellulose et lignine. La réduction des hémicelluloses hydrophiles de 10,72 à 3,29% diminue les valeurs de rétention d'eau tandis qu'une réduction de la lignine hydrophobe de 6,06 à 3,09%, suite à un traitement au chlorure de sodium, l'augmente.

Tableau I. 5 : Modification des compositions biochimique de fibres de chanvre [106]

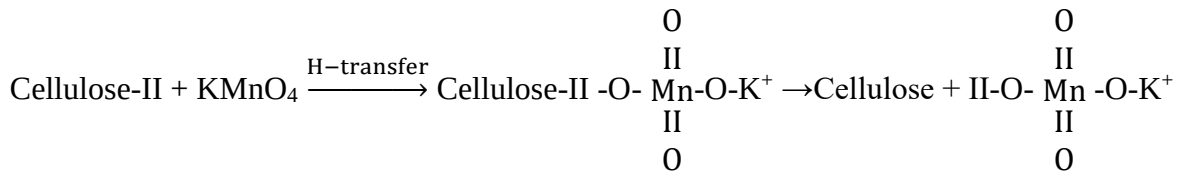
Modification conditions	Weight loss (%)	Hemicellulose		Lignin	
		Content (%)	Removed (%)	Content (%)	Removed (%)
Unmodified sample	-	10,72	-	6,06	-
17.5% NaOH, 5 min	8,15	4,69	56,25	5,66	6,6
17.5% NaOH, 10 min	7,78	4,19	60,91	5,12	15,5
17.5% NaOH, 20 min	9,43	4,38	59,14	5,27	13,04
17.5% NaOH, 30 min	9,18	3,29	69,31	5,18	14,52
17.5% NaOH, 45 min	9,9	3,59	66,51	5,41	10,73
0.7% NaClO₂, 5 min	4,16	8,89	17,07	4,09	32,51
0.7% NaClO₂, 15 min	5,47	9,78	8,77	3,74	38,28
0.7% NaClO₂, 30 min	5,15	8,72	18,66	3,57	41,09
0.7% NaClO₂, 60 min	6,17	8,99	16,14	3,09	49,01

I.8.1.b Traitement au permanganate de potassium KMnO₄

Le traitement chimique des fibres naturelles avec du permanganate de potassium (KMnO₄) est une méthode active pour modifier leur surface. Des études ont démontré qu'après traitement on pouvait observer l'augmentation des résistances mécaniques [115], l'amélioration de la stabilité thermique ainsi que les changements cristallographiques et macromoléculaires de la structure ont été rapportés [116]. Son intérêt vient du fait qu'il réagit avec les constituants de la lignine (groupes hydrophiles à liaison unique) et se sépare de la paroi cellulaire de la fibre. Il réduit la nature hydrophile de la fibre. Pour éviter une délignification excessive, qui entraîne la dégradation des propriétés de la fibre et l'élimination des matériaux de cimentation dans la structure cellulosique, il est recommandé de ne pas dépasser 1 % de KMnO₄ dans le processus.

Des études menés par Imoisili et al. [117] et par Patra et al. [118] montrent que l'utilisation d'une solution KMnO₄ aactone ayant une concentration de 0,05% pendant 3 minutes de KMnO₄ permet l'élimination partiellement des cires, de l'hémicellulose et de la lignine. Cela peut être dû à l'oxydation des groupes OH à l'intérieur de la fibre et à l'initiation de la copolymérisation

greffée par l'ion MnO_3^- réactif comme expliqué par l'équation ci-dessous. Les groupes OH à l'intérieur de la fibre sont oxydés.



Les traitements au permanganate des fibres de plantain ont effectivement amélioré la stabilité thermique et ont également augmenté la taille des cristallites, le degré de cristallinité et entraîné une réduction de l'hydrophobie de la fibre.

Une comparaison de plusieurs traitements chimiques, tels que l'hydroxyde de sodium (NaOH), l'acide stéarique (SA), le peroxyde de benzoyle (BP) et le KMnO_4 , sur les fibres d'agave americana a été réalisée par Madhu et al. [119]. Les traitements chimiques ont réduit la teneur en hémicellulose et en lignine des fibres et augmenté la teneur en cellulose.

Les résultats montrent clairement que les fibres brutes ont un pourcentage élevé d'hémicellulose et de lignine, alors que leur teneur en cellulose est plus faible. Avec les différentes techniques de modification chimique utilisées, les teneurs en hémicellulose et en lignine diminuent tandis que la teneur en cellulose augmente considérablement dans toutes les fibres traitées, ce qui montre une hydroxylation partielles des teneurs en hémicellulose et en lignine respectivement [120]. La teneur en humidité des fibres traitées est présentée dans le Tableau I. 6. Le traitement chimique avec du KMnO_4 est une méthode efficace pour modifier la surface des fibres naturelles, améliorer leurs propriétés mécaniques et thermiques, et réduire leur caractère hydrophile [121].

Tableau I. 6 : Constituants chimiques des fibres d'agave americana traitées et non traitées
[119]

Fibre	Cellulose (%)	Hémicelluloses %	Lignine %	Teneur en eau (%)
Sans traitement	65,54 ± 3,46	18,41 ± 2,28	6,08 ± 3,39	9,32 ± 1,02
NaOH	78,65 ± 2,68	8,47 ± 3,11	4,65 ± 2,38	8,04 ± 1,78
SA	81,65 ± 3,59	6,31 ± 2,13	3,43 ± 1,38	7,04 ± 2,78
BP	80,26 ± 3,33	7,42 ± 2,11	4,33 ± 1,67	7,79 ± 0,69
KMnO₄	79,78 ± 2,48	6,67 ± 3,32	4,1 ± 2,44	7,98 ± 0,22

I.8.1.c Traitement par l'anhydride acétique

Le traitement des fibres avec de l'anhydride acétique est une méthode efficace pour réduire leur caractère hydrophile et améliorer la dispersion dans les composites thermoplastiques [122]. Ce traitement permet également d'améliorer la résistance des fibres à la décomposition. L'anhydride acétique modifie la vitesse de décomposition des fibres, soit en réduisant la teneur en humidité de la paroi cellulaire, soit en bloquant les micropores de la paroi cellulaire, soit par une combinaison de ces deux effets [123].

Une faible concentration d'acide acétique avec une exposition à haute pression à l'acide carbonique $\text{CO}_2\text{-H}_2\text{O}$ est efficace pour éliminer et hydrolyser la composante hémicellulose [124]. L'acide carbonique et l'acide acétique formés lors du traitement catalysent l'hydrolyse sélective de l'hémicellulose, laissant le composant cellulosique intact. Ce processus conduit à une augmentation de la surface et de la porosité des fibres, ainsi qu'à une rugosité de leur surface, favorisant l'hydrolyse du composant cellulosique.

L'estérification des fibres naturelles avec un anhydride acétique améliore la force de liaison fibre-matrice, la résistance à la rupture des fibres et la résistance post-pic. Un prétraitement au NaOH suivi d'un trempage dans de l'anhydride acétique permet d'obtenir de meilleurs résultats [125]. Les fibres sont prétraitées avec 6% de NaOH, puis trempées dans de l'anhydride acétique à 5% ou 10% pendant 1 heure. Après le traitement, les fibres sont lavées pour éliminer l'excès d'acide et séchées jusqu'à ce qu'un poids constant soit atteint.

I.8.1.d Traitement par le bicarbonate de sodium NaHCO_3

Le bicarbonate de sodium (NaHCO_3), également appelé carbonate acide de sodium, est couramment utilisé à des fins médicales comme antiacide, comme agent levant dans la cuisson des gâteaux et du pain, ainsi que dans la fabrication du carbonate de sodium (Na_2CO_3). Plus récemment, il a été utilisé comme traitement chimique écologique pour les fibres naturelles.

Une étude menée par Fiore et al. de 2016 à 2019 [110] [111] a examiné l'effet de ce traitement écologique et rentable à base de bicarbonate de sodium sur les propriétés de la fibre de sisal et de ses composites époxy. Les fibres ont été lavées à la main, séchées à température ambiante pendant 48 heures, puis trempées dans une solution de bicarbonate de sodium à 10% en poids pendant différentes durées (24 heures, 120 heures et 240 heures) à température ambiante. Elles ont ensuite été lavées à l'eau distillée et séchées dans un four à 40°C pendant 24 heures. Les résultats expérimentaux ont montré que 120 heures est le temps optimal pour traiter les fibres de sisal afin d'atteindre la meilleure adhérence interfaciale et les meilleures propriétés mécaniques.

Dos Santos et al. [128] ont également utilisé ce traitement sur les fibres de coco des tapis enchevêtrés. Les fibres ont été trempées dans une solution de Na_2CO_3 à 10% en poids, avec un pH mesuré proche de 12, pendant 24, 96 ou 168 heures à température ambiante. Les échantillons de coco ont ensuite été lavés à l'eau, puis immergés dans de l'eau fraîche pendant 30 minutes, et enfin séchés dans un four à 50°C pendant 24 heures. Le traitement alcalin s'est révélé plus efficace après 96 heures, mais au-delà de cette durée, les propriétés de traction et de flexion ont tendance à diminuer suite à la dégradation des granulats. La Figure I. 16 illustre l'état des fibres après différentes durées de traitement. Des microfissures peuvent également être observées sur toute la surface de la fibre traitée après une longue durée de traitement, en raison des phénomènes de dégradation.

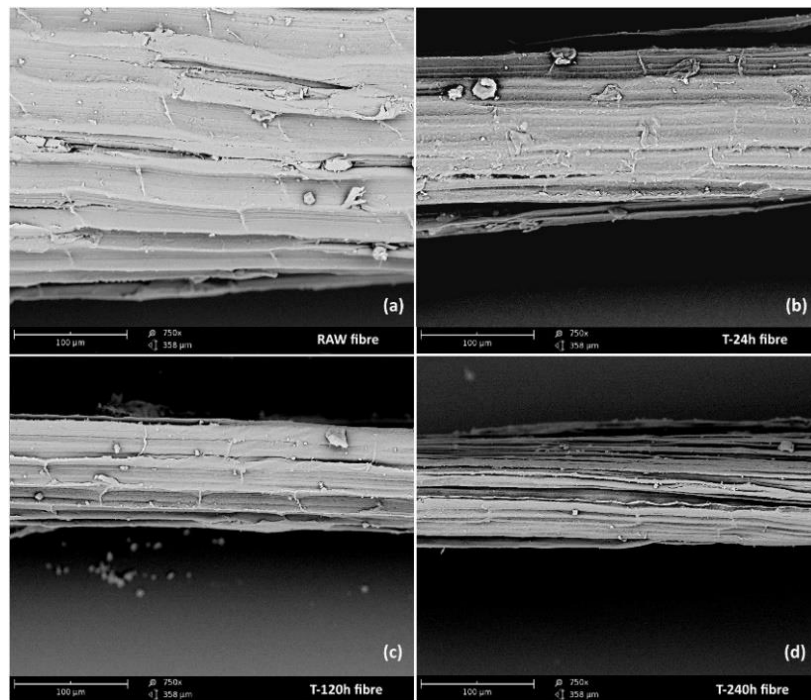


Figure I. 16 : Cliché MEB de la vue longitudinale de la fibre (a) non traité, (b) T-24 h, (c) T-120 h et (d) T-240 h [127]

Chaitanya et Singh [129] ont trempé des fibres de sisal houblonnées dans une solution de NaHCO_3 et d'eau à 30°C , avec une concentration de NaHCO_3 de 10% (p/v). Les fibres ont été agitées dans la solution à intervalles réguliers de 1 heure pendant la période de traitement. Après des intervalles de 24, 72, 120 et 168 heures, les fibres ont été retirées de la solution, lavées à l'eau distillée pour éliminer les ions sodium, puis séchées à 100°C pendant 8 heures dans un four. Les analyses thermogravimétriques, morphologiques, spectroscopiques infrarouges à transformée de Fourier et de composition lignocellulosique des fibres de sisal brutes et traitées ont montré une diminution progressive de la teneur en hémicellulose en surface des fibres avec l'augmentation du temps de traitement. Les biocomposites contenant des fibres de sisal traitées pendant 72 heures ont présenté des propriétés optimales en traction, flexion et compression. Une concentration de NaHCO_3 de 10% en poids a été utilisée car c'est la quantité maximale de NaHCO_3 soluble dans l'eau à température ambiante ($25\text{-}30^\circ\text{C}$).

Lorsque les fibres sont exposées au bicarbonate de sodium, un changement d'orientation de la cellulose se produit, ce qui modifie la nature hydrophile de la fibre. Cette diminution de la nature hydrophile conduit à une moindre absorption d'eau, tout en favorisant la formation d'une forte liaison interfaciale avec le polyester hydrophobe [127]. Une réduction de 25 % de l'absorption d'eau est observée pour les fibres de lin [126].

I.8.1.e Traitement par l'acide sulfurique - H_2SO_4

L'acide sulfurique est largement utilisé pour le prétraitement des matériaux contenant de l'hémicellulose. Ce prétraitement vise à dégrader l'hémicellulose en sucres simples tels que le xylose et l'arabinose, ouvrant ainsi la voie à la production de biocarburants et de produits chimiques à partir de biomasse. Lors du prétraitement, des catalyseurs acides tels que le SO_2 ou l' H_2SO_4 sont souvent nécessaires. Pour les matériaux de bois tendre, des concentrations d'

H₂SO₄ allant de 0,3% à 3% (sur la masse de bois sec [130]) sont généralement utilisées, car l'auto hydrolyse seule est peu efficace pour ces types de bois par rapport aux résidus agricoles et aux bois durs. Cependant, il convient de noter que le SO₂ est un catalyseur efficace pour le traitement à la vapeur des résineux [131], mais il présente des risques pour la santé humaine et peut avoir un impact environnemental négatif [132].

Plusieurs études ont démontré des rendements élevés d'extraction de l'hémicellulose (entre 60% et 90%) à partir de bois résineux prétraités à la vapeur à haute pression après imprégnation d'acide sulfurique dilué [133] [13]. Par exemple, Mohamad Rosdi et Ahad [134] ont trempé les fibres de maïs dans différentes solutions, dont l'acide sulfurique (H₂SO₄), l'acide nitrique (HNO₃), l'hydroxyde de sodium (NaOH), l'hydroxyde de potassium (KOH) et l'acide acétique (CH₃COOH). Les fibres traitées à l'H₂SO₄ ont montré une réduction de 11% de capacité d'absorption d'eau en raison de l'élimination des groupes hydroxyle ouverts qui ont tendance à se lier à la molécule d'eau

Gerezgiher et al. [135] ont également étudié l'effet du traitement chimique sur les fibres de sisal. Ils ont prolongé l'immersion de fibres pré-pesées dans de l'eau distillée, une solution de NaOH à 30% et une solution d'H₂SO₄ à 30% pendant une période de 216 heures (ou 9 jours). Les fibres ont ensuite été lavées et séchées, et des analyses de perte/gain de poids ont été réalisées. Les résultats ont montré que le traitement à l'H₂SO₄ avait un effet similaire à celui du NaOH en termes d'amélioration de la résistance chimique des composites.

Il convient de noter que des concentrations plus élevées d'acide sulfurique et des temps de réaction plus longs peuvent conduire à une élimination plus complète de l'hémicellulose, mais peuvent également augmenter la dégradation des produits [136] et la formation de sous-produits indésirables. Par conséquent, l'optimisation des paramètres de traitement est nécessaire pour obtenir les meilleurs résultats en termes de rendement et de qualité des produits obtenus à partir de la biomasse.

I.8.1.f Traitement par le Chlorure de sodium NaCl

Le chlorure de sodium, communément appelé sel, a été étudié pour son potentiel dans le traitement chimique des fibres. T. Setyayunita et al. [137] se sont intéressés à l'effet du sel sur les fibres végétales, notamment les fibres de kenaf. Ils ont utilisé du chlorure de sodium (NaCl) comme agent de traitement chimique en immergeant les fibres de kenaf dans une solution d'eau contenant différentes concentrations de sel, allant de 1% à 5%. L'objectif de ce traitement était d'éliminer les impuretés présentes sur la surface des fibres ainsi qu'une couche externe qui pouvait altérer les performances des composites. Les chercheurs ont mesuré les propriétés d'absorption d'eau des fibres de kenaf traitées avec différentes concentrations de NaCl. Leurs résultats ont montré une diminution de la capacité d'absorption d'eau des fibres avec l'augmentation de la concentration de sel. À une concentration de 1 % de NaCl, l'absorption d'eau s'élève à 37,11 %, tandis qu'à une concentration de 3 % de NaCl, elle se réduit à 30 %, et à 5 % de NaCl, elle atteint 27 %.

Cela indique que le traitement avec du sel, a permis de réduire la sensibilité des fibres de kenaf à l'eau, ce qui peut améliorer leur stabilité dimensionnelle. Cette approche de traitement chimique des fibres avec du sel présente un intérêt dans l'amélioration des propriétés des

composites à base de fibres naturelles. En modifiant la surface des fibres grâce à l'élimination des impuretés et d'une couche externe indésirable, le traitement au sel peut favoriser une meilleure adhérence entre la fibre et la matrice, améliorant ainsi les performances mécaniques et la durabilité des composites. Il convient de noter que les concentrations de sel et les conditions de traitement peuvent varier en fonction des spécificités des fibres et des composites étudiés, et des recherches supplémentaires sont nécessaires pour optimiser les paramètres de traitement et évaluer pleinement les avantages de cette approche [137] [138] [139].

I.9 Gonflement et retrait

I.9.1 Mécanismes d'absorption d'eau et gonflement des granulats végétaux

La sensibilité des granulats à l'humidité est un facteur clé qui peut affecter la performance et la durabilité des matériaux de construction. En effet, ces granulats ont la capacité d'absorber de grandes quantités d'eau, ce qui peut entraîner une déformation, une perte de résistance et une diminution de la durabilité. Adamson et al. [140] et Belan et al. [141] ont étudié l'effet de l'eau liée sur le gonflement volumique des granulats végétaux. Il en résulte divers comportements en termes de gonflement : une première phase où l'eau est principalement absorbée dans les pores (avec un gonflement faible) et une deuxième phase où l'eau pénètre progressivement dans la structure moléculaire (avec un gonflement de plus en plus important). Lorsque des molécules d'eau sont présentes, elles ont peu ou pas d'effet sur le gonflement. C'est seulement lorsque le volume libre est saturé, que le processus de plastification se produit, entraînant des gonflements importants ainsi que des contraintes internes. L'eau libre a un impact mineur sur le gonflement tandis que l'eau liée possède une influence significative sur celui-ci.

Le schéma présenté par Garat [142] dans la Figure I. 17 illustre le mécanisme de gonflement de la paroi cellulaire du bois. L'eau pénètre dans les parois cellulaires des fibres végétales et est absorbée en formant des liaisons hydrogène avec les biopolymères des parois, ce qui provoque un gonflement de la fibre. Une fois qu'une certaine quantité d'eau est atteinte, dépendant de l'espèce végétale, l'eau liée va saturer les parois cellulaires, ce qui correspond au point de saturation en eau des parois végétales. Enfin, les cavités cellulaires, à savoir les lumens et les porosités, seront remplies par l'eau libre jusqu'à saturation totale.

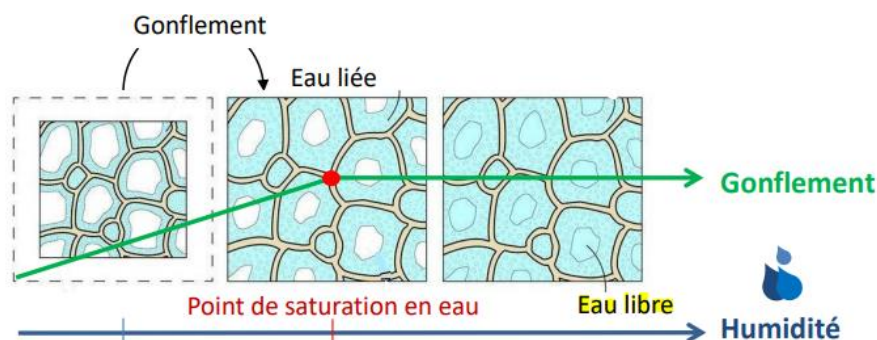


Figure I. 17 : Mécanisme de gonflement de la paroi cellulaire du bois (source : www.workshopcompanion.com 05/10/2018)

I.9.2 Influence des composants des granulats végétaux sur le gonflement

Les composants des granulats végétaux agissent en synergie pour maintenir l'intégrité structurale de la paroi cellulaire et de la membrane, ce qui est vital pour la survie et la croissance des plantes dans leurs environnements respectifs. Parmi les composants clés des granulats, la cellulose, la lignine, l'hémicellulose sont connus pour avoir des effets significatifs sur leur capacité de sorption d'eau. En effet, la cellulose est hautement cristalline et présente une plus grande résistance aux effets de l'eau que l'hémicellulose. De plus, l'orientation des polymères de cellulose dans la paroi cellulaire entraîne un gonflement anisotrope des granulats naturels, le gonflement longitudinal étant significativement plus faible que le gonflement transversal [143] [144].

Une étude récente a mis en évidence un mécanisme de couplage à l'échelle moléculaire pour expliquer l'hystérésis de sorption et le gonflement de polymères tels que la cellulose [145]. La séquence de création et rupture de ces liaisons hydrogène est conditionnée par la phase de sorption ou désorption. Les auteurs expliquent que trois types de liaisons hydrogène coexistent au sein de la cellulose. L'eau est d'abord absorbée par les liaisons hydrogène intermoléculaires entre les molécules d'eau et la cellulose (HB^{CW}) dans la phase de sorption (sur les chaînes de cellulose). La cellulose gonfle et le nombre des liaisons hydrogène inter chaînes dans la cellulose (HB^{CC}) diminue avec l'augmentation de la teneur en eau. Par conséquent, les liaisons intermoléculaires de la cellulose se rompent : de plus en plus de groupes hydroxyles sont accessibles pour former des liaisons hydrogène intermoléculaires entre les molécules d'eau et la cellulose. Simultanément, le nombre de liaisons hydrogène inters moléculaires entre les molécules d'eau (HB^{WW}) augmente, reflétant la formation à des regroupements ou accumulations de molécules d'eau dans un espace confiné, en l'occurrence, les pores du polymère, Figure I.18.

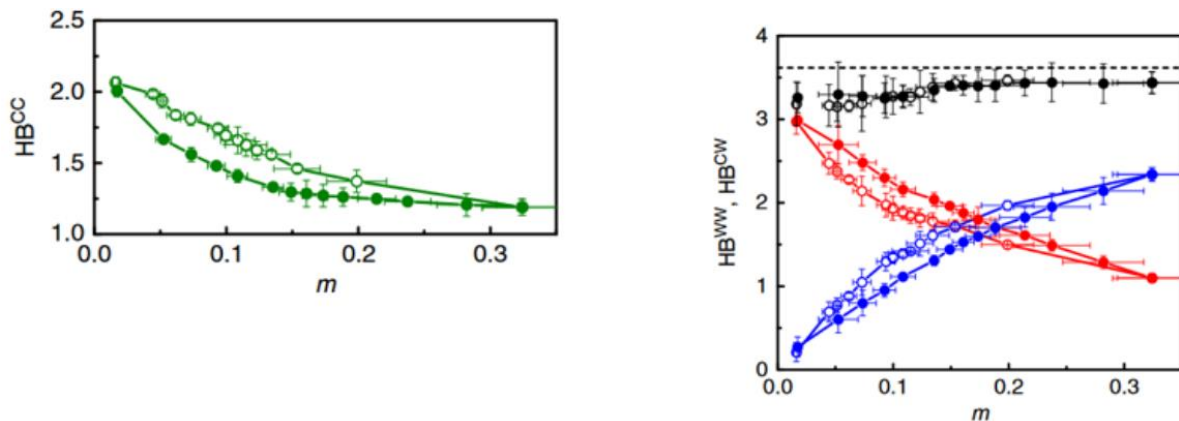


Figure I.18 : Nombre de HB^{CC} (à gauche) / HB^{WW} et HB^{CW} en fonction de la teneur en eau (m) d'après Chen et al. [145]

Pendant la phase de désorption, les liaisons à faible énergie sont les premières à se rompre. Les liaisons hydrogène intermoléculaires entre les molécules d'eau et la cellulose sont plus fortes que les liaisons hydrogène inters moléculaires entre les molécules d'eau elles-mêmes. Cette différence de résistance dans les liaisons influence la séquence de désorption, où les molécules d'eau sont initialement éliminées des amas d'eau interstitielle. Ainsi, à une même humidité relative, la phase de désorption se caractérise par une augmentation des liaisons hydrogène

intermoléculaires entre les molécules d'eau et la cellulose, comparativement à la phase de sorption. Cette distinction est attribuable à la disponibilité accrue de "sites hôtes" au sein du polymère. Ces "sites hôtes" correspondent à des emplacements spécifiques dans la structure du matériau où les molécules d'eau peuvent se lier grâce à des liaisons hydrogène intermoléculaires. Ce phénomène microscopique conduit à une hystérésis observable dans le gonflement de la cellulose induit par la sorption, Figure I.19 .

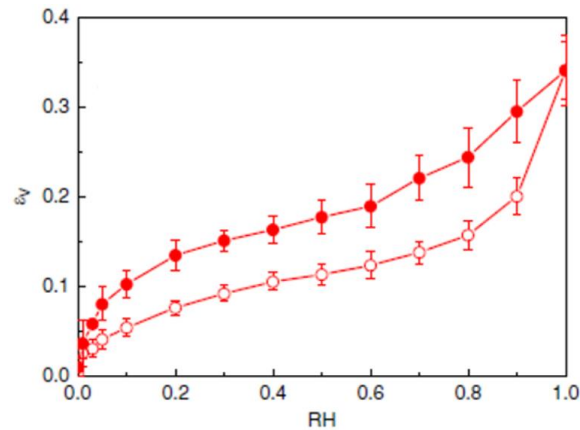


Figure I.19 : Hystérésis dans le gonflement induit par la sorption, cas de la cellulose [145].

Ceci amène à considérer ces résultats lors de l'analyse du comportement des matériaux biosourcés. Par ailleurs, Chen et al. [145] soulignent que la teneur en humidité augmente d'abord rapidement (faible humidité relative) puis moins rapidement (humidité relative plus élevée). Ce point d'inflexion dans l'isotherme d'adsorption peut s'expliquer par une adsorption initiale rapide et facile des molécules d'eau dans les sites hôtes initialement disponibles de la cellulose. Par la suite, les chaînes de cellulose s'ouvrent et davantage de molécules d'eau sont adsorbées, mais le processus est plus lent. Enfin, les auteurs indiquent que la taille des pores empêche le phénomène d'hystérésis capillaire dans les milieux nanoporeux (dont les pores sont inférieurs à 2 nm).

Garat et al. [146] ont établi une corrélation entre le pourcentage de lignine, l'angle microfibrillaire et le coefficient hygroscopique. En effet, les granulats à faible teneur en lignine et faible angle microfibrillaire présentant un gonflement plus important. Une étude menée par Pejic et al. [106] s'est intéressée à l'influence de la lignine sur la sorption d'eau des fibres de chanvre, mettant en évidence une corrélation négative entre la teneur en lignine et le coefficient d'expansion hygro-transversale des faisceaux de fibres végétales. Cela indique que des teneurs élevées en lignine et un angle de fibrillation maximal tendent à limiter la capacité de rétention d'eau et à réduire le gonflement transversal. En revanche, une faible teneur en lignine et un angle de fibrillation minimal sont associés à un pourcentage de gonflement plus élevé.

I.9.3 Effets du cycle de gonflement et retrait sur les granulats végétaux

Le gonflement et retrait successifs des granulats végétaux peut expliquer l'hystérésis entre l'adsorption et désorption. Au cours du premier cycle de gonflement et retrait (résultant d'un cycle d'humidification et de séchage), les granulats subissent une dégradation entraînant une réduction du retrait comparativement au gonflement. Au cours de plusieurs cycles d'humidification, le taux de gonflement et retrait diminue progressivement. Ce phénomène est

dû à la combinaison de l'absorption d'humidité et de l'affaiblissement du matériau [147]. La diminution de la capacité de gonflement et les changements dans les granulats observés au cours d'un cycle de séchage et de réhumidification peuvent être attribués au phénomène connu sous le nom de « hornification ». L'hornification, implique des altérations irréversibles de diverses propriétés physiques, chimiques, mécaniques, morphologiques et fonctionnelles des granulats. Il s'agit notamment d'une réduction du volume des pores due au retrait et à l'effondrement des pores [148] [149].

Cela explique l'hystérésis trouvée dans l'étude menée par Rima et al. [24] qui a révélé la présence d'une hystérésis lors de l'analyse du comportement de gonflement et de retrait de la fibre de chanvre. Le pourcentage de variations volumiques des granulats varie dans les phases d'adsorption et de désorption à une humidité relative donnée, où le gonflement dans la phase d'adsorption est plus important que le retrait dans la phase de désorption. Les phénomènes irréversibles de gonflement et retrait sont généralement liés à la libération des contraintes internes initiées pendant le processus de séchage [150]. Au cours du processus de séchage, lorsque l'eau est retirée des fibres, les microfibrilles adjacentes se rapprochent et établissent des liaisons hydrogène entre elles. Malgré la réhumidification, la restauration de la teneur en eau n'est que partielle puisque certaines fibrilles restent liées [151]. Cette liaison et la réduction de l'absorption d'eau contribuent à l'effet global d'hornification des granulats [152].

Des études menées par Sheridan et al. [147] contribuent à la compréhension des cycles répétés d'immersion et de séchage des granulats. Les granulats subissent le phénomène d'hornification en entraînant une réduction du gonflement et du retrait. La Figure I. 20 illustre la variation dimensionnelle de la section transversale de la paille de colza traité (RV), et non traité (RU) et du chanvre traité (HV), et non traité (HU). À partir du cycle 16, le gonflement pendant la phase d'humidification et le retrait pendant la phase de séchage commencent à perdre de leur importance et à décroître, devenant moins significatifs que lors des premiers cycles de gonflement et de retrait. Cette diminution de l'amplitude des variations dimensionnelles est attribuée au phénomène d'hornification décrit précédemment.

En revanche, le gonflement et la rétraction persistent jusqu'à la fin de l'essai pour les échantillons traités par un agent modificateur de viscosité, témoignant de leur résistance partielle à l'altération par immersion. Ces observations mettent en évidence également l'impact des traitements sur la périodicité du gonflement et du retrait des granulats.

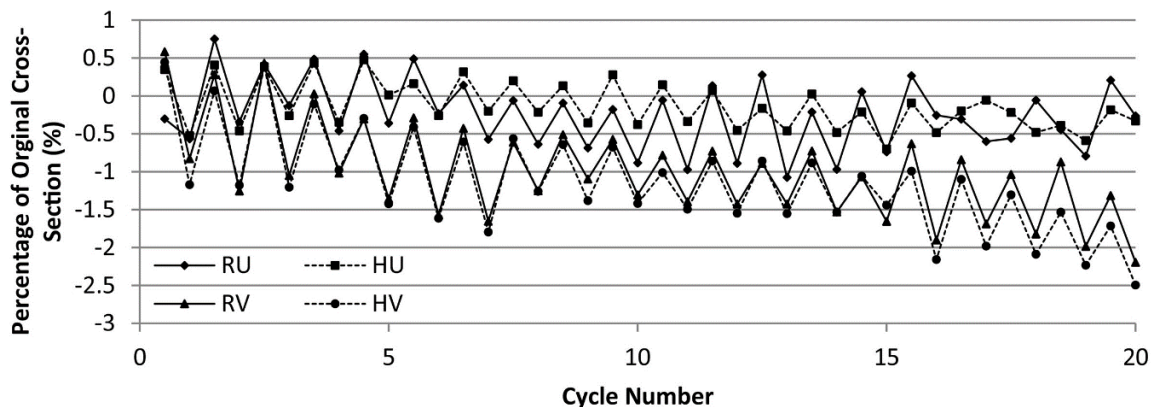


Figure I. 20 : Variations dimensionnelles de la section transversale de la paille de colza traité (RV), et non traité (RU) et du chanvre traité (HV), et non traité (HU) [147]

I.9.4 Impact des cycles humidification et séchage sur l'interface granulat-liant

Le vieillissement accéléré suite aux cycles d'immersion et séchage influence l'interface entre le liant et le granulat. Cette interface devient plus poreuse et rend le lien entre le liant et le granulat plus fragile. Sur la Figure I. 21, Benmahiddine [35] observe plusieurs fissures sur cette interface entre liant et chènevotte. A priori, ce changement de la microstructure s'explique par le gonflement et le retrait des particules végétales lors du vieillissement accéléré. Ce mécanisme est à l'origine de la diminution significative de 51% de la résistance à la compression du béton de chanvre altéré.

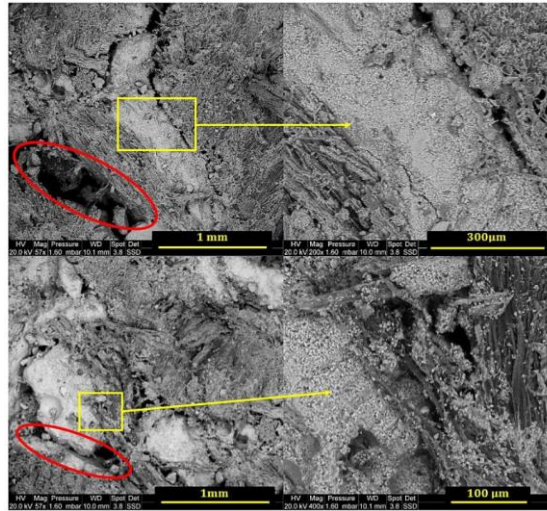


Figure I. 21 : Observation au MEB de l'interface liant/chènevotte du béton de chanvre vieilli. [35]

Lorsque de l'eau se trouve emprisonnée dans des micro vides [153] [154], cela entraîne une augmentation de la pression osmotique. Cette augmentation de pression favorise l'endommagement de l'interface entre les fibres et la matrice ou induit la formation de cloques à la surface du matériau comme illustré dans la Figure I. 22 [155].

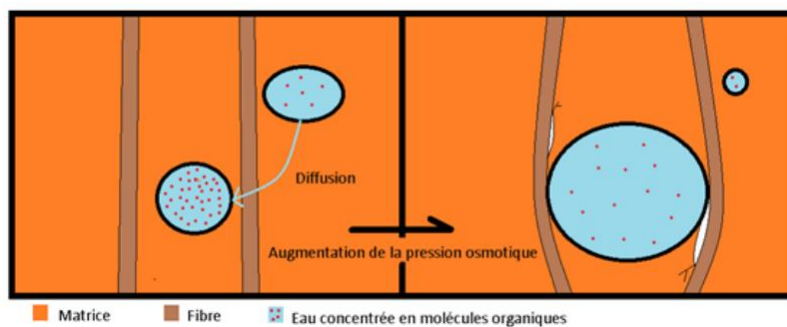


Figure I. 22 : Schématisation du phénomène d'osmose [156]

La dégradation de la surface des fibres, qui conduit à la destruction de la lamelle mitoyenne et de la paroi primaire, peut altérer la qualité de l'adhérence à l'interface fibre/matrice. De plus, le gonflement différentiel entre les constituants peut également affecter cette adhérence. La Figure I. 23 montre une section d'un matériau composite lin-époxy après 30 jours d'immersion dans de l'eau distillée à 23°C, puis séché, mettant en évidence la présence de vides entre les fibres et

la matrice, résultant de la détérioration de l'interface fibre/matrice due au gonflement des fibres [157].

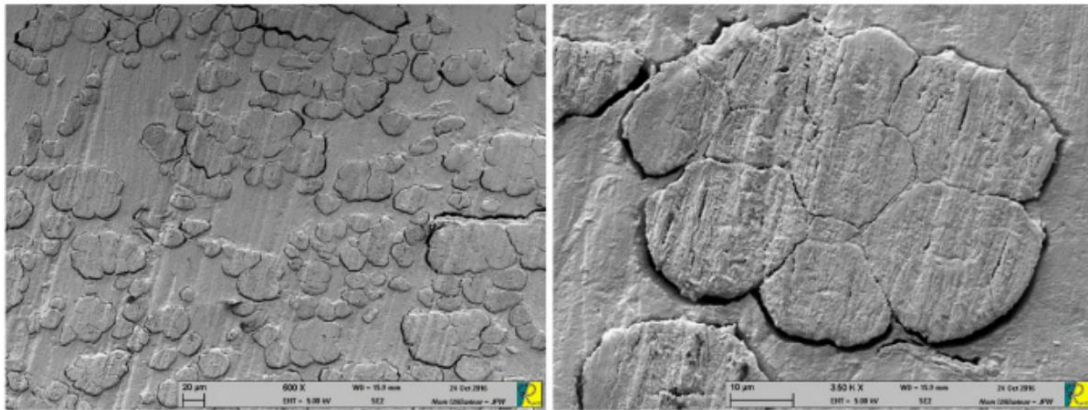


Figure I. 23 : Évolution des vides interfaciaux après immersion et séchage : Impact du gonflement des fibres dans un composite lin-époxy[157]

I.10 Mesure des déformations des granulats végétaux et biocomposites.

Les processus de sorption d'eau et de gonflement des fibres végétales sont assez complexes en raison de leurs particularités biochimiques, structurelles et morphologiques. Dans cette partie, nous nous intéressons à la mesure des déformations en allant de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique des bio composites. Ces mesures nécessitent un contrôle minutieux de l'humidité relative et de la température pour déterminer le coefficient de gonflement. L'association de différents constituants ayant des caractéristiques hydrophiles différentes entraîne un gonflement différentiel entre eux.

Le phénomène de gonflement différentiel, généré par des variations d'absorption d'eau entre les différents constituants d'un matériau composite, induit des tensions internes [80], [158] [159]. Ces tensions sont principalement localisées au niveau des interfaces entre les fibres et la matrice. Lorsque ces tensions internes surviennent, elles peuvent provoquer une détérioration progressive des liaisons entre les fibres et la matrice. En conséquence de ce processus, une augmentation de l'absorption d'eau se produit, ce qui peut à son tour entraîner une diminution des propriétés mécaniques du matériau composite.

I.10.1 Echelle microscopique

Les recherches sur l'influence de la teneur en eau sur les variations dimensionnelles des granulats sont rares dans la littérature [160] [161] [162] et il n'existe aucune norme de mesure établie. Dans cette section, nous présentons les quelques méthodologies de mesure proposées dans des études de la littérature pour évaluer les variations des dimensions des granulats, telles que le diamètre, l'aire de section et le périmètre.

Le diamètre transversal d'un granulat peut être mesuré de différentes manières, en fonction de la précision requise et des équipements disponibles. L'une des méthodes courantes consiste à utiliser un microscope optique et une caméra numérique pour prendre des images des granulats, puis à mesurer le diamètre des particules à l'aide d'un logiciel d'analyse d'image. Cependant, il

est important de prendre en compte les sources d'erreur potentielles lors de l'utilisation de cette méthode.

En effet, le gonflement d'un granulat présente une distribution non uniforme. Dans le cas des faisceaux de fibres de jute, les variations dimensionnelles se manifestent principalement dans la région du faisceau où les dimensions sont les plus réduites, comme illustré dans la Figure I. 24. En cas d'absorption d'eau, les molécules d'eau pénètrent à l'intérieur des parois cellulaires, ce qui entraîne le gonflement de chaque fibre élémentaire. Par conséquent, cette zone comprimée génère un gonflement du diamètre significatif.

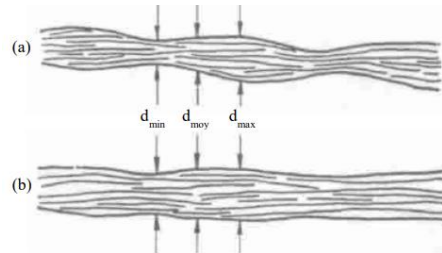


Figure I. 24 : Faisceaux de fibre de jute à l'état a) sec et b) après deux semaines en immersion dans l'eau [163]

Les mesures microscopiques des granulats se font souvent en estimant la variation de la section transversale. Dans de nombreux cas, la section transversale des fibres naturelles est considérée comme circulaire et homogène, bien que les fibres naturelles, quelle que soit leur origine botanique et l'échelle considérée (c'est-à-dire les cellules de fibres élémentaires ou les faisceaux de fibres), présentent de grandes variations dans leurs caractéristiques dimensionnelles et morphométriques. La Figure I. 25 montre une image au Microscope électronique à balayage en coupe transversale d'une fibre de lin [164] et une représentation schématique de la section apparente et résistive.

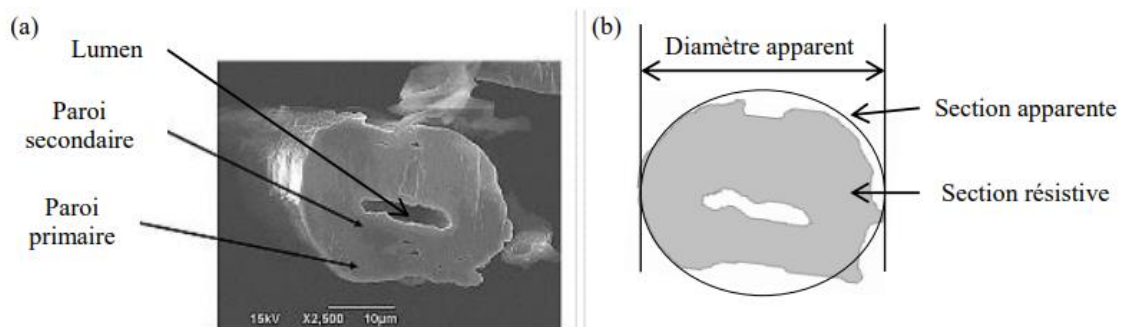


Figure I. 25 : (a) Image au MEB en coupe transversale d'une fibre de lin [164] et (b) représentation schématique de la section apparente et résistive

Les résultats obtenus à partir de ces méthodes, en prenant en compte les dimensions apparentes de la fibre, conduisent à une estimation de la surface apparente de sa section transversale. Cependant, il convient de noter que cette estimation tend à surestimer la véritable surface de la section transversale.

Cependant, d'autres auteurs prennent en compte la morphologie complexe de la section transversale. Par conséquent, les mesures des surfaces, et des diamètres sont exposées à des changements. Munawar et al. [165] ont réalisé une comparaison entre deux méthodes de mesure. Tout d'abord, la surface moyenne de la section transversale a été estimée par microscopie optique en mesurant cinq diamètres apparents à des intervalles angulaires de 36 degrés. Ensuite la section de la fibre est estimée en la considérant comme un cercle et donc $S = \frac{\pi D^2}{4}$. Ensuite, le contour réel de la section transversale de la fibre (noté S_r) a été tracé à l'aide d'un logiciel de traitement d'images comme illustré dans la Figure I. 26). Les résultats ont montré que la microscopie optique sous-estimait de 4 à 8% la surface de la section transversale. De plus, une sous-estimation de 6,5% a été obtenue par Ilczyszyn et al. [166] lors de la comparaison entre l'hypothèse d'un contour de section circulaire et polygonale.

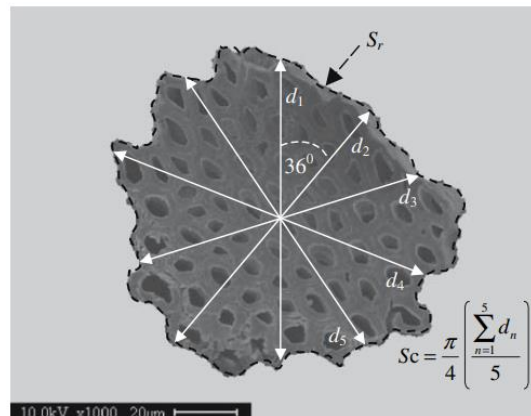


Figure I. 26 : Mesure de l'aire de la section transversale (S_c) à partir de la moyenne de cinq diamètres fixés à des intervalles d'angle de 36° et aire de la section transversale (S_r) mesurée par analyse d'image de micrographies électroniques à balayage [167]

Une méthode traditionnellement utilisée pour surmonter ces problèmes consiste à mesurer sous un microscope optique le diamètre moyen de la fibre à trois endroits différents et aléatoires le long de la fibre [168] [169] [170]. La surface apparente de la section transversale de chaque fibre est ensuite calculée à partir du diamètre moyen de la fibre en supposant une section transversale circulaire.

I.10.1.a Microscope optique (MO)

L'analyse d'images par les observations microscopiques longitudinales des fibres est largement utilisée pour estimer la longueur, de diamètre des fibres [171] [172] [173]. Cette méthode permet de zoomer sur un échantillon, ce qui permet de mesurer sa géométrie en fonction du niveau de grossissement, incluant des paramètres tels que la surface d'une section, l'épaisseur et le contour.

La majorité des fibres naturelles présente généralement une section transversale, longitudinale non uniforme et une forme irrégulière. La forme de leur section transversale peut varier d'une fibre à l'autre et sur toute leur longueur [170] [174]. Cela explique en partie la grande dispersion

des propriétés mécaniques des fibres signalées dans la littérature depuis de nombreuses années [26] [175] [54].

La Figure I.27 illustre des micrographies SEM d'une fibre de lin élémentaire à différentes abscisses (1 mm, 7 mm, 9 mm et 14 mm respectivement de gauche à droite). Une forte dispersion des diamètres apparent est observée le long du profil de la même fibre.

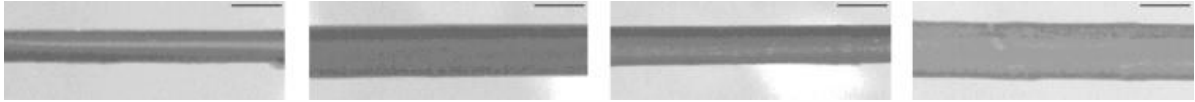


Figure I.27: Micrographies SEM d'une fibre de lin élémentaire à différentes abscisses (1 mm, 7 mm, 9 mm et 14 mm respectivement de gauche à droite)

D'après les profils de diamètre obtenus pour une vingtaine de fibres élémentaires (Figure I.28), l'écart-type relatif autour du diamètre moyen est d'environ 20%. Cette valeur qui donne une indication de la dispersion le long d'une seule fibre, doit être comparée à l'écart-type relatif autour du diamètre moyen obtenu sur une grande population de fibres (25-30%).

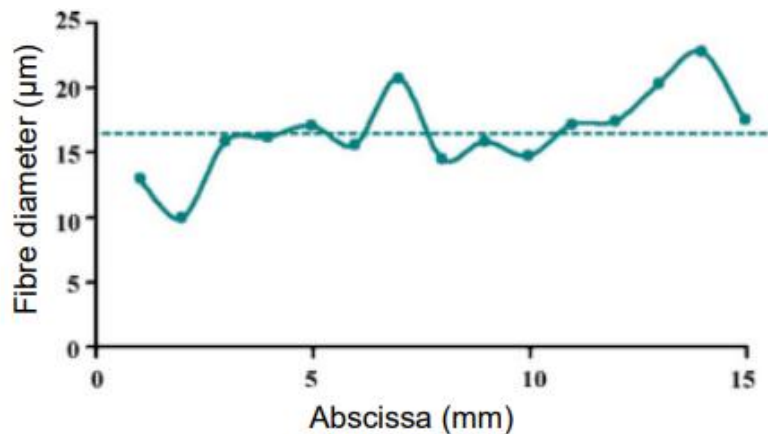


Figure I.28 : Profil du diamètre d'une fibre élémentaire de lin illustrée à Figure I.27 sur toute sa longueur [174]

I.10.1.b Microscope optique à balayage (MEB)

La différence entre le microscope optique et le microscope électronique à balayage est que le premier se limite à l'observation de zones d'étude de quelques micromètres alors que le second est de l'ordre de dizaines de nanomètres. C'est une puissante méthode pour observer des échantillons de très petite taille grâce à l'utilisation d'électrons au lieu de photons [5] [176] [173] [168] [15]. Cette technique sert surtout à mesurer la taille des pores (la Figure I. 2). La Figure I. 29 illustre les pores de fibres de sisal en fonction du nombre de cycle de mouillage. Ferreira et al. [177] ont examiné l'influence de l'hornification sur la structure et les propriétés en traction des faisceaux de fibres de sisal et de jute. Les résultats ont révélé que les diamètres des lumens ont diminué de 15% et 17% respectivement après 10 cycles de mouillage/séchage. Sur le plan mécanique, il a été observé une diminution de la rigidité de 20 à 18 GPa pour les faisceaux de fibres de sisal, et de 44 à 38 GPa pour les faisceaux de fibres de jute. Ce qui signifie que les propriétés mécaniques des fibres changent après plusieurs cycles de mouillage et séchage.

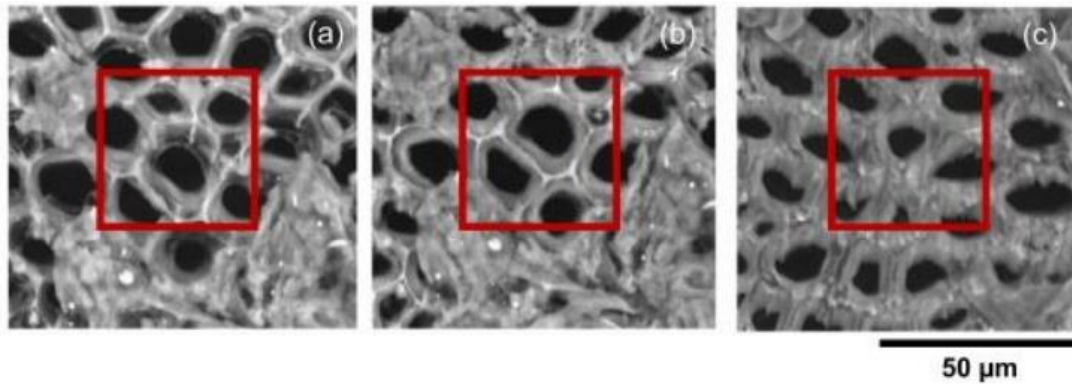


Figure I. 29 : Image MEB d'un faisceau de fibres de sisal en fonction du nombre de cycle de mouillage/séchage: (a) 0, (b) 5 et (c) 10 cycles [177]

I.10.1.c Balayage laser

Une technique avancée de mesure basée sur un balayage laser surfacique automatisé permet de mesurer les dimensions des sections transversales tout le long de la fibre. Le dispositif de mesure utilisé consiste à faire tourner et déplacer l'échantillon devant un faisceau laser, ce qui permet de suivre l'évolution du diamètre apparent pendant une rotation complète. Cette méthode a été appliquée avec succès pour mesurer la géométrie des fibres de lin et de palmiers, malgré les défis liés aux défauts de surface et à la concavité [167] [178] [179]. La Figure I. 30 explique le principe du dispositif de système d'analyse dimensionnelle des fibres. A chaque rotation, un diamètre apparent est déterminé et un diamètre apparent moyen est calculé à partir des valeurs recueillies pour chacune d'entre elles, afin de trouver l'aire de la section. Il est important de noter que la méthode de mesure utilisée présente une limitation dans son aptitude à évaluer les surfaces concaves en raison de son principe de mesure basé sur l'ombroscopie laser. Cependant, cette méthode présente un intérêt en tant que dispositif de mesure indépendant de l'utilisateur, ce qui en fait une option intéressante.

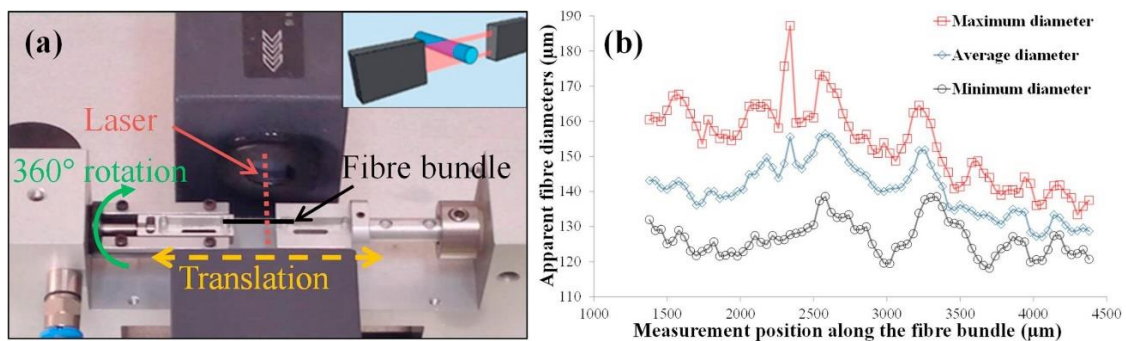


Figure I. 30 : (a) Principe du dispositif de système d'analyse dimensionnelle des fibres et (b) diamètres minimum, maximum et moyen le long d'un faisceau de fibres de palmier, mesurés avec le dispositif FDAS [179]

I.10.2 Echelle macroscopique

Les méthodes visant à quantifier les variations dimensionnelles au sein des composites à base de fibres végétales demeurent insuffisamment élaborées et adaptées, principalement en raison de l'hétérogénéité marquée inhérente à ces structures biocomposites. Les normes conventionnellement appliquées pour caractériser les dimensions des matériaux traditionnels montrent leur limite d'application pour les fibres végétales, ne fournissant pas toujours des

résultats précis et reproductibles. Les méthodes de caractérisation actuelles, bien que conçues pour une évaluation macroscopique, restent limitées à une échelle microscopique en raison des dimensions restreintes. Les propriétés macroscopiques attribuées aux composites à base de fibres végétales sont souvent extrapolées à partir d'échantillons de dimensions réduites, ce qui peut introduire un biais potentiel dans l'interprétation des résultats à l'échelle macroscopique. La contrainte inhérente à l'utilisation d'échantillons microscopiques peut limiter la précision et la généralisation des données obtenues, ce qui peut entraîner une évaluation incorrecte des variations dimensionnelles à l'échelle macro.

Dans ce qui suit, une liste de méthodes de mesure, qui ont démontré une adaptation limitée aux biocomposites, est présentée.

I.10.2.a Microscope optique

L'utilisation du microscope optique pour évaluer le gonflement des fibres à l'échelle locale est abordée dans l'étude menée par Rima et al. [24]. Ces chercheurs ont estimé que le gonflement observé à l'échelle microscopique des granulates, présents à la surface extérieure des biocomposites, correspond au gonflement macroscopique de l'échantillon. La Figure I. 31 illustre les mesures effectuées sur le béton de chanvre et le pourcentage de gonflement des mesures en fonction de l'humidité relative. Les résultats montrent que lorsque l'humidité relative augmente, le granulat de chanvre occupe une partie de l'espace libre, et se déplace dans une direction parallèle à la porosité inter-particulaire jusqu'à atteindre le point de saturation de la fibre. En d'autres termes, les copeaux de chanvre continuent à absorber de l'eau lorsque l'humidité relative augmente, ce qui les fait gonfler de 9.9% à 97.3% HR.

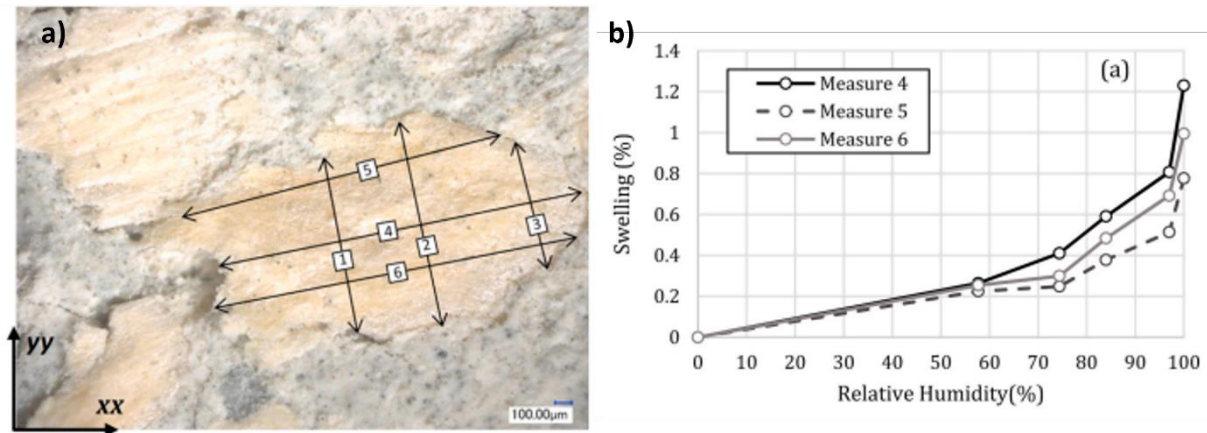


Figure I. 31 : a) mesures effectuées sur le béton de chanvre et b) pourcentage de gonflement des mesures en fonction de l'humidité relative [24]

I.10.2.b Tomographie aux rayons X

La tomographie à rayons X est une technique permettant de réaliser des images de manière non-destructive et de quantifier les caractéristiques internes d'objets 3D. Cette technique d'imagerie présente certains atouts pour une meilleure caractérisation microstructurale à l'échelle locale des matériaux. Le principe de base de cette technique consiste à reconstruire le volume 3D d'un objet à partir d'une série de radiographies 2D enregistrées à plusieurs positions angulaires. Les tomographes sont principalement composés d'une source de rayons X, d'un détecteur numérique

et d'un plateau tournant. La résolution des images dépend de nombreux paramètres, notamment les dimensions de l'échantillon et la distance entre la source et l'échantillon.

Bennai et al. [50] ont réussi à reconstruire en 3D le béton de chanvre présenté dans la Figure I. 32-a et présenté en 2D dans la Figure I. 32-b pour mesurer le gonflement d'un échantillon de $10 \times 10 \times 10 \text{ cm}^3$. Ces figures montrent les différentes phases du matériau : le liant en noir, les copeaux de chanvre en gris et l'air en blanc.

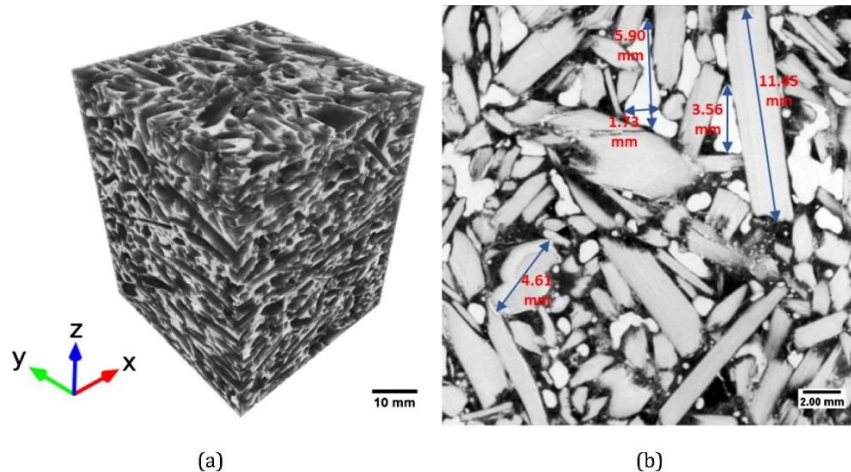


Figure I. 32 : Reconstruction en a) 3D du béton de chanvre et b) 2D pour un échantillon de dimension réduite le plan (x, y) [50]

En exposant le même échantillon à deux humidité relatives différentes, l'analyse par tomographie permet d'étudier les variations dimensionnelles entre l'état sec et l'état humide. La Figure I. 33 présente des coupes obtenues par tomographie à rayons X du béton de chanvre (a) 0% RH (b) 85% RH. Selon ces auteurs, il est à noter que le gonflement enregistré est de l'ordre de 10 %. Cependant, cette méthode présente des défis. La durée de chaque tomographie est considérable, s'élevant à environ 2 heures et 30 minutes, pendant lesquelles le matériau peut interagir avec l'humidité de son environnement [50]. De plus, il est nécessaire de garder la même position de balayage pour la détermination des déplacements causées uniquement par les sollicitations hydriques appliquées. Ainsi cette méthode nécessite des ressources informatiques importantes [180].

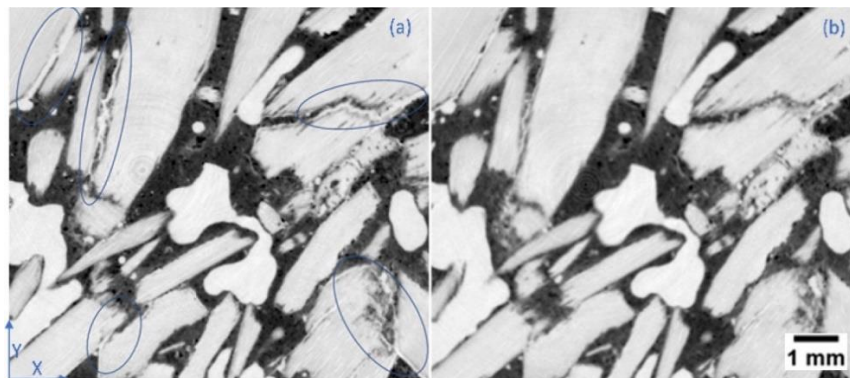


Figure I. 33 : Coupes obtenues par tomographie à rayons X du béton de chanvre (taille du voxel de $17,1 \mu\text{m}$) (a) 0% RH (b) 85% RH [50]

I.11 Mesure et quantification du gonflement et retrait des granulats végétaux

Le comportement de gonflement des échantillons varie en fonction du type de granulats et de leur capacité à absorber l'humidité. Les variations morphologiques et dimensionnelles des faisceaux de fibres sont étudiées en fonction de leur teneur en eau et définies comme suit (Eq. 1). Afin d'étudier ces phénomènes, des méthodes de mesure sont utilisées pour effectuer des mesures à différents états hydriques, permettant ainsi de quantifier avec précision les variations observées. Les mesures s'effectuent après avoir exposé les granulats à des niveaux spécifiques d'humidité relative, ce qui permet de déterminer la variation des grandeurs mesurées en modifiant les conditions d'humidité relative. Ces mesures peuvent inclure des mesures d'épaisseur, de surface et de rayon dans des directions longitudinales et transversales selon le protocole expérimental adopté dans chaque étude. Le pourcentage de variation entre deux états d'humidités différentes, est défini comme le rapport de la variation d'une mesure par rapport à la valeur initiale. Le gonflement est défini comme un pourcentage positif, tandis qu'un signe négatif indique un retrait.

$$G (\%) = \frac{l(i)-l(0)}{l(0)} (\%) \quad (1)$$

Où " $l(i)$ " représente la mesure de la surface du granulat considéré pour une condition d'humidité donnée, exprimée en μm^2 , et " $l(0)$ " correspond à la surface à l'humidité de référence, également exprimée en μm^2 .

La Figure I. 34 montre l'évolution du gonflement de la section transversale des différents faisceaux de fibres végétales en fonction de leur teneur en eau. Le gonflement des faisceaux de fibres des différentes espèces végétales est régi par deux processus principaux. Dans des conditions d'humidité relatives allant de 20 % HR à 73 % HR, le gonflement des faisceaux de fibres est principalement associé à des processus se produisant au niveau des parois cellulaires et de la lamelle moyenne, et est lié à la sorption de l'eau par les biopolymères. Le gonflement est relativement faible pour toutes les espèces végétales (< 10 %). En conditions d'humidité au-delà de 55-70% et en cas d'immersion, le gonflement de la section médiane augmente considérablement et de grandes différences sont observées en fonction de l'espèce végétale. Le gonflement est associé donc à l'eau libre dans les pores et le lumen. Le gonflement anisotrope observé en immersion pour les faisceaux de fibres libériennes (lin, chanvre et ortie) contribue à l'augmentation de leur surface de section, et donc au gonflement médian de section mesuré. En effet, l'eau libre en grande quantité dans les lumens et les porosités semble contribuer de manière significative au gonflement transversal des faisceaux de fibres, en raison des variations morphologiques induites par la pression hydrique exercée sur les parois cellulaires.

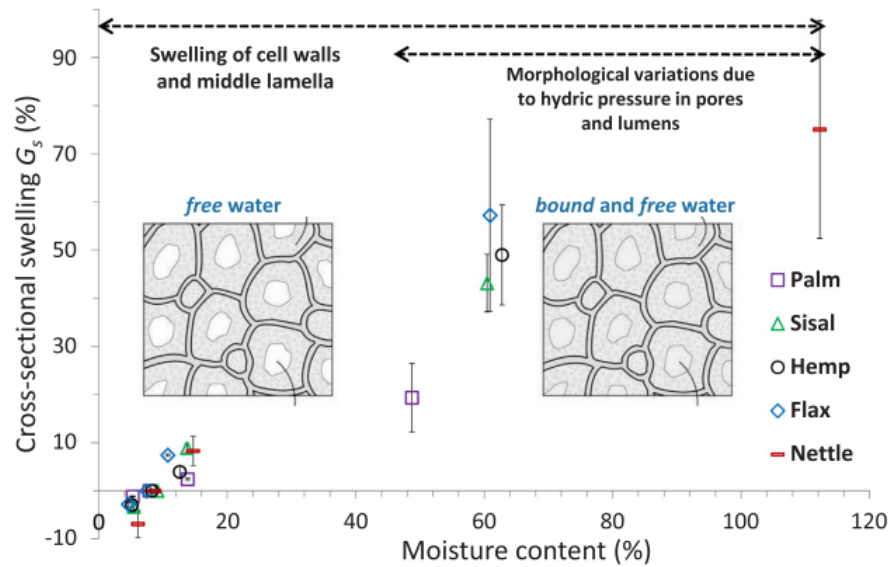


Figure I. 34 : l'évolution du gonflement médian de la section transversale des différents faisceaux de fibres végétales en fonction de leur teneur en eau à 23 °C : (i) gonflement microscopique des parois cellulaires et de la lamelle moyenne dû à la sorption de l'eau liée, (ii) gonflement macroscopique lié à la déformation anisotrope de la section transversale des faisceaux de fibres libérées, éventuellement induite par la pression hydrique de l'eau libre dans les pores et le lumen.[181]

Les résultats du Tableau I. 7 mettent en lumière l'interaction complexe entre l'humidité relative, la température et la composition des matériaux étudiés. Il est intéressant de noter que les fibres d'origine végétale telles que le lin, le chanvre et le palmier présentent des taux de gonflement notables, montrant une sensibilité accrue aux fluctuations d'humidité. En revanche, d'autres fibres, comme celles des mélanges de fibres de bois dur et de bois tendre denses, montrent des taux de gonflement plus modérés. Ces résultats soulignent l'importance de prendre en compte la composition des matériaux ainsi que les conditions environnementales.

Tableau I. 7 : Variabilité des taux de gonflement des granulats biosourcés en fonction de l'humidité relative et de la méthode de caractérisation

Granulat	Méthode	Pourcentage de Gonflement	Conditions	Références
Coque de riz	Microscope optique	7,1 %	0-93 % HR	[54]
Mélange de fibres de bois dur et de bois tendre	Rayons X microtopographie synchrotron	2,2 %	15-90 % HR	[162]
Fibre de bois	Diffraction des rayons X	13,6 %	20 à 80 % HR	[182]
Fibre de lin	Microscopie électronique à balayage	21 %	20–98 HR%	[161]

Palmier	Système balayage laser automatisé	2,4	20–73 % HR	[181]
Sisal	Système balayage laser automatisé	8,9	20–73 % HR	[160]
Chanvre	Système balayage laser automatisé	3,9	20–73 % HR	[160]
Lin	Système balayage laser automatisé	7,4	20–73 % HR	[160]
Ortie	Système balayage laser automatisé	8,3	20–73 % HR	[160]
Chanvre	Images de microscopie électronique	9,93	0-97,3 % HR	[24]

I.12 Notion du coefficient d'hygro-expansion

Le coefficient d'hygroexpansion d'un granulat (d'un matériau) est un rapport qui permet de quantifier la variation dimensionnelle entre deux états hydriques, en prenant en compte la variation de la teneur en eau entre ces deux états. Il est déterminé en traçant un graphique du pourcentage de gonflement en fonction de l'humidité relative. Plus précisément, le coefficient d'hygroexpansion proposé représente la relation entre le pourcentage de gonflement et la teneur en eau absorbée entre les deux états hydriques qui ont entraîné ce gonflement. Cette représentation graphique permet de mettre en évidence deux caractéristiques typiques de la dilatation hygrométrique. La Figure I.35 explicite en détail l'évolution du gonflement radial en fonction de la teneur en eau de l'isotherme de sorption [183].

La pente de la courbe de pourcentage de gonflement en fonction de la teneur en eau fournit le coefficient d'hygroexpansion [184]. En effet, pour avoir une valeur du coefficient d'hygroexpansion, il faut aux moins trois variations d'humidité en passant par une faible humidité relative, puis une deuxième qui représente une humidité relative moyenne et finalement une humidité relative très importante. Il sera possible dans ce cas de déterminer le coefficient d'hygroexpansion entre la première humidité relative et la dernière [150]. Néanmoins, lorsque les granulats sont exposés au séchage hydrique, ce qui représente la désorption, ils rétrécissent et libèrent l'eau absorbée en fonction de l'humidité relative. Dans ce cas, on identifie le coefficient d'hygro rétraction. Il est nécessaire de différencier le coefficient d'hygroexpansion β_s (Eq. 2) pour la phase de sorption et le coefficient d'hygro-rétraction β_{sh} pour la phase de désorption.

$$\beta_g = \frac{G(90\%-12\%) - G(55\%-12\%)}{\Delta m(90\%-12\%) - \Delta m(90\%-12\%)} \quad (2)$$

$$\beta_r = \frac{R(90\%-12\%) - R(55\%-12\%)}{\Delta m(90\%-12\%) - \Delta m(90\%-12\%)} \quad (3)$$

Avec $G(\%)$ le pourcentage de gonflement, $\Delta m_G(\%)$ la variation de la teneur pour la phase de sorption tandis que $R(\%)$ est le pourcentage de retrait et $\Delta m_R(\%)$ la variation de la teneur en eau pour la phase de désorption.

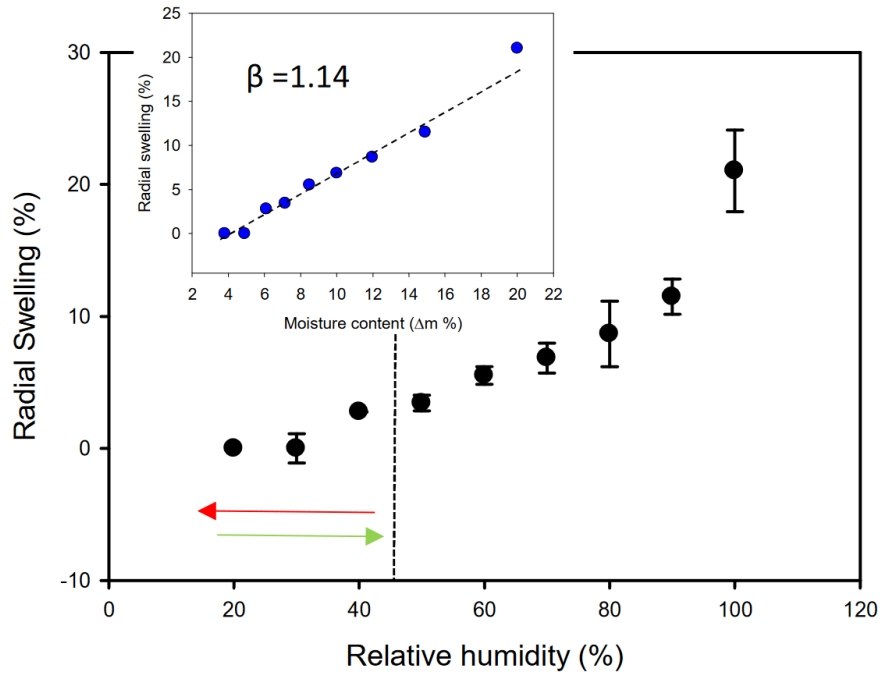


Figure I.35 : Evolution du gonflement radial en fonction de la teneur en eau (de l'isotherme de sorption) [183]

Le gonflement radial des fibres de lin atteint une valeur maximale de $21 \pm 3\%$ à 98% d'humidité relative, confirmant les résultats de Stuart et al. [185] et Pucci et al. [186]. Son évolution avec la teneur en humidité (données tirées de [183]) semble quasi linéaire ($R^2 = 0.99$). Ainsi, une régression linéaire permet d'estimer le coefficient d'hygroscopicité radiale $\beta_{f,R} = 1.14$ pour la fibre de lin. Les fibres de bois présentent un coefficient d'hygroscopicité radiale inférieur, d'environ 0.3 [187] et 0.45 [182]. Cependant, une augmentation de l'hygroexpansion de l'hémicellulose dans les fibres augmente fortement l'hygroexpansion qui atteint $\beta_{f,R} = 1$ pour un angle micro fibrillaire similaire [187]. Cette tendance pourrait être considérée comme pertinente pour les fibres de lin, qui possèdent une plus grande quantité de pectines et d'hémicellulose que les fibres de bois. L'analyse du coefficient d'expansion des fibres de lin révèle que l'effet hygroscopique est largement supérieur à la contribution thermique révélé dans le Tableau I. 8.

Tableau I. 8 : Coefficients de dilatation thermique et hygroscopique radiale de la fibre simple de lin

	Radial thermal expansion coefficient α_f, T ($10^{-6} / ^\circ\text{C}$)	Coefficient d'hygroexpansion radiale $\beta_{f,R}$ ($\epsilon/\Delta m$)
Fibre de lin	78 [188]	1.14 [161]

I.13 Conclusion

Les phénomènes complexes de gonflement et de retrait des granulats végétaux sont conditionnés par une multitude de facteurs, parmi lesquels figurent les interactions entre l'eau et les biopolymères qui composent les parois cellulaires. Parmi ces biopolymères, la cellulose, l'hémicellulose et la lignine, émergent des caractéristiques à la fois hydrophiles et hydrophobes, entraînant une influence déterminante sur leur interaction avec l'eau. Les groupes hydroxyles qui abondent dans ces structures moléculaires ont la capacité de former des liaisons hydrogène avec les molécules d'eau, contribuant ainsi au processus d'absorption d'eau et au gonflement ultérieur des granulats. Toutefois, la présence de groupes hydrophobes, tels que la lignine, agit en tant que régulateur, restreignant la quantité d'eau que les granulats peuvent absorber. Parallèlement, l'organisation de l'eau dans les pores et les cavités des granulats peut être influencée par la présence de solutés, tels que les ions minéraux, ainsi que par la taille et la distribution des pores. Cette organisation complexe de l'eau peut entraîner une hystérésis importante entre les isothermes de sorption et de désorption, ainsi qu'entre le gonflement et le retrait des granulats végétaux.

Afin de réduire l'absorption d'eau et, d'atténuer le caractère hydrophile des granulats, une gamme de traitements a été étudiée dans la littérature. Ces traitements visent spécifiquement à éliminer les groupes hygroscopiques situés dans les parois cellulaires, contribuant ainsi à une réduction significative de l'absorption d'eau. Le choix d'un traitement simple pour les granulats végétaux constitue un avantage supplémentaire pour compléter les bénéfices écologiques déjà offerts par ces granulats. Il est également remarquable que les fibres riches en lignine affichent une faible absorption d'eau, étant donné que la lignine présente des propriétés hydrophobes bien établies. L'élimination de la lignine n'engendre pas nécessairement une réduction de l'absorption d'eau, car les molécules d'eau ont tendance à être absorbées par la cellulose et l'hémicellulose, des composants intrinsèquement hydrophiles.

A partir des méthodes présentées dans la littérature, la majorité de ces procédés se focalise sur l'analyse des comportements microscopiques des granulats au sein des biocomposites, bien que cela ne constitue pas nécessairement l'approche pour étudier le comportement global des biocomposites. Toutefois, peu de ces procédés s'avèrent appropriés, en raison de la nature hétérogène des bétons biosourcés. Les méthodes de quantification utilisées dans la littérature présentent des limitations, notamment en ce qui concerne la taille des échantillons à l'échelle microscopique et la représentation à l'échelle macroscopique des biocomposites. De plus, les contraintes liées au temps et au conditionnement des échantillons imposent des limites à leur application. En outre, l'adaptation du microscope optique pour les observations à l'échelle macroscopique ne permet pas toujours d'obtenir la représentation la plus précise du comportement global du biocomposite.

Afin d'atteindre les objectifs de cette thèse, des expérimentations à différentes échelles sont menées. Dans un premier temps, nous procédons à la quantification du pourcentage de gonflement et de retrait des granulats végétaux à l'échelle microscopique. Subséquemment, nous investiguons les méthodes de traitement visant à réduire le gonflement et le retrait de ces granulats. Des évaluations biochimiques sont menées pour corroborer l'efficacité de ces traitements. Par la suite, ces traitements seront appliqués sur les granulats qui seront ultérieurement employés dans la confection des matériaux biosourcés.

Nous développons ensuite une méthodologie de quantification des déplacements qui analyse le comportement global de la totalité du matériau biocomposite à l'échelle macroscopique. Cette approche offre une représentation et une évaluation globale des variations dimensionnelles au sein des biocomposites, sans être restreinte par les contraintes de temps et de conditionnement liées à l'humidité relative. Le développement d'un mode d'essai optimisé permettra de réduire le temps d'évaluation des échantillons, ce qui s'avère particulièrement bénéfique pour évaluer différentes formulations. Par ailleurs, nous investiguons les effets de l'application d'un enduit de protection sur les biocomposites. Nous examinons le gonflement et retrait des matériaux biosourcés sur cet enduit, ainsi que les influences inverses de l'enduit sur ces paramètres.

Chapitre II : Matériaux et nouvelles méthodes expérimentales

II.1 Introduction

Ce chapitre se focalise dans une première partie sur la présentation des différents matériaux de l'étude, granulats végétaux, liants et produits de traitement proposés et leurs propriétés intrinsèques. Les étapes de préparation des échantillons des biocomposites sont détaillées ensuite. La seconde partie du chapitre est consacrée à la méthodologie de caractérisation proposée à l'échelle des granulats. Le protocole adapté pour le traitement des granulats pour améliorer leurs propriétés vis-à-vis de l'humidité est présenté. Afin de comprendre l'effet du traitement, l'analyse chimique des composants et leur quantification est décrite également dans cette partie. La troisième partie présente le banc d'essai développé dans le cadre de ce travail de thèse pour la mesure des variations dimensionnelles des biocomposites ainsi que la méthodologie de quantification du gonflement et retrait de ces matériaux seuls et avec le système enduit-isolant.

II.2 Matériaux de l'étude

II.2.1 Les granulats

Dans la continuité des travaux du laboratoire LaMé sur la valorisation de différents granulats végétaux de la Région Centre Val de Loire (Belayachi et al., 2013) (Brouard et al., 2018), quatre types de granulats sont étudiés. Ces granulats végétaux sont illustrés dans la Figure II. 1, (a) la paille de blé, (b) la paille de colza, (c) l'écorce de tournesol et (d) la moelle de tournesol. Dans les études précédentes, le travail sur ces granulats a porté sur leur caractérisation fine, sur la formulation et optimisation des mélanges pour une utilisation dans l'isolation thermique, et sur la caractérisation mécanique, thermique et hydriques des biocomposites [1] [2] [3]. Dans ce travail de thèse, nous nous intéressons à l'étude du gonflement retrait des granulats et des biocomposites pour contribuer à enrichir les données de la littérature sur un sujet qui n'est pas largement étudié.

L'écorce et la moelle de tournesol sont récupérés par l'unité de transformation des agriculteurs après broyage et dépoussiérage du sud de la région (ISOCHAMP). Le conditionnement initial de la paille de blé est en botte provenant du nord de la région suivi par un processus de broyage au laboratoire. La granulométrie de la paille de blé et de l'écorce de tournesol est répartie de manière uniforme dans la plage de dimensions allant de 1 à 3 cm alors que la granulométrie de la moelle de tournesol se situe entre 0,5 et 1,5 cm. Quant à la paille de colza, elle est broyée pour obtenir des granulats conformes au label construire en chanvre, et présente une granulométrie comprise entre 0,5 et 1 cm. Les granulats végétaux sont ensuite nettoyés à l'aide d'un brossage à sec pour éliminer les débris, puis subit un découpage manuel à l'aide d'un ciseau et un cutter pour obtenir des échantillons représentatifs pour les analyses microscopiques.



Figure II. 1 : Les différents granulats étudiés, a) paille de blé, b) paille de colza, c) écorce de tournesol et d) moelle de tournesol

II.2.2 Caractéristiques des granulats

L'analyse microstructurale des différents types de granulats de l'étude avaient notamment été réalisée à l'aide d'images de microscopie optique et à balayage dans les travaux précédents, Figure II. 2. Ces images montrent la porosité importante des granulats, ce qui leur confère un comportement fortement hygroscopique. L'écorce de tournesol présente de canaux connectés par des pores, tandis que la moelle présente une structure alvéolaire en nid d'abeille. Cette caractéristique lui confère une porosité de 98.7% contribuant à d'eau très élevée.

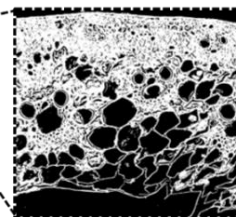
Le Tableau II. 1 récapitule les masses volumiques et les porosités de chaque granulat. La masse de la moelle de tournesol est inférieure à celle de la paille de blé, à celle de la paille de colza et à celle de l'écorce de tournesol.

Tableau II. 1 : Propriétés des granulats utilisés

Granulats	Masse volumique en vrac (Kg/m ³)	Porosité (%)	Références
Paille de blé	29.3	96.3	[17]
Paille de colza	64.9	94.06	[2]
Ecorce de tournesol	129	88.53	[2]
Moelle de tournesol	15.9	98.87	[2]



a)



SEM observation of the horizontal section

Porosity: 51%
(B. Ismail 2020)

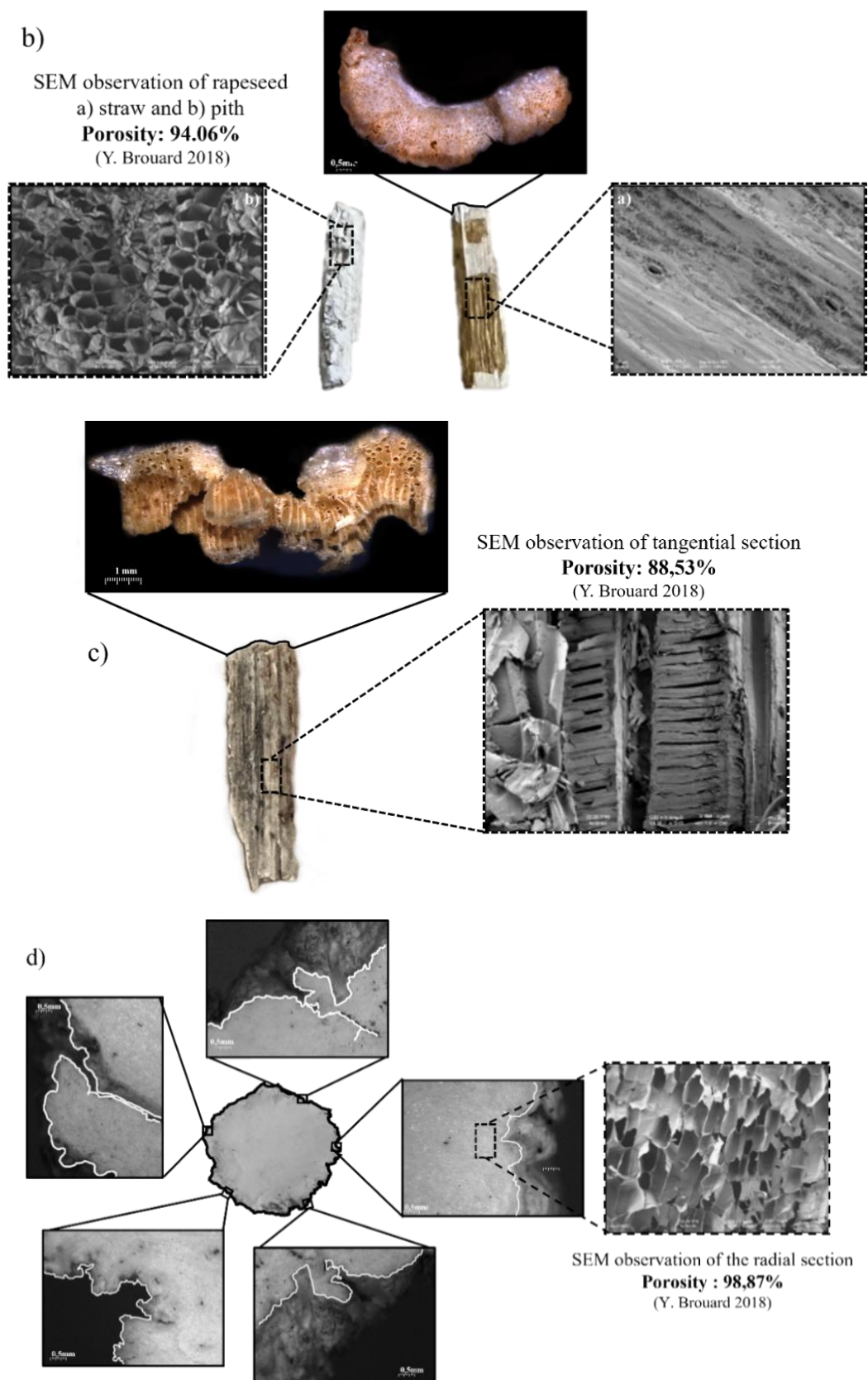


Figure II. 2 : Analyse microscopique des granulats marquant la forte porosité a) Paille de blé b) Paille de colza and c) écorce de tournesol d) moelle de tournesol

II.2.3 Produit de traitement

Les produits de traitement ont été choisis à partir de l'étude bibliographique du chapitre 1 pour un traitement simple des granulats végétaux avant leur incorporation dans le mélange des biocomposites. Deux sels commercialisés par CARLROTH ont été utilisés dans le cadre de cette étude :

- Le chlorure de sodium (NaCl) avec une masse molaire de 58,44 g/mol et une masse volumique de 2,17 g/cm³
- Le bicarbonate de sodium (NaHCO_3) qui a une masse molaire de 84,01 g/mol et une masse volumique de 2,21 g/cm³

II.2.4 Matériaux biosourcés biocomposites

Afin de mener l'étude de variation dimensionnelles des biocomposites, les quatre granulats végétaux décrits précédemment ont été mélangés à la chaux (Tradical PF 70) pour préparer les biocomposites à partir de formulations et protocoles de mélange optimisés dans les travaux précédents Belayachi et al. [1], Brouard et al. [189] et Ismail et al. [3]. Un seul rapport eau totale/liant et granulat liant a été choisi (1.1 et 0.3 respectivement) pour ne pas combiner dans cette première étude les différents paramètres pouvant influencer le comportement des matériaux biocomposites.

La préparation des biocomposites est décrite par le schéma de la Figure II. 3. Tout d'abord, le liant Tradical PF70 est mélangé avec 80% de la quantité de l'eau pendant 5 minutes. Simultanément, les 20% restants de la quantité d'eau sont mélangés aux granulats pour les pré-saturer pendant une minute, réduisant ainsi l'absorption d'eau par le liant. Une fois le liant préparé, il est ajouté au granulats pré-humidifiés et mélangé pendant cinq minutes supplémentaires à l'aide du malaxeur. Après cette période, le mélange est coulé en deux couches dans des moules de dimensions 10x10x10 cm³ manuellement pour remplir le vide dans le moule. Les échantillons sont manipulés de la même manière pour garantir des masses volumiques uniformes pour l'étude. Ensuite les échantillons sont stockés pour la phase de cure, dans une chambre à 80±6 % d'humidité relative constante et une température de 20°C pendant 90 jours.



Figure II. 3 : Le moule utilisé pour la fabrication des échantillons 10x10x10cm³

Dans cette étude, cinq types de matériaux biosourcés sont étudiés et formulés. Ils sont basés sur la paille de blé, la paille de colza, l'écorce de tournesol, la moelle de tournesol, ainsi qu'un mélange combinant l'écorce et la moelle de tournesol.

En ce qui concerne la méthode de traitement, les granulats sont tout d'abord traités et séchés, puis incorporés dans le processus de formulation. À la fin de cette étape, nous obtenons trois types d'échantillons : ceux dont les granulats ne sont pas traités, ceux traités par NaCl et ceux traités par NaHCO₃. Le Tableau II. 2 présente la désignation des différents biocomposites ainsi que leurs masses volumiques à l'état durci après 3 mois de cure.

Tableau II. 2 : la masse volumique ρ (Kg/m³) des biocomposites à base de différentes matières premières végétales et chaux : paille de blé (PbC), paille de colza (PcC), moelle de tournesol (MTC), écorce de tournesol (ETC), et mélange moelle et écorce de tournesol (METC).

	PbC	PcC	MTC	ETC	METC
ρ (Kg/m ³)	417 $\pm$ 10	455 $\pm$ 7	249 $\pm$ 6	478 $\pm$ 5	404 $\pm$ 8

II.2.5 Matériaux avec enduit de protection

L'application d'un enduit de protection sur les biocomposites utilisés dans l'isolation des bâtiments est essentielle pour assurer la durabilité et l'esthétique des parois. En effet, l'utilisation des matériaux biosourcés dans les deux cas d'isolation par intérieur/extérieur sera toujours accompagnée d'un enduit de protection. C'est pour cette raison que l'étude du système biocomposite-enduit a été proposée. L'objectif est d'étudier et évaluer l'effet de l'enduit sur le comportement de gonflement-retrait des matériaux biosourcés et inversement. Les échantillons de cette étude ont été préparés avec un échantillon de biocomposite avec une couche d'enduit de 1 cm appliqué après 28 jours de cure dans la chambre humide. L'enduit choisi ici a été développé dans le cadre du projet PEPITE comme enduit de protection des matériaux biosourcés.

Pour la préparation de l'enduit, nous suivons les étapes décrites par Lanas et al. [190] et utilisées dans la thèse de Ismail dans le cadre du projet PEPITE [5]. Le sable calcaire sélectionné pour cet enduit présente une granulométrie spécifique comprise entre 0 mm et 0,8 mm. Les proportions utilisées pour cette formulation sont un rapport sable/chaux égal à 1 et un rapport eau/chaux de 2/3 [5]. Les composants sont mélangés à secs, à savoir la chaux et le sable, pendant 3 minutes à une vitesse de 140 tr/min. Ensuite, l'ajout d'eau est réalisé progressivement pendant 5 minutes à une vitesse de 140 tr/min, suivi d'un mélange pendant 3 minutes à une vitesse de 285 tr/min. Une fois préparé, l'enduit est étalé sur une face des biocomposites. La hauteur de l'enduit appliqué est équivalente à la hauteur du biocomposite, diminuée de 1 cm pour des raisons de mesure. Les échantillons sont ensuite placés dans la chambre de cure de la même manière que les biocomposites décrits dans la section II.2.4.

La Figure II. 4 illustre une représentation visuelle de cette application d'enduit sur les biocomposites fabriqués à partir de paille de blé. L'objectif de cette démarche est d'évaluer les variations dimensionnelles tant au niveau de l'enduit que dans la partie du biocomposite qui n'est pas recouverte par l'enduit.

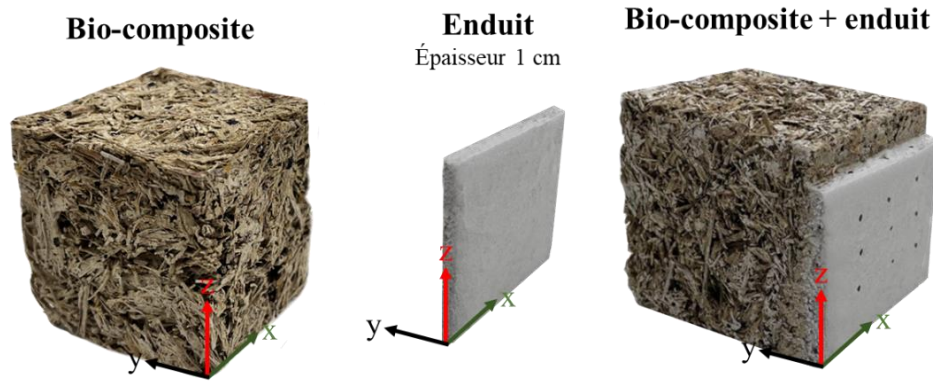


Figure II. 4 : Représentation de l'application de l'enduit de protection sur un bicomposite

II.3 Etude des variations dimensionnelles des granulats

II.3.1 Préparation des granulats

Dans cette étude, les deux traitements par chlorure de sodium (NaCl) et par le bicarbonate de sodium (NaHCO_3) sont utilisés pour leur influence sur la réduction du taux d'absorption d'eau [191] [192], et par conséquent sur le gonflement et le retrait des granulats.

Ces deux solutions sont préparées pour traiter les quatre granulats différents à une concentration de 10% en poids (dos Santos et al., 2018) [128] visant à évaluer les phénomènes de gonflement et de retrait. L'influence de la durée du traitement (24h, 48h, 72h, 96h, 120h) ainsi que du temps de rinçage pour éliminer le sel des granulats a été examinée à l'aide de mesures de pH et d'analyses des solutions. Suite à cette étude, la durée pour le traitement et le rinçage des granulats a été établie.

Les granulats sont immergés dans les deux solutions différentes de NaHCO_3 et NaCl . Tout d'abord, les sels sont dissous dans de l'eau préchauffée à des températures comprises entre 25 et 30°C. Les granulats préparés sont ensuite immergés dans les solutions de 500 ml et agités régulièrement pendant la durée déterminée. Ils sont ensuite placés dans une étuve à 60°C jusqu'à obtention d'une masse constante. Les granulats sont ensuite immergés dans l'eau déminéralisée pendant la durée suffisante pour éliminer la quantité de sel puis séchés de nouveau à l'étuve. Après avoir été retirés de l'étuve, les granulats sont laissés à température ambiante. Finalement, nous obtenons des granulats traités au NaCl , d'autres granulats traités au NaHCO_3 et des granulats non traités.

Dix échantillons par type de granulats traités et non traités sont fixés sur un support en polystyrène à l'aide d'une broche qui ne pénètre que partiellement dans le granulat. Cette intrusion limitée nous permet de considérer que le gonflement dans la direction transversale est libre. La Figure II. 5 montre la disposition de vue en face et vu de dessus des 4 types de granulats préparés sur le support.



Figure II. 5 : Vue de face et vue de dessus des 4 types de granulats préparés sur le support a) paille de blé, c) paille de colza, c) écorce de tournesol et d) moelle de tournesol

II.3.2 Conditions de conservation

Les granulats sont conservés dans une chambre climatique à une température constante et à une humidité relative variable selon l'objectif de l'étude. La Figure II. 6 illustre le protocole expérimental adapté à l'exposition et à l'analyse des images. Les échantillons sont conditionnés dans la chambre climatique avec des étapes d'humidification schématisant la voie du gonflement qui commence à 12% d'HR, suivie de 55% d'HR pour aller finalement à une humidité de 90% d'HR. Le processus de séchage représente la voie du retrait, par opposition à la voie du gonflement, et implique une diminution progressive de l'humidité relative d'un niveau élevé à un niveau faible aux stades de séchage spécifiques de 90 %, 55 % et 12 %. Un suivi de la masse a été effectué jusqu'à la stabilité pour assurer l'équilibre à chaque palier d'humidité. Les images sont prises à la fin de chaque palier et après stabilisation de la masse. Le temps nécessaire pour atteindre la stabilisation de la masse est généralement prolongé, variant entre 1 et 2 mois en fonction des différentes plages d'humidité. La différence entre les deux mesures consécutives doit être inférieure à 0,1% (Madsen et al., 2012).

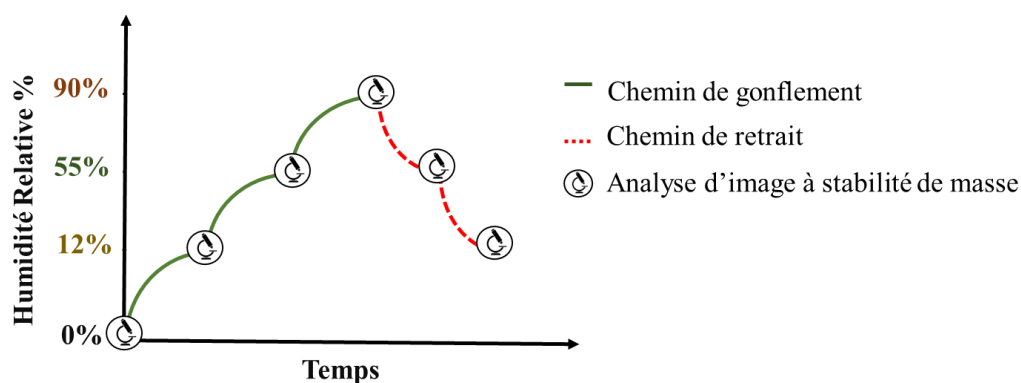


Figure II. 6 : Cycle d'humidification et de séchage des granulats végétaux

II.3.3 Observations microscopiques

Les observations sont réalisées à l'aide du microscope optique « Leica Microsystems (Schweiz) AG » équipé d'objectifs à différents grossissements. Plus précisément, un objectif avec des grossissements allant de 50x, 75x, et 100x est utilisé pour observer les échantillons à une échelle appropriée. La sélection du grossissement approprié dépend de la taille des échantillons et de

la résolution souhaitée pour l'analyse. Le grossissement du microscope optique est adapté en fonction des types de granulats afin d'obtenir une résolution nette en fonction de la taille, de la forme et de la texture des différents types de granulats. Les valeurs de grossissement les plus fréquemment employées pour les observations sont généralement de x50 pour la moelle de tournesol, x75 pour la paille de colza et de blé, et x100 pour l'écorce de tournesol. Cependant, il arrive parfois que le choix du grossissement varie en fonction de la taille de l'échantillon.

Afin d'assurer une visualisation précise et détaillée des échantillons, le choix de l'éclairage peut varier en fonction de la nature des échantillons. Dans cette étude, l'éclairage par réflexion a été utilisé, avec la source lumineuse positionnée au-dessus de la surface de l'échantillon. La Figure II. 7 présente l'exposition des granulats au microscope. Les images sont prises en utilisant une vue supérieure des échantillons. Cette perspective permet une observation optimale de la section transversale des échantillons, offrant ainsi des informations détaillées sur leur structure.

La Figure II. 7 résume de manière synthétique le protocole expérimental adopté. Les granulats, maintenus en place par des broches, sont soumis à des conditions d'humidité relative contrôlées dans la chambre climatique. Lorsque les mesures de masse atteignent un état de stabilité, indiquant l'atteinte de l'équilibre hydrique des granulats, ils sont ensuite transférés au microscope optique. Afin de minimiser les altérations de l'état d'équilibre atteint par les granulats dans la chambre climatique, des mesures préventives sont prises pour protéger le microscope optique. Un récipient contenant des solutions salines est utilisé pour cette protection pendant au moins 2 jours avant l'exposition des granulats au microscope. Ces solutions salines sont préparées de manière à maintenir une humidité relative similaire à celle régnant à l'intérieur de la chambre climatique assurant ainsi la continuité des mesures en raison de la sensibilité des granulats végétaux aux variations d'humidité. Les images sont prises en vue supérieure des granulats, permettant ainsi d'observer leur section transversale.

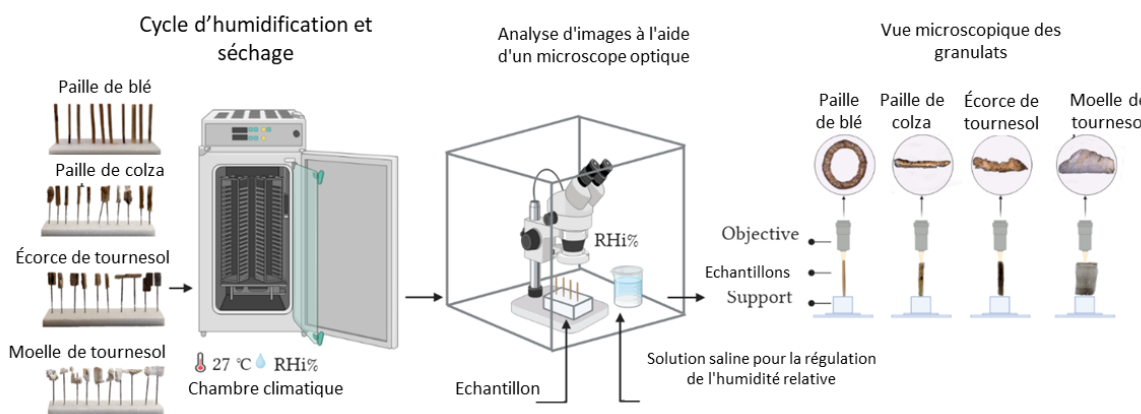


Figure II. 7 : Protocole expérimental d'exposition des granulats dans la chambre climatique : image de gauche, analyse microscopique : image de droite

La complexité inhérente à chaque type de granulat rend difficile l'analyse des variations de mesures entre deux états hydriques, en particulier lorsque la structure du granulat est complexe. C'est pourquoi nous avons adopté la mesure de la surface du contour de la section transversale. Cette approche permet de fournir une vue globale des caractéristiques morphologiques des granulats, incluant leur forme, leur rugosité et leur porosité.

Avant d'effectuer des mesures sur les images, un préréglage est appliqué pour améliorer la qualité de l'image et éliminer les artefacts indésirables en utilisant des filtres pour réduire le bruit, ajuster la luminosité et le contraste. L'extraction manuelle du contour implique plusieurs étapes pour prendre en compte les informations au niveau des pixels, ce qui permet d'améliorer la précision et les détails du contour. Ensuite, les pixels de contour sont sélectionnés manuellement à l'aide d'outils spécifiques. Les pixels correspondant au contour souhaité sont marqués. En reliant les pixels adjacents, une ligne continue représentant le contour est formée. Les variations d'intensité ou de couleur entre les pixels voisins sont suivies pour assurer la continuité du contour.

Pour améliorer la régularité du contour, un processus de lissage pixel par pixel est effectué. L'utilisation de la technique de seuillage des informations de couleur permet d'apporter des informations supplémentaires et complémentaires pour une définition précise de la forme et de l'étendue du contour des granulats végétaux. Les positions des pixels sélectionnés sont ajustées afin d'obtenir une courbe plus régulière et précise. Une vérification minutieuse de la cohérence du contour avec l'image d'origine est ensuite réalisée. Des ajustements supplémentaires, tels que la suppression ou le déplacement de pixels, sont effectués pour améliorer la correspondance et la précision du contour.

Lors de la mesure du contour à l'aide du microscope optique, différentes sources d'erreur peuvent survenir, ce qui peut affecter la précision des résultats. Le positionnement précis de l'échantillon sous le microscope est essentiel pour obtenir des mesures du contour. En effet, un léger décalage ou une inclinaison de l'échantillon, peuvent entraîner des variations dans la mesure du contour, introduisant ainsi des erreurs de dimensionnement ou de forme. C'est pourquoi les granulats sont fixés sur des broches afin de préserver leur gonflement transversal. Lors du lissage du contour pixel par pixel, des paramètres de lissage mal adaptés pourraient entraîner une suppression de pixels, ce qui pourrait compromettre la mesure de la surface des éléments analysés. Un lissage excessif peut entraîner une perte de détails fins ou une modification incorrecte de la forme du contour, tandis qu'un lissage insuffisant peut laisser des irrégularités ou des pixels non conformes dans le contour final. Une calibration incorrecte du microscope optique peut entraîner des erreurs de dimensionnement du contour. La répétabilité et la précision des mesures sont évaluées en se focalisant sur l'erreur de mesure au moyen de quatre mesures répétées du même contour de l'échantillon. La moyenne des mesures est ensuite calculée pour obtenir une estimation de la valeur moyenne du contour mesuré. Parallèlement, l'écart-type des mesures est calculé pour évaluer la dispersion des mesures autour de la valeur moyenne. Cette approche permet d'évaluer la cohérence et la fiabilité des mesures du contour obtenues à l'aide du microscope optique. Pour une même image, l'ampleur de l'erreur après une répétition de la mesure varie dans la plage de $\pm 0,6$ %, correspondant à l'écart entre la mesure la plus proche et la valeur la plus éloignée. Cependant, lors de l'examen de 10 échantillons par granulat, cette erreur peut s'étendre jusqu'à 1,5 %, en fonction de l'image spécifique et de la taille des échantillons de granulats concernés. L'étendue de cette variation est influencée à la fois par les caractéristiques inhérentes de l'image analysée et par les dimensions des échantillons de granulats examinés. Certains auteurs trouvent une erreur de l'ordre de 3.8% [193], 6.8 % [194] et 7% [195] et d'autre ne mentionnent pas l'erreur obtenu [24].

La Figure II. 8 représente la délimitation du contour des quatre types de granulats étudiés. Le broyage des moelles de tournesol et des pailles de blé donne des sections incomplètes. Les granulats de paille de blé se présentent sous trois formes différentes : plate, cylindrique et elliptique. Les granulats de moelle de tournesol ont des formes beaucoup plus variables. Il a été observé dans l'étude préliminaire que ces granulats présentent un comportement complexe lors de l'examen du gonflement. Plus précisément, la région périphérique du granulat (en rouge) gonfle plus que la région centrale (en blanc). Par conséquent, les mesures et la caractérisation sont effectuées sur les deux zones de manière séparée.

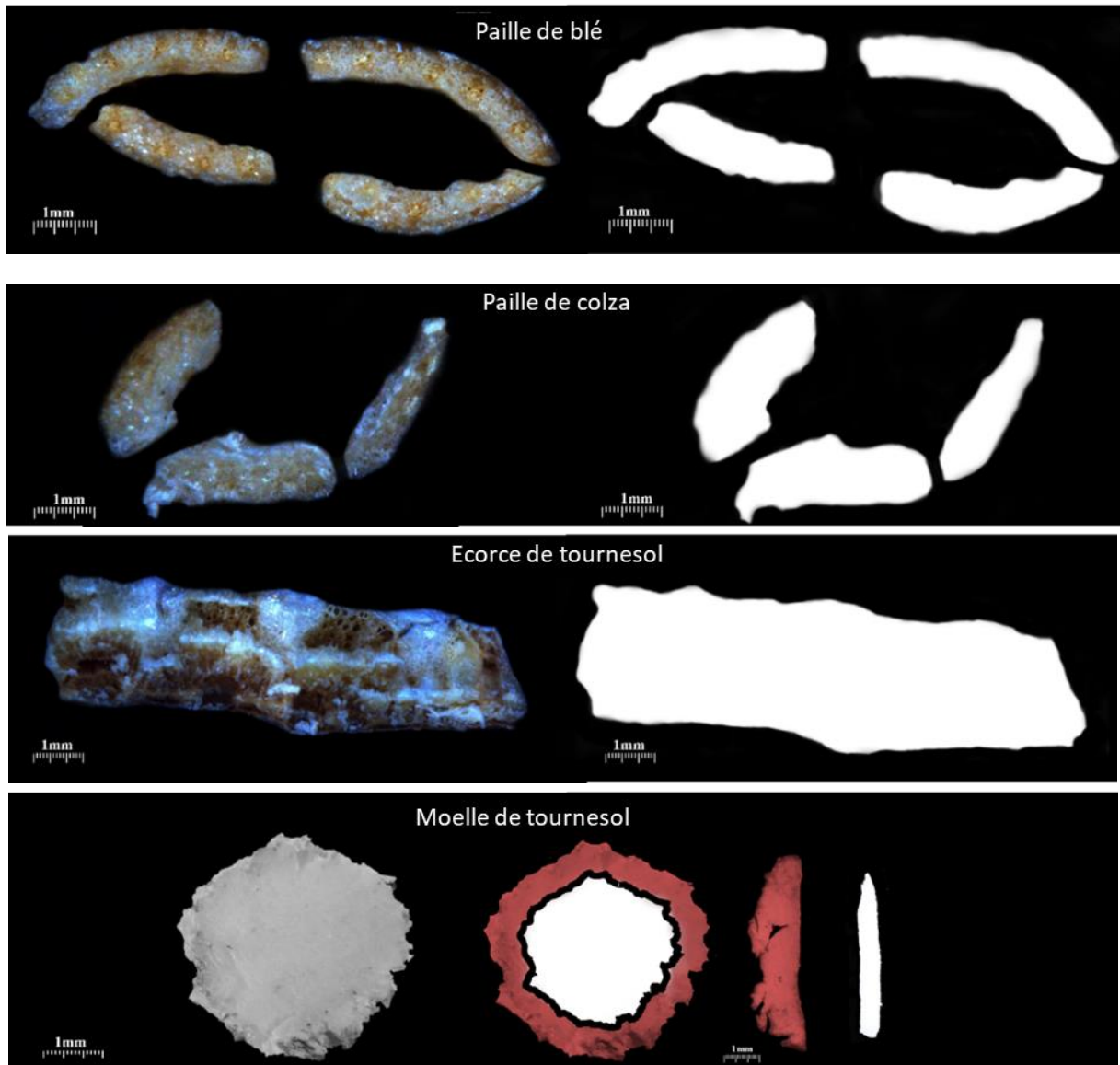


Figure II. 8 : Délimitation des contours des granulats pour les mesures de surface.

II.3.4 Méthode d'analyse et de calcul

L'objectif principal de cette phase est d'évaluer et quantifier le gonflement et le retrait des granulats à partir de l'analyse d'image réalisée selon la procédure décrite ci-dessus.

Les pourcentages de gonflement ou de retrait des granulats sont évalués à partir des mesures effectuées dans différentes plages d'humidité relative, permettant ainsi d'analyser les variations dimensionnelles des matériaux en fonction de l'humidité ambiante. Pour déterminer ces pourcentages, les mesures de la surface initiale des granulats à 12% d'humidité relative sont comparées avec celles effectuées à d'autres niveaux d'humidité relative. Le pourcentage de changement est alors calculé en utilisant les équations suivantes (Eq. (3) et Eq. (4)) :

$$G(\%) = \frac{S_i - S(RH12\%)}{S(RH12\%)} \times 100 \quad (4)$$

$$R(\%) = \frac{S_i - S(RH90\%)}{S(RH90\%)} \times 100 \quad (5)$$

Avec G(%) le pourcentage de gonflement et R(%) le pourcentage de retrait. La surface de contour mesurée de chaque granulat (S_i) est comparée à la surface de contour de référence à deux états d'humidité différents : RH12% pour le gonflement ($S(RH12\%)$) et RH90% pour le retrait ($S(RH90\%)$). Les deux surfaces de contour de référence sont mesurées en μm^2 .

Ces pourcentages permettent ensuite de déterminer les coefficients d'hygroexpansion β_g (Eq.(5)) et hygro-rétraction β_r (Eq.(6)), définis comme le gonflement de surface G(%) ou le retrait R(%), induits par une variation de la teneur en eau Δm . Le coefficient d'hygroexpansion est une mesure quantitative utilisée pour évaluer les changements dimensionnels d'un granulat causés par des variations de la teneur en eau suite à des variations d'humidité relative. Il prend en compte le pourcentage de gonflement et l'humidité relative pour établir une relation entre la teneur en eau et les variations dimensionnelles. Les relevés de masse sont effectués à la fin de chaque phase d'humidité lorsque l'on n'observe plus de variations de masse, ce qui indique que l'équilibre a été atteint. La teneur en eau est déterminée par la différence de masse entre les phases d'humidité distinctes lors de la conservation dans la chambre climatique de 12 % HR à 55 % HR et de 12 % HR à 90 % HR pendant la sorption, et de 90 % HR à 55 % HR et de 90 % HR à 12 % HR pendant le cycle de séchage [150] [183].

$$\beta_g = \frac{G(90\%-12\%) - G(55\%-12\%)}{\Delta m(90\%-12\%) - \Delta m(90\%-12\%)} \quad (5)$$

$$\beta_r = \frac{R(90\%-12\%) - R(55\%-12\%)}{\Delta m(90\%-12\%) - \Delta m(90\%-12\%)} \quad (6)$$

II.3.5 Quantification des composants chimiques des granulats

Pour mieux étudier et comprendre l'effet des traitements proposés sur le comportement des granulats végétaux, une quantification des composants chimiques avant et après traitement a été réalisée. La Figure II. 9 illustre les étapes suivies selon le protocole expérimental développé par l'AGPF 2012 et 2015 pour la quantification de la biomasse.

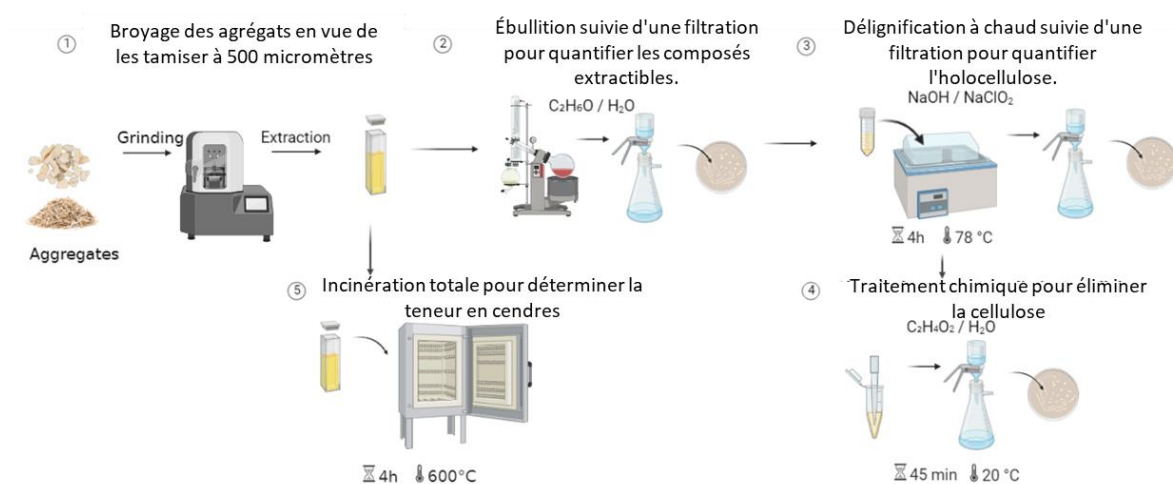


Figure II. 9 : Illustration des étapes suivies selon le protocole expérimental développé par l'AGPF 2012 et 2015 pour la quantification de la biomasse.

Les granulats sont broyés jusqu'à une taille de particule inférieure à 500 μm , puis séchés à 105 °C pendant 24 heures pour éliminer l'humidité. La teneur en cendres est caractérisée par une incinération complète de la matière première à 600 °C. L'extraction des composés extractibles se fait successivement dans l'eau afin d'éliminer les composés hydrosolubles comme les tanins et dans l'éthanol 96% pour éliminer des composés phénoliques, flavonoïdes. Une masse m_i de 1 g de l'échantillon est mélangée dans un ballon avec 500 ml d'éthanol à 96 %. L'ensemble est porté à ébullition à 78 °C pendant 1 h dans un système à reflux. Ensuite la solution d'éthanol est séparée de l'échantillon par filtration. Cet échantillon est par la suite soumis à une extraction dans 500 ml d'eau distillée à 95 °C pendant 1h. Une filtration est effectuée après pour séparer la solution aqueuse obtenue de l'échantillon. Ces deux extractions sont répétées simultanément jusqu'à ce que la solution d'éthanol ainsi que la solution aqueuse après filtration soient incolores. Après filtration, l'échantillon est séché à 103 °C pendant 15 h puis pesé afin de déterminer la masse finale m_f . La masse des composés extractibles correspond à la masse de la biomasse perdue après l'extraction, équation (7). La teneur en composés extractible peut être déduite à partir de l'équation (8) :

$$m_p = m_i - m_f \quad (7)$$

$$\% \text{extractibles} = \frac{m_p}{m_i} \times 100 \quad (8)$$

Ensuite, 1 g du résidu de la biomasse obtenu après extraction est mélangé avec 80 ml d'une solution tampon d'acétate (50 g de NaOH, 800 ml H_2O , 142,56 ml CH_3CO_2H) où sont ajoutés 2 ml de solution de chlorite de sodium (67.5 g de $NaClO_2$, 250 ml H_2O). L'ensemble est placé dans un bain-marie à 76 °C sous agitation. Ce même volume de $NaClO_2$ 2 ml est ajouté toutes les heures pendant 3 h jusqu'à décoloration complète de la pâte d'Holo cellulose. Cette décoloration correspond à la dégradation de la lignine. Une filtration est par la suite effectuée afin de laver la pâte d'Holo cellulose avec 500 ml d'eau miliQ puis 30 ml d'acétone. Ce lavage permet une décoloration totale de la pâte qui est ensuite séchée à 103 °C pendant 15 h. Après le séchage, la poudre est pesée afin de déterminer la masse m_{hz} de l'Holo cellulose extraite. Le

taux d'Holo cellulose dans l'échantillon de la biomasse est obtenu à partir de la masse initiale de l'échantillon extrait et de la masse de la pâte après délignification selon l'équation (9).

$$\% \text{holocellulose} = \frac{m_h}{m_{\text{ext}}} \times (100 - \% \text{extractibles}) \quad (9)$$

Avec :

%Holo cellulose est la teneur en Holo cellulose dans l'échantillon

m_h : la masse de la pâte d'Holo cellulose après séchage (g)

M_{ext} : la masse initiale avant la délignification (g)

Par la suite, la teneur en cellulose est quantifiée en chauffant 800 mg d'Holo cellulose avec une solution de NaOH à 17,5 % (43.75 g de NaOH en pastille dans 250 ml H₂O) pendant 5 minutes à 20 °C, suivi de 2,5 ml de cette solution chaque 5 minutes pendant 15 min. Le mélange est laissé sous agitation pendant 30 minutes puis filtré et rincé avec 16,5 ml d'eau ultrapure et 50 ml de solution NaOH 8,3% (83 g de NaOH en pastille dans 1000 ml H₂O) puis 7,5 ml d'acide acétique à 10%. La fraction de cellulose ainsi extraite (α -cellulose) doit être bien blanche, si elle est jaunâtre, il faut rincer à nouveau avec de l'eau ou de l'éthanol après avoir bien mélangé. La pâte blanche est par la suite séchée à l'étuve à 103 °C pendant 15 h. Après séchage, il faut s'assurer que la poudre soit bien blanche puis peser afin de déterminer la masse m_α du composé extrait. Le taux d' α -cellulose dans l'échantillon de la biomasse est obtenu à partir de la masse initiale d'Holo cellulose utilisée et de la masse de la poudre sèche d' α -cellulose selon l'équation (10) suivante :

$$\% \alpha - \text{cellulose} = \frac{m_\alpha}{m_h} \times (100 - \% \text{lignine} - \% \text{extractibles}) \quad (10)$$

Avec :

% α -cellulose, la teneur en α -cellulose dans l'échantillon

m_α : la masse de la pâte d'Holo cellulose après séchage (g).

La fraction des hémicelluloses dans la biomasse lignocellulosique est déduite à partir de celle de l'Holo cellulose et de la cellulose selon l'équation (11)

$$\% \alpha \text{Hemicelluloses} = \% \text{Holocellulose} - \% \text{cellulose} \quad (11)$$

Et finalement, le taux de lignine dans la biomasse est déterminé par différence. L'équation (12) permet ainsi de déterminer la fraction de la lignine dans la matière végétale [196] :

$$\% \text{lignine} = 100 - (\% \text{holocellulose} + \% \text{extractibles}) \quad (12)$$

II.4 Variation dimensionnelle des composites

II.4.1 Principe de la mesure du banc d'essai développé

Compte tenu, de la forte hétérogénéité des matériaux biosourcés, de la variabilité de l'épaisseur du liant qui enrobe les granulats végétaux, et la fragilité des échantillons pour insérer des plots de mesure de retrait, la méthode normalisée utilisant un déformomètre est limitée voir impossible et présentera une grande incertitude. Par conséquent, dans le cadre de cette étude, une technique innovante de mesure du gonflement et du retrait des biocomposites a été développée et proposée pour lever ces problématiques techniques. Cette méthode consiste à utiliser des capteurs de déplacement laser pour une mesure non destructive sans contact.

La conception du banc d'essai comprend trois capteurs laser de déplacement (de type Keyence IL-S065 ici) qui projettent un point lumineux sur l'objet, ainsi qu'un amplificateur combiné Keyence IB-1000 qui affiche la distance et est lié à des enregistreurs de type "Madgtech" pour enregistrer les données en fonction du temps. La Figure II. 10 illustre le principe de fonctionnement du capteur laser de déplacement. Si un capteur laser est dirigé vers un point spécifique sur un objet et que des changements surviennent dans sa position, l'amplificateur détecte ces changements. Une lecture de zéro sur l'amplificateur correspond à une distance de 55 mm entre l'objet et le capteur laser, tandis qu'une lecture de 20 mm sur l'amplificateur indique une distance de 75 mm entre l'objet et le capteur laser. Les capteurs laser ont une marge de mesure de 20 mm. La précision de cette méthode est élevée, avec une linéarité à pleine échelle de $\pm 0,05 \%$ et une répétabilité de $2 \mu\text{m}$. La Figure II. 10 illustre le principe opérationnel du capteur laser. La linéarité à pleine échelle est une mesure de la précision du capteur dans la relation entre la valeur de mesure réelle et la valeur affichée par le capteur sur toute la plage de mesure. Une linéarité de 0,05% indique que l'erreur maximale de mesure, par rapport à une courbe linéaire idéale, est de 0,05% de la pleine échelle. En revanche, la marge d'erreur entre le capteur laser et le point à mesurer peut dépendre d'autres facteurs tels que la stabilité de la position du capteur, les erreurs de montage ou d'alignement.

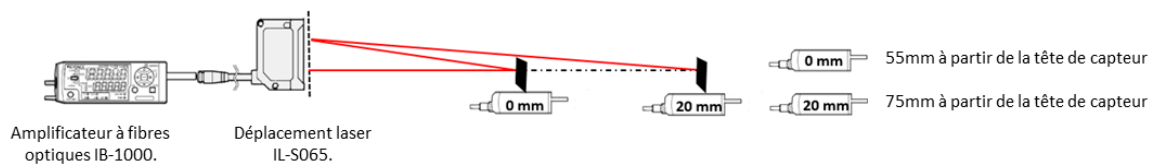


Figure II. 10 : Principe de fonctionnement du capteur laser de déplacement dont la marge de mesure est de 20 mm

La figure II. 11 montre la conception et la mise en place du banc d'essai développé. Les échantillons sont placés sur un support en polystyrène fixe de $10 \times 10 \text{ cm}^2$ et positionnés sur la structure pour la mesure pour assurer un même positionnement après la conservation dans les différentes humidités. Les capteurs peuvent être ajustés vers n'importe quelle cible. Le choix de l'installation des capteurs permet de mesurer les variations dimensionnelles du matériau dans les 3 directions.

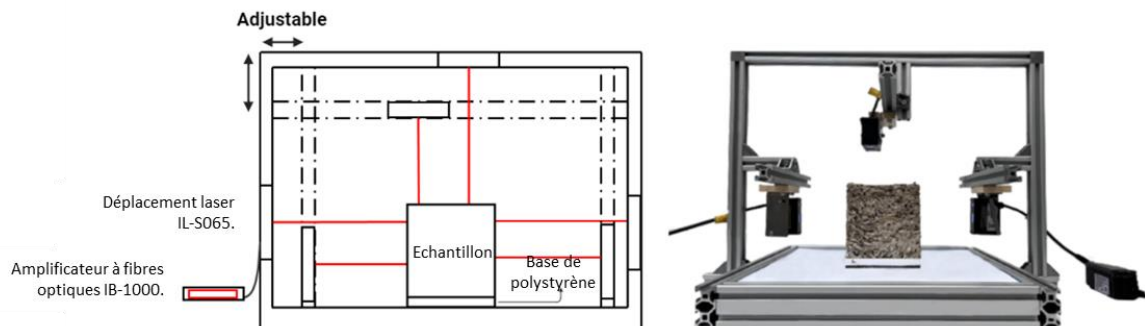


Figure II. 11 : A gauche, la conception initiale du banc d'essai et à droite, la mise en application de la structure

Les matériaux biosourcés sont d'une nature hétérogène en raison des différences de composition et de structure. Par conséquent, nous avons adopté l'utilisation d'une méthode ponctuelle pour chaque face de l'objet afin de mesurer plusieurs points sur chaque face.

II.4.2 Conditions de conservation

Afin de mieux étudier le comportement des biocomposites à court terme (au jeune âge) et après la cure, nous avons choisi d'effectuer les mesures à partir de deux états différents. Le premier directement après démoulage des échantillons et jusqu'à 90 jours, et le deuxième après 3 mois de cure et ensuite conservés dans différentes humidités relatives dans une enceinte climatique.

II.4.2.a Après démoulage

24 heures après coulage, les échantillons sont démoulés puis conservés dans une chambre à 80 ± 6 % d'humidité relative constante et une température de 20°C pendant 90 jours.

Le changement de comportement après démoulage jusqu'à stabilité de l'échantillons est important à évaluer surtout pour une mise en place de mur banché ou la production des blocs à décoffrage immédiat. Pendant les 3 mois de mesure, la hauteur, et les longueurs évoluent en fonction du gonflement et du retrait du biocomposite jusqu'à leur stabilité. Les mesures sont effectuées dès le démoulage des échantillons, après une période de 24 heures suivant leur fabrication. Les mesures se poursuivent mensuellement pendant une période de trois mois de maturation des échantillons, durant laquelle la stabilité de leur masse est suivie également. Le but sera d'évaluer le changement dimensionnel après démoulage jusqu'à ce qu'il n'y ait plus de variations significatives.

II.4.2.b Exposition hydrique après la cure

Les différentes formulations sont exposées, après les 3 mois de cure dans la condition constante, à un processus d'humidification et de séchage hydrique afin de déterminer expérimentalement leurs variations dimensionnelles dans des conditions similaires à celles utilisées pour les . Pour réaliser ces tests, la Figure II. 12 schématise les étapes suivies pour le protocole expérimental. Les biocomposites sont conditionnés dans une chambre climatique à une température constante et une humidité relative variable comme dans le cas des granulats. Les étapes d'humidification, qui correspondent au processus de gonflement, débutent par un séchage préalable après la période de conservation, puis commencent à 12 % d'humidité relative (HR), suivies de 55 % HR pour enfin atteindre 90 % HR. Le processus de séchage représente le processus de retrait, par opposition au processus de gonflement, et implique une diminution progressive de l'humidité relative de niveaux élevés à faibles lors des étapes spécifiques de séchage à 90%, 55% et 12%.

Pour maintenir des conditions d'humidité cohérentes lors de l'exposition des échantillons aux variations d'humidité dans une chambre climatique, des solutions salines sont préparées et placées dans la structure en plexiglass pendant la mesure pour garantir l'humidité relative correspondante à celle de la chambre climatique. Un support en polystyrène est utilisé pour le transport des biocomposites de la chambre climatique vers la structure du banc d'essai. Ce support assure un positionnement constant des échantillons après leur conservation.

Les mesures sont prises à la fin de chaque cycle, et après la stabilisation de la masse des échantillons, la différence entre deux mesures consécutives doit être inférieure à 0,1% (Madsen et al., 2012). Une fois les échantillons positionnés sur la structure, ils sont exposés au capteur laser et l'amplificateur affiche les valeurs qui sont enregistrées avec l'emplacement du point et de la face. Une fois toutes les mesures prises, les échantillons sont replacés dans la chambre climatique pour être conditionnés dans un nouvel état hydrique.

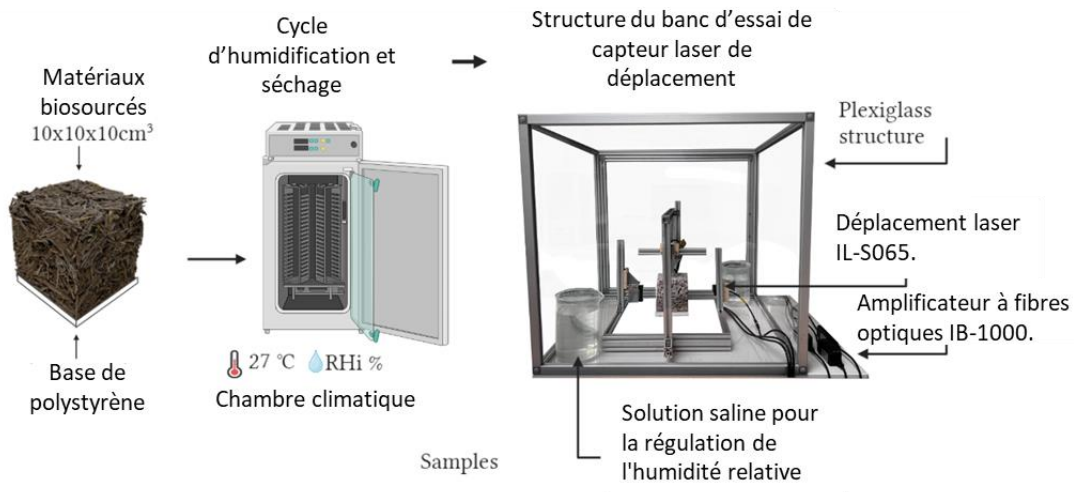


Figure II. 12 : Protocole expérimental pour les biocomposites

pour la mesure sans contact des déplacements dans les

II.4.3 Méthodologie de mesure

II.4.3.a Initialisation des mesures

La distance entre les deux capteurs joue un rôle critique dans le processus de mesure, et il est essentiel de déterminer cette distance afin de garantir la précision des mesures ultérieures. La mesure de la distance totale L_t entre les deux capteurs est effectuée à l'aide d'un objet solide indéformable, dont l'épaisseur est préalablement connue et mesurée à l'aide d'un pied à coulisse comme illustré dans la Figure II. 13. Cette étape revêt une importance considérable, car elle permet de régler correctement les capteurs après chaque ajustement, assurant ainsi la fiabilité des mesures effectuées.



Figure II. 13 : Epaisseur du solide utilisé pour l'initialisation des capteurs laser de déplacement

Ensuite, nous enregistrons les valeurs détectées par les amplificateurs, notées x_1 et x_2 respectivement. Nous pouvons obtenir la longueur L_t par l'équation Eq.(13), Figure II. 14-a :

$$L_t = E_p + d_1 + d_2 \quad (13)$$

Où E_p est l'épaisseur du solide $\pm$ sa précision de 0.043mm, d_1 et d_2 sont les distances entre les deux capteurs laser opposés et l'échantillon définies par $d_1 = 55 \text{ mm} + x_1$ et $d_2 = 55 \text{ mm} + x_2$, avec x_1 et x_2 qui sont les deux valeurs affichées par les deux amplificateurs associés à ces deux capteurs laser.

Par analogie, la mesure de la hauteur totale H_t , Figure II. 14-b, représente la distance entre le capteur et le support en utilisant le même principe. Nous pouvons obtenir la hauteur H_t par l'équation Eq.(14):

$$H_t = E_p + d_3 \quad (14)$$

Où E_p est la hauteur du solide $\pm$ 0.043mm, d_3 est la distance entre le capteur laser placé au-dessus de l'échantillon et l'échantillon, définie par $d_3 = 55 \text{ mm} + x_3$, x_3 étant la valeur affichée par l'amplificateur associé au capteur laser.

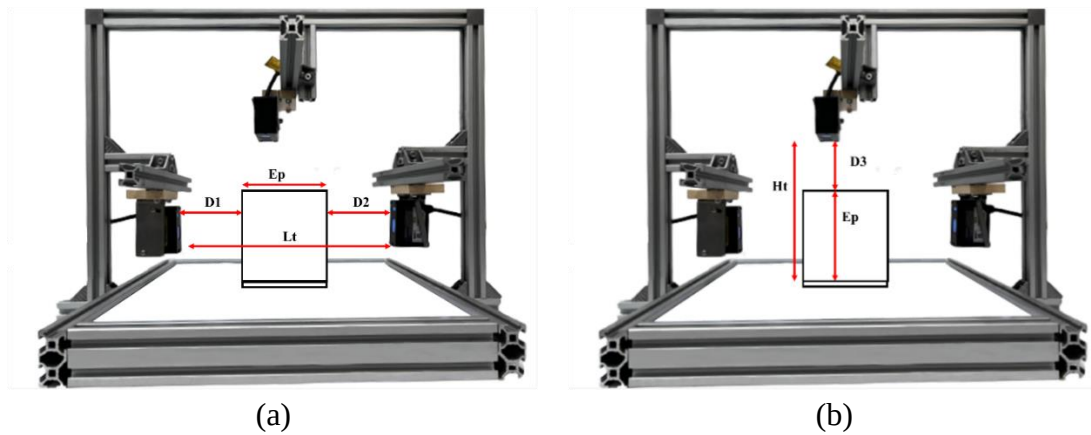


Figure II. 14 : Détermination de la longueur (a) L_t et (b) H_t

II.4.3.b Mesure de l'épaisseur

La Figure II. 15 montre la longueur l_x à déterminer. Une fois la longueur totale L_t entre les deux capteurs calculés, nous pouvons obtenir les valeurs d'épaisseur de l'échantillon selon les directions l_x et l_y à l'aide des équations (Eq.(15), (16)),

$$L_x = L_t - (d_1 + d_2) \quad (15)$$

$$L_y = L_t - (d_1 + d_2) \quad (16)$$

Où l_x représente l'épaisseur de l'échantillon dans la direction $x'ox$, l_y représente l'épaisseur de l'échantillon dans la direction $y'oy$, L_t est la longueur totale entre les deux capteurs laser initialisée précédemment, d_1 et d_2 sont les distances entre les deux capteurs laser opposés et

l'échantillon définies par $d_1 = 55 \text{ mm} + x_1$ et $d_2 = 55 \text{ mm} + x_2$, avec x_1 et x_2 qui sont les deux valeurs affichées par les deux amplificateurs associés à ces deux capteurs laser. Sur les deux faces opposées de l'échantillon et dans une direction spécifique (xox' ou yoy'), des points de mesure sont choisis de manière à coïncider. La Figure II. 15 illustre les deux points de mesure, montrant une différence uniquement dans leurs coordonnées x , tandis que leurs coordonnées y et z restent identiques, voire très proches.

Ces équations permettent de quantifier les variations d'épaisseur de l'échantillon dans les directions x et y . En appliquant ces formules, nous obtenons des mesures de l'épaisseur de l'échantillon.

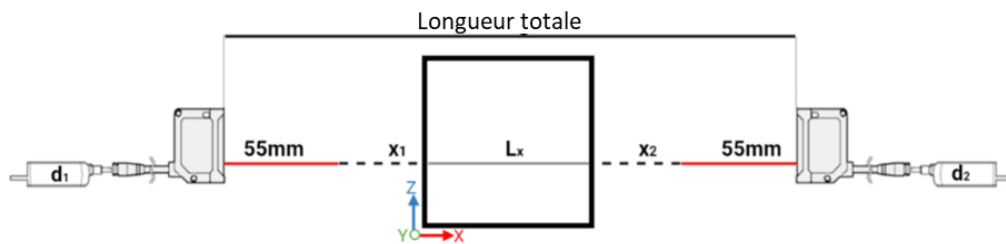


Figure II. 15 : Détermination de la longueur l_x

II.4.3.c Mesure de la hauteur

La hauteur H_z du matériau biocomposite suivant l'axe z est déterminée selon l'équation Eq.(17), comme illustré sur la Figure II. 16 :

$$H_z = H_t - d_3 \quad (17)$$

Où H_z représente la hauteur de l'échantillon dans la direction $z'oz$, H_t est la distance entre le capteur et le support initialisée précédemment, d_3 est la distance entre le capteur laser placé au-dessus de l'échantillon et l'échantillon, définie par $d_3 = 55 \text{ mm} + x_3$.

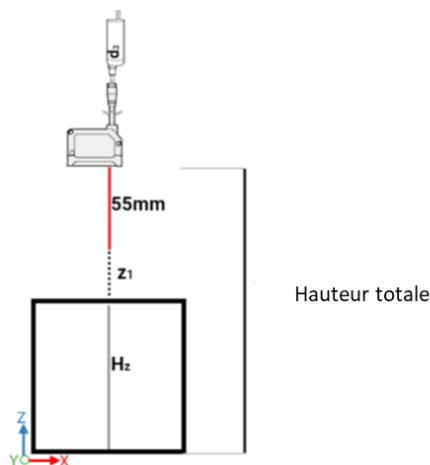


Figure II. 16 : Détermination de la hauteur H_z de l'échantillon

II.4.1 Implantation des points de mesure

L'estimation du comportement de gonflement et de retrait est possible grâce à une stratégie d'échantillonnage représentative, où des points sont placés à différents emplacements en surface du matériau, comme illustré dans la Figure II. 17. Cette approche de marquage systématique a été appliquée à chaque face de l'échantillon pour s'assurer que toutes les surfaces étaient incluses dans l'analyse à l'exception de la surface de la base. Des points sont utilisés comme repères sur tous les côtés des échantillons pour un suivi continu de la mesure au même point après exposition aux différentes humidités.

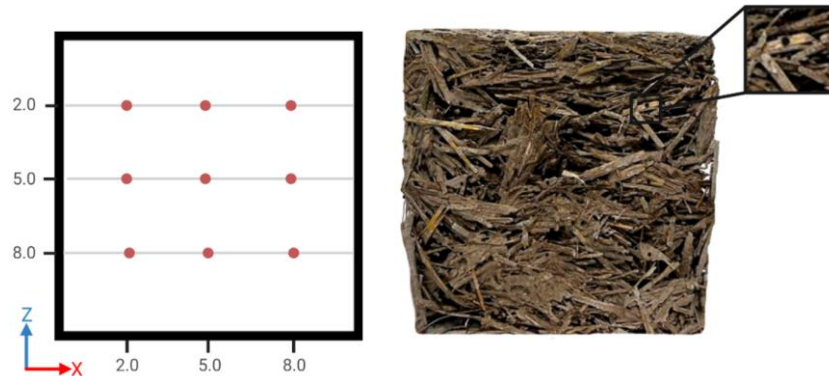


Figure II. 17 : Illustration des points des mesures de points laser

La méthode utilisée pour déterminer l'épaisseur de l'échantillon consiste à considérer deux points sur des faces opposées de l'échantillon qui sont alignés sur les axes horizontaux $x'ox$, ou $y'oy$ ou $z'oz$. La distance entre ces deux points est calculée pour chaque point sur chaque face de l'échantillon.

Pour mieux illustrer cette méthode, prenons l'exemple d'un échantillon cubique comme illustré sur la Figure II. 18. Le marquage utilisé dans cette étude est choisi pour que chaque point marqué corresponde à une variation de mesure enregistrée par le capteur de déplacement laser à chaque état. Neuf points sont mesurés sur chaque face du cube, ce qui donne un total de 54 mesures. Pour chaque point sur l'axe $x'ox$, un autre point symétrique est situé sur la face opposée. La distance entre ces deux points est ensuite calculée par l'équation 13 ou 14, ce qui donne une mesure d'épaisseur.

Ce processus est répété pour les neuf points sur chaque face, ce qui donne un total de 9 mesures d'épaisseur le long de l'axe $x'ox$. De même, le même processus est répété pour l'axe $y'oy$, ce qui donne 9 autres mesures d'épaisseur. Enfin, 9 mesures de hauteur sont obtenues le long de l'axe $z'oz$, ce qui donne un total de 18 mesures d'épaisseur le long de $x'ox$ et $y'oy$ et 9 mesures de hauteur pour l'ensemble de l'échantillon le long de $z'oz$. Ces mesures permettent une visualisation des variations de taille et de forme de l'échantillon.

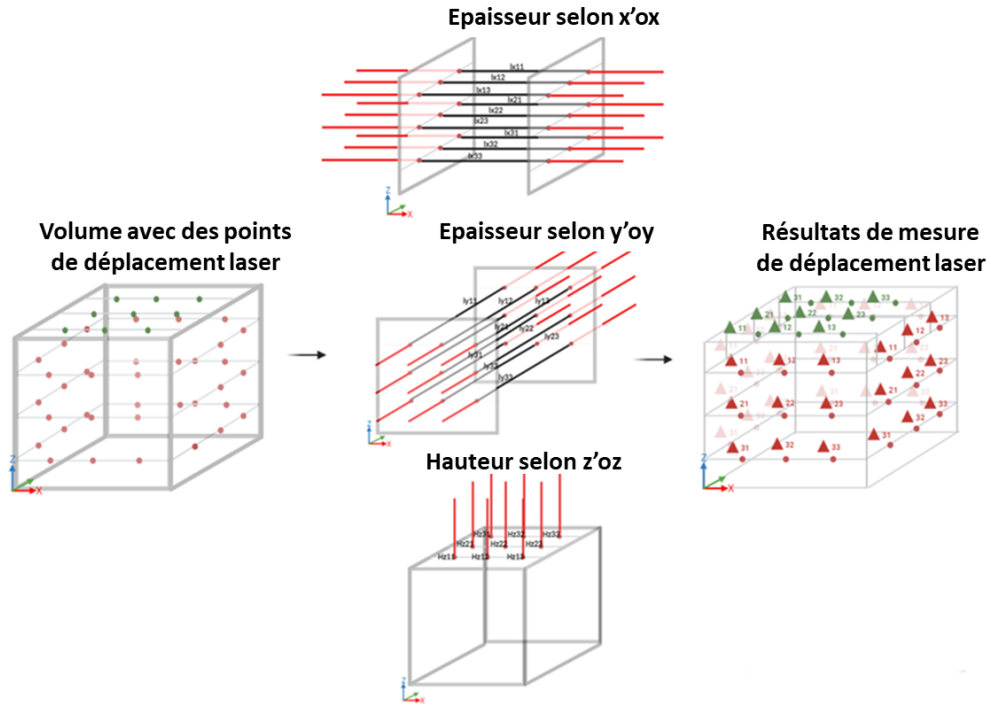


Figure II. 18 : Analyse tridimensionnelle d'un échantillon à l'aide de mesures de déplacement par laser

II.4.2 Analyse des données et quantification du gonflement et retrait

Les pourcentages de gonflement ou de retrait des biocomposites sont évalués à partir des mesures effectuées dans différentes plages d'humidité relative, permettant ainsi d'analyser les variations dimensionnelles des matériaux en fonction de l'humidité ambiante. Pour déterminer ces pourcentages, les mesures des longueurs initiales des biocomposites à 12% d'humidité relative sont comparées avec celles effectuées à d'autres niveaux d'humidité relative. Le pourcentage de variation entre les deux états est défini comme le rapport de la variation dimensionnelle Δl en épaisseur, en longueur ou en hauteur par rapport à la longueur initiale (Eq.(16), (17)). Le gonflement est défini comme un pourcentage positif, tandis qu'un signe négatif indique le rétrécissement :

$$G(\%) = \frac{\Delta l(HR_i) - \Delta l(HR12\%)}{l(HR12\%)} \times 100 \quad (18)$$

$$R(\%) = \frac{\Delta l(HR90\% - HR_i\%)}{l(HR90\%)} \times 100 \quad (19)$$

où $G(\%)$ représente le pourcentage de gonflement, $\Delta l(HR_i - HR12\%)$ est le déplacement qui se produit entre une humidité relative HR_i et l'état de référence sec $HR12\%$, $l(HR12\%)$ correspond à la mesure à l'état sec $HR12\%$.

$R(\%)$ représente le pourcentage de retrait, $\Delta l(HR90\% - HRi\%)$ est le déplacement qui se produit entre une humidité relative HRi et l'état de référence humide $HR90\%$, $l(HR90\%)$ correspond à la mesure humide $HR90\%$.

Cela permet de déterminer les coefficients d'hygroexpansion β_g (Eq.(5)) et hygro-rétraction β_r (Eq.(6)) définis dans la section II.3.4

II.5 Variation dimensionnelle du système composite-enduit

II.5.1 Conditions de conservation

Afin d'étudier les biocomposites à l'échelle de la paroi, nous avons choisi des conditions d'exposition qui simulent les conditions climatiques auxquelles les matériaux (biocomposites + enduit) seront exposés dans la réalité, à savoir des cycles d'humidification-séchage et d'immersion séchage quand il s'agit par exemple de fortes pluies.

II.5.1.a Essai de cycle d'humidification et séchage

Pour évaluer les dimensions des biocomposites avec leur enduit de protection, deux types d'essais ont été réalisés, permettant d'analyser leurs variations dimensionnelles en fonction de l'humidité. Le premier essai consiste à soumettre les échantillons de biocomposites à un cycle de variation d'humidité identique à celui présenté précédemment pour les biocomposites dans le paragraphe II.4.2.b.Exposition hydrique après la cure.

Les échantillons ont été répartis en deux groupes distincts. Le premier groupe, (Figure II. 19- a), est constitué d'échantillons non recouverts, laissant ainsi toutes les faces du biocomposite exposées directement au flux d'humidité. Dans le deuxième groupe (Figure II. 19- b), les biocomposites sont recouverts d'un film en papier aluminium adhésif imperméable à l'eau pour protéger les faces sans enduit simulant ainsi sa mise en œuvre au niveau de la paroi avec un transfert unidimensionnel, laissant ainsi seulement l'enduit exposé à l'humidité. L'objectif de cette approche est de permettre le passage du flux d'humidité à travers l'enduit dans le deuxième groupe, afin de se rapprocher des conditions réelles lorsque l'enduit est appliqué sur le biocomposite dans le cas d'un mur avec isolant. Le premier groupe sert de référence pour évaluer les biocomposites sans protection, fournissant ainsi une comparaison significative.

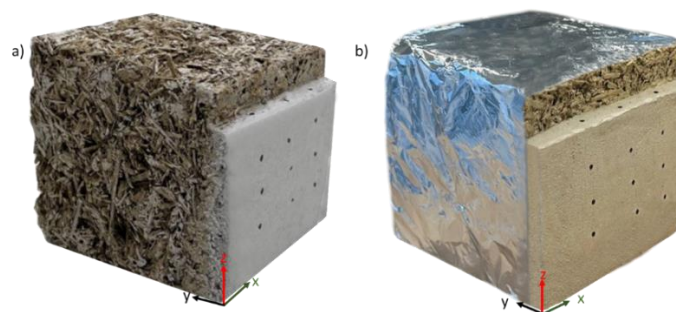


Figure II. 19 : a) Biocomposite avec enduit, b) Biocomposite avec enduit recouvert d'aluminium.

II.5.1.b Cycle d'immersion et séchage.

Dans le cadre de l'évaluation dimensionnelle des biocomposites avec enduit de protection, un deuxième type d'essai est réalisé : le cycle d'immersion séchage. Alors que l'essai de variation d'humidité simule les conditions d'exposition environnementale, le cycle d'immersion vise à évaluer si l'enduit résiste au gonflement des granulats du biocomposite ou s'il risque de se détacher suite au gonflement-retrait répété.

Le processus d'essai, illustré dans la Figure II. 20, commence par une évaluation des dimensions initiales des échantillons, servant de référence pour les mesures ultérieures. Ensuite, les échantillons sont immergés dans l'eau, pendant 5 minutes. Après immersion totale des échantillons, ils sont retirés de l'eau et soigneusement égouttés pour éliminer l'excès de liquide. Les nouvelles dimensions des échantillons sont ensuite mesurées, révélant ainsi les variations dimensionnelles causées par l'immersion. Ces mesures permettent d'évaluer l'impact de l'absorption d'eau sur les propriétés dimensionnelles des biocomposites avec enduit. Dans la continuité de l'essai, les échantillons sont ensuite soumis à un processus de séchage contrôlé à une température constante, généralement à 60°C. Ce processus permet l'évaporation progressive de l'eau absorbée pendant l'immersion. À la fin du séchage, de nouvelles mesures dimensionnelles sont effectuées.

Le cycle d'immersion est répété jusqu'à ce que l'enduit se détache du biocomposite, ce qui varie d'un échantillon à un autre et selon la formulation utilisée. Ce protocole permet d'observer l'évolution des variations dimensionnelles au fur et à mesure que les cycles progressent et que l'enduit atteint son point de détachement. Pendant chaque étape du cycle d'immersion et séchage, des photographies détaillées des échantillons sont prises à intervalles réguliers. L'objectif principal de cet essai est de détecter les fissures éventuelles qui pourraient se former entre l'enduit et le biocomposite en raison de l'immersion et le séchage répété. En outre, il permet d'évaluer la stabilité dimensionnelle des biocomposites avec enduit dans des conditions de contact prolongé avec l'eau.

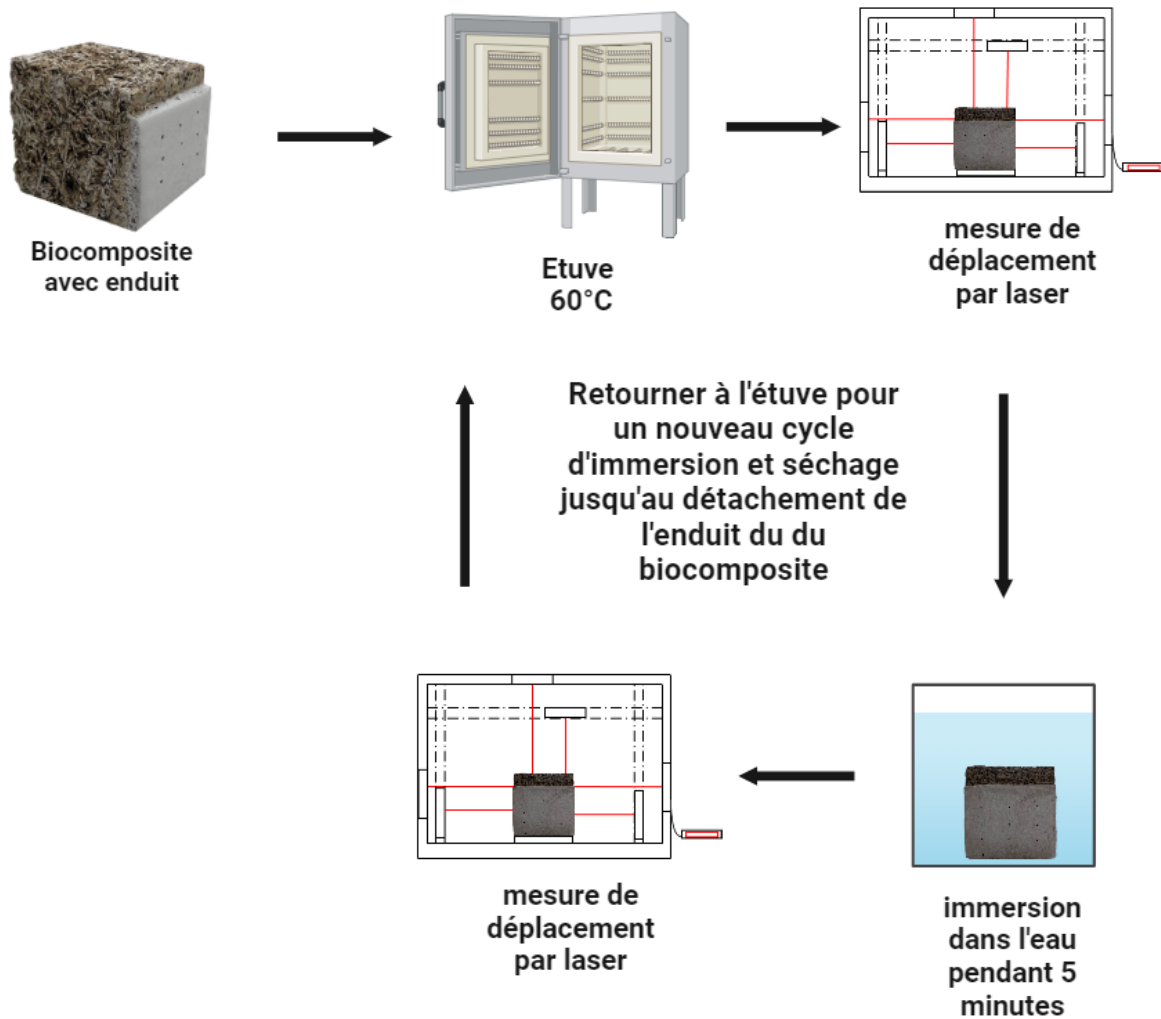


Figure II. 20 : Schéma du protocole d'immersion et de séchage

II.5.2 Analyse des données et quantification des variations dimensionnelles

Un système de points de mesure a été mis en place sur l'enduit et les biocomposites afin de permettre une comparaison entre les biocomposites sans enduit et ceux avec l'application de l'enduit, en suivant le même protocole expérimental basé sur les capteurs laser de déplacement. La Figure II. 21 présente les points de mesures sur les différentes faces du système biocomposite-enduit. Douze points sont mesurés sur chaque face du cube. Sur la Figure II. 21-a, neuf points sont situés sur l'enduit et trois autres sur la partie non couverte par l'enduit. Pour chaque point sur l'axe $x'ox$, un autre point est situé sur la face opposée. La distance entre ces deux points est ensuite mesurée, ce qui donne une mesure d'épaisseur pour ce point. Les principes de ces mesures est identique à celui présenté dans le paragraphe. Ce processus est répété pour l'ensemble des points sur chaque face, ce qui donne un total de 68 mesures le long de $x'ox$ et $y'oy$ et 9 mesures de hauteur pour l'ensemble de l'échantillon le long de $z'oz$.

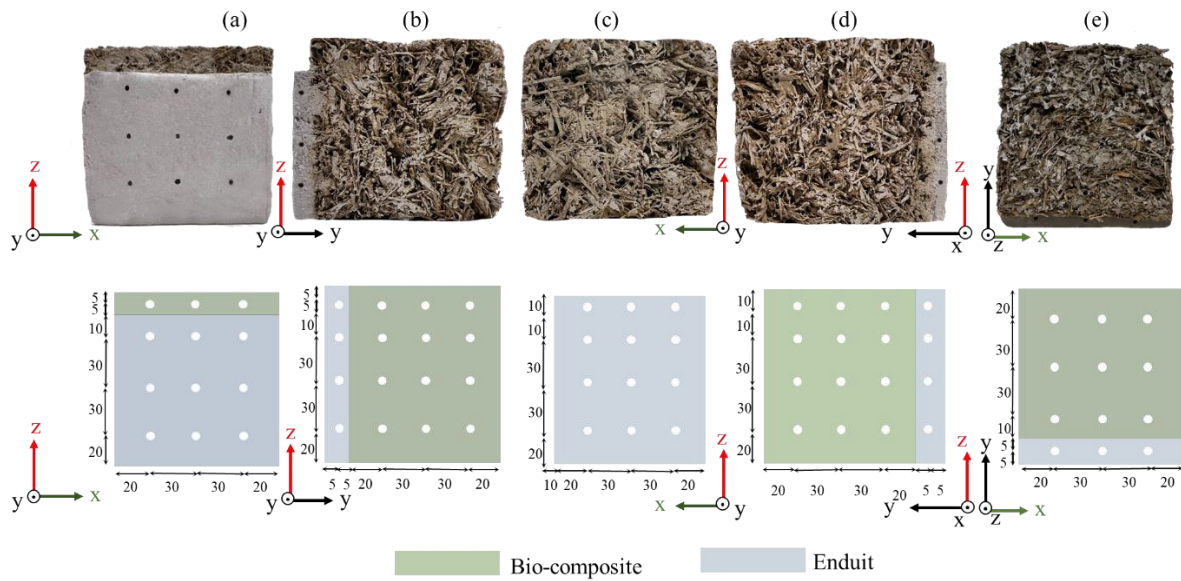


Figure II. 21 : Représentation des points de mesures sur les différentes faces du biocomposite avec de l'enduit

L'objectif de ces mesures est de suivre l'évolution de l'épaisseur de l'échantillon au cours des cycles d'essais. La Figure II. 22 illustre les longueurs qui seront mesurées. L'intérêt réside dans la réduction d'un centimètre de la hauteur de l'enduit afin d'évaluer les variations de mesure sur la partie où le biocomposite n'est pas protégé par l'enduit (représentée par les flèches rouges en pointillés). L'objectif est de déterminer si l'enduit protège le biocomposite en réduisant le comportement global de gonflement et de retrait. Des mesures seront également effectuées sur les deux faces où l'enduit n'est pas appliqué afin de les comparer avec le cas du biocomposite sans enduit de protection. Enfin, les flèches noires représentent la variation de l'enduit.

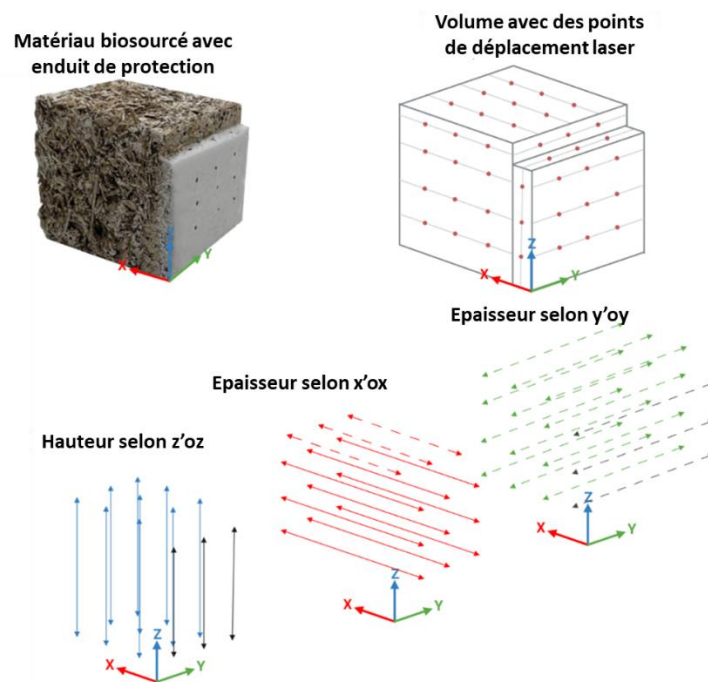


Figure II. 22 : Mesures dans les différentes dimensions ($z'oz$, $x'ox$, $y'oy$)

Lorsque les biocomposites sont recouverts d'un film en papier aluminium adhésif imperméable à l'eau pour protéger les faces sans enduit, les mesures sont effectuées uniquement sur une face où l'enduit est présent. Les variations dimensionnelles reflètent les changements de distance d_1 entre le capteur laser et la face non couverte par l'aluminium. Ces distances sont réparties en fonction de la hauteur : entre 2 et 8 cm pour la partie avec l'enduit et à 9.5 cm pour la partie où se trouve le biocomposite. La figure ci-dessous illustre comment le capteur laser de déplacement a été adapté pour effectuer ces mesures. Les échantillons sont placés avec leur base sur la base en polystyrène existante dans la structure du capteur laser. En utilisant deux capteurs opposés, nous suivons l'évolution de la distance d_1 . Le capteur laser de la face opposée ne mesure aucune distance, mais il aide à stabiliser l'échantillon pour la mesure de la distance d_1 .

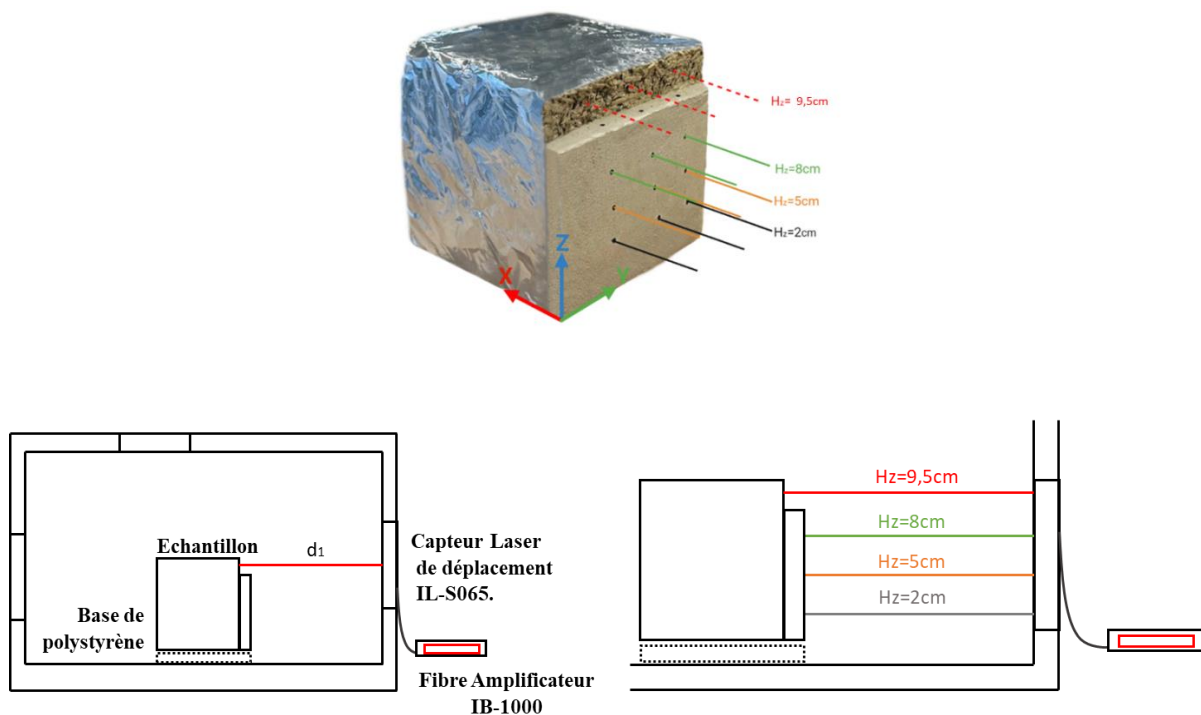


Figure II. 23 : Adaptation du capteur laser de déplacement pour les mesures de déplacements des échantillons recouverts d'enduit avec ruban adhésif en aluminium

II.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les matériaux étudiés ainsi que les différents protocoles expérimentaux utilisés dans le cadre de ce travail de thèse. La conception du programme expérimental a été élaborée en se basant sur les résultats des essais initiaux et des études préliminaires. L'objectif principal de cette campagne expérimentale consiste à quantifier le phénomène de gonflement et de retrait des granulats biosourcés, qui ont été identifiés comme la cause des déplacements observés après la phase de démoulage des biocomposites, comme décrit dans la thèse de Brouard [45]. De plus, ces granulats sont également responsables des fissurations observées dans les biocomposites à la suite de cycles d'humidification et de séchage comme démontré dans la thèse de Ismail [5]. Ces observations dans les travaux précédents de l'équipe pour le développement et la caractérisation de matériaux biosourcés revêtent une importance majeure pour évaluer les conséquences potentielles sur la mise en œuvre de ces matériaux et l'application d'enduits de protection sur les biocomposites. Pour atteindre cet

objectif, il est essentiel de comprendre également l'influence de la composition chimique propre à chaque granulat sur leur comportement face à l'absorption d'eau et au gonflement. Le plan de la thèse est résumé dans le récapitulatif présenté dans la Figure II. 24.

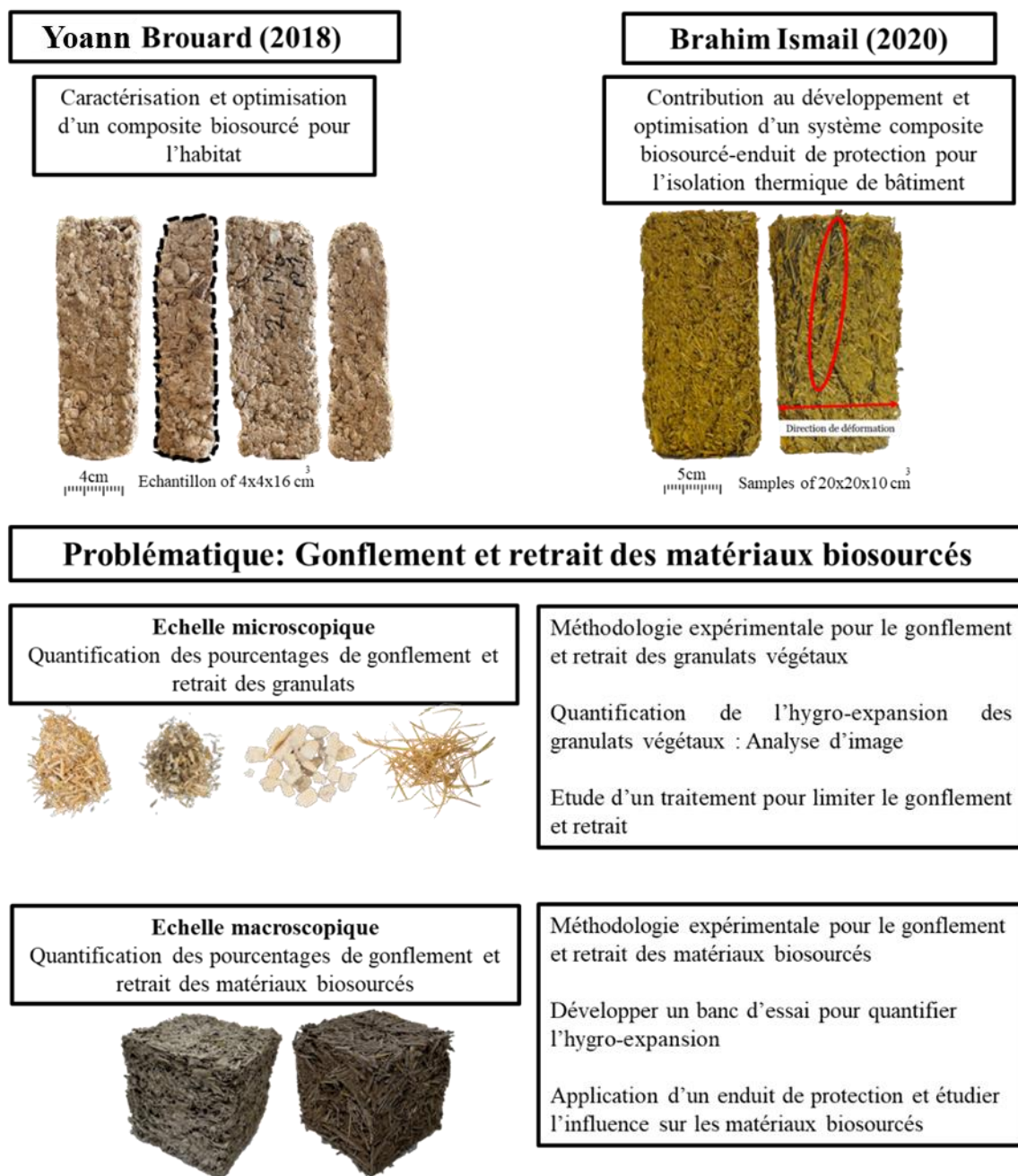


Figure II. 24 : Représentation schématique des objectifs suivis pour élaborer le programme expérimental de la thèse.

Chapitre III : Variations dimensionnelles des granulats végétaux vis-à-vis de l'humidité

III.1 Introduction

Comme il a été souligné dans la revue bibliographique, les granulats végétaux ont un comportement sensible à l'humidité et à l'eau liquide. En effet ces granulats ont des coefficients d'absorption important qui atteint parfois 5, 10 ou 20 fois leur masse initiale pour la paille, le colza ou la moelle de tournesol. Si cette capacité d'absorption des granulats a été largement discutée pour montrer leur intérêt pour le confort hygrothermique, les variations dimensionnelles et le comportement de gonflement et de retrait restent encore peu étudiés dans la littérature.

Dans ce chapitre, nous proposons d'étudier ce comportement complexe et de comprendre ses mécanismes microstructuraux. La première partie se concentrera sur la méthodologie de mesure du gonflement et du retrait vis-à-vis d'un cycle d'humidification séchage des granulats non traités proposée dans ce travail. Ensuite, dans la deuxième partie, nous présenterons deux types de traitements à base des sels pour traiter les granulats. Notre objectif est d'améliorer le protocole expérimental en adoptant une approche ciblée sur les mesures de gonflement et de retrait des granulats traités. Nous nous intéressons également aux éventuelles altérations de leur composition chimique et examinons les conséquences résultantes concernant l'absorption d'eau. En nous appuyant sur les résultats obtenus, nous appliquerons dans la troisième partie, le protocole expérimental amélioré pour comparer les résultats entre les granulats traités et non traités. Nous examinerons les variations de gonflement et de retrait observées dans les deux cas, ainsi que les différences significatives qui pourraient être attribuées à l'efficacité du traitement.

III.2 Mesure du gonflement et retrait des granulats non traités

Pour étudier le comportement des granulats végétaux face à l'humidité, des échantillons de granulats végétaux ont été soumis à un cycle d'humidification et de séchage contrôlés. Comme expliqué dans le chapitre 2, les variations dimensionnelles ont été quantifiées en utilisant l'analyse d'images prises au microscope optique.

III.2.1 Variations morphologiques des granulats en fonction de l'humidité.

Les résultats expérimentaux permettent de quantifier ces variations de surface de la section transversale en fonction des changements d'humidité relative.

Les contours de gonflement et de retrait des granulats exposés à l'humidité sont tracés après chaque palier d'humidité soit en humidification soit en séchage.

III.2.1.a Paille de blé

La Figure III. 1 présente un exemple de granulat de paille conservé dans des conditions d'humidité relative croissantes (de 12 à 55% HR). La superposition des deux images du même brin de paille après broyage illustre le gonflement du granulat qu'il a subi au cours de l'augmentation de l'humidité relative.



Figure III. 1 : Superposition d'un même brin de paille de blé dans le sens transversal dans deux conditions à 12% et à 55% HR

La Figure III. 2 présente différentes vues de la section transversale d'un même brin de paille de blé coupé pour un cycle complet d'humidification/séchage, soulignant que la forme elliptique du contour devient progressivement circulaire au cours du cycle. Le granulat ne retrouve donc pas sa forme d'origine après le séchage. Ces observations montrent que les granulats végétaux présentent un comportement complexe lorsqu'ils sont exposés à l'humidité. L'absorption/désorption d'eau peut entraîner des variations significatives de la taille et de la forme des granulats qui ne sont pas uniformes et qui peuvent entraîner une déformation permanente du granulat par rapport à son état initial. La capacité d'absorption et de libération d'eau des granulats végétaux peut être attribuée à leur structure poreuse complexe. Selon les études d'Adamson [140] et Belan [141], l'eau libre résultant de l'absorption d'eau dans les pores entre 12 % et 55 % d'humidité relative à un impact mineur sur le gonflement, tandis que la formation d'eau liée, qui pénètre dans la structure moléculaire entre 55 % et 90 % d'humidité relative, a une influence significative sur ce phénomène.

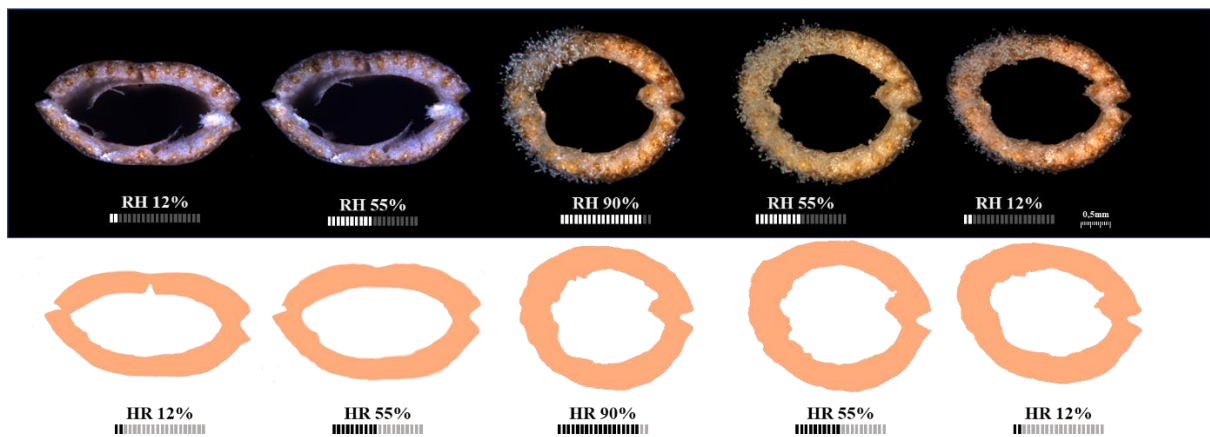


Figure III. 2: Section transversale d'un brin de paille au cours d'un cycle d'humidification et de séchage

Par ailleurs, il convient de souligner que la forme des granulats de paille de blé varie d'un échantillon à l'autre en raison du processus de broyage ou de découpage. La Figure III.3 présente les différentes variations observées dans la section transversale de la paille de blé. On peut observer des granulats de forme elliptique (Figure III. 3-a), des brins résultant du broyage (Figure III. 3-b) ou encore des granulats de forme semi-elliptique (Figure III. 3 c).

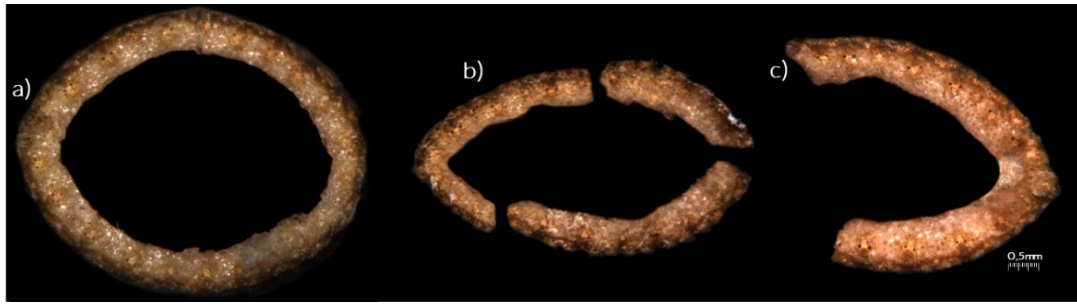


Figure III. 3 : Les différentes formes de la section transversale de la paille de blé à 90%HR a) elliptique, b) des brins c) semi-elliptique

III.2.1.b Paille de colza

La Figure III. 4 présente des images microscopiques de la section transversale de la paille de colza au début (12% HR), milieu (90% HR) et fin (12% HR) d'un cycle d'humidification/Séchage. Les images révèlent une forme aplatie des granulats qui semble être propre à ces granulats de colza.

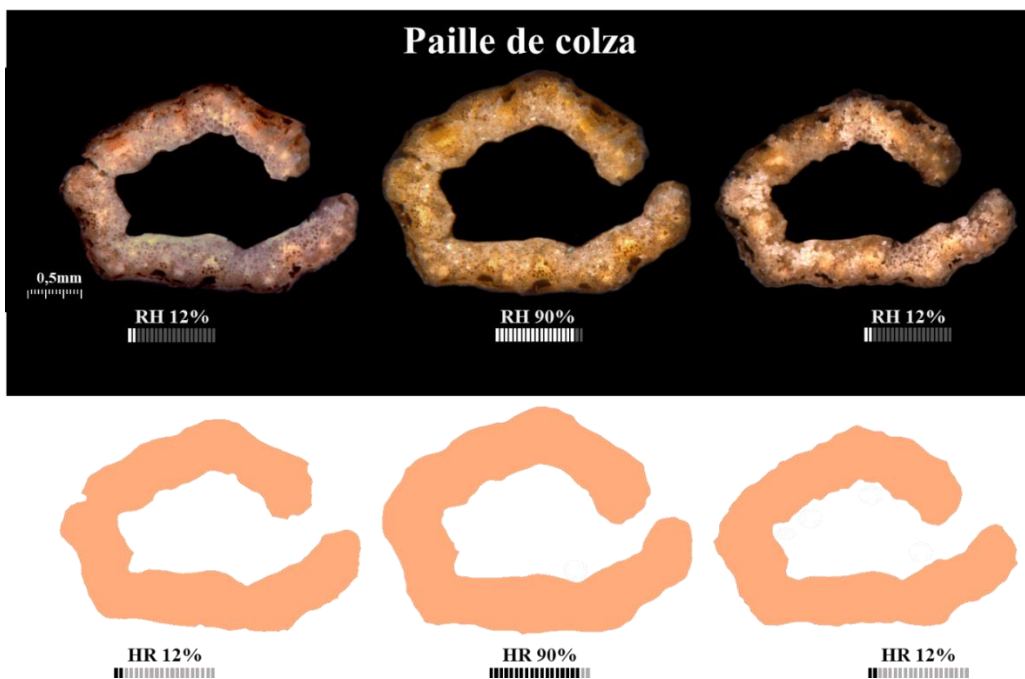


Figure III. 4 : Sections transversale de la paille de colza à travers un cycle d'humidification et de séchage

III.2.1.c Tige de tournesol

(i) Ecorce de tournesol

L'écorce de tournesol présente une faible variation dimensionnelle qui ne change pas la forme initiale du granulat. La Figure III. 5 montre la coupe transversale de l'écorce de tournesol à différents paliers d'un cycle d'humidification/séchage. La forme de l'écorce est variable et dépend de la façon dont elle a été broyée. Cependant, le comportement de gonflement et de retrait des différents échantillons reste le même.

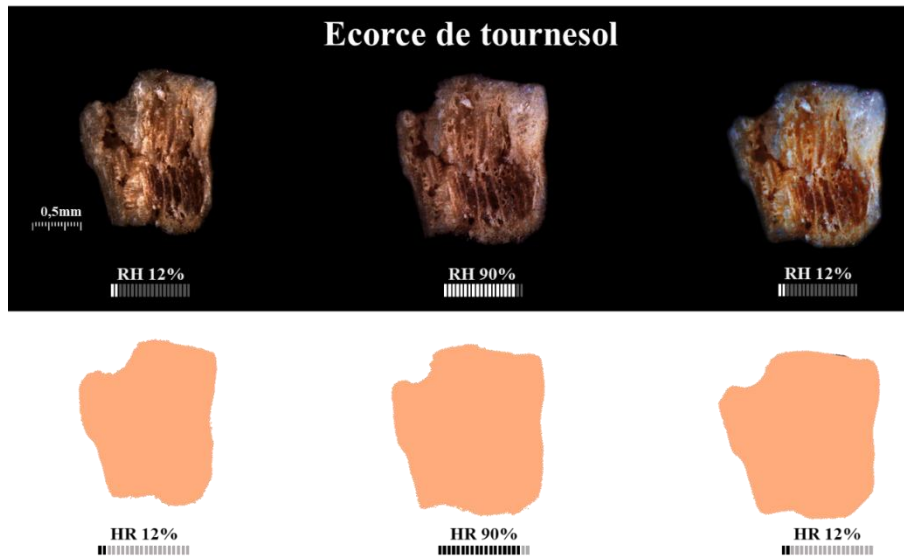


Figure III. 5 : Sections transversale de l'écorce de tournesol pendant un cycle d'humidification et de séchage

(ii) Moelle de tournesol

Les mesures microscopiques du gonflement de la moelle de tournesol révèlent des changements significatifs en termes de dimensions et d'orientations lorsqu'elle absorbe de l'humidité. La Figure III. 6 illustre ce comportement, mettant en évidence une différence très marquée entre l'état sec et l'état humide. Lorsque la moelle gonfle, elle s'étale et s'allonge ce qui entraîne un changement important par rapport aux autres granulats étudiés avec une expansion de la structure poreuse. En revanche, dans le sens contraire d'un séchage, la perte d'humidité entraîne une rétraction de sa structure à un état plus compact.

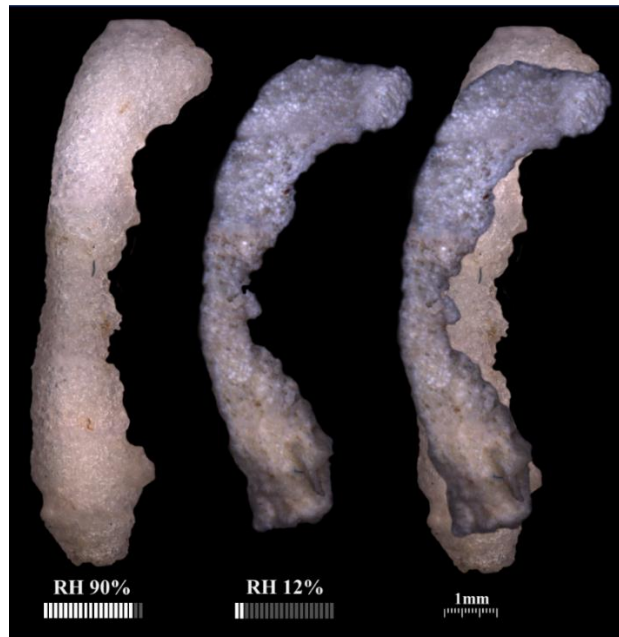


Figure III. 6 : Visualisation de la morphologie d'un échantillon de moelle de tournesol pendant un cycle d'humidification- séchage

La complexité du comportement de la moelle de tournesol est en lien avec la variabilité naturelle d'un échantillon à l'autre. La distribution irrégulière des différentes zones de la moelle de tournesol rend l'analyse du comportement plus difficile. La Figure III. 7 révèle un gonflement de la surface sans modifications ni rétraction significative comme celui de la Figure III. 6.

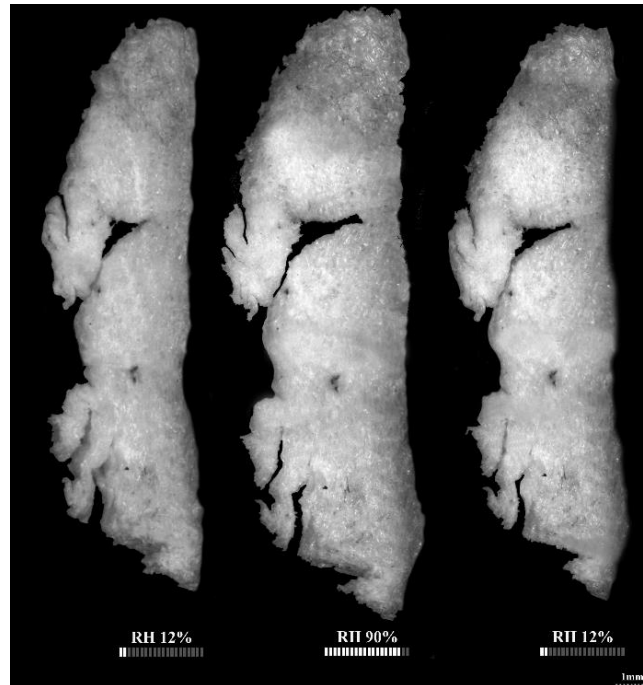


Figure III. 7 : Visualisation de la morphologie d'un échantillon de moelle de tournesol prélevé dans la région gonflée située à la périphérie, à travers un cycle d'humidification et de séchage

La Figure III. 8. Illustre de manière visuelle les zones de gonflement et de retrait de la moelle. La région verte subit un retrait dans la direction longitudinale et un gonflement dans la direction transversale lorsqu'elle est humidifiée. Cela peut être dû à des différences dans la composition chimique ou la masse volumique des tissus végétaux entre ces régions. Cependant, les autres régions se dilatent dans les deux directions.

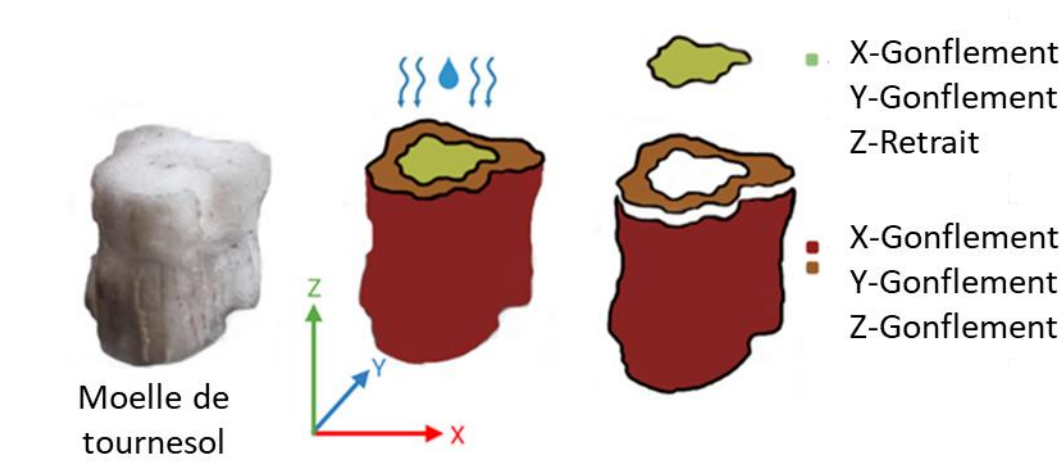


Figure III. 8 : Régions de gonflement et de retrait de la moelle de tournesol

Néanmoins, en identifiant les différentes zones de granulat, il est possible de mieux comprendre leur comportement face au changement de l'humidité. Les mesures de déplacement réalisées à l'aide d'un capteur laser permettent d'identifier les comportements irréguliers de la moelle de tournesol. Lors de l'expérience, la moelle est exposée aux spots de capteurs laser, comme le montre la Figure III. 9. Deux capteurs horizontaux sont superposés, tandis qu'un troisième capteur évalue la hauteur. Lorsque la moelle entre en contact avec l'eau, les capteurs laser enregistrent des variations dimensionnelles, comme illustré sur la Figure III. 9-c. Ces mesures révèlent un gonflement de la paroi latérale, ce qui se traduit par une variation dimensionnelle positive. En revanche, la partie supérieure de la hauteur subit un retrait, ce qui se traduit par une variation dimensionnelle négative.

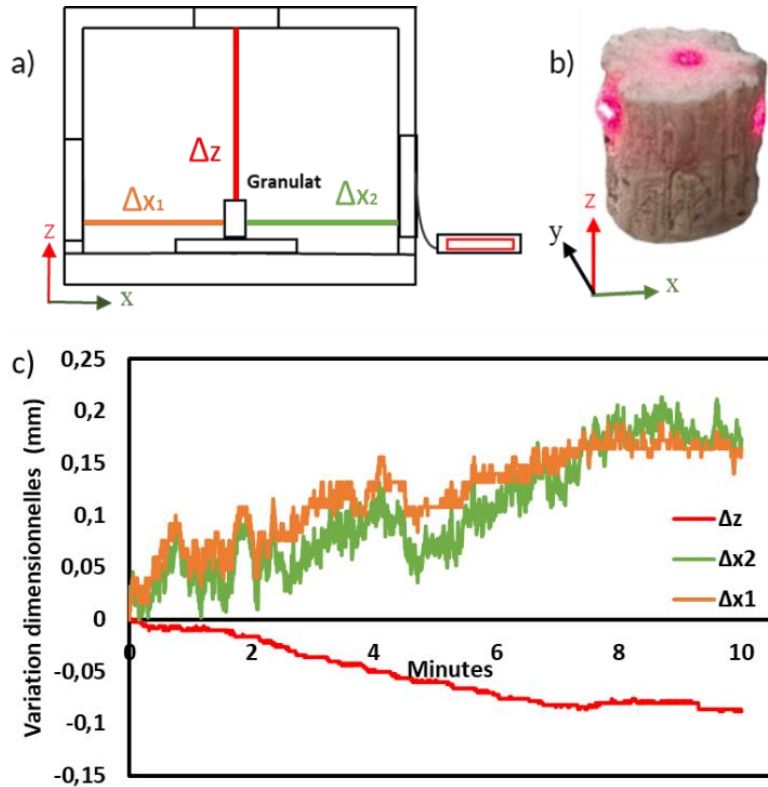


Figure III. 9 : a) principe d'identification du comportement de gonflement/retrait des granulats via le capteur laser de déplacement, b) les spots lumineux des capteurs sur la moelle de tournesol, c) les résultats des variations dimensionnelles

La séparation des zones présentes dans la tige de tournesol se révèle complexe en raison du processus de fragmentation qui entrave la préservation d'une section intégrale et complète. Toutefois, une observation microscopique de la coupe transversale de la tige de tournesol permet de dissocier la moelle périphérique du cœur, Figure III. 10. La moelle périphérique se caractérise fréquemment par une texture fibreuse plus prononcée (Z1), tandis que le cœur présente une homogénéité et une compacité importantes (Z2).

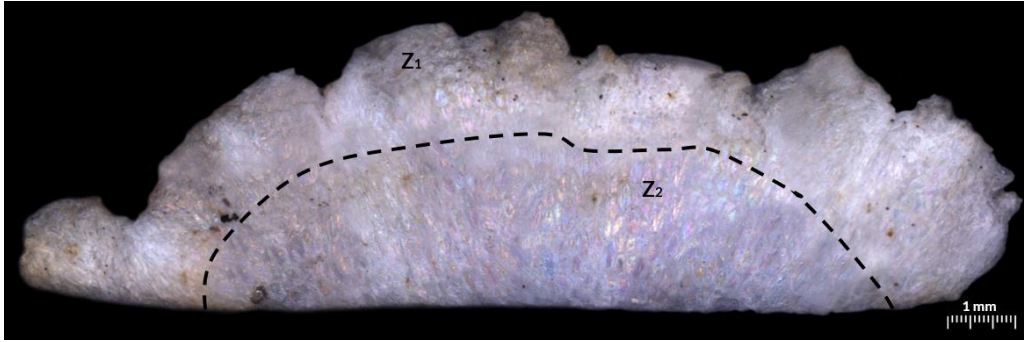


Figure III. 10 : Coupe transversale d'une tige de tournesol, montrant la distinction entre la moelle périphérique (Z1) et le cœur (Z2)

III.2.2 Quantification du gonflement et retrait en fonction de l'humidité relative

Les mesures de surface effectuées au cours de chaque phase de stabilisation de l'humidité permettent de déduire le pourcentage de gonflement et de retrait des granulats individuels comme il a été expliqué dans le chapitre 2. La Figure III. 11 illustre les variations dimensionnelles des granulats par rapport à l'état initial HR de 12%, en fonction de différents niveaux d'humidité relative.

Lorsque les échantillons secs à 12% d'humidité relative sont placés à 55% d'humidité relative, le gonflement des granulats augmente progressivement jusqu'à l'atteinte d'un état stable correspondant à l'équilibre. Au-delà de cette valeur et lorsque l'humidité est augmentée à 90%, les granulats gonflent rapidement. Les mesures montrent que les granulats gonflent de manière significative avec un pourcentage moyen de $24 \pm 1\%$, $15 \pm 2\%$, $5 \pm 1\%$, et $45 \pm 4\%$ entre RH12% et RH90% pour la paille de blé, la paille de colza, l'écorce de tournesol, et la moelle de tournesol, respectivement.

A l'issue du cycle de désorption (90 $\rightarrow$ 55 $\rightarrow$ 12 %HR), la surface des granulats a diminué mais n'est pas revenue à son état initial. Il y a une différence entre la mesure de la surface à 55% d'humidité relative dans la phase de sorption et dans la phase de désorption. Il en est de même à 12% d'humidité relative au début de la phase de sorption et à la fin de la phase de désorption. Les courbes de gonflement obtenues à partir des mesures de surfaces montrent une boucle d'hystérésis entre le gonflement d'adsorption et le retrait de désorption. La même hystérésis est également présente pour le chanvre avec un pourcentage de gonflement de 9,9% pour un HR entre 0 et 90% [24], 2,9% pour la fibre de lin pour un HR entre 11 et 97% [197]. Ce comportement est typique des matériaux fortement hygroscopiques et est dû à une géométrie de pore non uniforme, des angles de contact changeants et des interfaces paroi/pore incurvées. Par conséquent, des différences apparaissent entre le gonflement d'adsorption et le retrait de désorption, conduisant à un comportement d'hystérésis étroitement lié à l'hygroscopicité du matériau [1] [45] [102] [20] [103].

Par ailleurs, la composition chimique joue un rôle essentiel dans le comportement hygroscopique des granulats. Les interactions entre les constituants chimiques des granulats et l'eau peuvent considérablement influencer leur capacité à absorber et à retenir l'humidité, notamment en ce qui concerne l'hémicellulose. Des études antérieures ont mis en évidence une corrélation entre le taux de lignine et le pourcentage de gonflement, montrant que les granulats

ayant un pourcentage de lignine élevé présentent un gonflement moindre par rapport à ceux possédant un pourcentage de lignine faible [160] [198].

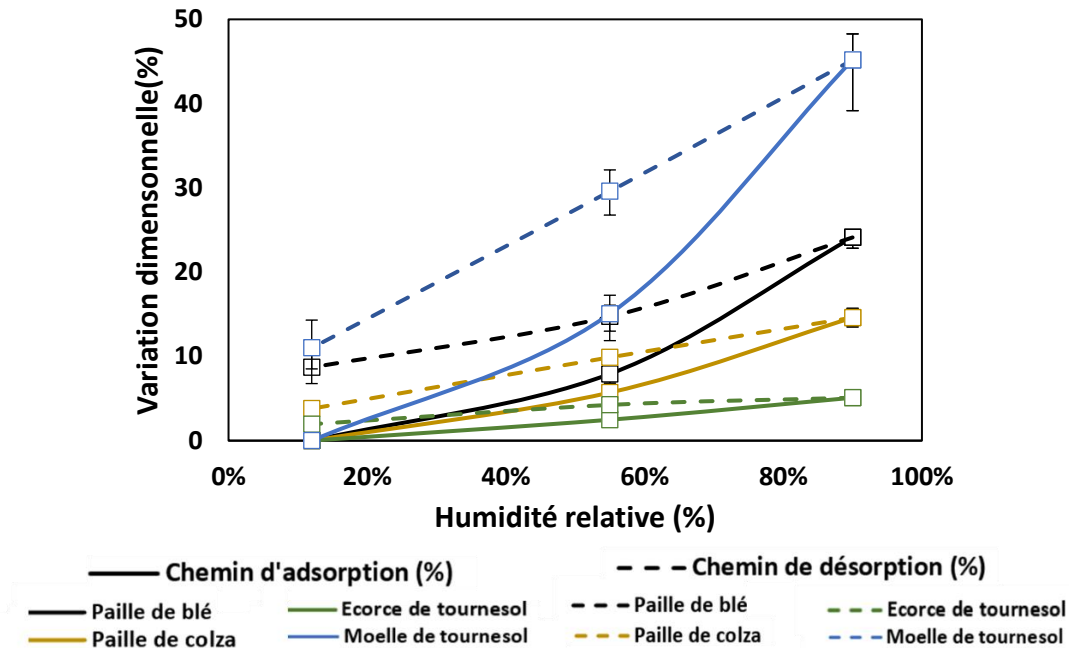


Figure III. 11 : Les variations dimensionnelles des granulats par rapport à l'état initial HR de 12%, en fonction de l'humidité relative

III.2.3 Détermination du coefficient de l'hygroexpansion des granulats végétaux

La Figure III. 12 représente le coefficient de l'hygroexpansion (β_{sw}) de chaque granulat obtenu à partir des variations dimensionnelles en fonction de la teneur en eau. La comparaison de ce coefficient, permet de mettre en évidence que la variation dimensionnelle de tous les granulats augmente avec l'augmentation de la teneur en eau. De plus, le graphique révèle que la teneur en eau de la moelle de tournesol est la plus élevée parmi les différents granulats étudiés, suivie par la paille de blé, la paille de colza et enfin l'écorce de tournesol. De manière similaire, la variation dimensionnelle est également la plus élevée pour la moelle de tournesol, suivie de la paille de blé, de la paille de colza et de l'écorce de tournesol. Les granulats avec une teneur en eau plus élevée présentent une variation dimensionnelle plus importante, et par conséquent un coefficient d'hygroexpansion élevé.

Ces résultats sont en accord avec les valeurs de la littérature d'autres auteurs qui ont mesuré les coefficients d'hygroexpansion. Joffre et al. [182] ont trouvé des valeurs de $\beta_{sw} = 0,45$ pour des fibres de bois (épicéa, Picea abies) entre une humidité de 47% et 80% et une température de 23°C. Le Duigou et al. [161] ont trouvé une valeur d'expansion radiale de 1,14 pour des fibres de lin en utilisant la microscopie électronique à balayage environnemental. Garat et al. [181] ont également trouvé des valeurs du même ordre de grandeur d'expansion de la section transversale β_{sw} allant de 0,42 pour le palmier, 0,92 pour le chanvre, à 1,49 pour le sisal, à 1,67 pour le lin, jusqu'à 1,7 pour l'ortie entre des valeurs d'humidité relative de 20 % à 73 %. Les résultats indiquent que le coefficient d'hygroexpansion est influencé par divers facteurs, notamment la méthode de mesure, la plage d'humidité relative, les dimensions et la nature de granulat étudié. De plus, la microstructure et la composition biochimique des fibres végétales jouent un rôle important dans les variations du coefficient d'hygroexpansion.

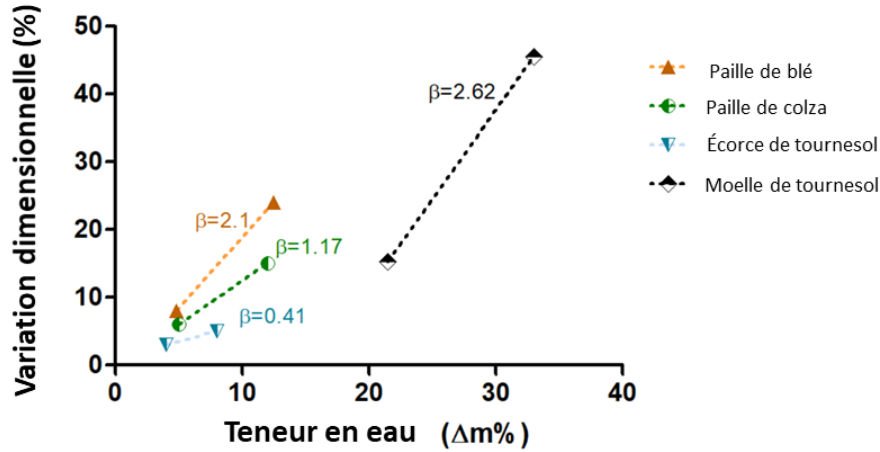


Figure III. 12 : Evolution du gonflement transversal en fonction de la teneur en eau des quatre différents granulats entre RH12%-90%

Le processus primaire qui se produit dans des conditions hygrothermiques modérées est le gonflement de la paroi cellulaire en raison de la sorption de l'eau liée. L'eau est initialement adsorbée par les composants de la paroi cellulaire, tels que l'hémicellulose et la lignine, ce qui entraîne une expansion de la structure du granulat végétal. Lorsque l'humidité relative est suffisamment élevée pour générer de l'eau libre, des variations morphologiques significatives se produisent également. La Figure III. 13 représente l'augmentation de la teneur en eau déduite des masses lors de l'essai de gonflement. L'augmentation de la teneur en eau est directement liée au gonflement des granulats végétaux. Ces variations de teneur en eau observées dans les granulats végétaux sont en effet liées aux modifications structurelles et morphologiques qu'ils subissent en réponse aux changements d'humidité relative. Malgré une différence relativement faible de teneur en eau entre la paille de colza et la paille de blé, nous avons observé une importante disparité dans leur comportement de gonflement et de retrait. En effet, la paille de blé présente un gonflement bien plus prononcé que la paille de colza, bien que leur teneur en eau soit proche. Cette corrélation entre la teneur en eau et le comportement de gonflement-retrait souligne l'influence significative d'autres facteurs morphologiques et structuraux sur le comportement hygroscopique des granulats.

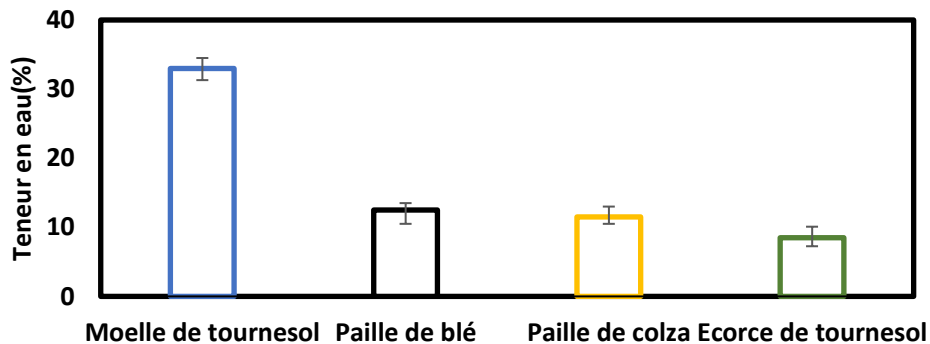


Figure III. 13 : Teneur en eau obtenue à partir du cycle d'humidification entre RH 12-90 % pour la moelle de tournesol, la paille de blé, la paille de colza, l'écorce de tournesol

III.3 Traitement des granulats végétaux en vue de réduire leur sensibilité aux variations d'humidité

Les résultats précédents ont mis en évidence des phénomènes significatifs de gonflement et de retrait au sein des granulats, induits par les mécanismes d'absorption et de relâchement d'humidité. Afin d'atténuer cette susceptibilité à l'absorption d'eau, nous dirigeons notre attention vers deux traitements à base de sels : le chlorure de sodium et le bicarbonate de sodium.

Le chlorure de sodium est largement utilisé et bénéficie d'une disponibilité abondante à des coûts relativement bas. Son utilisation peut présenter des avantages écologiques en remplaçant d'autres produits chimiques plus agressifs ou moins naturels souvent employés dans les traitements de matériaux. De plus, une fois appliqué, le chlorure de sodium peut se dissoudre facilement dans l'eau sans laisser de résidus nocifs persistants dans l'environnement. D'autre part, le bicarbonate de sodium est connu pour être plus respectueux de l'environnement que de nombreux autres agents de traitement. Il est biodégradable et peut agir comme un tampon naturel, ce qui en fait une alternative plus écologique dans certains contextes industriels. Son utilisation peut potentiellement réduire la dépendance à des produits chimiques plus agressifs, tout en minimisant les impacts environnementaux associés à ces substances.

La méthode de traitement adoptée implique l'immersion contrôlée des fibres dans une solution saline pour une durée préétablie, suivie d'un processus de rinçage visant à éliminer l'excédent de sel. Dans leurs travaux, Fiore et al [126] dissolvent une concentration de 10% en poids de NaHCO_3 pendant une période de 5 jours pour traiter la fibre de sisal en améliorant leurs propriétés de traction et de flexion. De manière analogue, la même concentration a été utilisée par dos Santos et al. [128] pendant une durée de 96h pour traiter des fibres de noix de coco afin d'augmenter leurs propriétés mécaniques. Par ailleurs, Chaitanya et al. [199] ont observé des améliorations notables dans la résistance des fibres d'aloë Vera suite à un traitement d'immersion d'une durée de 72 heures.

Le deuxième sel utilisé pour traiter les granulats est le chlorure de sodium. Il s'agit d'un sel couramment utilisé pour les sols argileux afin de réduire leur limite de liquidité et de plasticité ainsi que leur indice de plasticité [139]. Certaines tentatives ont prouvé avec succès la diminution de l'absorption d'eau en traitant les granulats avec du NaCl [138] et par la suite, leur gonflement et leur retrait.

Néanmoins, ces auteurs ont concentré leurs études sur l'optimisation de la concentration en sel et l'effet du temps d'exposition, et aucun n'a étudié l'effet du rinçage et de la durée du traitement et leur réponse au comportement de gonflement et de retrait. C'est cet objectif, que nous proposons d'étudier l'efficacité du protocole de traitement sur le comportement de gonflement et retrait des granulats végétaux.

Dans cette perspective, nous investiguons une approche visant à évaluer l'efficacité du protocole de traitement en vue d'optimiser à la fois la durée du processus et son efficacité globale. Notre démarche vise donc à explorer les répercussions du rinçage ainsi que de la durée du traitement sur le comportement de gonflement et de retrait des granulats végétaux.

III.4 Optimisation du protocole de traitement

Des granulats sont immergés dans deux solutions différentes de NaHCO_3 et de NaCl à une concentration de 10 % en poids. La Figure III. 14 illustre le protocole suivi pour le traitement des granulats. Ce protocole est divisé en deux séquences. La première consiste à étudier la durée d'immersion des granulats dans les solutions salines accompagnée par un suivi de mesure de pH. Le second processus consiste à étudier l'influence du temps de rinçage après chaque jour de traitement. Tout d'abord, les sels sont dissous dans de l'eau préchauffée à une température comprise entre 25 et 30°C. Ensuite, les échantillons préparés sont ajoutés et agités régulièrement. Des portions de 10 échantillons par type de granulat sont prélevées toutes les 24 heures pour atteindre une durée totale de 120 heures. En effet, selon la littérature, de nombreux auteurs ne prolongent pas les traitements au-delà de 120 heures en raison des altérations potentielles des granulats au cours du temps de traitement. Les échantillons extraits sont séchés à 60°C. Ces granulats sont ensuite totalement immergés pendant 5 minutes pour mesurer le pH de la solution et vérifier la présence ou la disparition de sel. Ensuite, ces mêmes granulats sont remis à l'étuve pour un nouveau cycle d'immersion.

L'analyse microscopique est réalisée au début de l'expérience en condition sèche, et a été poursuivie au cours de deux séquences distinctes : le premier type de séquence comprend des cycles d'immersion suivis de séchage pour étudier le comportement de gonflement et de rétrécissement des granulats après traitement. Le deuxième type de séquence comprend des cycles d'humidification suivis de séchage pour évaluer l'effet du traitement sur les granulats au fil du temps. Dix échantillons sont prélevés par granulat et par jour de traitement pour analyse, et les mesures sont effectuées avant le traitement, après le traitement, pendant chaque cycle d'immersion et de séchage, ainsi qu'après les cycles d'humidification et de séchage.

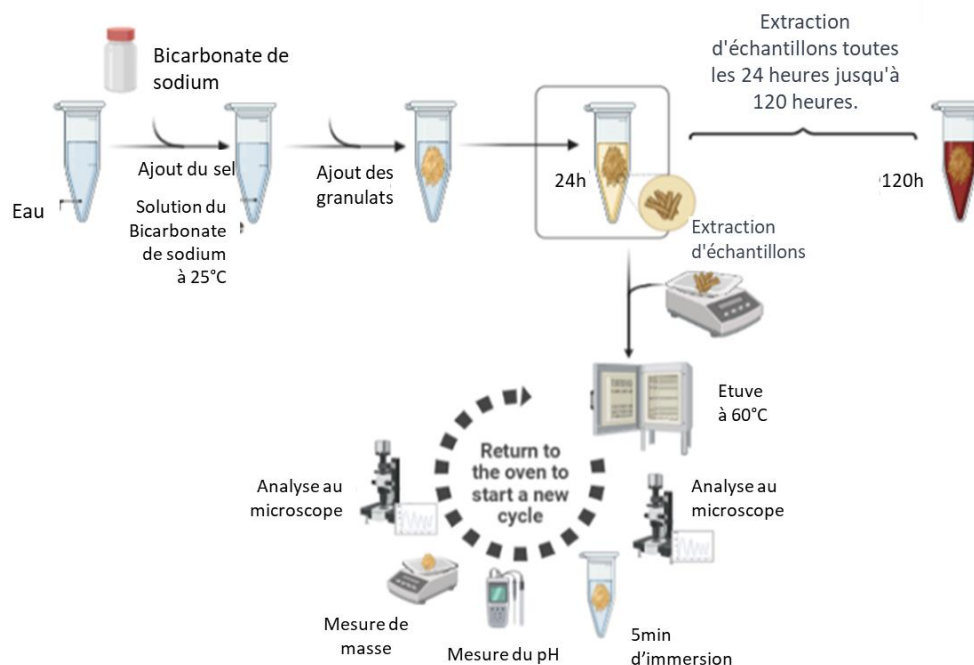


Figure III. 14 : Protocole de l'étude de l'efficacité du traitement.

A la fin du traitement, les granulats sont exposés aux cycles d'humidification et de séchage, suivies par une analyse microscopique. La Figure III. 15 illustre les cycles d'humidification et de séchage des granulats après leur exposition à des cycles d'immersion-séchage du protocole de traitement. Les granulats sont humidifiés à 90% d'humidité relative, à une température de 23°C et séchés à 60°C dans une étuve. Le but de ce test est d'établir un mode de traitement pour les granulats en évaluant leur stabilité en termes de comportement de gonflement et de retrait. Nous procéderons à des cycles d'humidification et de séchage pour déterminer si le traitement conserve son efficacité sur les granulats au fil du temps, ou s'il perd progressivement son effet.

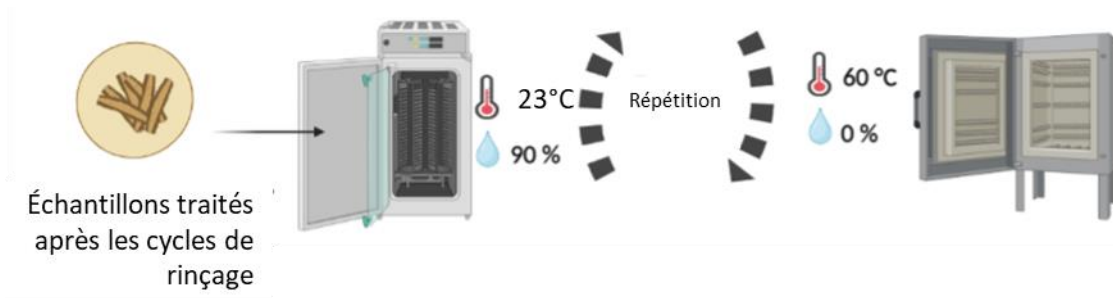
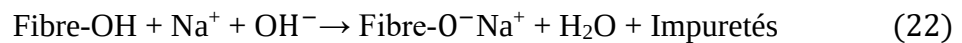
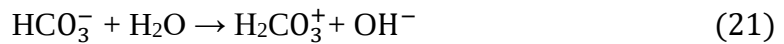


Figure III. 15 : Principe du cycle répétilif d'humidification et séchage

III.4.1 pH des solutions de traitement des granulats

La solution aqueuse de bicarbonate de sodium produit une solution légèrement alcaline en raison de la formation d'ions sodium et hydroxyde, comme indiqué dans les éq. (22) et (23), d'où la basicité de la solution au fil du temps. Les fibres contenant des groupes hydroxyles et des ions Na^+ réagissent comme indiqué dans l'éq. (24).



Les histogrammes de la Figure III. 16, Figure III. 17 et Figure III. 18 illustrent les variations de pH des solutions dans lesquelles ont été immergés des granulats traités par NaHCO_3 , NaCl , ainsi que des granulats non traités.

Ces évolutions du pH indiquent une augmentation de la basicité des échantillons au cours du temps pour atteindre un pH de 9 dans le cas du NaHCO_3 . Contrairement aux échantillons traités au NaCl , qui n'ont pas montré d'augmentation régulière mais une diminution au fil des jours de traitement. Néanmoins, les granulats non traités ont montré une variation définie par une diminution et une augmentation au cours des 5 jours de traitement. Cette diminution peut être expliquée par l'apparition de micro-organismes dans les granulats [14]. Les mesures de pH sont répétées quatre à cinq fois afin de réduire l'écart entre mesure à moins de ± 0.07 .

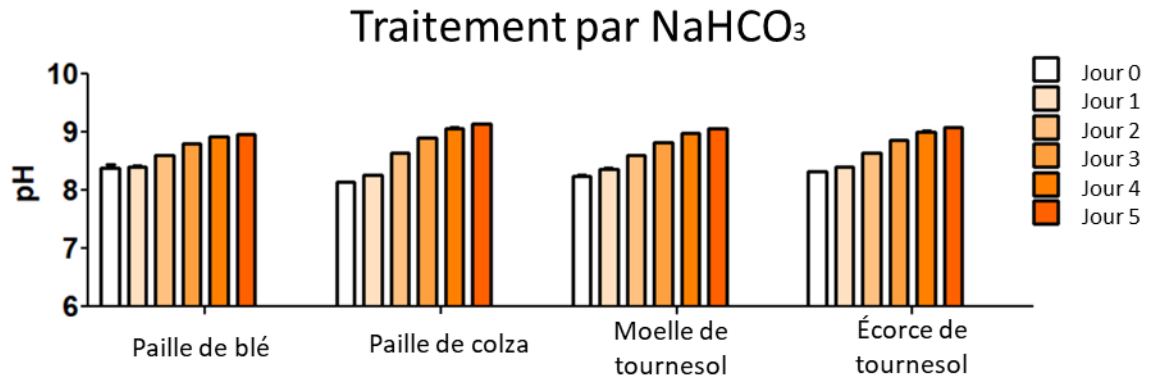


Figure III. 16 : Mesure du pH de différents granulats traités avec une solution de NaHCO_3 pendant plusieurs jours

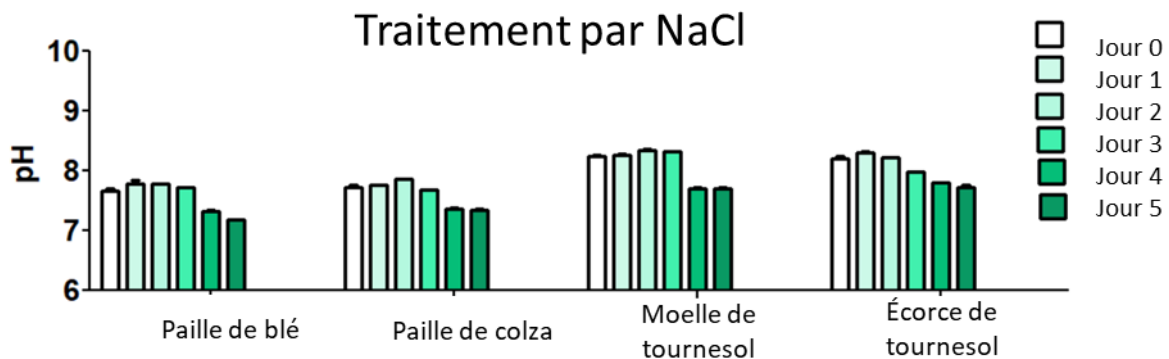


Figure III. 17 : Mesure du pH de différents granulats traités avec une solution de NaCl pendant plusieurs jours.

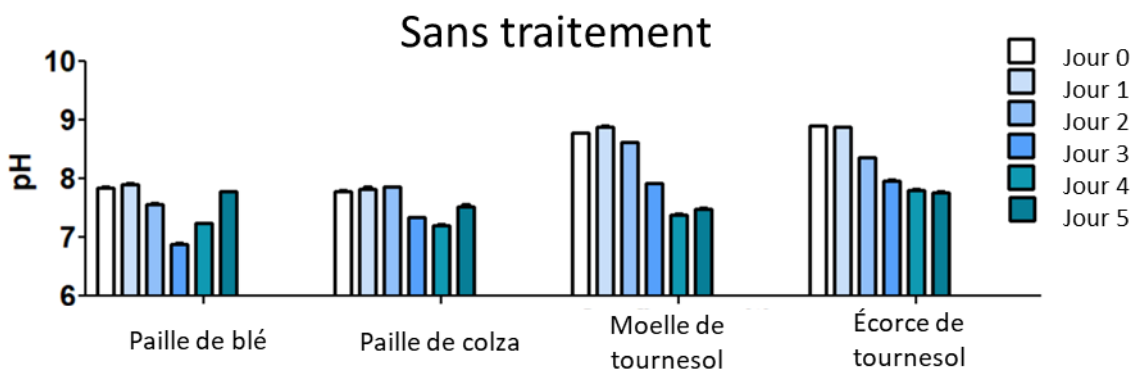


Figure III. 18 : Mesure du pH de différents granulats non traités au fil des jours.

III.4.2 Absorption d'eau

Selon la littérature [121] [119], le traitement des granulats a également une conséquence sur l'absorption d'eau puisqu'il peut entraîner une modification de la composition chimique. L'absorption d'eau de la paille de blé après traitement est illustrée dans la Figure III. 19. Pour une meilleure compréhension, les histogrammes sont présentés avec le pourcentage de gain de poids par rapport à la masse sèche initiale en fonction des jours de traitement. La diminution de

l'absorption d'eau des granulats traités est plus importante pour les granulats traités au NaHCO_3 que pour ceux traités au NaCl .

Le traitement au NaHCO_3 réduit l'absorption d'eau des granulats au fil des jours de traitement. À partir du troisième jour de traitement, l'absorption d'eau atteint 3 % et diminue jusqu'à 2,6 % après 120 heures. Pendant ce temps, l'absorption d'eau de la paille de blé traitée au NaCl reste inchangée, autour de 5,5 %.

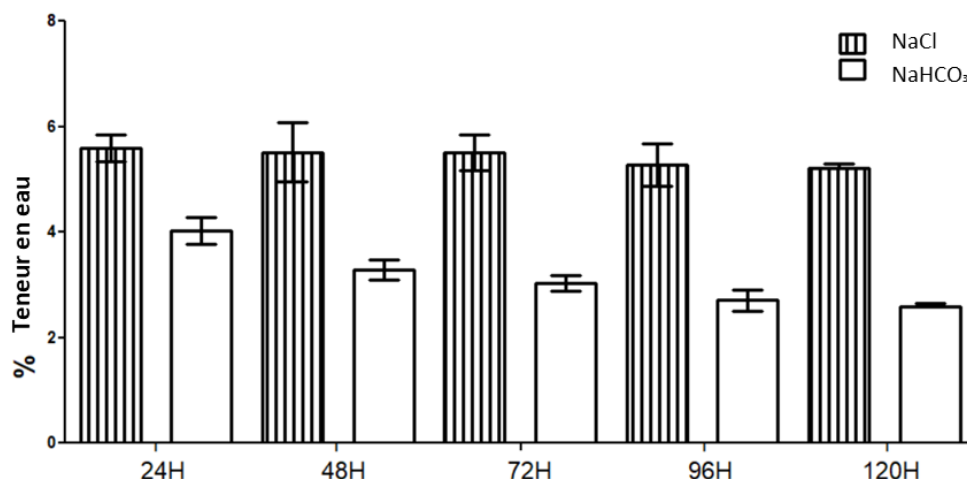


Figure III. 19 : La teneur en eau en fonction du temps de traitement pour les granulats de paille de blé

La Figure III. 20 montre la différence de mesure entre l'état initial avant traitement et après traitement des brins de paille de blé extraits par jour. Les granulats traités au NaHCO_3 montrent une réduction de la surface des granulats traités dès le premier jour de traitement. Après 72h de traitement, la solution de NaHCO_3 commence à avoir un effet important sur les variations dimensionnelles. Au fur et à mesure que le traitement se poursuit, la surface continue à diminuer jusqu'à atteindre une réduction de taille de 9% à 120h. Cependant, les granulats traités au NaCl ne présentent pas de retrait, mais un gonflement d'environ 2% pour la plupart d'entre eux.

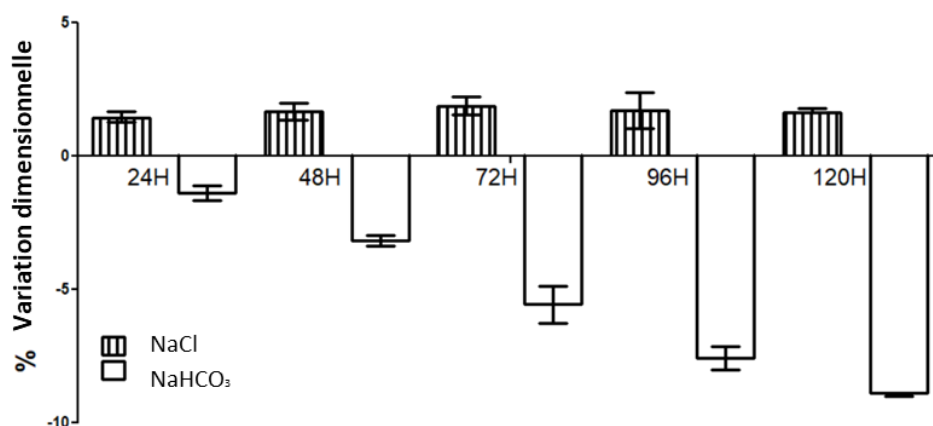


Figure III. 20 : Différence de mesure entre l'état initial avant traitement et après traitement des brins de paille de blé extraits par jour.

Ceci est en accord avec les résultats de Raharjo et al. [200] qui affirment qu'à partir du troisième jour de traitement au bicarbonate de sodium, la composition chimique des granulats tels que la cellulose, la lignine et l'hémicellulose est modifiée. Par ailleurs, selon Chaitanya et al, au-delà de 72 heures de traitement, la résistance à la traction et à la flexion diminue marginalement. Le traitement augmente la teneur en cellulose par l'élimination partielle de l'hémicellulose [201] qui est très hydrophile contrairement à la lignine qui est hydrophobe. Cependant, l'élimination excessive de l'hémicellulose au-delà de 72 heures de traitement entraîne une diminution de la résistance des granulats. D'après Chaitanya et Singh [199] ainsi que Fiore et al. [126], il a été démontré que les propriétés mécaniques des granulats sont améliorées après 72 heures de traitement, et le comportement de gonflement et de retrait des granulats diminue.

Selon Pejic et al. [106], la lignine a un impact sur la sorption d'eau du chanvre, et il a été démontré que l'augmentation de la teneur en lignine conduit à une diminution de la capacité de rétention d'eau des fibres de chanvre. Garat et al [146] ont également trouvé que des niveaux plus élevés de lignine sont corrélés avec un pourcentage plus faible de gonflement. Cela renforce la surface des granulats et la rend plus rugueuse [202].

III.4.3 Effet du temps d'immersion

Au cours du processus de traitement, les échantillons sont extraits et séchés au four. Ensuite, le processus d'immersion et de séchage commence. L'objectif est de déterminer le temps de rinçage recommandé pour éliminer l'excès de sel des granulats et de déterminer le temps nécessaire pour que le pH devienne stable. Les Figure III. 21 et Figure III. 22 montrent les résultats des pH de l'eau dans laquelle les granulats ont été immergés pendant 72 heures de traitement. Ces granulats sont immergés pendant 5 minutes et séchés jusqu'à ce qu'ils aient une valeur de pH stable. Le pH de la solution dont les granulats sont traités par NaHCO_3 était de 9,2 pendant l'étape de traitement. Après le séchage des granulats, le pH augmente jusqu'à 10,2 après le premier rinçage. Le pH diminue ensuite à chaque rinçage jusqu'à atteindre une valeur stable de 8. Ceci est constaté non seulement pour les granulats traités à 72 heures, mais aussi pour les granulats traités à 24 heures, jusqu'à 120 heures. En effet, lorsque les granulats traités sont séchés au four à une température à 60°C , le sel de bicarbonate de sodium se décompose sous l'effet de la chaleur avec perte de CO_2 et de H_2O . En fait, selon [107], ce phénomène se produit plus normalement avec un pH basique qu'avec un pH neutre. De la, Orden et al. ont constaté la formation de sels de bicarbonate d'amine dans le processus de séchage après le traitement de leur granulat. En réagissant avec l'eau, le bicarbonate de sodium produit de l'acide carbonique. Par ailleurs, le composant hydroxyle du bicarbonate de sodium peut interagir avec le groupe fonctionnel hydroxyle présent dans les fibres, de manière similaire à un traitement alcalin. Cette réaction a pour effet d'améliorer les propriétés de traction et les propriétés interfaciales des composites [203] [204]. Culler et al [205] ont également signalé que la formation de sels dépendait fortement du pH de la solution de silane.

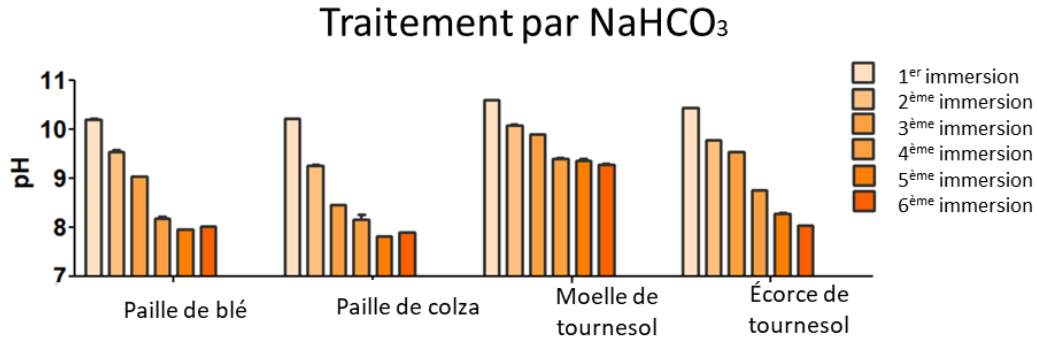


Figure III. 21 : Mesure du pH des granulats traités au NaHCO_3 après plusieurs rinçages.

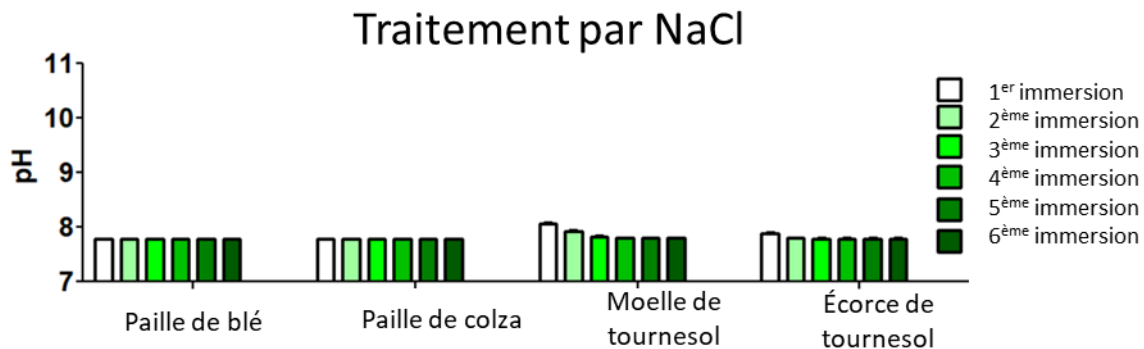


Figure III. 22 : Mesure du pH des granulats traités au NaCl après plusieurs rinçages.

Lors du séchage des granulats à température modérée, des réactions chimiques peuvent se produire entre les composants présents. Le bicarbonate de sodium réagit avec les composants des granulats végétaux, il peut potentiellement libérer des substances ou des produits chimiques réactifs qui pourraient interagir avec les groupes carbonyles de la cellulose présente dans les granulats. Cela pourrait conduire à des réactions chimiques, telles que la formation de bases de Schiff ou d'autres produits, qui pourraient entraîner des changements de couleur ou de propriétés des granulats pendant le processus de séchage [107]. En effet, c'est ce que les granulats traités au bicarbonate de sodium ont montré comme illustré dans la Figure III. 23. Le jaunissement a marqué beaucoup plus la paille de blé, la paille de colza, que l'écorce et la moelle de tournesol. Cette observation est différente de celles des granulats traités au NaCl .



Figure III. 23 : Changement de couleur après 3 jours de la paille de blé non traitée, traitée au NaCl et au NaHCO_3 (de gauche à droite)

Après avoir été traités et séchés au four, les granulats sont rincés plusieurs fois pendant 5 minutes chacun. La couleur de l'eau de rinçage est devenue plus claire et plus transparente après le quatrième rinçage, comme le montre la Figure III. 24. Le changement de couleur est visible

lorsqu'on compare le premier rinçage (à gauche) avec l'eau après le cinquième rinçage (à droite). Une fois que les granulats ont été rincés pendant 20 minutes au total, le processus de traitement est terminé et les granulats sont prêts à être utilisés.



Figure III. 24 : Le processus de rinçage et la variation de couleur des granulats traités à l'écorce de tournesol avec NaHCO_3 (de gauche à droite).

La Figure III. 25 montre la surface d'un granulat traité au NaHCO_3 après 4 rinçages. La quantité de sel est tout à fait remarquable après 5 minutes de rinçage et diminue progressivement après le quatrième rinçage, soit un total de 20 minutes.

D'après les résultats, il a fallu 20 minutes de rinçage pour éliminer le sel des granulats traités au Na-HCO_3 , alors qu'il n'a fallu que 5 minutes de rinçage pour les granulats traités au NaCl . Par conséquent, le traitement a été répété en utilisant 5 minutes de rinçage pour les granulats traités au NaCl et 20 minutes pour les granulats traités au NaHCO_3 . Les images microscopiques (Figure III. 26-a et c avant le rinçage des granulats, Figure III. 26 b et d après le rinçage des granulats) montrent que le sel a été complètement éliminé après les temps de rinçage spécifiés pour les granulats traités au NaCl , 5 minutes, et pour les granulats traités au NaHCO_3 , 20 minutes.

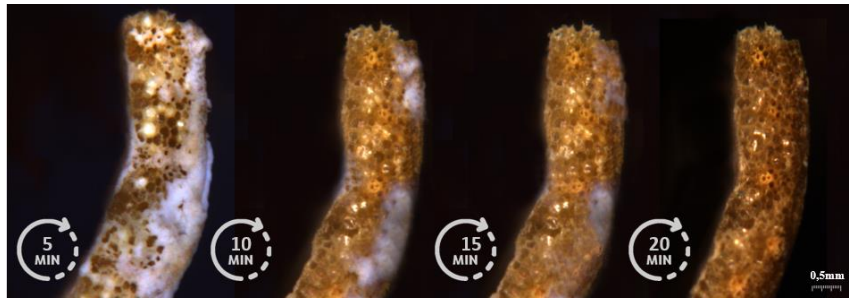


Figure III. 25 : Disparition du sel au cours du temps pour les granulats traités au NaHCO_3 .



Figure III. 26 : Surfaces des granulats traités : a) et c) avant rinçage et b) après 5 minutes de rinçage pour NaCl et d) après 20 minutes de rinçage pour NaHCO₃.

III.4.4 Effet des cycles d'humidification et de séchage

Les courbes de la Figure III. 27 montrent les variations dimensionnelles après les cycles d'humidification et de séchage. Le traitement au NaHCO₃ diminue le gonflement de plus de 60 ±3% par rapport aux granulats non traités. Le traitement au NaCl a entraîné une diminution plus faible (20 %) du gonflement des granulats par rapport aux granulats non traités. Sur la base de ces données, il semble que le traitement au NaHCO₃ soit efficace alors que le traitement au NaCl l'est beaucoup moins. En outre, les granulats traités au NaHCO₃ empêchent le phénomène d'hornification, car leur efficacité ne change pas à long terme.

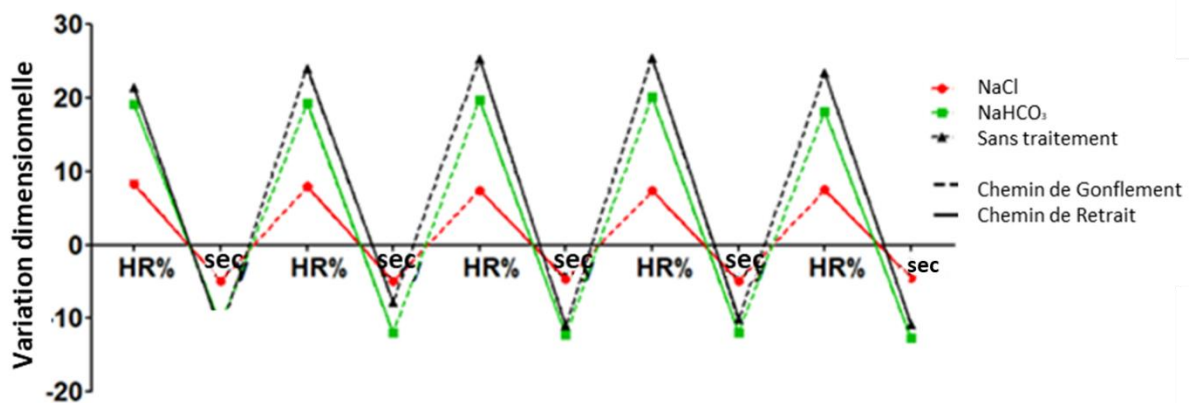


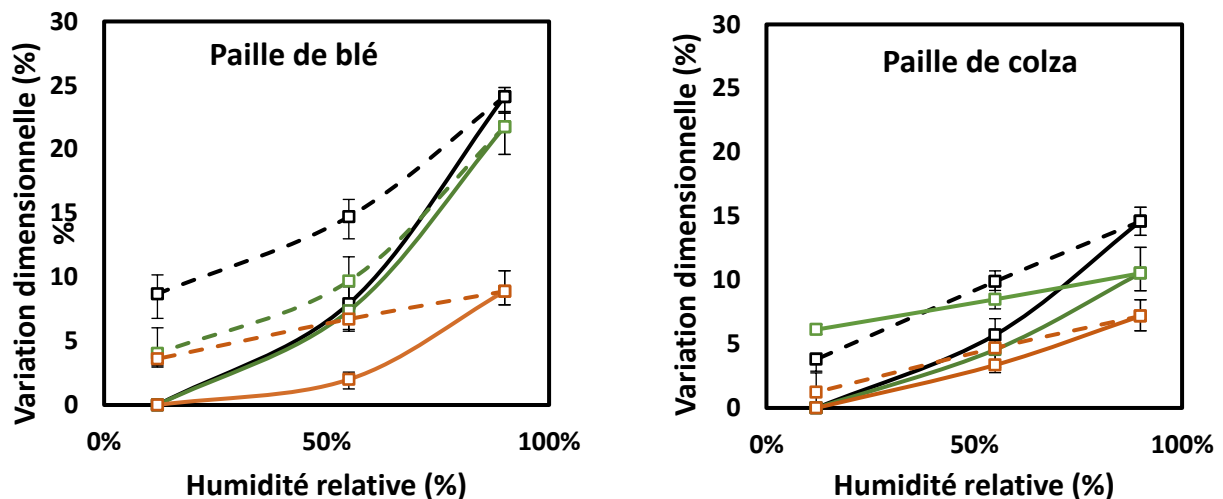
Figure III. 27 : Variations dimensionnelles de la paille de blé pour les granulats traités au NaHCO_3 , les granulats traités au NaCl et les granulats non traités au cours de 4 cycles d'humidification (humidité à 90%) et séchage (sec)

III.5 Etude du gonflement et retrait des granulats traités

Dans la troisième partie de cette étude, nous nous concentrons sur l'application du protocole précédent de traitement des granulats végétaux, en nous basant sur les résultats et les valeurs obtenus précédemment. Ayant établi l'efficacité du traitement chimique pour réduire les variations dimensionnelles des granulats végétaux, nous poursuivons nos investigations sur les mêmes types des granulats étudiés. Cette étape consiste à exposer les granulats traités au cycle d'humidification et séchage.

III.5.1 Détermination du coefficient hygro-expansion et hygro retraction

Les mesures de surface effectuées pendant chaque palier d'humidité permettent de déduire le pourcentage de gonflement et de retrait des granulats. La Figure III. 28 illustre les variations dimensionnelles des granulats par rapport à l'état initial HR de 12%, en fonction de différents niveaux d'humidité relative. Chaque courbe représente les résultats obtenus pour un type spécifique de granulat, où dix échantillons par granulat sont traités avec du NaCl , du NaHCO_3 et certains ne sont pas traités. Les échantillons traités sont exposés à une humidité relative de 55 %, on observe une augmentation progressive du gonflement des granulats. Au-delà de cette valeur, lorsque l'humidité est augmentée à 90%, les granulats gonflent rapidement. Cependant, cette augmentation est limitée pour les granulats traités avec du NaHCO_3 et moins limitée pour les granulats traités avec du NaCl . Malgré cela, une boucle d'hystérésis est toujours présente dans les granulats traités. Les granulats traités avec du NaHCO_3 ont tendance à revenir plus près de leur état initial, contrairement aux autres granulats traités avec du NaCl ainsi qu'aux granulats non traités qui ne retrouvent pas leur état initial.



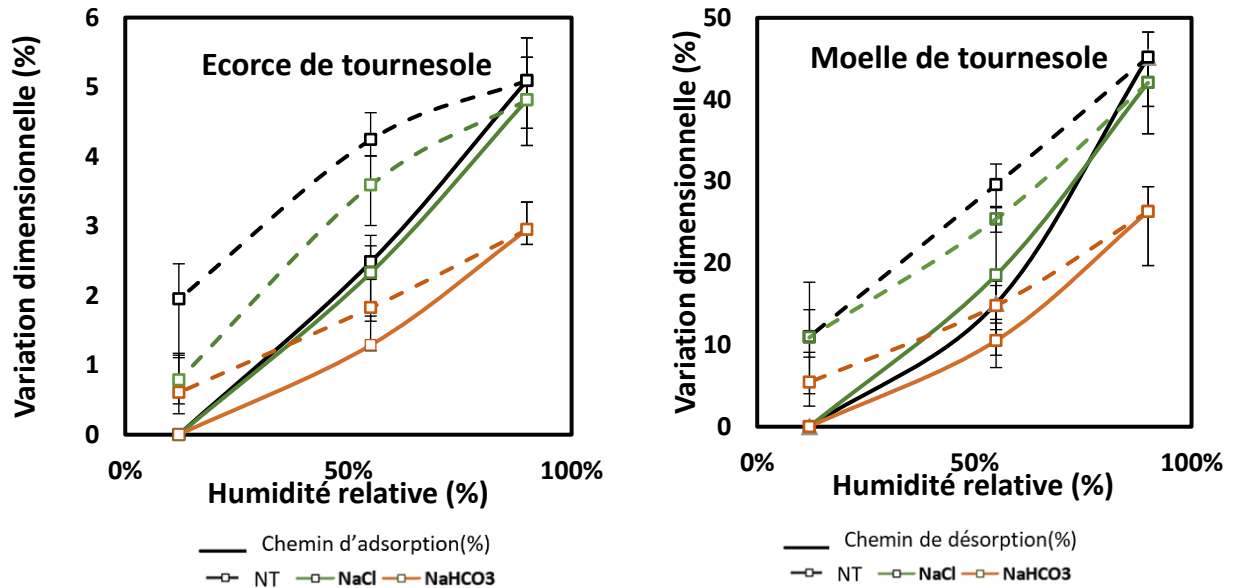


Figure III. 28 : Variations dimensionnelles des granulats par rapport à l'état initial HR de 12%, en fonction de l'humidité relative

La Figure III. 29 présente les pourcentages de gonflement et retrait entre l'état sec, HR12%, et humide, HR90%. On observe des variations significatives des taux de gonflement et de retrait des granulats végétaux suite aux traitements appliqués. Par comparaison aux granulats non traités, ceux traités au NaCl et au NaHCO₃ ont un taux de gonflement et de retrait plus faible. En particulier, le traitement au NaHCO₃ a démontré une efficacité supérieure avec des taux de diminution plus importants par rapport au traitement au NaCl.

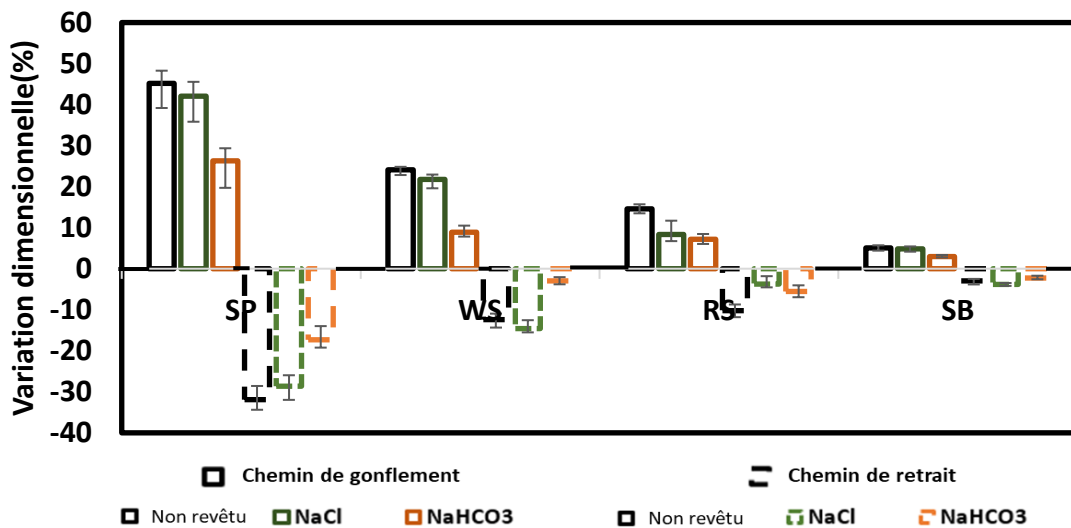


Figure III. 29 : Comparaison des pourcentages de gonflement (RH12%-90%) et de retrait (RH90%-12%) entre les 4 granulats étudiés (SP : moelle de tournesol, WS : paille de blé, RS : paille de colza, SB : écorce de tournesol)

Le Tableau III. 1 présente les coefficients d'hygroexpansion et rétraction des différents granulats. L'analyse comparative des coefficients d'hygroexpansion (β_{sw} et β_{sh}) pour les granulats non traités, traités au NaCl et traités au NaHCO₃ confirme les observations

précédentes. Ces résultats indiquent une réduction significative des coefficients d'hygroexpansion et rétraction des granulats traités par rapport à ceux non traités. Cette diminution des coefficients d'hygroexpansion témoigne d'une réduction de la capacité des granulats à absorber l'eau et à subir des variations dimensionnelles importantes en réponse à l'humidité. Cela confirme que les traitements au NaCl et au NaHCO₃ ont été efficaces pour améliorer le comportement hygroexpansion des granulats étudiés.

Tableau III. 1 : coefficients d'hygroexpansion et rétraction des granulats traités par rapport à ceux non traités

	Sans traitement		NaCl		NaHCO ₃	
	β_{sw}	β_{sh}	β_{sw}	β_{sh}	β_{sw}	β_{sh}
SP	2,62	2.35	1.88	1.34	1.75	1.167
WS	2,10	0.95	1.93	0.89	1.41	0,41
RS	1,17	0.92	1,14	0,97	1.11	0,64
SB	0,41	0,39	0,68	0,36	0,3	0,23

Les composants des granulats responsables de ces propriétés sont identifiés grâce à des analyses chimiques effectuées sur les deux granulats les plus gonflants : la moelle de tournesol et la paille de blé. Le Tableau III. 2 présente les composants chimiques des granulats traités et non traités associés à l'expansion et à la rétraction hydrique. La faible teneur en lignine des granulats de paille de blé et de moelle de tournesol est corrélée à un coefficient d'expansion hygroscopique plus élevé. Alors que la paille de blé a une teneur en lignine plus élevée que la moelle 3%, elle a un coefficient d'expansion hygroscopique plus faible. Cette affirmation est confirmée par Garat et al. [160], qui ont étudié la corrélation entre la teneur en lignine et l'angle des microfibrilles avec le coefficient d'expansion hygroscopique de la section transversale. Les faisceaux de fibres contenant une proportion élevée de lignine et un angle de microfibrilles important engendrent une réduction de la capacité de rétention d'eau et du gonflement transversal, entraînant ainsi un coefficient d'hygroexpansion transversale plus bas. En revanche, les faisceaux de fibres présentant une teneur en lignine et un angle de microfibrilles plus faibles ont un coefficient d'expansion hygroscopique transversale plus élevé.

Le traitement au NaHCO₃ a complètement éliminé les hémicelluloses des deux granulats, contrairement au traitement au NaCl. Dans la paille de blé, la teneur en hémicellulose est passée de 34 % à 0 % tout en maintenant le niveau de lignine nécessaire pour minimiser le gonflement. De même, dans la moelle de tournesol, la teneur en hémicellulose a été réduite de 9 % à 1 % avec le traitement au NaHCO₃. Il convient de noter que les pourcentages d'hémicellulose et de lignine de la paille de blé non traitée (NT) et de la moelle de tournesol sont les mêmes dans des recherches similaires [206] [207] [208] .

Tableau III. 2 : Composants chimiques des granulats traités et non traités associés à l'expansion et à la rétraction hydrique (SP : moelle de tournesol, WS : paille de blé, RS : paille de colza, SB : écorce de tournesol).

Granulats		β_{sw}	Bsh	Cellulose (%)	Hemicellulose (%)	Extractibles (%)	Lignin (%)
WS	NT	2.1	0.95	40	34	12	14
	NaCl	1.93	0.89	39	33	12	16
	NaHCO ₃	1.41	0.41	67	0	18	15
SP	NT	2.62	2.35	38,5	9	50	2,5
	NaCl	1.88	1.34	40	8,5	48,3	3,2
	NaHCO ₃	1.75	1.16	49	1	47	3

III.5.2 Impact des cycles répétés d'immersion et de séchage sur le gonflement-retrait

Le gonflement et le retrait des granulats dus aux cycles de mouillage et de séchage diffèrent de l'humidification et du cycle de séchage hydrique. Cette partie de l'étude évalue donc l'effet de l'immersion sur la stabilité dimensionnelle des granulats végétaux sur plusieurs cycles. Les granulats subissent cinq cycles de mouillage et de séchage. Les granulats ont subi une période d'immersion de 5 minutes, suivie d'un rinçage, et ont ensuite été analysés au microscope. Après l'analyse initiale, les granulats ont été soumis à un processus de séchage à 60°C. Une fois complètement séchés, ils ont fait l'objet d'une nouvelle analyse au microscope.

La Figure III. 30 présente les pourcentages de gonflement et de retrait de la moelle de tournesol sur plusieurs cycles d'immersion et de séchage. Les résultats montrent que ces cycles n'ont pas modifié de manière significative le comportement de gonflement et de retrait des granulats traités. Les granulats traités au NaHCO₃ conservent leurs propriétés de stabilité dimensionnelle améliorées même après des cycles de séchage immersion répétés. Quant aux granulats traités au NaCl, ils n'ont pas présenté de diminution substantielle du gonflement par rapport aux granulats non traités. Par ailleurs, les granulats traités ont montré une efficacité soutenue dans le temps, contrairement aux granulats non traités qui ont montré une baisse d'efficacité. Les travaux de Sheridan et al. [147] apportent une preuve supplémentaire que des cycles répétés d'immersion et de séchage peuvent avoir un impact négatif sur la stabilité dimensionnelle des composites à base de fibres végétales. Ces travaux mettent en évidence l'importance de traiter ces composites avec des méthodes efficaces et durables pour atténuer les effets de l'humidité sur leur stabilité dimensionnelle au fil du temps.

Quant aux granulats non traités, ils ont montré une diminution de leurs tendances au gonflement et au rétrécissement après des cycles répétés de séchage par voie humide. Cette réduction des variations dimensionnelles au cours des cycles pourrait être causées par la fatigue des granulats ou des dommages potentiellement irréversibles à leur structure interne. La diminution de la capacité de gonflement et les changements dans les granulats observés au cours d'un cycle de séchage et de remouillage peuvent être attribués au phénomène connu sous le nom d'hornification. L'hornification, introduite par Jayme en 1944 (Jayme 1944), implique des altérations irréversibles de diverses propriétés physiques, chimiques, mécaniques, morphologiques et fonctionnelles des granulats. Il s'agit notamment d'une réduction du volume des pores due au retrait et à l'effondrement des pores [148] [149] [209]. Au cours du processus

de séchage, lorsque l'eau est retirée des fibres, les microfibrilles adjacentes se rapprochent et établissent des liaisons hydrogène entre elles. Malgré la ré humidification ou bien le rinçage, la restauration de la teneur en eau n'est que partielle puisque certaines fibrilles restent liées [151]. Cette liaison et la réduction de l'absorption d'eau contribuent à l'effet global d'hornification sur les granulats [152].

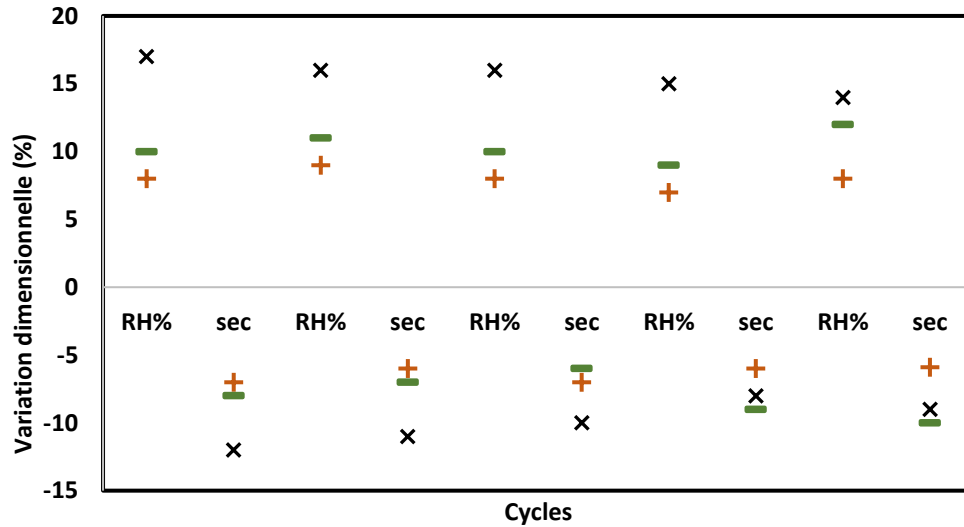


Figure III. 30 : Cycle d'humidification (humidité 90%) et de séchage(sec) de la paille de blé traitée avec NaHCO₃, NaCl et non traitée

La Figure III. 31 montre l'évaluation de la teneur en eau déduite des masses lors de l'essai de gonflement et de retrait en fonction de l'humidité relative. Le traitement au NaHCO₃ réduit l'absorption d'eau de 42±5% pour la moelle de tournesol, l'écorce et la paille de colza et de 51% pour la paille de blé. En revanche, le traitement au NaCl n'a pas eu d'effet significatif. Le traitement au NaHCO₃ diminue l'absorption quotidienne d'eau des quatre granulats, améliorant ainsi leur résistance à l'humidité. Ce phénomène est attribué à la modification de la composition

des granulats résultant de l'augmentation de la teneur en cellulose et de la réduction de l'hémicellulose [201], qui présente une hydrophilie élevée par rapport à la lignine hydrophobe.

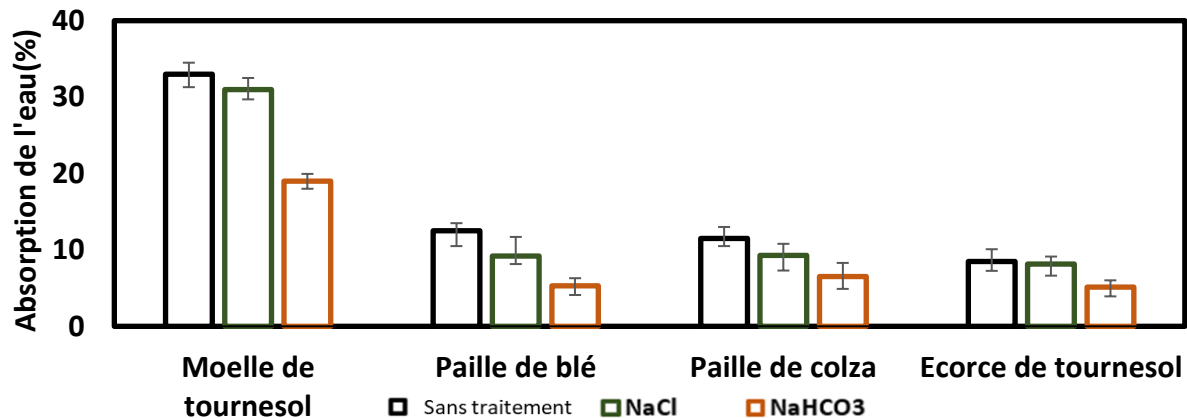


Figure III. 31 : Teneur en eau obtenue à partir du schéma d'humidification entre HR 12-90%. pour SP : moelle de tournesol, WS : paille de blé, RS : paille de colza, SB : écorce de tournesol).

III.5.3 Effet des traitements sur les microorganismes

Dans le cadre de cette étude, il a été observé que certains granulats, exposés à une humidité relative élevée de 90%, présentent des bactéries visibles lors des observations microscopiques optiques. Ces observations mettent en évidence l'effet du traitement sur les microorganismes, bien que l'étude ne se soit pas concentrée spécifiquement sur cet aspect. Les granulats non traités et traités au NaCl présentent une croissance microbienne. En revanche, le traitement à base de NaHCO₃ n'est pas associé à une croissance microbienne, même après une exposition à long terme à une température constante, malgré des niveaux d'humidité variables maintenus pendant 30 à 50 jours. La Figure III. 32 illustre la présence de micro-organismes dans chaque type de granulat à une humidité relative de 90 %.

Compte tenu de la forte porosité des granulats végétaux, ils peuvent agir comme des réservoirs d'eau, favorisant ainsi la croissance microbienne en présence d'une forte humidité sur une longue période, comme l'ont démontré plusieurs recherches [210] [211]. Au microscope, Delannoy et al. [212] ont noté la présence de bactéries à la surface des échantillons de béton de chanvre. Les variations de la densité microbienne sont attribuées aux différentes influences des microorganismes, notamment aux conditions physicochimiques des substrats, telles que la teneur en eau, le pH et la concentration ionique. Le pH de la solution de NaHCO₃ est mesuré avant l'ajout des granulats, révélant une nature basique de la solution. Cette caractéristique basique est responsable de l'absence de micro-organismes dans les granulats traités avec NaHCO₃.

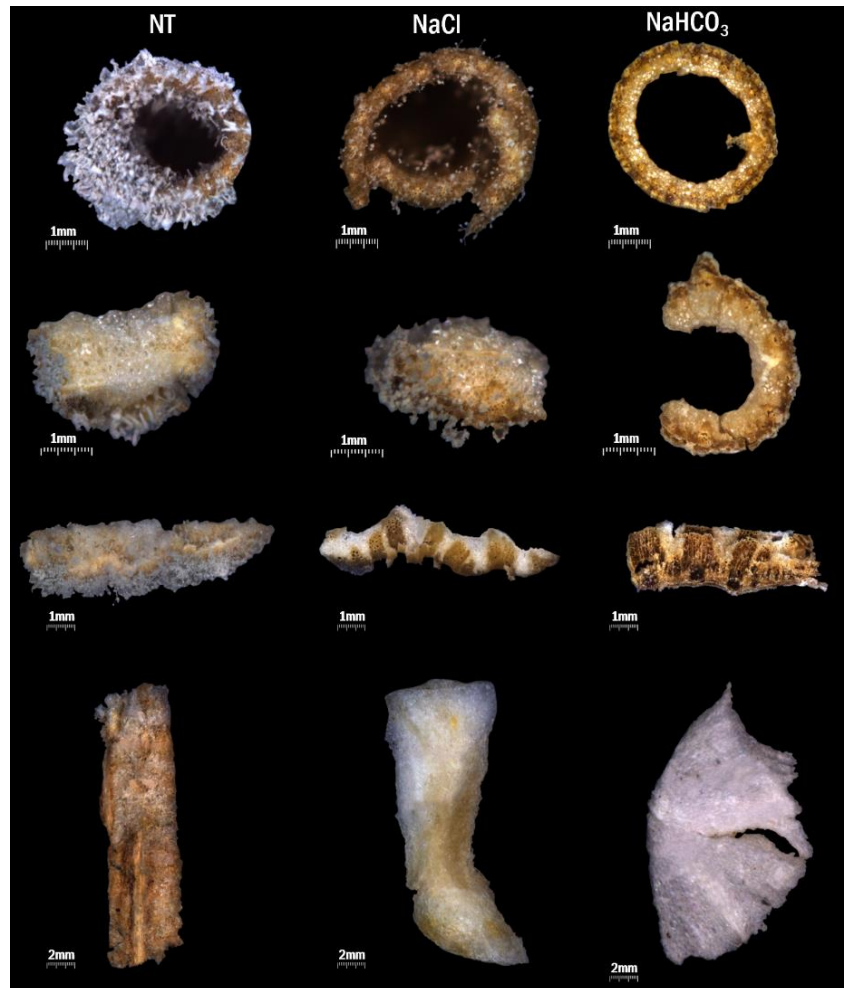


Figure III. 32 : Aspect des différents granulats à 90% d'humidité, de haut en bas, paille de blé, paille de colza, écorce de tournesol et moelle de tournesol

III.5.4 Effet du liant d'enrobage sur le comportement de gonflement-retrait

Dans cette partie, le comportement des granulats enrobés de liant avec la chaux PF70 est examiné. Des échantillons sont préparés par incorporation de granulats dans des moules et enrobés de liant après malaxage afin d'évaluer leur gonflement et leur retrait. Le liant est préparé avec le même rapport eau/liant de 1.1 que celui utilisé pour les biocomposites dans les travaux précédents [3].

Les échantillons sont exposés au cycle d'humidification et séchage de palier d'humidité différents, 12%, 55% et 90%. Des analyses microscopiques sont réalisées sur ces échantillons selon le même protocole expérimental que pour les granulats. D'après les observations microscopiques, les variations dimensionnelles dues au gonflement sont moins importantes que dans le cas des granulats seuls. La Figure III. 33 montre l'influence du liant d'enrobage sur les valeurs de gonflement et de retrait. Le liant enrobant les granulats aide à réduire la variation dimensionnelle avec une diminution importante du pourcentage. Par conséquent, certains

auteurs considèrent que l'utilisation des granulats enrobés de liant comme un traitement permettant de réduire le comportement de gonflement et de retrait [213].

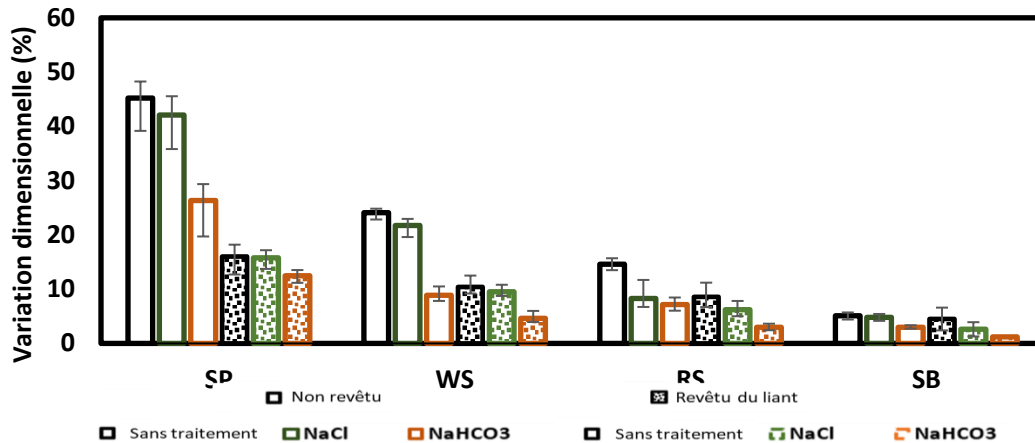


Figure III. 33 : Gonflement libre des granulats et gonflement des granulats enrobés de liant (SP : moelle de tournesol, WS : paille de blé, RS : paille de colza, SB : écorce de tournesol).

La Figure III. 34 présente les observations microscopiques d'un extrait de granulat d'écorce de tournesol enrobé d'une couche de liant, capturées en fonction des niveaux d'humidité, avec la même surface analysée pour chaque niveau d'humidité. Le microscope capture l'image de la couche de liant qui recouvre le granulat. Le changement d'humidité relative a entraîné la formation d'une fissure due au gonflement du granulat. Bien que l'écorce génère le plus faible pourcentage de gonflement, ce dernier détache le liant enrobé qui recouvre le granulat. À 12 % d'humidité relative, le liant est parfaitement scellé au granulat ; cependant, à mesure que l'humidité relative augmente de 55 % à 90 %, des fissures apparaissent, qui finissent par détacher le liant du granulat. Ce résultat indique que le liant s'oppose en partie au gonflement des granulats. L'apparition de fissures peut endommager le matériau, car la phase de mouillage entraîne un gonflement et la phase de séchage une contraction [5]. Ce processus affaiblit l'adhérence entre le granulat et le liant, ce qui entraîne une réduction des performances mécaniques du matériau biosourcé à l'échelle macroscopique [214] [3].

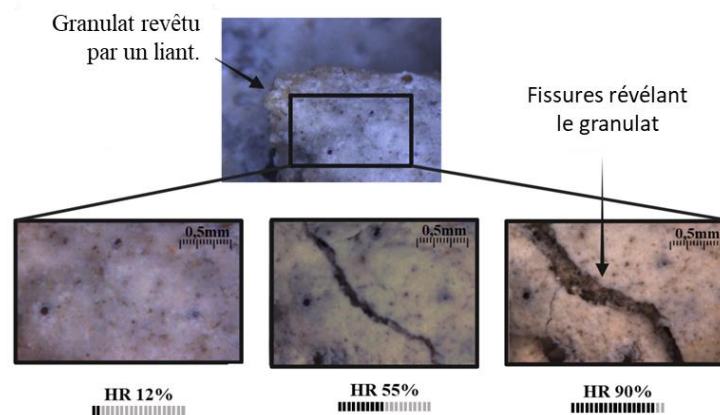


Figure III. 34 : Observations microscopiques d'un granulat d'écorce de tournesol enrobé de liant avec la même zone d'observation pour chaque niveau d'humidité révélant la fissuration.

Dans la Figure III. 35 l'expansion et la rétraction des granulats provoquent un gonflement et un retrait qui entraînent une diminution et une augmentation de la surface entre les granulats et le liant, en particulier dans la direction transversale, de manière similaire à ce qui s'est produit avec le chanvre et le liant [24].

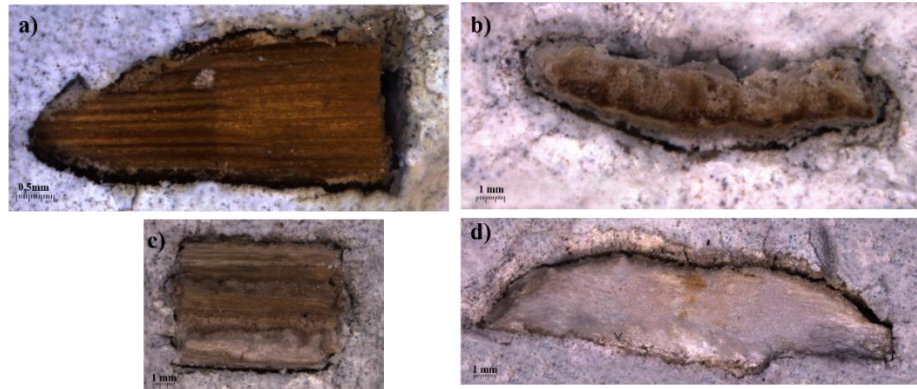


Figure III. 35 : Observations microscopiques des granulats incorporés dans le liant a) paille de blé, b) paille de colza, c) écorce de tournesol et d) moelle de tournesol

Lorsque deux granulats adjacents sont délimités par un liant, l'interaction à leur interface est influencée par le phénomène de gonflement et de rétrécissement. La Figure III. 36 illustre l'interface entre les granulats de paille de blé. Lorsque l'humidité passe de 12 % à 90 %, les granulats subissent un gonflement notable, tandis qu'une réduction de l'humidité relative de 90 % à 12 % induit un retrait. Ce modèle cyclique de gonflement et de rétrécissement déclenche le développement de fissures dans le liant, qui est responsable du maintien de la cohésion entre deux granulats dans le cas des biocomposites. Par conséquent, ce phénomène compromet l'adhérence entre les granulats.

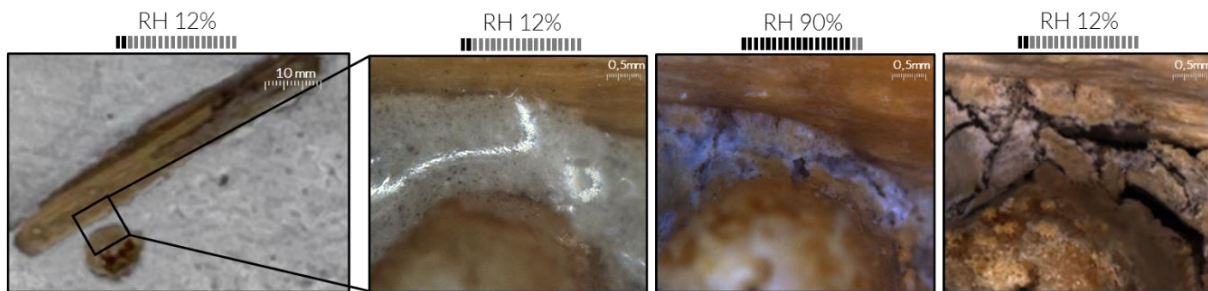


Figure III. 36 : Interface entre deux granulats de paille de blé liés par un liant lorsque l'humidité relative passe de 12 % à 90 % et de 90 % à 12 %

III.6 Conclusion

Ce chapitre étudie le comportement de gonflement et de retrait de différents granulats végétaux utilisés pour développer les matériaux isolants biosourcés (paille de blé, paille de colza, écorce de tournesol et moelle de tournesol) en réponse aux variations de l'humidité relative. L'analyse microscopique est effectuée pour mesurer les variations dimensionnelles avec le suivi de la stabilité de la masse des échantillons après exposition à différents niveaux d'humidité relative dans une chambre climatique (12 %, 55 % et 90 %) à une température constante de 30 °C.

Les résultats soulignent la sensibilité des quatre granulats végétaux aux fluctuations d'absorption et de désorption d'humidité relative allant de 12 % HR à 90 % HR. La moelle de

tournesol se distingue par sa capacité de gonflement la plus marquée, atteignant 42 %. Elle est suivie de près par la paille de blé, qui présente une expansion de 24 %. La paille de colza enregistre également une augmentation significative de 14,6 %. Enfin, l'écorce de tournesol manifeste une variation dimensionnelle de 5 % dans la plage d'analyse. Le phénomène de gonflement et de retrait des granulats végétaux est principalement lié à leur capacité d'absorption et de libération d'eau. Une hystérésis s'est produite entre les trajectoires de gonflement et de retrait des granulats. Les taux de retrait obtenus diffèrent des taux de gonflement.

Parallèlement, nous avons entrepris l'optimisation du protocole de traitement dans le but de réduire simultanément les phénomènes de gonflement et de retrait des granulats, en corrélation avec les mécanismes d'absorption d'eau. Bien que le traitement au NaCl vise à limiter les variations dimensionnelles des granulats, il s'est avéré moins efficace que le traitement au NaHCO_3 , qui a permis de réduire le gonflement de plus de 50 %. La quantification biochimique confirme cette efficacité où le traitement au NaHCO_3 élimine l'hémicellulose, responsable de l'absorption de l'eau et par conséquent diminue le pourcentage de gonflement contrairement au NaCl qui n'affecte pas cette caractéristique. Le gonflement plus important des granulats seuls est dû à leur nature hygrophile. Cependant, les granulats enrobés de liant montrent une certaine réduction du gonflement due au liant. Le liant seul ne peut pas empêcher complètement le gonflement des granulats, qui peut conduire à la dégradation et à la fissuration des biocomposites.

Chapitre 4 : Nouvelle méthode d'analyse et de compréhension des variations dimensionnelles des matériaux biosourcés.

IV.1 Introduction

Les fissures observées dans les matériaux biosourcés résultent du phénomène de gonflement et de retrait des composants constitutifs, à savoir le liant et le granulat, ce qui entraîne une détérioration des propriétés mécaniques [215] [5]. Dans le précédent chapitre, nous avons procédé à une quantification des pourcentages de gonflement et de retrait des granulats végétaux. Bien que leur traitement ait tendance à atténuer ce comportement, il n'est cependant pas en mesure de l'éliminer de manière définitive.

Dans le cadre de notre étude sur les propriétés des biocomposites, il se révèle essentiel de procéder à une évaluation des variations dimensionnelles propres à ces matériaux. Le but de ce chapitre est d'étudier les variations dimensionnelles à l'échelle macroscopique des biocomposites. Dans ce contexte, nous avons mis au point le banc d'essai utilisant des capteurs laser de déplacement, permettant la mesure des changements dimensionnels de ces matériaux hétérogènes. Le protocole expérimental a été présenté et détaillé dans le chapitre 2, où nous avons proposé la méthodologie d'analyse des mesures ainsi que la procédure de répétabilité.

Dans un premier temps, nous entreprenons des essais préliminaires afin de comprendre et valider les variations dimensionnelles des biocomposites suite à l'absorption d'eau. Ces essais expérimentaux nous permettent de comprendre le comportement des échantillons et leur sensibilité à l'eau. Ensuite, nous procédons à une analyse du comportement des échantillons soumis à un cycle par paliers d'humidifications et de séchage comme dans le cas des granulats seuls. Cette phase de l'étude nous permet d'étudier la stabilité et la résistance des biocomposites face aux variations cycliques d'humidité, en mettant l'accent sur leur capacité à absorber et à libérer l'eau. Pour compléter notre analyse et élargir notre compréhension du phénomène, nous formulons des hypothèses sur le comportement des biocomposites en réponse à l'absorption d'humidité que nous tenterons par la suite de vérifier et valider grâce à des simulations numériques, utilisant le logiciel COMSOL Multiphysics. Ces simulations nous permettent de modéliser le comportement des biocomposites, en intégrant les propriétés physiques et mécaniques des matériaux. L'ensemble de ces approches expérimentales et numériques nous offre une vision globale du comportement des biocomposites face à l'humidité.

IV.2 Etude préliminaire

IV.2.1 Rappel de la méthodologie de mesure

Le système de mesure par capteurs laser de déplacement permet de déterminer les épaisseurs et la hauteur des échantillons. La Figure IV. 1 illustre le principe des mesures sur un échantillon. Le positionnement des deux capteurs adjacents permet la détermination de la longueur L_{x1} , comme illustré sur la Figure IV. 1-b. La longueur totale, L_T , est définie conformément aux indications de la partie II.4.3 la Méthodologie de mesure. Les amplificateurs associés aux capteurs laser fournissent les valeurs d_1 et d_2 , permettant ainsi de calculer L_{x1} en soustrayant d_1 et d_2 de L_T . De manière analogue, l'épaisseur selon l'axe y_0y peut également être calculée. La hauteur est mesurée de la même manière, en prenant en compte la hauteur H_i initiale telle que décrite dans le chapitre 2, paragraphe 1.

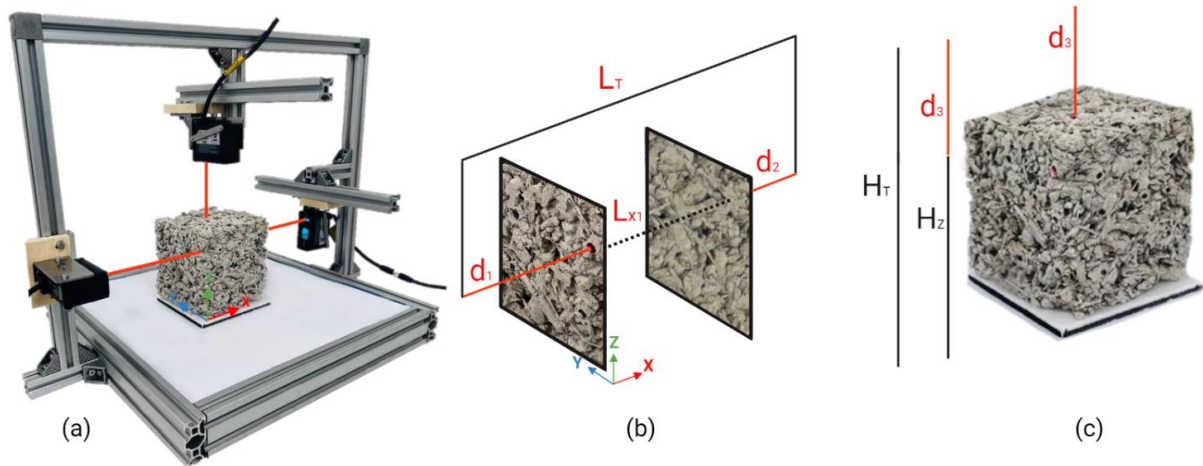


Figure IV. 1 : Banc de mesure développé (a), mesures des dimensions de l'échantillon dans les directions latérales (b) et verticale (c)

L'évaluation de la hauteur moyenne de l'échantillon et de l'épaisseur moyenne en fonction de la hauteur du biocomposite est réalisée à différentes positions. Plus précisément, les mesures sont effectuées à $H_z=2$ cm, $H_z=5$ cm et $H_z=8$ cm, en utilisant trois points de mesure à chaque hauteur. Il est supposé que la base des échantillons reste immobile et horizontale, car ils sont placés sur une base en polystyrène, ce qui évite tout déplacement lors des mesures. Après la phase de démoulage des échantillons, les mesures sont effectuées pour suivre les dimensions des échantillons. Ensuite, ces derniers sont soumis à un cycle de variation d'humidité. Après cette exposition, de nouvelles mesures sont réalisées pour évaluer les dimensions des échantillons et suivre les éventuels changements liés à l'humidité.

IV.2.2 Réponse des biocomposites

Afin de comprendre le comportement de gonflement et de retrait vis-à-vis d'un état hydrique permettant un changement rapide, les premières mesures effectuées sur les biocomposites consistent à les soumettre à une absorption capillaire d'eau liquide. Les échantillons sont placés dans un récipient transparent et exposés aux capteurs laser de déplacement.

Avant l'ajout d'eau, l'échantillon est exposé aux capteurs laser pendant une durée de 4 heures pour s'assurer que les variations dimensionnelles ne sont pas influencées par les conditions extérieures. Une fois que la stabilité des mesures est établie, le récipient est rempli d'eau de manière à ce que le biocomposite entre en contact avec l'eau sur une profondeur de 1 cm, après quoi les mesures de déplacement commencent.

Trois capteurs sont positionnés de manière à mesurer trois faces distinctes de l'échantillon, comme illustré à la Figure IV. 2-a. L'absorption d'eau se fait par capillarité en ajoutant de l'eau

La Figure IV. 3 présente les variations dimensionnelles observées dans les trois directions différentes du composite à base de paille, avant et après l'absorption d'eau.

Dès le premier contact avec l'eau, l'échantillon subit un retrait abrupt en hauteur de 0,229 mm. Au fur et à mesure que les mesures de variation des dimensions se poursuivent, la hauteur continue de diminuer. En parallèle, des variations de gonflement sont enregistrées dans les directions x et y, avec des valeurs respectives de $0,373 \pm 0,07$ mm et $0,682 \pm 0,05$ mm. Ces variations de gonflement se produisent même en l'absence d'une absorption complète de l'eau, et ce, malgré que l'eau n'atteigne pas le point lumineux du laser de déplacement sur les deux faces extérieures. Ces observations indiquent une expansion du biocomposite le long des directions horizontales (x et y) et un rétrécissement dans la direction verticale.

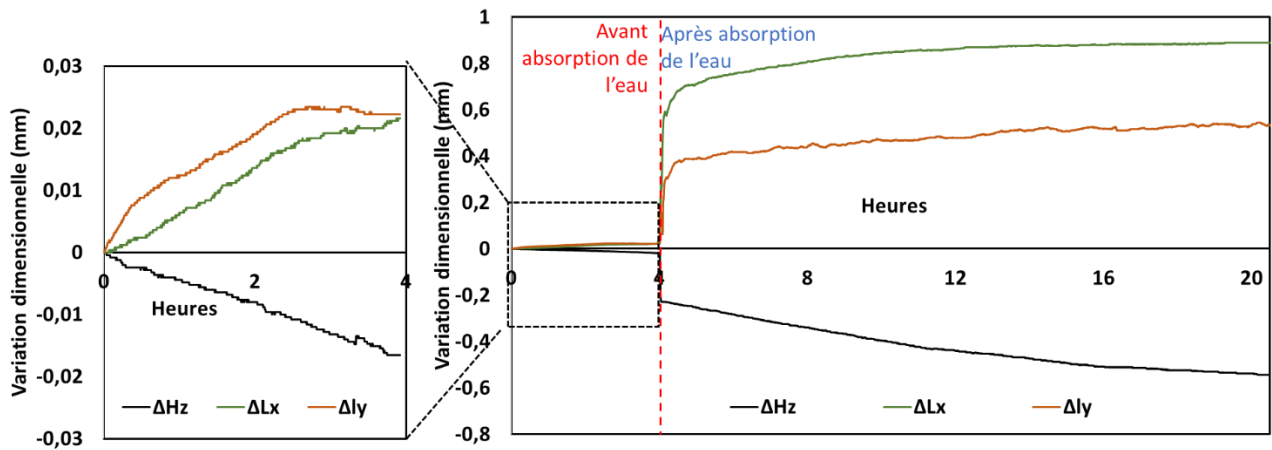


Figure IV. 3 : Variation dimensionnelle du composite à base de paille placé dans un récipient transparent : de 0 à 4 heures : variation entre T60°C-HR0% à T23°C-HR55%, et de 4heures à 20h : adsorption d'eau

Le retrait mesuré dans la direction verticale est inattendu. En effet, compte tenu des propriétés hautement hydrophiles des granulats et des gonflements observés dans le chapitre précédent, un gonflement du biocomposite dans les 3 directions était attendu. Dans un premier temps, l'hypothèse d'une éventuelle influence liée à l'arrangement des fibres pendant la fabrication des échantillons a été considérée. Pour établir ou réfuter cette hypothèse d'anisotropie matérielle, et pour confirmer l'existence du rétrécissement vertical et de l'expansion de l'épaisseur durant la phase d'absorption, une expérimentation a été conduite en faisant pivoter l'échantillon dans différentes orientations. L'objectif consiste à déterminer si les variations dimensionnelles observées résultent des particularités microstructurales en lien avec la fabrication des échantillons. L'échantillon est immergé dans l'eau pendant 5 minutes, puis égoutté avant d'être mesuré à l'aide de deux points fixes, comme illustré sur la Figure IV. 4-a. Initialement, le point A est positionné sur la surface verticale pour mesurer la variation de l'épaisseur, tandis que le point B est positionné sur la surface horizontale pour mesurer la variation de la hauteur.

Après 5 minutes de mesure dans cette position, l'échantillon est pivoté de manière à ce que le point A représente désormais la variation verticale et le point B la variation horizontale, comme indiqué sur la Figure IV. 4-c.

Les variations qui en résultent sont illustrées sur la Figure IV. 5. Avant la rotation de l'échantillon, le point A montre un gonflement de l'épaisseur, tandis que le point B montre un rétrécissement de la hauteur. Après la rotation de l'échantillon, le point A subit un retrait tandis que le point B présente un gonflement. Ces observations indiquent que, indépendamment de l'orientation des granulats dans le biocomposite, la hauteur subit un retrait et l'épaisseur subit un gonflement.

Cette différence entre les variations dimensionnelles dans les directions horizontale et verticale pourrait être expliquée l'augmentation du poids propre des matériaux au cours de l'absorption d'eau, les forces gravitationnelles exerçant ensuite une influence distincte sur les directions de gonflement et de retrait. Cette hypothèse nécessitera une investigation plus approfondie au moyen d'une simulation numérique, voir partie IV.7 .

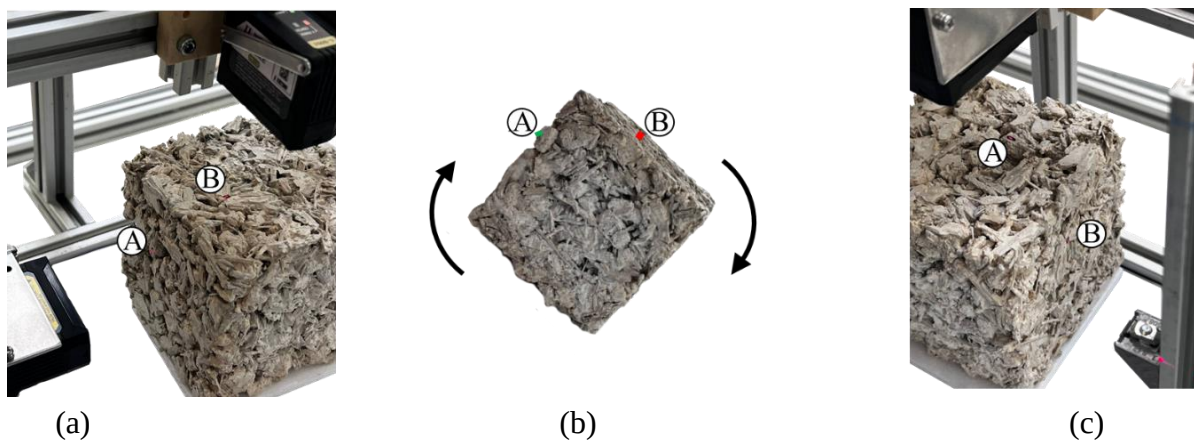


Figure IV. 4 : (a) Etat initial : le point A est situé sur une face latérale pour la mesure de la variation horizontale et le point B situé sur la face de dessus pour la mesure de la variation verticale, (b) Rotation du biocomposite, (c) Le point A représente la variation dimensionnelle verticale et le point B représente la variation dimensionnelle horizontale.

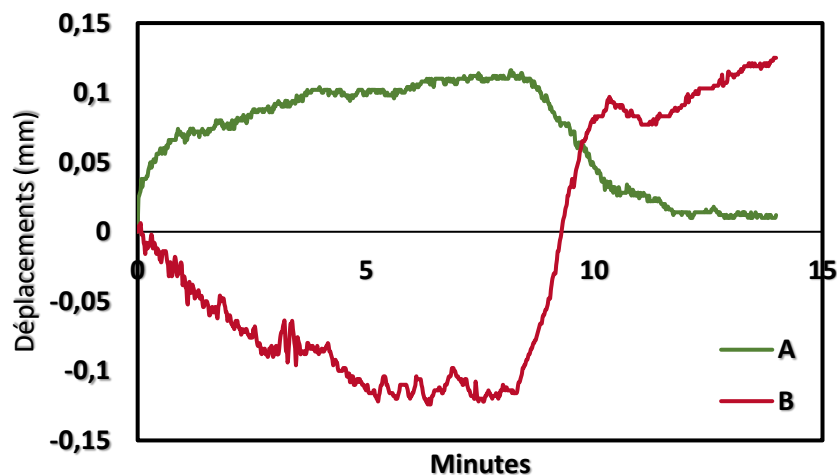


Figure IV. 5 : Effet de la rotation de l'échantillon sur les variations dimensionnelles dans les directions horizontale et verticale.

IV.3 Effet de la morphologie des biocomposites

Les échantillons sont démoulés 24 heures après leur fabrication, puis ils sont stockés pendant une période de maturation de trois mois dans une chambre avec une humidité relative de 85% et température de 20°C±3°C. Dans cette partie, les mesures sont initiées 24 heures après le démoulage et se poursuivent mensuellement pendant une période de 90 jours pour observer l'évolution des échantillons au cours de leur maturation. Une suite de mesures est réalisée pour déterminer les dimensions finales des biocomposites, supposées uniformément égales à l'épaisseur du moule de 100x100x100 mm³ après le démoulage.

Le Tableau IV. 1 résume les dimensions des biocomposites après les 90 jours de suivi de maturation. Les mesures montrent des variations significatives, ce qui indique qu'après le démoulage des biocomposites, des variations dimensionnelles se produisent pendant la phase de prise du liant. De plus, une non-uniformité de l'épaisseur à travers le biocomposite est observée entre les directions Lx et Ly. Ces observations mettent en évidence l'importance de la période de maturation après le démoulage, ainsi que du processus de prise et de durcissement, pour stabiliser les dimensions des biocomposites.

Tableau IV. 1 : Dimensions des biocomposites non traités après démoulage à base de WS : paille de blé, WR : paille de colza, SB : écorce de tournesol, SP : Moelle de tournesol, SPB : moelle et écorce de tournesol

Dimensions (mm)	WS	WR	SB	SP	SPB
H_z	103,19±1%	101,728±1,2%	102,736±0,5%	102,447±2%	102,477±1%
l_x	99,257±2,5%	98,994±1,5%	100,62±1,5%	101,067±3%	101,067±3%
l_y	98,929±1%	99,509±2,2%	100,549±1%	101,323±2%	101,323±1%

La Figure IV. 6-a présente un exemple des profils de hauteur pour deux lignes parallèles tracées sur la face supérieure d'un échantillon de biocomposite non traité à base de paille (lignes bleues et vertes sur la Figure IV. 6-b). Les variations observées indiquent une dépendance de la hauteur en fonction de la position, ce qui témoigne de l'hétérogénéité du matériau. Ces observations peuvent probablement essentiellement être attribuées à la distribution des granulats dans le biocomposite, pouvant entraîner des variations locales significatives dans les propriétés de surface.

La géométrie des granulats et leur disposition dans le biocomposite ont un impact considérable sur l'homogénéité/l'hétérogénéité des surfaces de la paroi et par conséquent sur leur réponse. Les variations géométriques montrent la rugosité irrégulière des biocomposites et la complexité d'une mesure comme celle du gonflement-retrait.

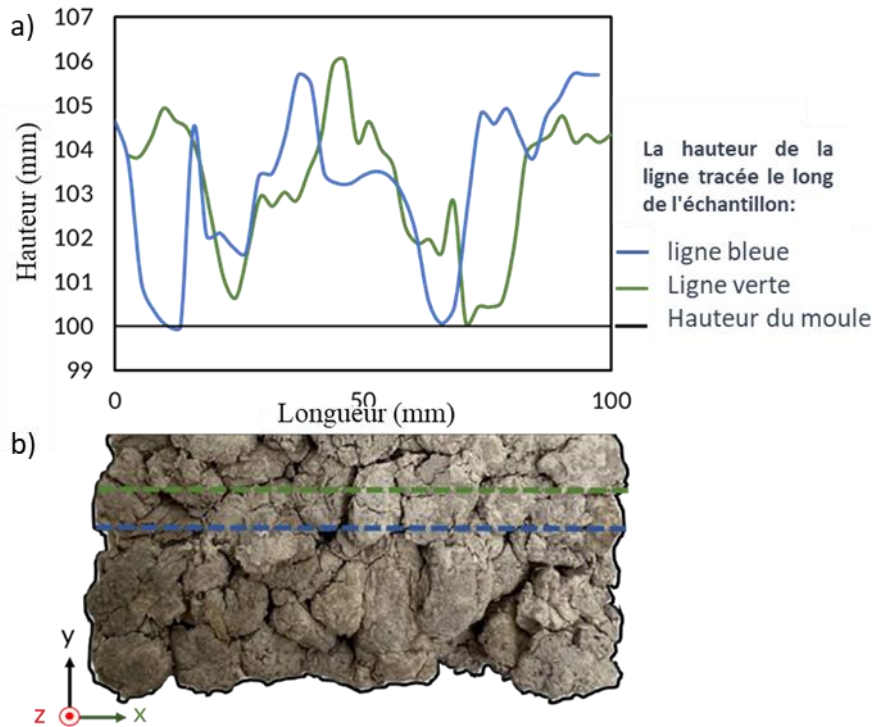


Figure IV. 6 : Variation de la hauteur du biocomposite

IV.4 Effet des variations d'humidité relative

Dans leurs conditions réelles d'usage, les matériaux sont souvent exposés à des variations d'humidités relatives, contrairement au contact de l'eau liquide utilisé dans les tests précédents qui peut être occasionnel ou accidentel. Ainsi, pour comprendre et quantifier les variations dimensionnelles en fonction des conditions hydriques, nous avons choisi d'appliquer des cycles humidification/séchage identiques à ceux utilisés dans le chapitre 3 (12 %, 55 %, 90 %, 55%, 12%). La Figure IV. 7 présente les variations dimensionnelles moyennes de l'épaisseur à trois hauteurs différentes (2 cm, 5 cm et 8 cm) en utilisant les données de trois points pour chaque hauteur respective. La Figure IV. 8 présente la moyenne des neuf points qui synthétisent les variations dimensionnelles d'épaisseur pour l'ensemble de la hauteur étudiée. Ces mesures sont calculées en fonction de HR12% à l'issue de la phase d'absorption (schéma d'humidification HR12-90%) et en fonction de HR90% à l'issue la phase de désorption (schéma de séchage hydrique HR90-12%) selon l'épaisseur et la hauteur. A l'issue de la phase d'humidification, les variations dimensionnelles de l'épaisseur montrent un gonflement progressif jusqu'à atteindre un maximum à une humidité relative de 90%. À une hauteur de 2 cm (ligne inférieure), l'épaisseur présente un gonflement d'environ $2\% \pm 0,4\%$. À une hauteur de 5 cm (ligne moyenne), le gonflement est plus important, atteignant environ $3\% \pm 0,4\%$. De même, à une hauteur de 8 cm, le gonflement observé est d'environ $4,5\% \pm 0,15\%$.

A l'issue de la phase de séchage, les variations d'épaisseur tendent à revenir à leur état initial en raison du retrait. À une hauteur de 2 cm (ligne inférieure), l'épaisseur présente un retrait d'environ $1,1\% \pm 0,8\%$. À une hauteur de 5 cm (ligne moyenne), le retrait est plus important, atteignant environ $1,68\% \pm 0,7\%$. De même, à une hauteur de 8 cm, le retrait observé est d'environ $2,3\% \pm 0,2\%$.

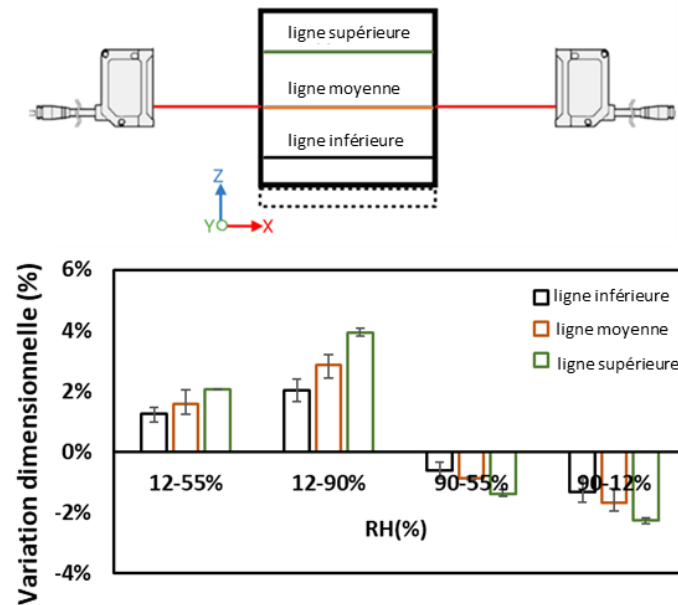


Figure IV. 7 : Pourcentage de variation de l'épaisseur par rapport à 12% de HR entre 12-55%, 12-90% et par rapport à 90% de HR entre 90-55% et 90-12% (moyenne dans les deux directions horizontales)

Parallèlement, la hauteur du biocomposite subit un retrait après absorption de l'humidité, puis présente un gonflement lors du séchage comme illustré sur la figure IV. 9, contrairement aux deux directions latérales. Le retrait de la hauteur après l'absorption d'humidité et le gonflement après la libération de l'humidité absorbée suggèrent que d'autres facteurs, telles que les variations des propriétés mécaniques du matériau en fonction de l'humidité et les conditions aux limites, peuvent également influencer ces variations dimensionnelles.

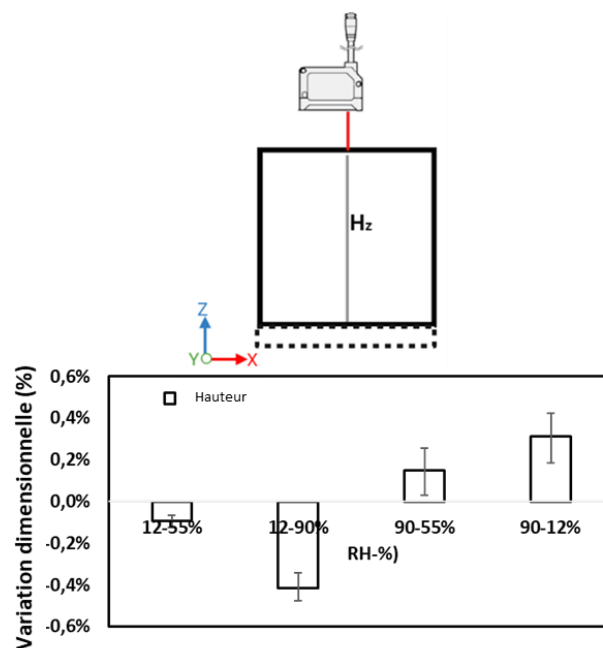


Figure IV. 8 : Pourcentage de variation de hauteur entre 12-55%, 12-90% et entre 90-55% et 90-12% dans la direction Hz pour le biocomposite à base de la paille

Une explication plausible du comportement particulier dans la direction verticale a déjà été évoquée dans les essais préliminaires précédents et réside dans une compétition entre deux forces opposées à l'intérieur du biocomposite. D'une part, lors de l'absorption d'eau, les granulates présents dans le matériau, étant fortement hydrophiles, ont tendance à gonfler en augmentant leur volume. Ce gonflement des granulates peut normalement contribuer à une augmentation de l'épaisseur et de la hauteur du biocomposite à mesure que l'humidité pénètre dans sa structure. D'autre part, le poids de l'eau agit sur le biocomposite par gravité, exerçant une force descendante qui tend à comprimer et contracter le matériau et à restreindre le gonflement des granulates.

Ainsi, il y a une sorte de compétition entre ces deux forces antagonistes : le gonflement des granulates en raison de leur propriété hydrophile et le poids de l'eau agissant par gravité pour limiter le gonflement dans la direction verticale. Cette compétition entre les forces internes et externes au matériau pourrait expliquer pourquoi les variations dimensionnelles ne sont pas uniformes sur toutes les surfaces du biocomposite.

La Figure IV. 9 illustre de manière moyenne le gonflement de l'épaisseur du biocomposite en fonction de différentes hauteurs. Pour représenter les biocomposites dans les présentations ultérieures, les pourcentages de gonflement utilisés correspondent aux mesures latérales effectuées à une hauteur de 8 cm, là où les valeurs étaient les plus importantes. Il convient de noter que le modèle d'échantillon utilisé dans l'expérience est constitué d'une base en polystyrène, ce qui entraîne une condition aux limites avec un encastrement à la base de l'échantillon à la position $y=0$. Cette condition limite le mouvement de la base, simulant ainsi une fixation de cette surface. En revanche, les autres surfaces de l'échantillon sont considérées comme libres, ce qui signifie qu'elles peuvent se déformer en réponse à l'absorption d'eau et au gonflement du matériau. Le choix de cette hauteur de 8 cm permet de mieux représenter le gonflement observé dans le matériau, car plus on s'approche de cette hauteur, plus le gonflement est important et moins il est influencé par le frottement avec la base.

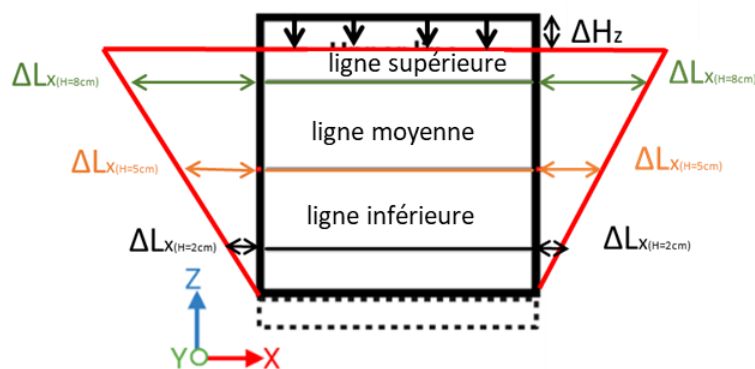


Figure IV. 9 : Comportement des biocomposites en réponse à l'humidification

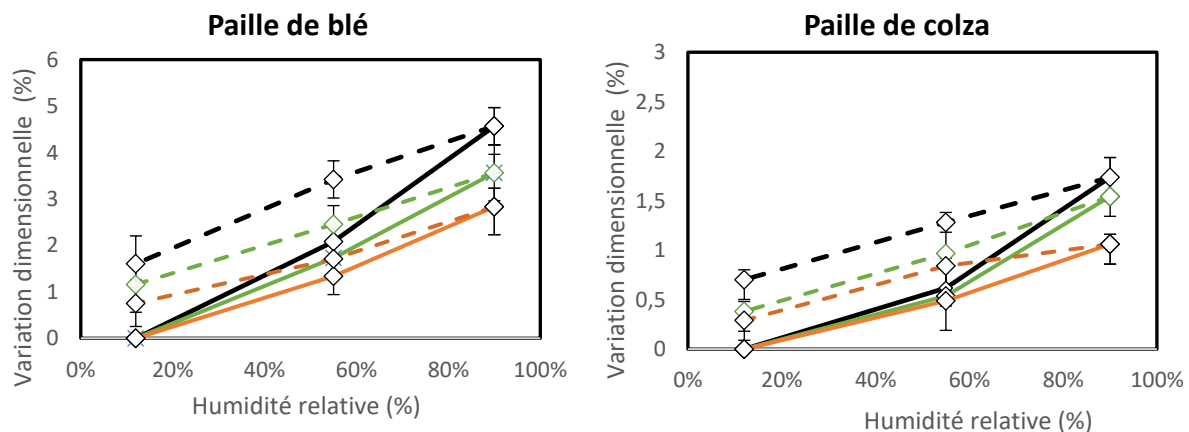
Les courbes de la Figure IV. 10 représentent les variations dimensionnelles de l'épaisseur des biocomposites par rapport à l'état initial de 12% d'humidité relative, en fonction de différents niveaux d'humidité. Chaque courbe représente un type de biocomposite avec des granulates spécifiques, certains étant traités avec du chlorure de sodium (NaCl), du bicarbonate de sodium (NaHCO₃), tandis que d'autres ne sont pas traités (NT).

Les résultats montrent que tous les biocomposites présentent des variations dimensionnelles, mais les pourcentages de gonflement diffèrent en fonction des granulats utilisés. Les biocomposites à base de paille de blé gonflent davantage que ceux à base de paille de colza. De même, les biocomposites composés de la moelle de tournesol montrent un gonflement plus important que ceux constitués de l'écorce de tournesol. Toutefois, lorsque la moelle et l'écorce sont mélangées, le taux de gonflement du biocomposite est réduit. Ainsi, le mélange d'écorce et de moelle présente un avantage en termes de réduction du gonflement et du retrait.

Les résultats indiquent également que le traitement des granulats dans les biocomposites avec du NaCl et du NaHCO_3 réduit les variations dimensionnelles observées. Les traitements au NaCl et au NaHCO_3 ont entraîné des réductions significatives du gonflement dans les différents types de biocomposites étudiés. Par exemple, le traitement au NaCl a conduit à une réduction de 28% du gonflement pour les biocomposites à base de blé, de 11% pour la paille de colza, de 15% pour la moelle de tournesol, de 25% pour l'écorce de tournesol, et de 12% pour le mélange de moelle et d'écorce de tournesol. De manière plus marquée, le traitement au NaHCO_3 a permis des réductions encore plus importantes, atteignant 50% pour les biocomposites à base de blé, 40% pour la paille de colza, 30% pour la moelle de tournesol, et 34% pour l'écorce de tournesol.

Ces résultats démontrent l'efficacité des traitements au NaCl et au NaHCO_3 dans la réduction du gonflement des biocomposites, bien que des variations dimensionnelles subsistent. Cette étude démontre l'impact des types de granulats et des traitements sur les propriétés de gonflement et de retrait des biocomposites. L'analyse met en évidence une hystérésis significative entre les mesures réalisées pendant la phase d'humidification et celle de séchage. De plus, le comportement de gonflement et de retrait des biocomposites n'est pas réversible, car ils ne parviennent pas à retrouver leur dimension initiale.

Peu de données comparatives sont disponibles dans la littérature pour comparer nos résultats en termes de gonflement et de retrait des matériaux biosourcés. Il est à noter les travaux de Rima et al. [24] ont rapporté un taux de gonflement de 6,5% pour le béton de chanvre, en se concentrant toutefois sur le gonflement au niveau microscopique des granulats du matériau, à l'aide d'un microscope optique. D'autres travaux menés par Latapie et al. [216] ont mesuré un taux de gonflement de 6% pour des panneaux à base de moelle de tournesol, en utilisant un pied à coulisse.



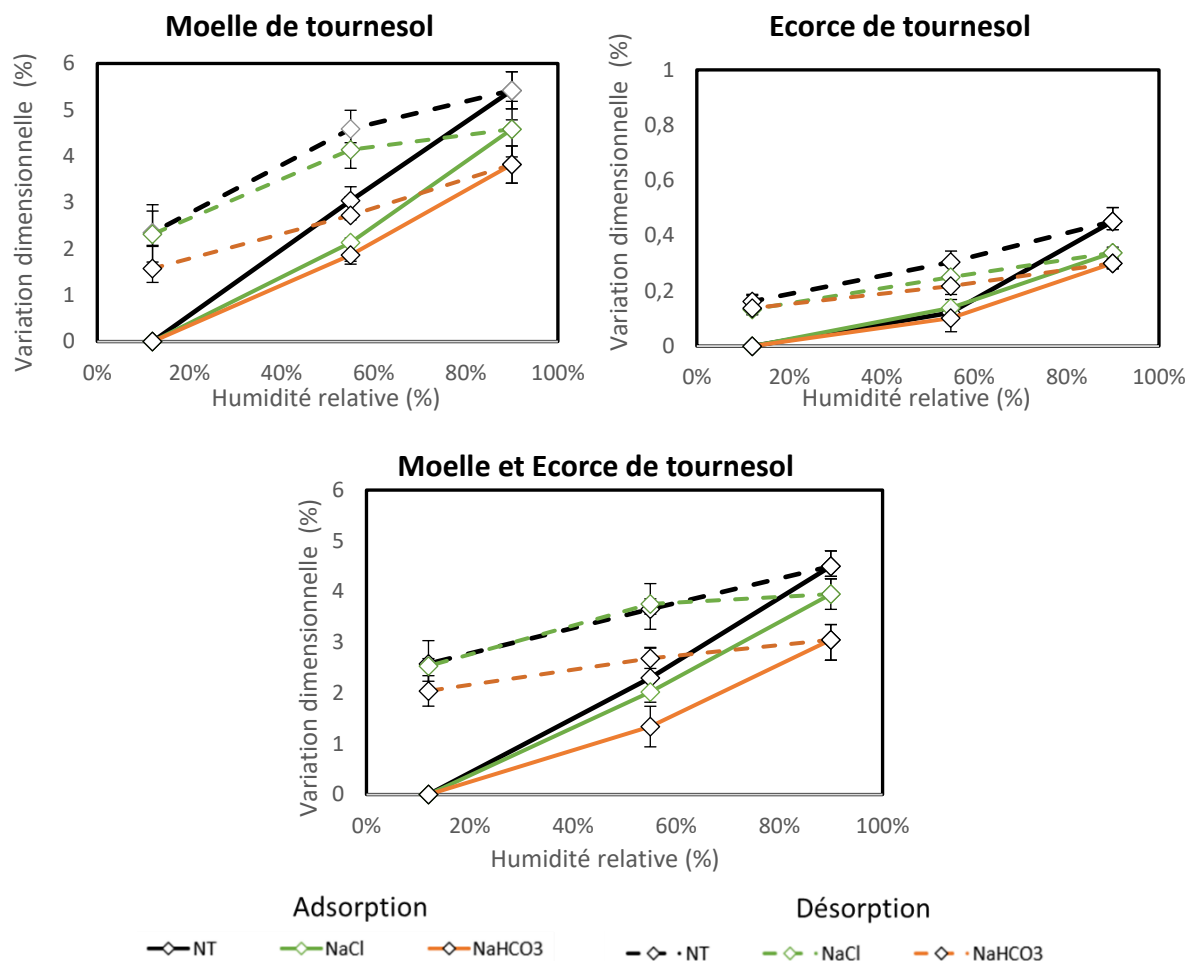


Figure IV. 10 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur des biocomposites par rapport à l'état initial HR de 12%, en fonction de différents niveaux d'humidité relative

Contrairement à l'épaisseur, la hauteur des biocomposites présente un comportement opposé. Les courbes présentées sur la

Figure IV. 11 illustrent les variations dimensionnelles de la hauteur des biocomposites par rapport à l'état initial de HR de 12%, en fonction de différents niveaux d'humidité relative. Lors de la phase d'adsorption, comme évoqué précédemment, un retrait est systématiquement observé. En revanche, lors de la phase de désorption, un gonflement systématique est mesuré. Ces observations confirment que le comportement dans le sens de la hauteur est différent de celui de l'épaisseur lors des cycles d'humidification et de séchage.

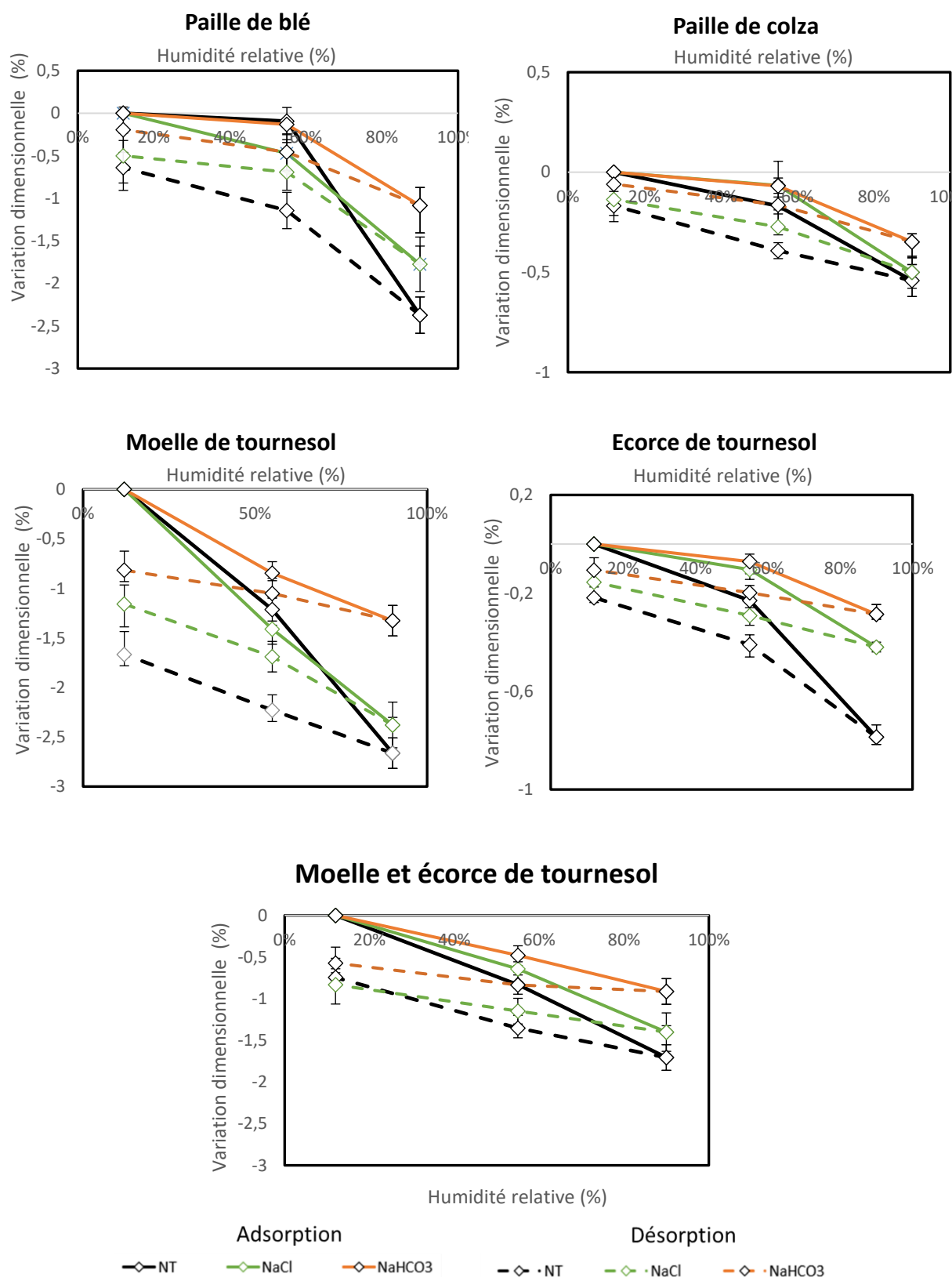


Figure IV. 11 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur des biocomposites par rapport à l'état initial HR de 12%, en fonction de différents niveaux d'humidité relative

IV.5 Modélisation 3D à partir des mesures ponctuelles

Afin de préciser les variations dimensionnelles dans les différents états d'humidité, une représentation graphique basée sur les coordonnées des points a été réalisée en utilisant le logiciel AutoCAD d'Autodesk, comme illustré dans la Figure IV. 12. Les coordonnées des points ont été importées dans le logiciel (Figure IV. 12 -a et Figure IV. 12-b), et un contour a été tracé en formant une boucle fermée autour des points correspondant à la même hauteur (Figure IV. 12-c). Cette démarche a pour objectif de délimiter la surface externe d'un biocomposite pour des niveaux de hauteur spécifiques. Plus précisément, lorsque $hz=0$, les variations sont supposées nulles en raison de l'immobilité de la base en polystyrène qui empêche tout déplacement. Aux hauteurs $hz=2$ cm, $hz=5$ cm et $hz=8$ cm et en partie supérieure de l'échantillon ($hz=Hz$) les coordonnées des points correspondent aux mesures effectuées. En utilisant ces contours, une modélisation 3D du biocomposite peut être générée (Figure IV. 12-d.). Pour étendre les surfaces au niveau des arêtes, là où aucune mesure n'a été effectuée, nous avons établi des hypothèses de prolongation. Pour ce faire, nous avons prolongé la ligne d'une surface à partir de son extrémité jusqu'à rencontrer la ligne de la surface adjacente, créant ainsi une intersection. Nous avons appliqué la même hypothèse à la surface supérieure en effectuant une intersection du plan horizontal avec les prolongements des quatre autres surfaces verticales. Les graphiques obtenus mettent en évidence les déformations irrégulières du biocomposite et montrent notamment que les faces initialement planes du cube de matériau ne restent pas planes au cours de l'essai.

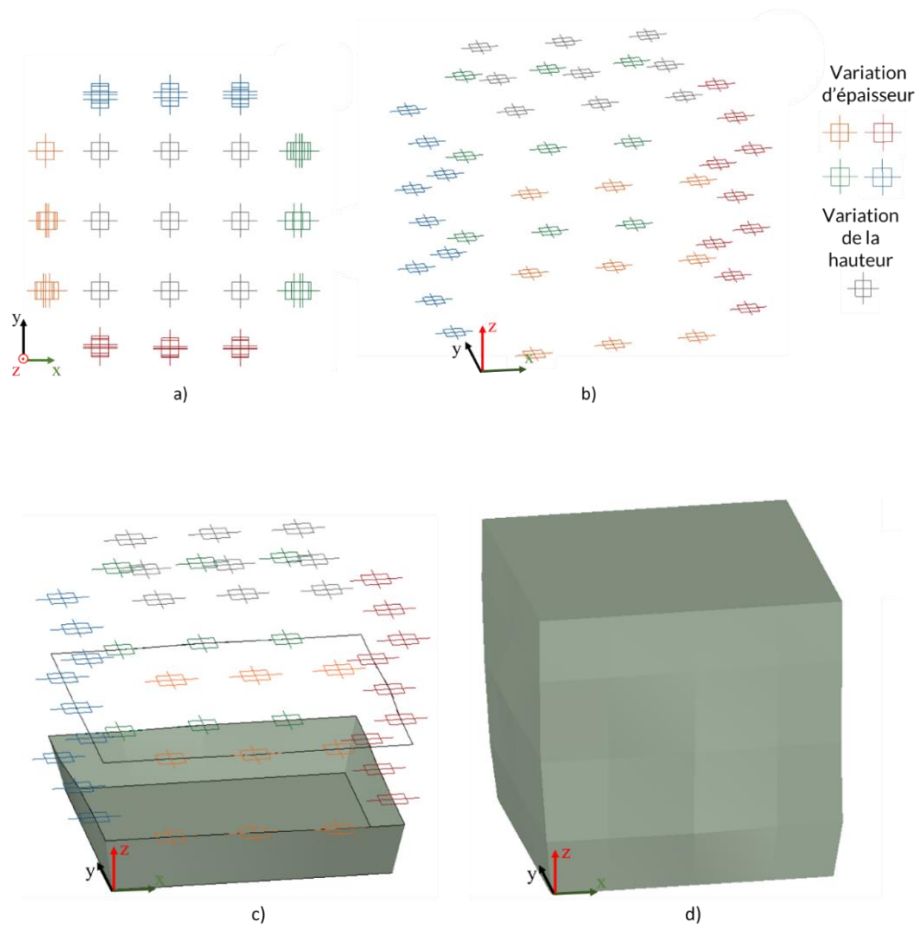


Figure IV. 12 : (a)-(b) Définir les coordonnées des points, (c) dessiner le contour et (d) générer le contour.

Par ailleurs, le contour généré révèle une surface irrégulière résultant d'un gonflement inégal des points le long de la même ligne. En effet, le gonflement présente des variations considérables d'un point à un autre sur les différentes facettes du matériau, comme illustré dans la Figure IV. 13 . Ces observations démontrent que les variations dimensionnelles ne sont pas uniformes à travers le biocomposite, ce qui peut engendrer des disparités de comportement et de propriétés au niveau de sa surface. Par ailleurs, il est possible de quantifier la variation du volume entre les états d'humidité relative (HR). En passant de 12% à 90% d'HR, le biocomposite présente un gonflement de $4\pm 1\%$. En revanche, en passant de 90% d'HR à 12% d'HR, il subit un rétrécissement de 1%, comme illustré dans la Figure IV. 14.

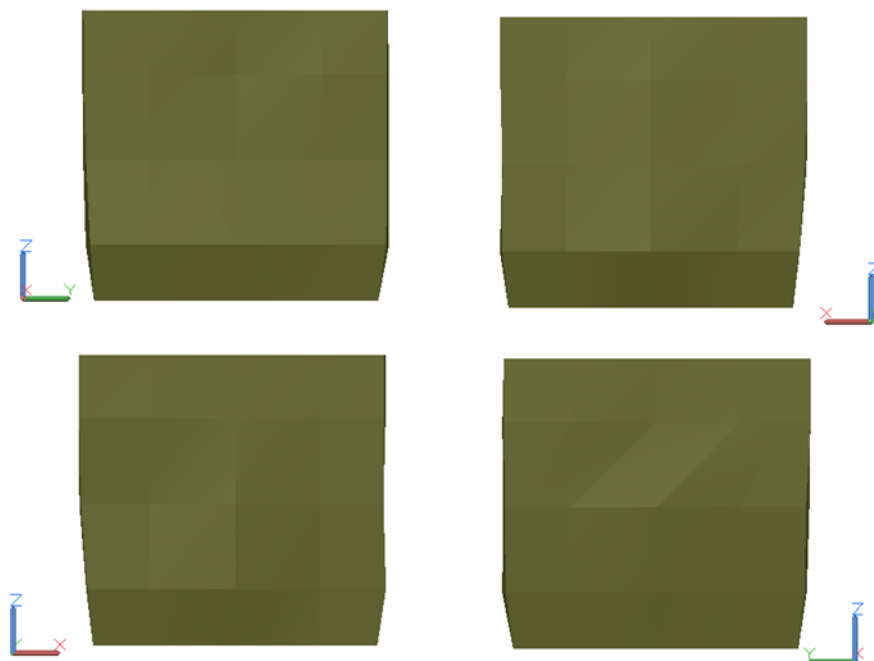


Figure IV. 13 : Représentation en facettes du biocomposite : Variation de surface due au gonflement inégal

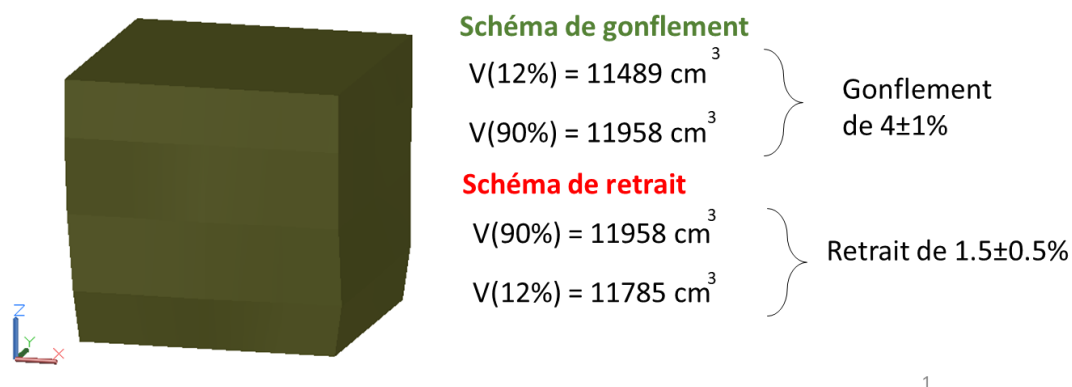
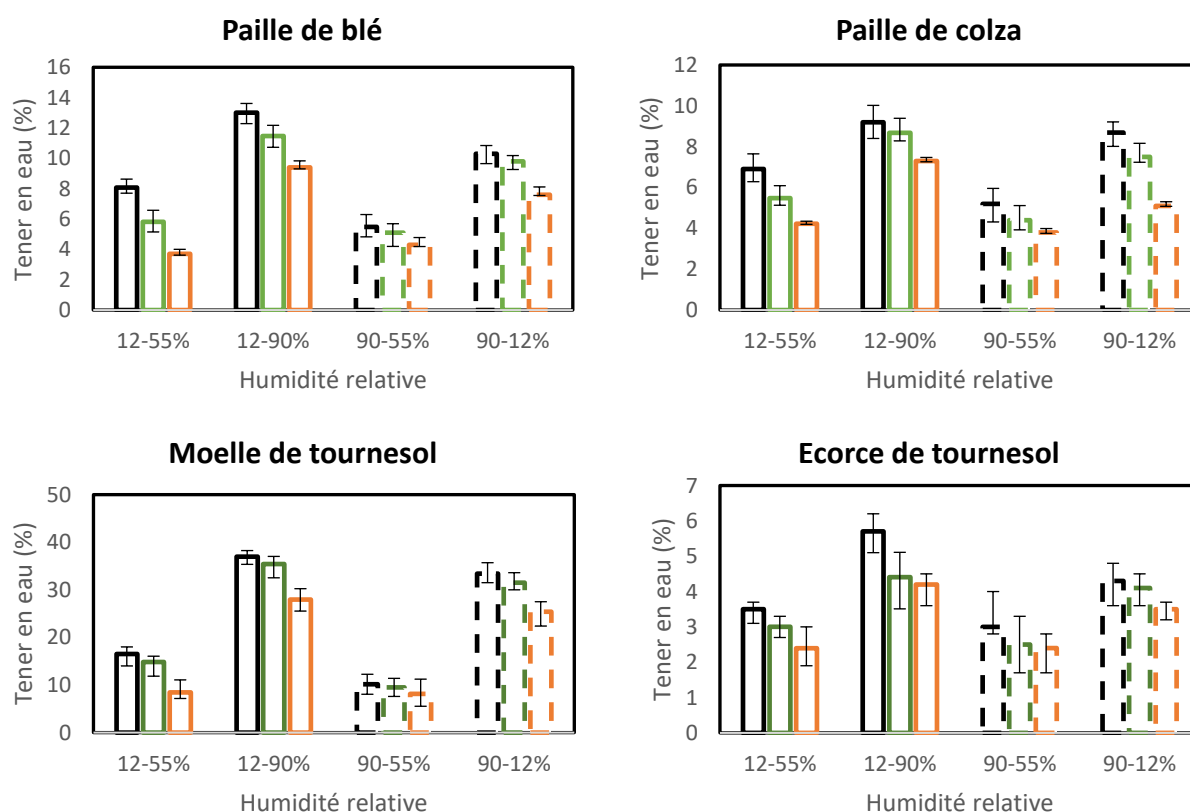


Figure IV. 14 : Variation de volume entre 12%HR et 90%HR, et réciproquement : Comportement dimensionnel du biocomposite en réponse aux changements d'humidité

IV.6 Absorption d'eau pendant le gonflement et le retrait

La Figure IV. 15 présente les différentes teneurs en eau des biocomposites mesurées aux cours des cycles humidification/séchage utilisé pour l'étude des variations dimensionnelles. Le suivi de masse réalisé nous a permis de calculer le pourcentage de variation de masse par rapport à l'humidité de 12 % pour la phase d'humidification et par rapport à l'humidité de 90%/ pour la phase de séchage hydrique. Les biocomposites à base de moelle de tournesol ont montré des taux d'absorption d'eau plus élevés que le mélange de moelle et d'écorce, la paille de blé, la paille de colza et l'écorce de tournesol seul. Ces résultats sont cohérents avec les observations des variations de gonflement respectives des biocomposites. De manière significative, le traitement au NaHCO_3 a conduit à une réduction notable de l'absorption d'eau pour les différents types de biocomposites, avec des réductions allant de 20 à 26%. En revanche, le traitement au NaCl n'a entraîné qu'une réduction d'absorption d'eau de 4 à 12%.

Ces effets bénéfiques peuvent être attribués à des modifications spécifiques de la composition des granulats induites par le traitement au NaHCO_3 . Ces ajustements de composition des granulats confèrent une meilleure résistance à l'humidité, ce qui se traduit par une amélioration de la stabilité dimensionnelle des biocomposites. Ainsi, le risque de gonflement et de rétrécissement des biocomposites est réduit.



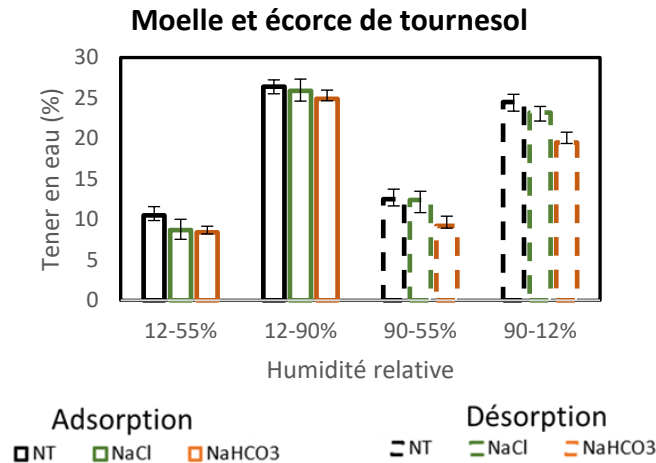


Figure IV. 15 : Absorption de l'eau en phase d'humidification HR12-90% exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et relâchement de l'eau en phase de séchage hydrique HR90-12% exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR.

IV.7 Simulation numérique du test du gonflement et détermination du coefficient d'hygro expansion

Les résultats des expériences précédentes ont mis en évidence une compétition entre le gonflement des granulates internes du biocomposite et l'effet gravitationnel du poids de l'eau sur le matériau. Étant donné que le biocomposite étudié est un matériau fortement poreux, il présente une forte sensibilité à l'absorption d'eau [217] [50]. Cette dernière entraîne un gonflement des granulates, mais elle résulte aussi en une augmentation significative du poids propre du matériau. Par ailleurs, les propriétés mécaniques des biocomposites dépendent fortement de l'humidité. Le module d'Young est notamment beaucoup plus faible en présence d'humidité. Par conséquent, les variations dimensionnelles observées dans la direction verticale résultent d'une interaction complexe entre le gonflement des granulates et le raccourcissement de l'échantillon causé par l'augmentation de la masse volumique due à l'absorption d'eau.

Le caractère hydrophile des granulates joue un rôle important dans l'influence des propriétés mécaniques du biocomposite. Des recherches antérieures [218] ont démontré que l'eau peut entraîner une réduction du module de Young du matériau biocomposite. Cette diminution du module de Young induit une baisse de la rigidité et de la résistance mécanique du matériau. En conséquence, le biocomposite peut perdre sa capacité à supporter efficacement son propre poids, ce qui peut se traduire par des phénomènes de contraction. Pour estimer le module de Young de ces matériaux une simulation numérique via le logiciel COMSOL Multiphysics® a été réalisée.

IV.7.1 Configuration étudiée

Comsol Multiphysics est un solveur capable de résoudre divers problèmes de recherche et d'ingénierie, notamment ceux impliquant plusieurs phénomènes simultanés comme le transfert couplé de chaleur et d'humidité. Dans notre cas, où la température est maintenue constante, notre objectif est de modéliser le transfert d'humidité imposées en variant l'humidité relative, ce qui affecte le gonflement et l'absorption d'eau.

L'étude proposée consiste à simuler le comportement hygrothermique d'un échantillon de béton biosourcé d'une épaisseur de 10 cm, exposé à un flux d'humidité sur trois surfaces du cube de l'échantillon considérées comme libre. La présence d'une base en polystyrène dans le modèle permet de prendre en compte une condition d'encastrement sur la base de l'échantillon ($y=0$), tandis que les autres surfaces sont considérées comme libres.

Le couplage hydromécanique utilisé intègre le transport d'espèces diluées, la mécanique du solide et le phénomène de gonflement hygroscopique. Les propriétés nécessaires pour cette simulation sont les concentrations relatives de l'eau absorbée pendant le cycle d'humidification en se focalisant sur des plages de concentration entre 12%HR et 90%HR. La mécanique du solide est représentée avec les propriétés du matériau suivantes : masse volumique, coefficient de Poisson et module d'Young. Les matériaux sont considérés comme élastiques linéaires. La porosité n'est pas prise en compte dans ce modèle.

Dans cette étude, nous avons utilisé les maillages automatiques extrêmement fin triangulaires, Figure IV. 16 **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**, disponibles dans COMSOL Multiphysics®. L'ensemble de cette modélisation permet de simuler du gonflement hygroscopique du matériau composite en prenant en compte à la fois l'absorption d'eau, les propriétés mécaniques du matériau et les conditions aux limites citées précédemment.

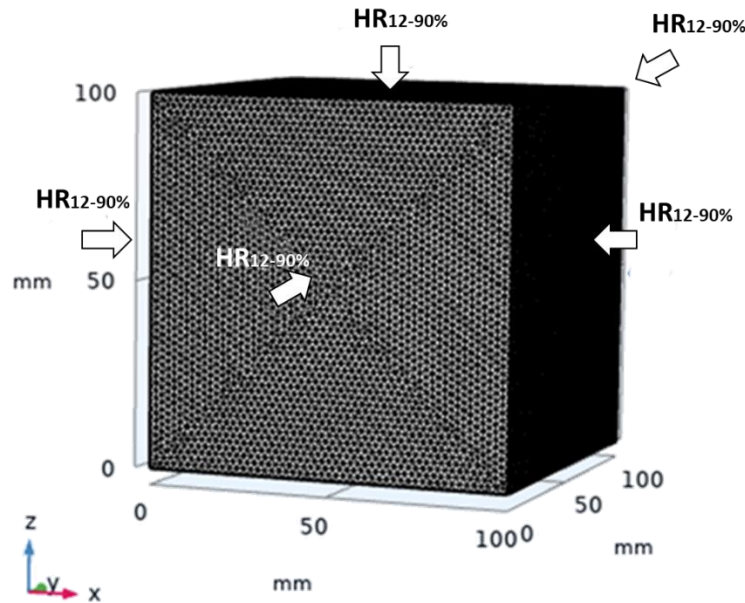


Figure IV. 16 : Représentation visuelle montrant un maillage extrêmement fin de l'échantillon.

Le phénomène de gonflement hygroscopique est modélisé par une approche multiphysique impliquant le transport d'espèces diluées et la mécanique du solide. Les conditions aux limites pour cette physique sont déterminées en fonction des propriétés matériaux et par le flux de concentration massique :

$$C_{m1} = \frac{\text{masse de l'eau absorbée entre HR 12-55 \%}}{M \cdot \text{Volume de l'échantillon}} \quad (23)$$

$$C_{m2} = \frac{\text{masse de l'eau absorbée entre HR 12-99 \%}}{M \cdot \text{Volume de l'échantillon}} \quad (24)$$

Le coefficient d'hygroexpansion sur Comsol est un paramètre déterminé en fonction de la concentration massique, qui est déduite de la teneur en eau du matériau en relation avec l'humidité relative. L'indice est calculé à partir des taux de gonflement observés expérimentalement lors du processus d'absorption d'humidité, s'étendant sur les plages d'humidité relative de 12 à 55 % et de 12 à 90 % (HR). Cette évaluation est réalisée en se référant à la ligne supérieure $h_z=8$ cm. Cette hauteur spécifique présente le taux de gonflement le plus marqué et n'est pas soumise aux conditions contraignantes d'encastrement à la base, et de plus, elle est relativement peu sensible à l'effet Poisson. Cette insensibilité provient principalement de l'épaisseur négligeable de matériau située au-dessus de cette ligne, atténuant ainsi l'impact de l'effet Poisson. La formule pour calculer le coefficient d'hygroexpansion sur Comsol est la suivante :

$$\beta_{\text{comsol}} = \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{M \cdot (C_{m1} - C_{m2})} \text{ m}^3/\text{Kg} \quad (25)$$

Avec : ε_1 [-] est la déformation due à la variation hydrique entre HR 12% et HR 55%, et ε_2 [-] est la déformation due à la variation hydrique entre HR 12% et HR 90%, C_{m1} et C_{m2} sont les variations de concentration molaire (mol.m^{-3}) déduite de la variation de teneur en eau entre HR 12% et HR 55% et entre HR 12% et HR 90% respectivement et M est la masse molaire de l'eau mol/Kg .

IV.7.2 Résultat de la simulation

Tout d'abord, nous identifions le coefficient d'hygroexpansion à partir des données expérimentales pour parvenir à une déformation latérale identique à 8 cm de hauteur entre les simulations numériques et les mesures expérimentales. En prenant en compte le coefficient d'hygroexpansion déterminé expérimentalement (équation 25) ainsi que le poids obtenu par l'absorption d'eau, il nous reste le module de Young en tant que paramètre à calculer. Étant donné que nous n'avons pas pu réaliser de tests mécaniques sur nos échantillons après chaque palier d'humidité, afin de maintenir la continuité des mesures de déplacement, nous estimons le coefficient du module de Young jusqu'à ce que nous trouvions le raccourcissement correspondant trouvé expérimentalement.

L'identification du module de Young se réalise en fonction du raccourcissement de la hauteur entre ces deux mêmes états hydriques, c'est-à-dire entre 12 % et 90 % d'humidité relative. Dans cet intervalle, la masse d'eau absorbée est mesurée. Cette valeur est déduite de la courbe d'absorption d'eau de l'échantillon durant la phase d'humidification.

L'absorption d'eau par l'échantillon met en évidence la contraction verticale, tout en tenant compte de la diminution des propriétés mécaniques du biocomposite, voir Figure IV. 17.

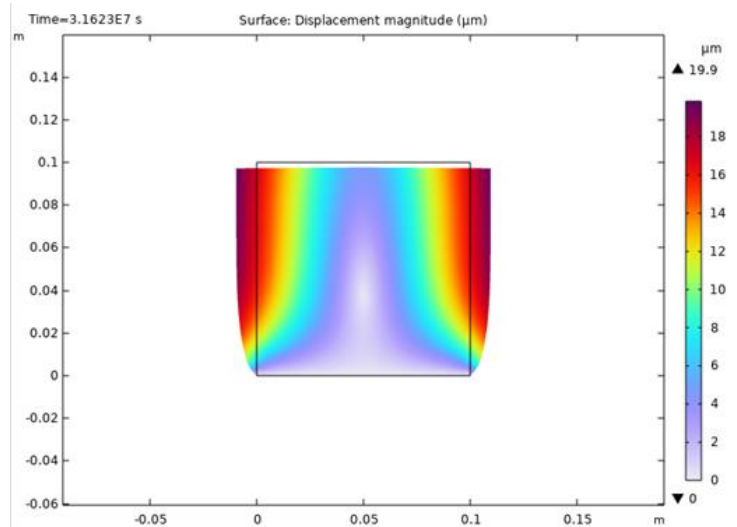


Figure IV. 17 : Image en 2D illustrant un exemple de simulation numérique mettant en évidence la réduction de la hauteur et le gonflement des côtés.

La Figure IV. 18 présente l'échantillon déformé suite à la simulation, tandis que le Tableau IV. 2 donne les valeurs des modules de Young correspondants. Il convient de noter que le module de Young obtenu représente la valeur à l'état humide, à 90%HR. Par ailleurs, le coefficient bêta d'hygroexpansion des biocomposites diffère significativement de celui des granulats seuls. Cette disparité s'explique par la composition spécifique des biocomposites, où la présence du liant limite le gonflement des granulats dans toutes les directions.

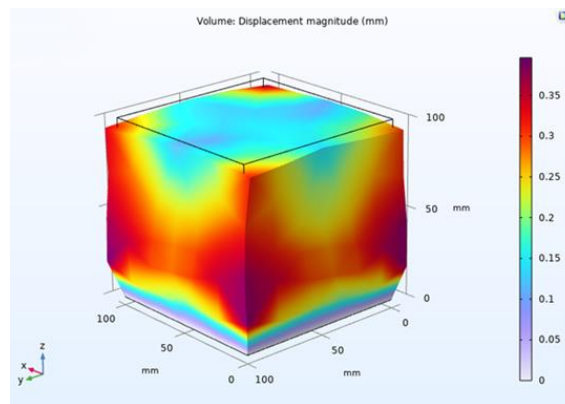


Figure IV. 18 : Résultat de la simulation numérique en passant de HR12% et HR 90%

Cependant, malgré cette influence du liant, les biocomposites suivent généralement le comportement des granulats qui les composent. Les biocomposites à base de moelle de tournesol et le mélange de moelle-Ecorce de tournesol, ainsi que la paille de blé, ont montré les coefficients d'hygroexpansion les plus marqués, suivis par l'écorce de tournesol et la paille de colza.

Néanmoins, nous ne pouvons pas confirmer une loi qui relie de manière généralisée le comportement des granulats avec celui des biocomposites, car le comportement des biocomposites est complexe et peut dépendre de multiples facteurs. Nous avons relevé un comportement atypique des biocomposites, présentant un retrait en hauteur et un gonflement

en épaisseur lors de la phase d'absorption d'humidité. De plus, le traitement a amélioré le module de Young par rapport au biocomposite dont les granulats n'ont pas été traités.

Cette amélioration indique que le traitement a eu un impact positif sur les propriétés mécaniques du matériau en renforçant sa résistance à la déformation, même après le processus d'absorption d'eau et de retrait. Cette amélioration est aussi remarquable en diminuant le coefficient d'hygroexpansion de chaque biocomposite.

Tableau IV. 2 : Coefficient hygroexpansion des biocomposites en fonction du module de Young

		NT	NaCl	NaHCO₃
Paille de blé	E (Pa)	10077	11097	14097
	$\beta_{\text{exp}} \text{ m}^3/\text{Kg}$	4,16E-04	3,93E-04	3,36E-04
Paille de colza	E (Pa)	33000	35000	42000
	$\beta_{\text{exp}} \text{ m}^3/\text{Kg}$	2,49E-04	2,33E-04	1,66E-04
Moelle de tournesol	E (Pa)	4900	7200	8200
	$\beta_{\text{exp}} \text{ m}^3/\text{Kg}$	4,66E-04	4,61E-04	3,96E-04
Moelle et écorce de tournesol	E (Pa)	4000	50200	78200
	$\beta_{\text{exp}} \text{ m}^3/\text{Kg}$	4,18E-04	3,69E-04	3,49E-04
Ecorce de tournesol	E (Pa)	110000	120000	170000
	$\beta_{\text{exp}} \text{ m}^3/\text{Kg}$	3,02E-04	2,86E-04	2,24E-04

IV.8 Conclusion

La présente étude a contribué à une meilleure compréhension du comportement de gonflement et de retrait des biocomposites en réponse à l'interaction avec l'eau et aux variations d'humidité. Nous avons développé un banc d'essai qui permet une mesure sans contact de l'épaisseur des échantillons de matériaux biosourcés.

L'analyse des résultats a révélé un comportement opposé entre l'épaisseur et la hauteur des biocomposites en réponse à la variation d'humidité. Pendant la phase d'humidification, la hauteur se rétracte et l'épaisseur gonfle, tandis que pendant la phase de séchage, la hauteur gonfle et l'épaisseur se rétracte. Les courbes de gonflement par rapport à l'état sec de 12% HR révèlent également un comportement de gonflement et de retrait irréversible des biocomposites. Cela signifie qu'après des cycles d'humidification et de séchage, les biocomposites ne parviennent pas à retrouver entièrement leur état initial.

Le comportement de gonflement et de retrait des biocomposites varie en fonction du type de granulat utilisé. On observe que les biocomposites contenant des granulats de moelle de tournesol présentent un gonflement de 5,4 %, ce qui est supérieur à celui à base de paille de blé (4,5 %), de paille de colza (1,5 %) et d'écorce de tournesol (0,45 %). Ces taux de gonflement suivent un schéma similaire à celui observé pour le gonflement et le retrait des granulats en vrac entre 12 % et 90 % HR. Toutefois, lorsque la moelle et l'écorce sont combinées, le taux de gonflement du biocomposite est réduit, atteignant 4,5 %. Ainsi, le mélange d'écorce et de moelle présente un avantage en termes de réduction du gonflement et du retrait.

De plus, les résultats ont démontré que le prétraitement des granulats avant la fabrication des biocomposites a considérablement diminué les taux de gonflement et de retrait. Le traitement au NaCl a conduit à une réduction de 28% du gonflement pour les biocomposites à base de blé,

de 11% pour la paille de colza, de 15% pour la moelle de tournesol, de 25% pour l'écorce de tournesol, et de 12% pour le mélange de moelle et d'écorce de tournesol. De manière plus marquée, le traitement au NaHCO_3 a permis des réductions encore plus importantes, atteignant 50% pour les biocomposites à base de blé, 40% pour la paille de colza, 30% pour la moelle de tournesol, et 34% pour l'écorce de tournesol.

En utilisant la simulation numérique, nous avons réussi à déterminer le module de Young théorique correspondant au coefficient d'hygroexpansion expérimental, en prenant en compte le raccourcissement induit par l'absorption d'eau. En effet, une compétition entre le gonflement interne des granulats du biocomposite et l'effet gravitationnel de l'eau est en jeu. La prédominance de granulats hydrophiles dans sa composition provoque un gonflement de l'épaisseur lorsqu'il absorbe l'eau. Cependant, ce gonflement est en compétition avec la force gravitationnelle, limitant ainsi l'expansion des granulats dans la direction verticale. Ainsi, les variations dimensionnelles observées sont le résultat d'une interaction complexe entre ces forces antagonistes. Les résultats ont démontré que l'absorption d'eau peut réduire de manière significative le module de Young des biocomposites.

Chapitre 5 : Influence de l'enduit de protection sur le gonflement retrait : expérimentation à l'échelle du système biocomposite-enduit

V.1 Introduction.

Dans ce chapitre, les variations dimensionnelles des biocomposites revêtus sur une face par un enduit de protection sont étudiées. L'objectif principal est d'examiner l'influence du gonflement et du retrait des matériaux biosourcés sur l'enduit, et inversement. En effet, les biocomposites sont mis en œuvre avec un enduit de protection que ce soit dans le cas d'une isolation par intérieur ou par extérieur. Afin de reproduire le plus fidèlement possible les conditions de mise en œuvre, l'expérimentation de ce chapitre a été réalisée avec les biocomposites recouverts avec un enduit à base de chaux et sable calcaire développé dans les travaux précédents [5]. Deux scénarios de variation d'humidité ont été choisis pour étudier le comportement de gonflement retrait du biocomposite et de l'enduit. Le premier est celui du cycle humidification-séchage utilisé dans les deux chapitres précédents, et le deuxième correspond à des cycles répétés d'immersion-séchage. Pour le premier, le sens du transfert hydrique et l'échange avec l'environnement a été pris en compte avec deux configurations différentes. La première l'échantillon (biocomposite-enduit) a été exposé totalement dans toutes les directions à la variation d'humidité, alors que, pour la deuxième, un transfert unidirectionnel a été imposé en protégeant les faces latérales avec l'aluminium adhésif.

Seuls les granulats non traités et traités au bicarbonate de sodium ont été utilisés pour fabriquer les biocomposites. En effet, les résultats du chapitre précédent ont montré que ce traitement s'avère plus efficace que celui au chlorure de sodium.

Différents échantillons de matériaux biosourcés, composés de granulats de paille de blé, de paille de colza et de moelle de tournesol, ont été soumis à des variations d'humidité et leurs variations dimensionnelles ont été mesurées à l'aide du dispositif présenté au chapitre précédent. La section V.2 sera dédiée à l'analyse des mesures dans le cas de variation d'humidité en mettant en évidence l'influence de l'enduit. Ensuite, les résultats dans le cas des cycles d'immersion-séchage seront présentés dans la section V.3.

V.2. Résultats de cycle d'humidification séchage

Dans le cadre de cette étude, nous avons exposé des échantillons de biocomposites revêtus d'enduit de protection, sans et avec recouvrement en aluminium, à un cycle d'humidification et de séchage. Ces cycles ont été réalisés au moyen d'une chambre climatique, comme illustré sur la Figure V. 1. Comme pour le cas des granulats et biocomposites seuls, les paliers d'humidité relative sélectionnés étaient respectivement de 12% HR, 55% HR et 90% HR. Ensuite, nous avons effectué un cycle de séchage hydrique avec des valeurs d'humidité relative inversées, soit 90%HR, 55%HR et 12%HR. Ce protocole expérimental nous permet de comparer le comportement des biocomposites avec et sans enduit de protection. Les variations d'épaisseur et de hauteur sont mesurées à chaque palier d'humidité relative, permettant de déterminer les pourcentages de retrait pour chaque niveau d'humidité.

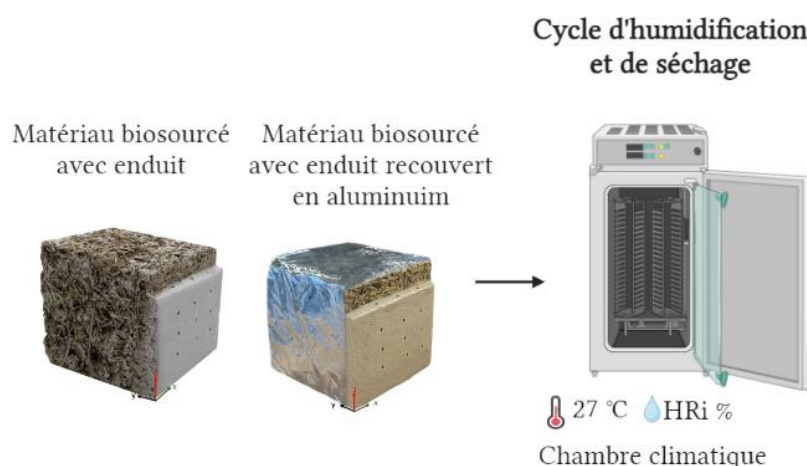


Figure V. 1 : Exposition des échantillons de matériaux biosourcés avec et sans recouvrement en aluminium lors de cycles d'humidification et de séchage

V.2.1 Variations dimensionnelles du biocomposites avec enduit : cas sans recouvrement en aluminium

V.2.1.a Direction perpendiculaire à l'enduit

La Figure V. 2 présente les points de mesure de l'épaisseur de l'échantillon dans la direction perpendiculaire à l'enduit appliqué. Les couleurs associées sur la figure seront également utilisées sur les histogrammes de variation dimensionnelle. Les histogrammes présentés dans la Figure V. 3 illustrent les variations dimensionnelles du biocomposite avec l'enduit de protection selon l'axe x'ox (face protégée par l'enduit). Les variations dimensionnelles sont calculées par rapport à l'état sec à 12% d'humidité relative (HR) pendant la phase d'humidification de 12% à 90% HR. En revanche, pendant la phase de séchage hydrique de 90% à 12% HR, les variations dimensionnelles sont calculées par rapport à l'état humide à 90% HR.

Au cours de la phase d'humidification, le comportement de gonflement du biocomposite dévoile une tendance progressive en fonction de la hauteur considérée. Plus précisément, l'épaisseur de l'échantillon présente un gonflement modéré de 0,64% à une hauteur de 2 cm, tandis que les valeurs augmentent de manière plus substantielle aux hauteurs supérieures : 1,3% à 5 cm, 1,6% à 8 cm et 3,2% à 9,5 cm. Une différence notable émerge entre la section du biocomposite revêtue d'enduit à 8 cm de hauteur et la portion non protégée à 9,5 cm. À 9,5 cm, le taux de gonflement atteint 3,2%, marquant une augmentation significative par rapport à celui de 1,6% enregistré à 8 cm, dans une gamme d'humidité relative comprise entre 12% et 90%. Ces observations soulignent le rôle essentiel joué par l'enduit en matière de protection du biocomposite, mais montrent également un risque de détachement de l'enduit par rapport au biocomposite en raison des déformations différentielles à l'extrémité de l'enduit.

Lors du chemin de séchage de 90% à 12% HR, les variations dimensionnelles montrent un retrait, ce dernier étant cependant moins prononcé que le gonflement. Il persiste donc toujours

une différence notable entre les chemins de gonflement et de retrait pour ces types de matériaux, que ce soit avec ou sans enduit de protection.

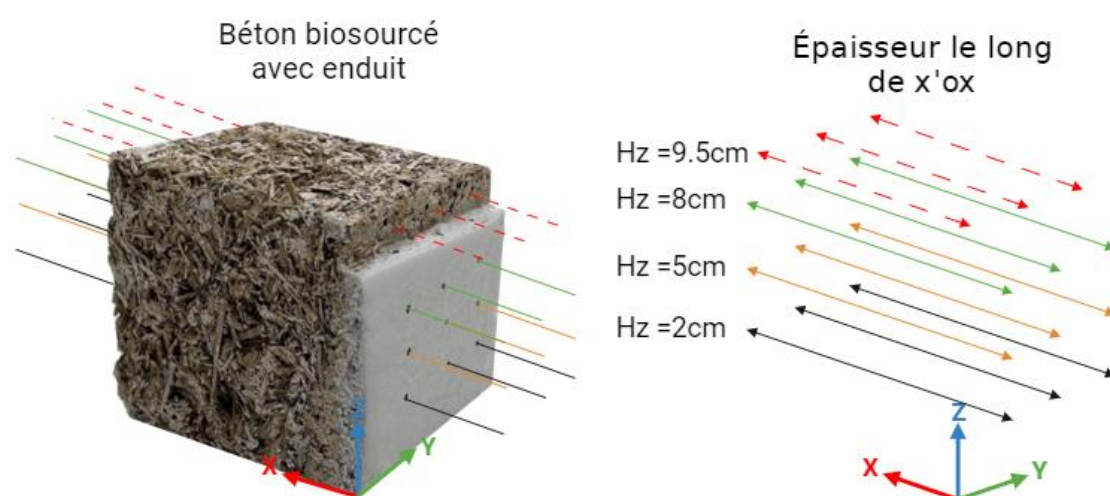


Figure V. 2 : Mesure de l'épaisseur de l'échantillon avec enduit dans la direction perpendiculaire de l'enduit

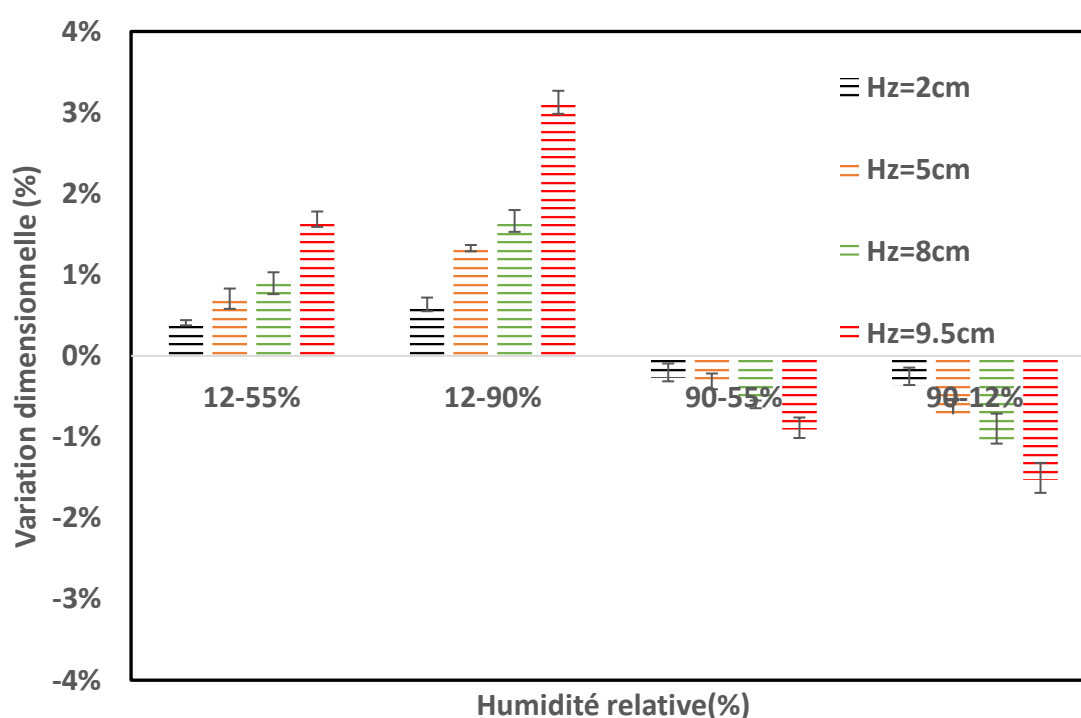


Figure V. 3 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur du biocomposite avec enduit de protection : x'ox (perpendiculaire à l'enduit) lors de la phase d'humidification de 12% à 90% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et de séchage de 90% à 12% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR

V.2.1.b Direction parallèle à l'enduit

La Figure V. 4 présente la direction de mesure de l'épaisseur de l'échantillon dans la direction perpendiculaire à l'enduit appliqué. Les couleurs associées sur la figure seront également utilisées sur les histogrammes de variation dimensionnelle. Les histogrammes présentés dans la Figure V. 5 illustrent les variations dimensionnelles du biocomposite avec l'enduit de protection selon l'axe y'o'y (faces libres sans enduit). Les variations dimensionnelles sont calculées par rapport à l'état sec à 12% d'humidité relative pendant la phase d'humidification de 12% à 90% HR. En revanche, pendant la phase de séchage hydrique de 90% à 12%, les variations dimensionnelles sont calculées par rapport à l'état humide à partir de l'humidité de 90%.

Pendant la phase d'humidification, le biocomposite subit un gonflement progressif le long de sa hauteur. L'augmentation d'épaisseur à une hauteur de 2 cm est moins marquée, atteignant 1,64 %, tandis qu'un gonflement de 2,32 % se produit à une hauteur de 5 cm, 2,65 % à 8 cm et 3,46 % à 9,5 cm. Parallèlement, lors de la phase de séchage hydrique, avec la diminution de l'humidité relative de 90 % à 12 %, un retrait progressif est observé en fonction de la hauteur : 1,09 % à 2 cm, 1,32 % à 5 cm, 1,92 % à 8 cm et 2,6 % à 9,5 cm.

Il convient de relever que le gonflement de l'épaisseur dans la direction perpendiculaire à l'enduit (L_x), où la surface est protégée, est moins important en comparaison de l'augmentation de l'épaisseur dans la direction parallèle à l'enduit (L_y), correspondant à la surface non protégée, pour une même hauteur. Cette disparité peut être attribuée, d'une part, à l'action de l'enduit, susceptible de restreindre l'absorption d'humidité le long de la surface revêtue, et d'autre part, à un empêchement « mécanique » de l'enduit s'opposant à la déformation du biocomposite.

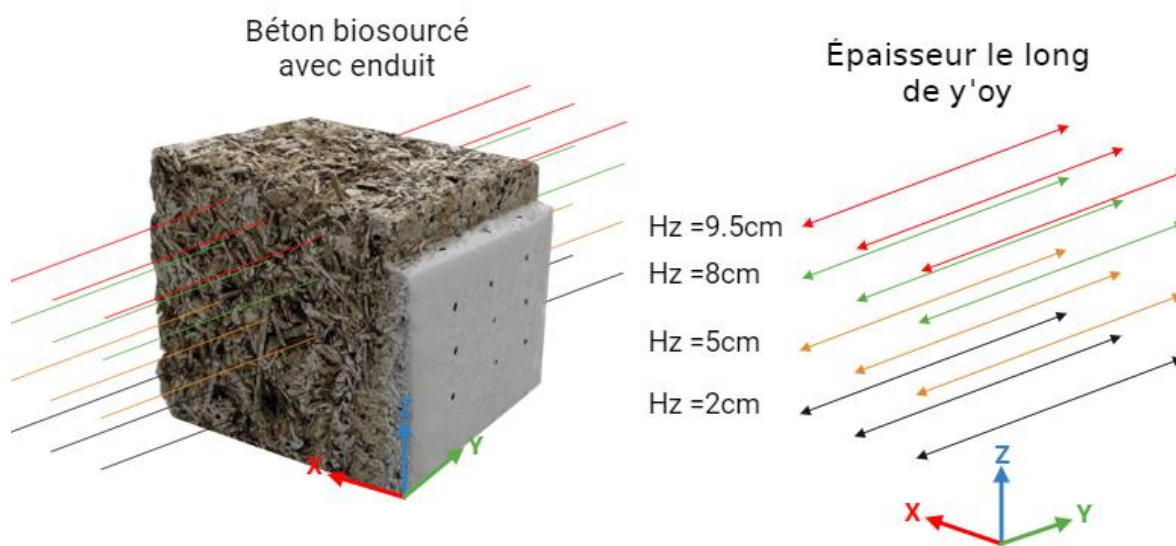


Figure V. 4 : Mesure de l'épaisseur de l'échantillon avec enduit dans la direction perpendiculaire de l'enduit

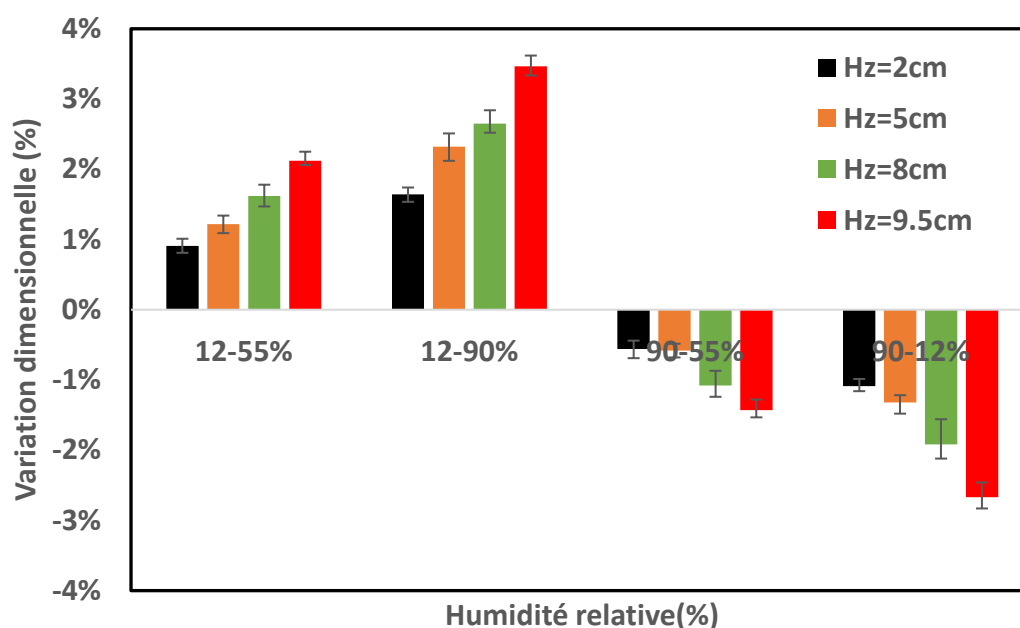


Figure V. 5 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur du biocomposite avec enduit de protection selon yoy (parallèle à l'enduit) lors de la phase d'humidification de 12% à 90% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et de séchage de 90% à 12% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR

La représentation des points dans le système d'axes en utilisant AutoCAD permet d'apporter une visualisation claire et précise des déplacements à différents niveaux. Sur la Figure V. 6 -a, nous observons les points qui ont été choisis pour mesurer les déplacements des longueurs Lx en direction perpendiculaire à l'enduit. Chaque point correspond à une position spécifique le long de la hauteur de l'échantillon.

Lorsque nous analysons de plus près les points à différentes hauteurs, nous constatons des variations dans les mesures, illustrées par les longueurs de ligne distinctes dans la Figure V. 6 -b. Notamment, lorsque trois points sont alignés à la même hauteur, une caractéristique intéressante émerge : certaines longueurs de ligne se révèlent être plus grandes que d'autres. Cette disparité dans les longueurs de ligne se traduit directement par des écarts dans les valeurs des déplacements mesurés entre ces points. En d'autres termes, les déplacements ne suivent pas un modèle uniforme et prévisible entre tous les points. Les variations subtiles dans la géométrie et la structure de l'échantillon influencent la manière dont les déplacements se propagent le long de sa hauteur. Cette observation témoigne de la complexité des interactions mécaniques et géométriques à l'œuvre dans le biocomposite.

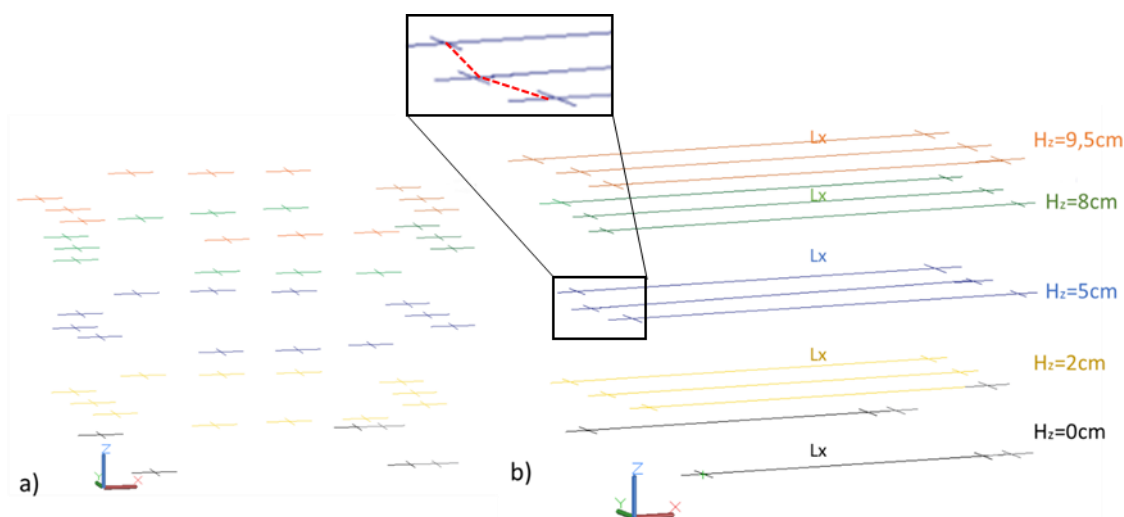


Figure V. 6 : Représentation des points de mesures à HR90% du biocomposite avec enduit

V.2.1.c Comparaison du retrait-gonflement du biocomposite avec et sans enduit

La Figure V. 7 illustre les variations dimensionnelles mesurées entre le biocomposite avec un enduit de protection et le biocomposite sans enduit de protection. Les couleurs associées sur la figure seront les mêmes que celles utilisées sur la courbe d'histogramme des variations dimensionnelles. Cette figure permet également de visualiser la direction choisie pour étudier la différence de comportement entre les deux échantillons. Cette comparaison est limitée à la mesure dans la direction perpendiculaire à l'enduit, Lx, pour une meilleure présentation des résultats.

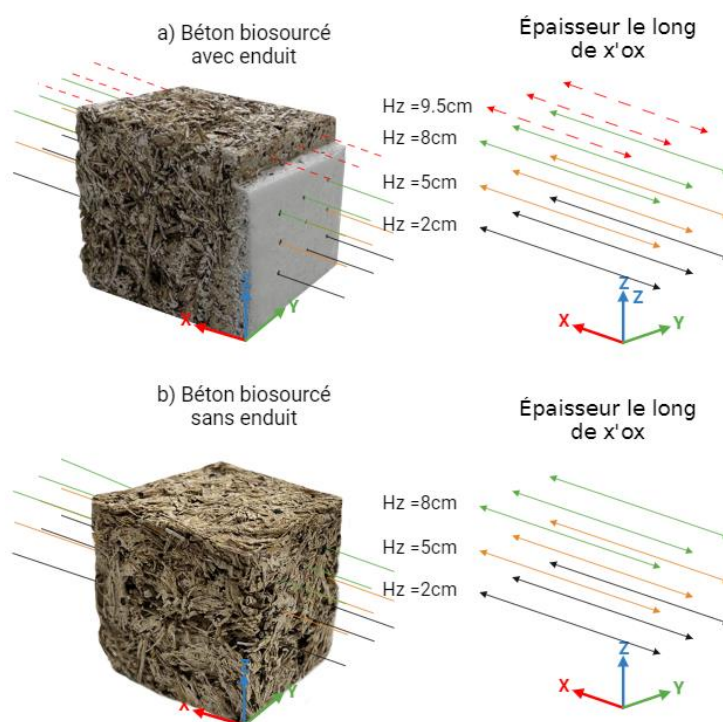


Figure V. 7 : Détermination des longueurs des biocomposites

Les histogrammes illustrés dans la Figure V. 8 présentent les variations dimensionnelles du biocomposite avec et sans enduit de protection tous deux étant du même type de biocomposite, à base de paille de blé. Pendant la phase d'humidification de 12% à 90% d'humidité relative (HR), les variations dimensionnelles sont calculées par rapport à l'état sec à 12% HR. En revanche, pendant la phase de séchage hydrique de 90% à 12% HR, les variations dimensionnelles sont calculées par rapport à l'état humide à 90% HR. Les résultats démontrent clairement qu'en couvrant le biocomposite avec au moins une face par un enduit de protection, le pourcentage de gonflement est significativement réduit par rapport aux échantillons sans enduit.

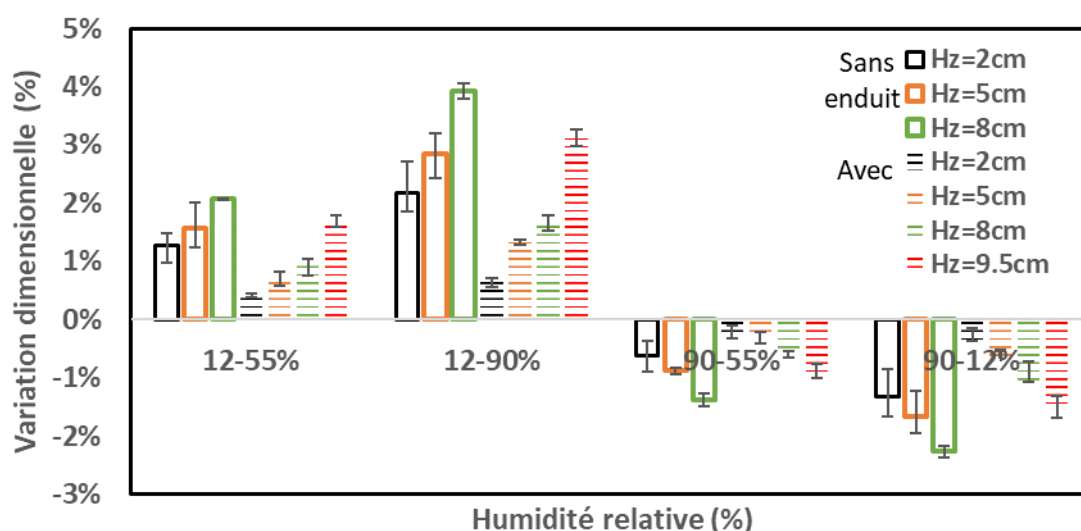


Figure V. 8 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur du biocomposite à base de paille de blé avec et sans enduit de protection lors de la phase d'humidification de 12% à 90% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et de séchage de 90% à 12% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR

Au cours de la phase d'humidification, le comportement de gonflement du biocomposite dévoile une tendance progressive en fonction de la hauteur considérée. Pour une analyse comparative entre l'échantillon revêtu d'enduit et son homologue non revêtu, des variations substantielles dans le comportement de gonflement de l'épaisseur se manifestent à différentes hauteurs. À une hauteur de 2 cm, l'échantillon revêtu présente un gonflement mesuré de 0,64 % de l'épaisseur, tandis que son équivalent non revêtu connaît un gonflement notablement supérieur de 2,2 %. Lorsque la hauteur est portée à 5 cm, l'échantillon revêtu révèle un gonflement de 1,3 %, alors que l'échantillon non revêtu affiche un gonflement plus significatif de 2,8 %. La différence la plus marquée entre les pourcentages de gonflement avec et sans enduit se produit à une hauteur de 8 cm, où l'échantillon revêtu présente un gonflement de 1,6 %, tandis que son homologue non revêtu connaît un gonflement plus prononcé de 3,9 %.

Cette comparaison valide la contribution significative de l'enduit de protection dans la limitation du gonflement du biocomposite en réduisant son absorption d'eau, même lorsqu'il est exposé à des taux d'humidité élevés.

La Figure V. 9 présente les comportements distincts du biocomposite sans enduit (Figure V. 9 a et b) et du biocomposite avec enduit (Figure V. 9 c et d) lorsqu'ils sont soumis à une variation

d'humidité de 12% à 90%. En l'absence d'enduit, le biocomposite est libre sur les côtés, ce qui permet aux granulats de gonfler dans toutes les directions horizontales en fonction de la hauteur.

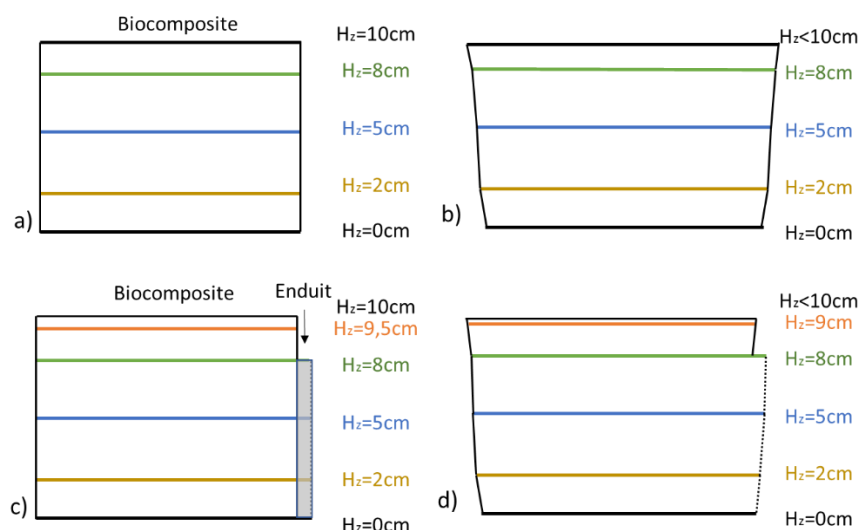


Figure V. 9 : Illustration schématique du comportement du biocomposites sans enduit (a) et (b) et avec enduit (c) et (d) entre l'état initial et final respectivement

V.2.2 Comparaison du comportement du biocomposites revêtus d'enduit avec et sans recouvrement en aluminium

Les relevés de mesure concernant les variations dimensionnelles ont été également effectués en utilisant une protection en aluminium pour les côtés, à l'exception de la facette revêtue d'enduit. Il est important de noter que la méthode de mesure a été adaptée, notamment en ajustant la configuration du capteur laser de déplacement par rapport aux essais conventionnels. Plus précisément, en utilisant deux capteurs disposés en opposition, nous avons procédé à des mesures différenciées, comme illustrée dans la Figure V. 10. D'un côté, nous avons enregistré la variation de la distance entre le capteur laser et le revêtement, tandis que de l'autre côté, nous avons pris en compte le point de référence marqué sur le ruban adhésif afin de stabiliser les mesures. Cette approche nous a permis de déduire le déplacement correspondant entre différents niveaux d'humidité relative en se basant sur les variations de distance mesurées entre le capteur laser et l'enduit.

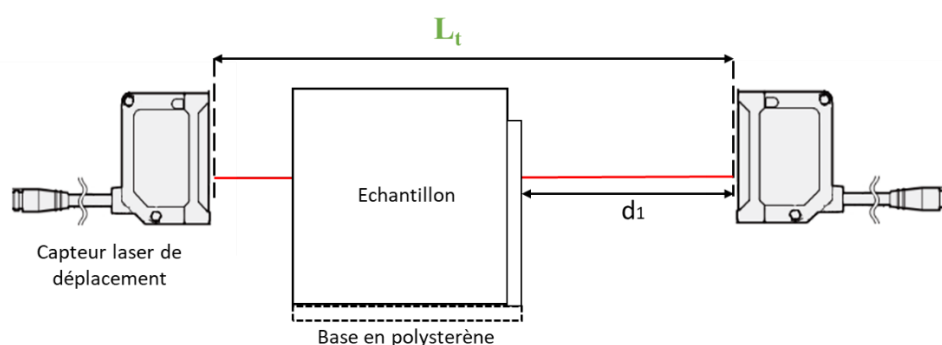


Figure V. 10 : Schéma illustratif de la méthode de mesure des variations dimensionnelles sur les échantillons recouverts d'un ruban adhésif en aluminium

Lors de l'analyse des mesures effectuées, nous avons noté que les variations présentent un comportement de gonflement lors de l'humidification, suivi d'un retrait lors du processus de séchage. Ce phénomène est analogue au transfert dans toutes les directions, mais il est important de noter que les variations ne sont pas égales entre chaque point. Nous avons observé une réduction du pourcentage de gonflement à 90 % d'humidité relative pour une hauteur de 9,5 cm, passant de 3,1 % pour les échantillons non recouverts à 1,45 % pour les échantillons recouverts. En parallèle, une diminution du pourcentage de retrait entre 90 % HR et 12 % HR pour la même hauteur (9,5 cm) a été constatée, passant de 1,5 % pour les échantillons non recouverts à 1 % pour les échantillons recouverts. Figure V. 11. Cette diminution peut être attribuée à divers facteurs et mécanismes. Parmi eux, il est plausible que l'effet de confinement induit par le ruban adhésif en aluminium joue un rôle significatif. L'application du ruban adhésif sur les échantillons peut avoir instauré une contrainte latérale qui restreint l'expansion libre des matériaux pendant l'humidification. Cette contrainte exerce un effet de barrière partiel sur le processus de gonflement, contribuant ainsi à la réduction observable du phénomène. Il est important de noter que le recouvrement des facettes, diminue l'absorption des biocomposites et par conséquent influence de manière significative son gonflement.

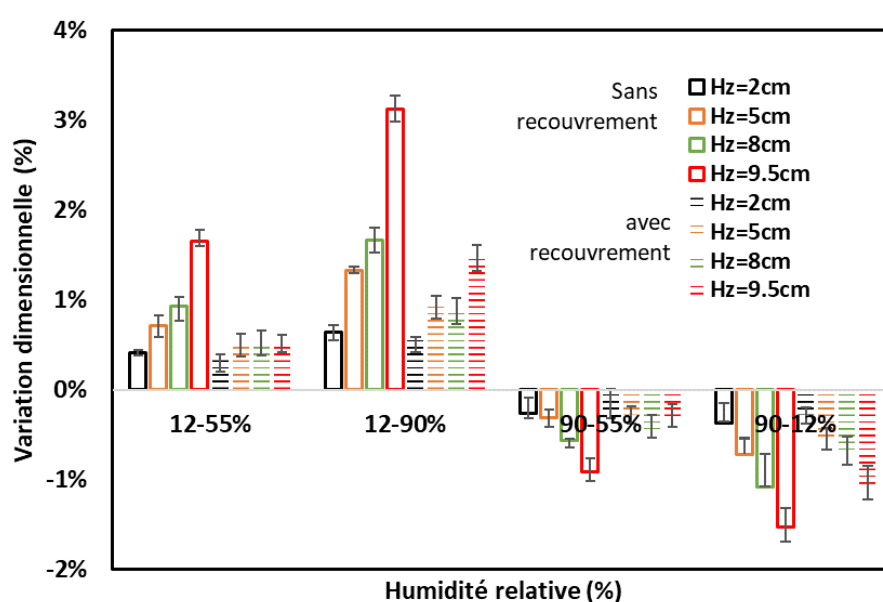


Figure V. 11 : Variations dimensionnelles de l'épaisseur des biocomposites à base de paille de blé avec enduit de protection sans et avec recouvrement selon différente hauteur lors de la phase d'humidification de 12% à 90% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et de séchage de 90% à 12% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR

V.2.3 Variations dimensionnelles de l'enduit

Pendant l'exposition du biocomposite à des variations d'humidité, une série de mesures de déplacement est effectuée autour de l'enduit, comme illustré sur la Figure V. 12. Les changements d'épaisseur résultant de l'exposition aux paliers de l'humidité relative sont présentés sur la Figure V. 13.

Les résultats de ces analyses révèlent des variations de l'ordre du micromètre par rapport au biocomposite. Cette observation suggère que l'enduit utilisé a conservé son intégrité structurale sans subir de déformations notables en réponse aux cycles successifs d'humidification et de séchage. Cette faible variabilité dimensionnelle observée peut être attribuée à la composition de l'enduit, à base de chaux et de sable calcaire, qui démontre une moindre sensibilité à l'humidité par rapport aux matériaux composites ce qui lui confère son rôle de protection. Une recherche menée par Monge [219] et Beshausen et al. [220] sur la mesure du retrait associé à la carbonatation avec un anneau. Des retrait de l'ordre de 0.01% [219] jusqu'à 0.08% [220] sont observés après démoulages de 1 jours. Igarashi et al. [221] ont immergé des échantillons de mortiers à base de ciment Portland dans l'eau pendant 100 et 200 jours. Le pourcentage de gonflement obtenu était de l'ordre de 0,013%. Cela indique que nos valeurs ne s'éloignent pas significativement des valeurs rapportées dans la littérature.

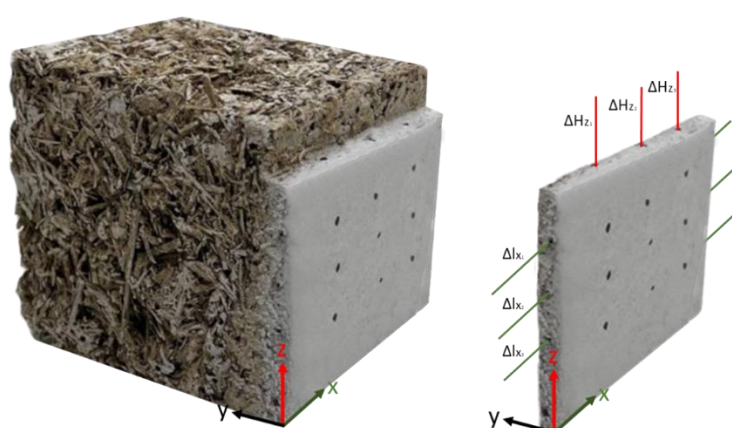


Figure V. 12 : Détermination des longueurs de l'enduit

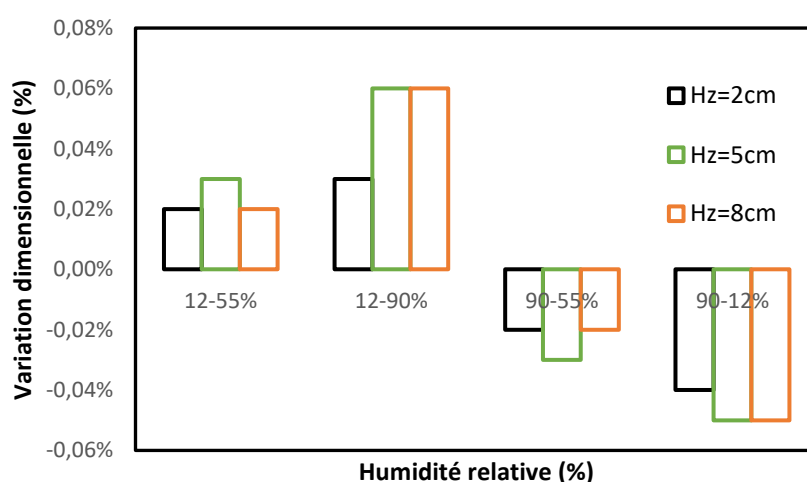


Figure V. 13 : Variations dimensionnelles de l'enduit de protection lors de la phase d'humidification de 12% à 90% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état sec à 12% HR et de séchage de 90% à 12% HR exprimées en pourcentage par rapport à l'état humide à 90% HR

V.3. Gonflement-retrait : effet des Cycles immersion-séchage

Le cycle d'immersion et de séchage a été utilisé ici pour évaluer la stabilité de l'échantillon avec enduit et de l'interface enduit-biocomposite sous l'effet d'un gonflement et de retrait répétés. Il faut noter que ces conditions d'immersion séchage des échantillons revêtus d'enduit sont plus sévères que les conditions réelles ou des fortes pluies peuvent agir que sur la face extérieure de l'enduit, avec une absorption d'eau par capillarité.

Les échantillons sont immergés complètement dans l'eau pendant une durée de 5 minutes, puis soumis à un processus de séchage en étuve jusqu'à stabilité de la masse de l'échantillon, généralement 2 à 3 jours. Ce cycle d'immersion-séchage qui n'est pas réaliste a été choisi uniquement pour étudier un gonflement-retrait important et répété et son influence sur l'interface enduit-support. La norme (EN 1015-21) proposée pour les enduits monocouches est différente et elle préconise une immersion partielle coté enduit et un test d'adhérence. Des mesures de déplacement sont réalisées à l'aide des capteurs de déplacement du même banc d'essai après chaque immersion et séchage afin de quantifier les variations dimensionnelles et d'évaluer le comportement du biocomposite vis-à-vis des variations de teneur en eau induites par le cycle d'immersion-séchage.

La Figure V. 14 et Figure V. 16 décrivent les effets de l'immersion et du séchage sur les biocomposites enduits à base de paille de blé, en comparant leur état initial à celui après séchage. De manière similaire, la Figure V. 15 et Figure V. 17 montrent les résultats pour les biocomposites de paille de colza. Les variations d'épaisseur sont examinées à deux hauteurs différentes : 9.5 cm pour la Figure V. 14 et Figure V. 15, et 8 cm pour la Figure V. 16 et Figure V. 17.

Les variations d'épaisseurs à une hauteur de 9.5cm sur le biocomposite (Figure V. 14 et Figure V. 16), montrent que le pourcentage de variation après immersion ou après séchage à un cycle donné et l'état initial diminue avec le nombre de cycles. Cette tendance peut s'expliquer en partie par le processus d'hornification qui se produit dans les matériaux à base de biomasse soumis à des cycles répétés d'humidification et de séchage. Au début des cycles, les fibres végétales du biocomposite peuvent gonfler davantage en absorbant l'eau, provoquant ainsi des variations dimensionnelles plus importantes. Cependant, au fur et à mesure que les cycles se répètent, les fibres subissent des changements structuraux liés à l'hornification. Ce processus conduit à une réorganisation des fibres et à une dégradation partielle de la microstructure du matériau. En conséquence, les fibres perdent progressivement leur capacité à absorber autant d'eau, ce qui réduit le pourcentage de gonflement observé. Une diminution progressive du gonflement pendant la phase d'humidification et du rétrécissement pendant la phase de séchage est observée. Ce résultat peut être attribué à des changements morphologiques et structurels plus prononcés résultant de l'hornification. Ceci montre également que l'effet des granulats végétaux, pour la paille de blé et la paille de colza, est prépondérant au niveau des mécanismes microstructuraux et influence de manière significative le comportement de gonflement-retrait des biocomposites.

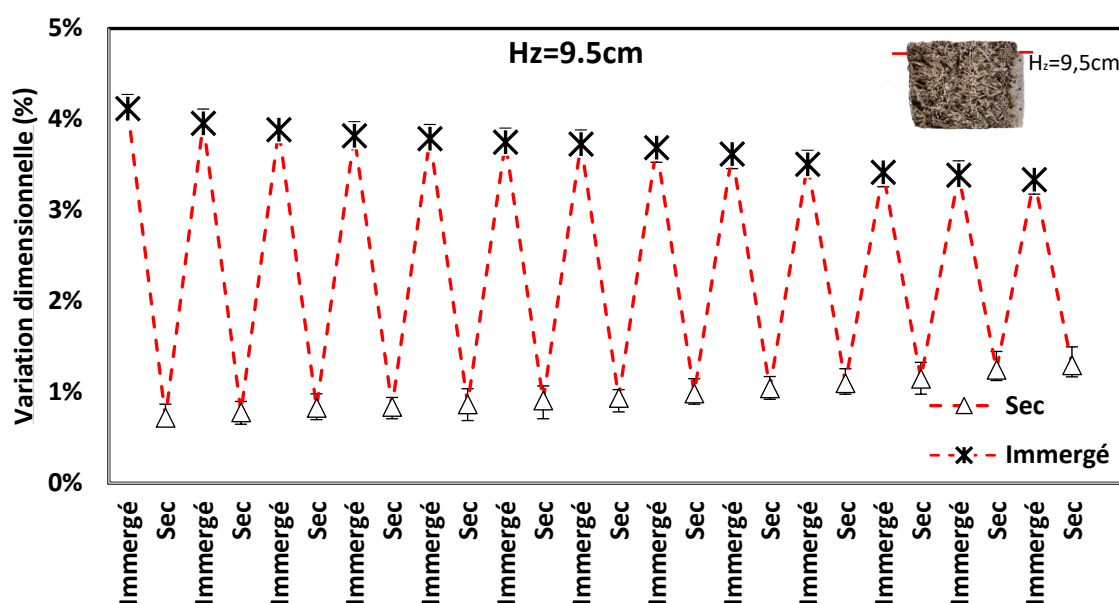


Figure V. 14: Variations dimensionnelles entre l'état initial sec et après chaque cycle d'immersion et de séchage de l'épaisseur à une hauteur de 9.5 cm (sur le biocomposite à base de paille de blé)

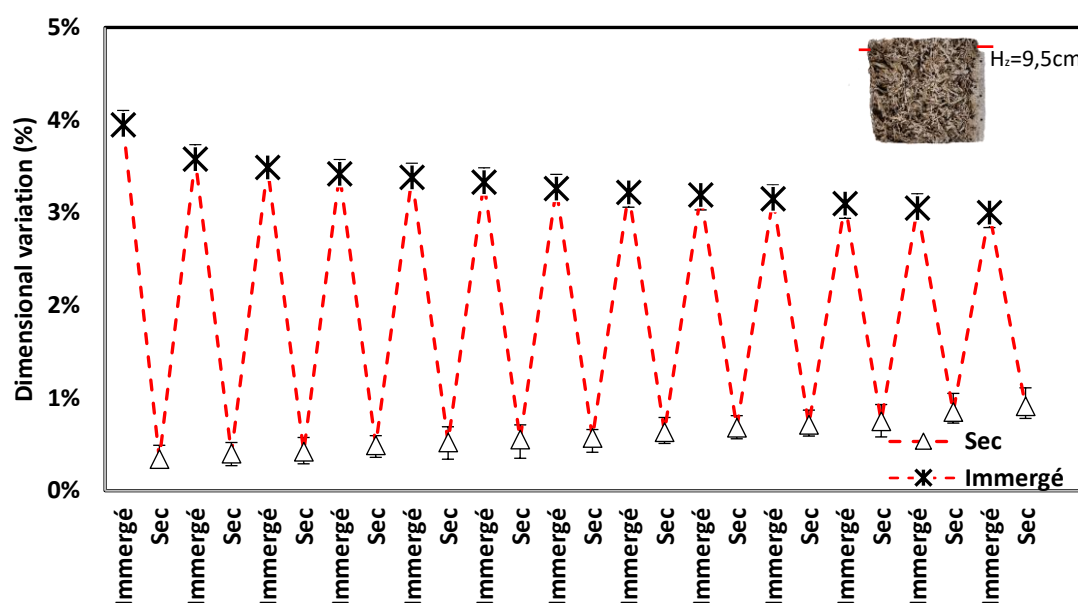


Figure V. 15 : Variations dimensionnelles entre l'état initial sec et après chaque cycle d'immersion et de séchage de l'épaisseur à une hauteur de 9.5 cm (sur le biocomposite à base de paille de colza)

Les variations d'épaisseurs à une hauteur de 8cm (Figure V. 15 et Figure V. 17), mettent en évidence les variations dimensionnelles entre l'état initial à sec et après chaque cycle d'immersion et de séchage de l'épaisseur à une hauteur de 8 cm (enduit/biocomposite). Au cours des premiers cycles d'immersion, les variations dimensionnelles suivent un schéma de gonflement suivi de rétrécissement. Il est à noter que des altérations internes du matériau peuvent influencer sa capacité à retrouver complètement sa forme d'origine. Cependant, à partir

du 7e cycle d'immersion pour le biocomposite à base de paille de blé et du 9e cycle d'immersion pour le biocomposite à base de paille de colza, un changement significatif est observé avec une augmentation notable du gonflement par rapport aux cycles précédents.

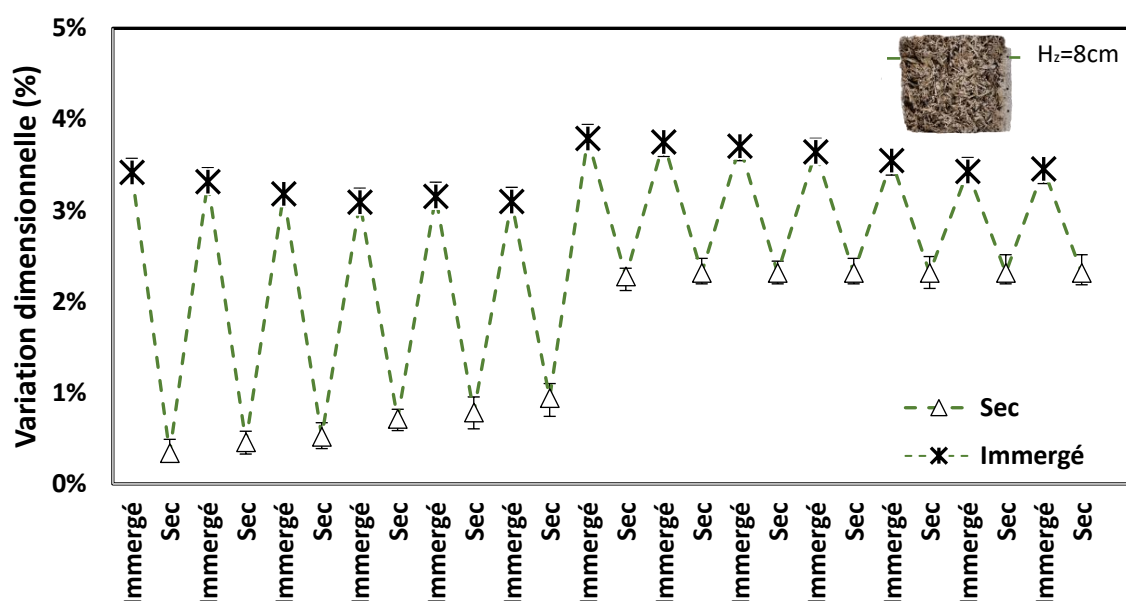


Figure V. 16: Variations dimensionnelles entre l'état initial sec et après chaque cycle d'immersion et de séchage de l'épaisseur à une hauteur de 8 cm (enduit/biocomposite à base de paille de blé)

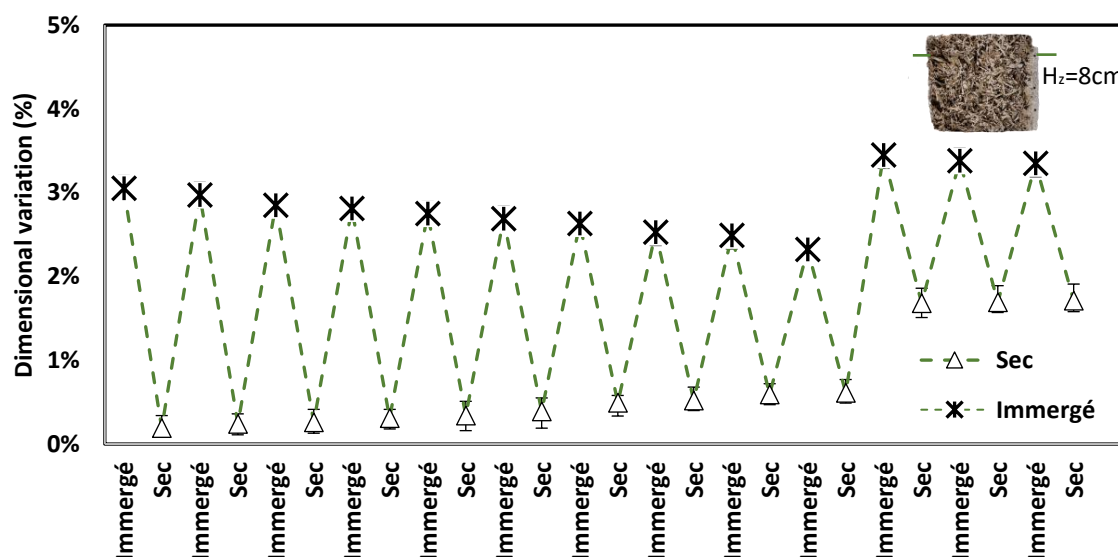


Figure V. 17 : Variations dimensionnelles entre l'état initial sec et après chaque cycle d'immersion et de séchage de l'épaisseur à une hauteur de 8 cm (enduit/biocomposite à base de paille de colza)

Cette augmentation inattendue du gonflement semble être le résultat d'un début de dégradation du matériau, ou d'une rupture au niveau de l'interface enduit-biocomposite suite aux changements morphologiques induits par les cycles répétés. La Figure V. 18 montre l'évolution

de l'interface entre le biocomposite et l'enduit à chaque étape du cycle d'immersion et de séchage. Ces résultats permettent d'observer l'apparition de fissures, qui se manifestent juste après la 7^{ème} immersion et continuent à se développer jusqu'à la 13^e immersion. Initialement, l'adhésion entre le biocomposite et le revêtement est relativement stable à l'aide de la rugosité de la surface du biocomposite. Le matériau gonfle de manière constante lorsqu'il est immergé pendant les premiers cycles d'immersion-séchage. Cependant, avec des cycles d'immersion et de séchage répétés, les contraintes mécaniques et les variations dimensionnelles commencent à affecter l'interface entre le biocomposite et le revêtement. Des fissures se forment alors, ce qui affaiblit la liaison entre les deux matériaux. Lorsque ces fissures apparaissent, elles affectent de manière importante le comportement du système enduit-support biocomposite, et peuvent conduire à une dégradation importante [222] [223].

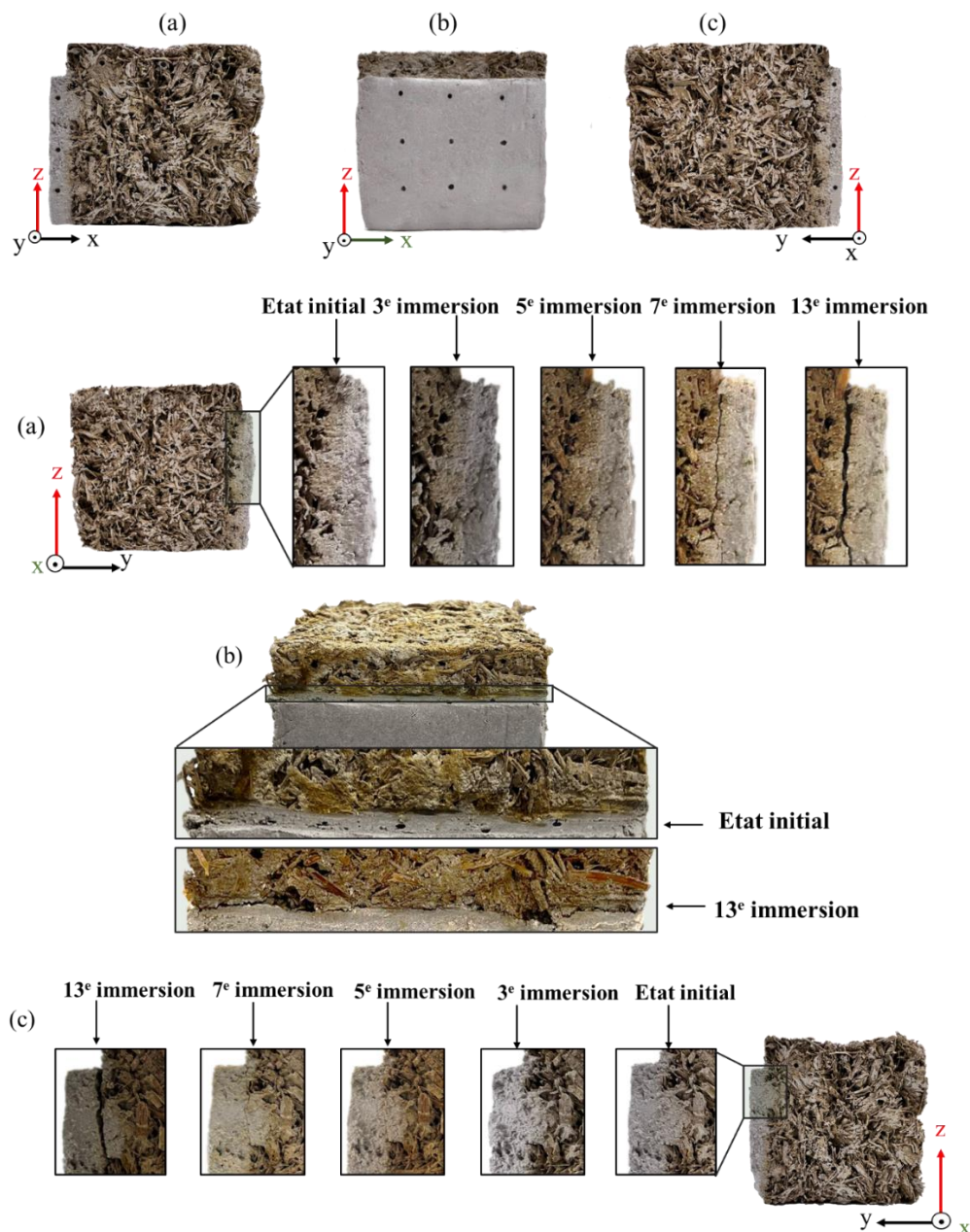


Figure V. 18 : (a) et (c) Vue de face des fissures entre l'enduit et le biocomposites des deux faces et (b) vue de dessous des fissures entre l'enduit et le biocomposites

V.4. Conclusion

Le présent chapitre se concentre sur l'approfondissement de la compréhension du comportement de gonflement et de retrait des biocomposites en réponse à leur interaction avec l'eau et aux fluctuations d'humidité, à une échelle réelle en considérant à la fois le biocomposite et l'enduit de protection. À l'aide des capteurs laser de déplacement, nous avons analysé les variations dimensionnelles des biocomposites revêtus d'un enduit de protection. Cette étude quantifie l'impact mutuel du gonflement et du retrait des matériaux biosourcés sur l'enduit, tout en évaluant les effets des différents scénarios d'humidité.

Malgré l'efficacité de l'enduit pour réduire le gonflement et le retrait du matériau, la formation potentielle de fissures entre le biocomposite et l'enduit s'est présentée avec une condition sévère d'immersion séchage. Une comparaison entre les biocomposites revêtus d'enduit exposés à une variation d'humidité totale dans toutes les directions et des matériaux non revêtus révèle que l'enduit limite effectivement le gonflement de la structure. Cependant, cette limitation peut également complexifier d'autres aspects du comportement. En d'autres termes, l'enduit agit comme une barrière partielle au gonflement de l'épaisseur. Les échantillons soumis à un transfert unidirectionnel, avec des faces latérales protégées par un adhésif en aluminium, montrent un gonflement moins marqué que les échantillons non protégés.

Les déformations différentielles qui se produisent au cours des cycles d'immersion et de séchage pourraient induire une formation de fissures entre l'enduit et le biocomposite, mettant en évidence l'importance de la gestion des contraintes dans les applications pratiques.

Conclusions générales et perspectives

L'utilisation de matériaux biosourcés dans le domaine de la construction a gagné en importance ces dernières décennies, en réponse à l'urgence croissante de promouvoir des pratiques durables et respectueuses de l'environnement. Les préoccupations liées aux émissions de carbone, à l'épuisement des ressources naturelles et aux impacts environnementaux ont poussé les chercheurs, les professionnels de la construction et les décideurs à explorer de nouvelles voies pour préparer un avenir bâti plus responsable. Les matériaux biosourcés, issus de sources renouvelables telles que les végétaux, offrent un potentiel considérable pour répondre à ces défis en proposant des solutions de construction plus écologiques, économes en énergie et durables sur le long terme.

La thèse présentée a permis d'explorer en profondeur le comportement des matériaux biosourcés face aux variations d'humidité. Grâce à la mise au point de différents dispositifs et protocoles de mesure originaux, les mécanismes de gonflement et de retrait des matériaux biosourcés ont pu être étudiés à différentes échelles, de la microscopie des granulats à la macroscopie des biocomposites sans et avec enduit de protection.

Tout d'abord nous avons quantifiés le pourcentage de gonflement et retrait pour quatre types de granulats végétaux : la paille de blé, la paille de colza, la moelle et l'écorce de tournesol. Ces ressources présentent des caractéristiques favorables pour l'isolation des bâtiments, notamment une disponibilité abondante, un potentiel isolant élevé, une forte porosité et une faible masse volumique. Les résultats soulignent la sensibilité de ces granulats végétaux aux variations d'absorption et de relâchement d'humidité relative, couvrant une plage allant de 12 % à 90 % HR. Parmi les granulats végétaux étudiés, la moelle de tournesol présente le taux de gonflement le plus élevé (42 %), suivi par la paille de blé (24 %), la paille de colza (14,6 %) et enfin l'écorce avec le taux de gonflement le plus faible (5 %) dans la plage d'humidité de 12 à 90 % HR. Ces variations de gonflement et de retrait des granulats sont principalement attribuables à leurs capacités d'absorption et de libération d'eau, créant une hystérésis entre les trajectoires de gonflement et de retrait avec des taux de retrait obtenus différents des taux de gonflement.

Les résultats obtenus ont clairement démontré l'importance des traitements appliqués aux granulats végétaux dans la maîtrise des phénomènes de gonflement et de retrait, ouvrant ainsi la voie à des améliorations significatives des performances des matériaux biosourcés. Dans notre recherche, nous avons entrepris une démarche d'optimisation et d'ajustement du protocole de traitement des granulats, visant à réduire simultanément les taux de gonflement et de retrait en tenant compte des mécanismes d'absorption d'eau. Les résultats préconisent un traitement de 72 heures des granulats avec une concentration en sel de 10 % en poids, suivi d'un rinçage minutieux de 20 minutes pour éliminer tout résidu de sel, suivi d'un séchage en étuve à 60 degrés Celsius, puis d'un séchage final à l'air libre.

Toutefois, il est important de noter que, bien que le traitement au NaCl vise à réduire les variations dimensionnelles des granulats de 20%, il s'est avéré moins efficace que le traitement au NaHCO₃, qui a réduit le gonflement de plus de 50 %. Cette efficacité a été confirmée par des analyses biochimiques, où le traitement au NaHCO₃ a éliminé l'hémicellulose, responsable de l'absorption d'eau, réduisant ainsi le pourcentage de gonflement. En contraste, le traitement au NaCl n'a pas eu d'impact significatif sur cette caractéristique.

L'observation d'un gonflement plus prononcé des granulats seuls est attribuable à leur nature hygroscopique intrinsèque. Néanmoins, les granulats enrobés de liant ont montré une certaine réduction du gonflement grâce à l'action du liant. Cependant, il est important de souligner que le liant seul ne peut pas éliminer complètement le phénomène de gonflement des granulats, ce qui peut potentiellement entraîner la dégradation et la fissuration des biocomposites. Ces constatations soulignent la complexité de l'étude de la mesure de la variation dimensionnelle globale des matériaux en réponse aux changements d'humidité, ainsi que les conséquences de ces variations sur leur comportement pour des applications durables et résistantes dans le temps. En conséquence, nous avons conçu une structure intégrant des capteurs laser de déplacement afin de mesurer les déplacements à l'échelle macroscopique des biocomposites.

Plusieurs formulations de mélanges à base de granulats végétaux ont été élaborées pour permettre une quantification à l'échelle macroscopique. La mise en place d'une méthode expérimentale de mesure comprenant un banc d'essai équipé de capteurs laser de déplacement a permis de mieux appréhender les phénomènes de gonflement et de retrait des matériaux biosourcés à cette échelle. L'étude a mis en évidence un comportement contradictoire entre l'épaisseur et la hauteur des biocomposites en réponse aux variations d'humidité. Au cours de la phase d'humidification, la hauteur se contracte tandis que l'épaisseur augmente, alors qu'au cours de la phase de séchage, la hauteur s'accroît tandis que l'épaisseur diminue. Les courbes de gonflement par rapport à l'état sec, à un taux d'humidité de 12 % HR, mettent également en évidence un processus irréversible de gonflement et de retrait des biocomposites. Cette constatation indique que même après des cycles répétés d'humidification et de séchage, les biocomposites ne parviennent pas à retrouver complètement leur état initial.

Le comportement de gonflement et de retrait des biocomposites présente des variations en fonction du type de granulat utilisé. Les résultats ont également mis en évidence l'impact considérable du prétraitement des granulats avant la fabrication des biocomposites sur les taux de gonflement et de retrait. Le traitement au NaCl a conduit à une diminution de 28% du gonflement pour les biocomposites à base de blé, de 11% pour la paille de colza, de 15% pour la moelle de tournesol, de 25% pour l'écorce de tournesol, et de 12% pour le mélange de moelle et d'écorce de tournesol. Le traitement au NaHCO_3 a produit des réductions encore plus significatives, atteignant 50% pour les biocomposites à base de blé, 40% pour la paille de colza, 30% pour la moelle de tournesol, et 34% pour l'écorce de tournesol.

Une simulation numérique du test de gonflement a été menée en utilisant un couplage hydromécanique. Cette démarche s'inscrit dans la perspective de comprendre la compétition entre le gonflement interne des granulats du biocomposite et l'effet gravitationnel de l'eau. Du fait de sa porosité élevée, le biocomposite étudié se révèle extrêmement sensible à l'absorption d'eau et à l'influence de la gravité. L'abondance de granulats hydrophiles dans sa composition induit un gonflement de l'épaisseur lors de l'absorption d'eau. Cependant, ce processus entre en concurrence avec la force gravitationnelle, restreignant ainsi l'expansion des granulats. Parallèlement, une analyse inversée a été menée pour déterminer le module de Young. En somme, les variations dimensionnelles observées résultent d'une interaction complexe entre ces forces antagonistes. Les résultats obtenus ont en outre montré que l'absorption d'eau peut entraîner une réduction significative du module de Young des biocomposites.

Dans le but de répondre aux objectifs visant à améliorer notre compréhension du comportement du biocomposite revêtus d'un enduit monocouche de protection, en particulier en ce qui

concerne le phénomène de gonflement et retrait, nous avons procédé à des mesures à l'aide de capteurs laser de déplacement. Bien que l'enduit se soit avéré efficace pour atténuer les phénomènes de gonflement et de retrait du matériau, il est impératif de prendre en considération la possibilité de formation de fissures entre le biocomposite et l'enduit. L'enduit agit comme une barrière partielle au gonflement de l'épaisseur, comme le montre la comparaison entre les échantillons exposés à une humidité globale et ceux soumis à un transfert unidirectionnel. Les déformations différentielles engendrées lors des cycles d'immersion et de séchage peuvent créer des contraintes proches de la résistance du biocomposite, aboutissant à des fissures entre l'enduit et le biocomposite.

Cette thèse a apporté une contribution à l'état des connaissances relatives aux matériaux biosourcés et à leur comportement vis-à-vis des phénomènes de gonflement et de retrait. Elle complète également les différents travaux précédents sur le développement, l'optimisation et la caractérisation des matériaux biosourcés à base de ressources végétales de la région Centre Val de Loire. Les résultats et les perspectives issus de cette étude revêtent une importance considérable pour l'avancement des pratiques de construction durables et engendrent de nouvelles orientations pour l'innovation au sein de ce domaine lié à la fois à notre environnement, et aux progrès socio-économiques.

Pour envisager une continuité de cette recherche, il serait opportun d'exploiter les pourcentages de gonflement et de retrait des granulats et s'en servir au travers de simulations numériques avancées. L'intégration de l'homogénéisation numérique, en tenant compte du gonflement de chaque constituant, se révèle importante pour la prédiction du comportement du biocomposite. Ce processus permet de créer un modèle de comportement à l'échelle mésoscopique, où les propriétés des différentes phases du composite sont prises en compte pour décrire le comportement des composants du volume élémentaire représentatif du matériau. L'application de ces simulations pourrait engendrer la modélisation des comportements à long terme et anticiper les évolutions structurelles, ce qui serait bénéfique pour prévenir des problèmes potentiels sans des expérimentations longues et coûteuses. De plus, ces simulations pourraient également être utilisées pour examiner le comportement des parois dans le cadre d'une rénovation thermique des bâtiments.

Nous avons optimisé le protocole de traitement, ce qui a conduit à une réduction significative du gonflement et du retrait des granulats ainsi que des biocomposites. Cependant, il serait judicieux de mettre en œuvre le même protocole pour étudier l'influence du traitement des granulats sur le comportement mécanique et thermique des biocomposites. Cette démarche serait complétée par des tests de durabilité visant à évaluer la résistance et la stabilité à long terme de ces matériaux et d'étudier son impact sur la propriété isolante et de régulation hydrique.

Le banc d'essai qui a été développé et rigoureusement validé au cours de cette recherche pourrait également être étendu à des applications diverses. Son adaptation à d'autres matériaux permettrait d'étendre son utilité pour la mesure des déplacements et des variations dimensionnelles à long terme, ouvrant ainsi la voie à des investigations similaires pour d'autres matériaux hétérogènes.

Dans cette étude, nous avons adopté une approche méthodique en identifiant plusieurs points pour mieux englober le comportement des biocomposites. Cette démarche ciblée nous a permis de concentrer nos efforts sur des aspects spécifiques, offrant ainsi un éclairage sur la réaction des biocomposites face à l'absorption et à la libération d'humidité. Cette méthodologie a

contribué à notre compréhension du comportement dynamique de ces matériaux dans des conditions d'humidité variables.

Néanmoins, pour enrichir davantage notre approche, il serait intéressant de considérer l'intégration d'un capteur à balayage couvrant l'ensemble de la surface des biocomposites. Cette évolution représenterait une avancée en permettant une collecte des données relatives aux déplacements et aux variations dimensionnelles. En étendant notre capacité à capturer avec précision les variations dans les dimensions et les déplacements, nous serions en mesure d'explorer les réactions des biocomposites à un niveau encore plus fin. Cette amélioration technique ouvrirait des horizons nouveaux en matière d'analyse, en offrant des relevés d'une précision accrue. Couplée à une analyse d'image appropriée, ces données pourront contribuer à construire un volume élémentaire représentatif pour les calculs numérique d'homogénéisation.

Il sera également intéressant de développer un système d'examen complet qui élimine la nécessité de déplacer les échantillons pendant la mesure des variations dimensionnelles, en variant simultanément l'humidité relative. Ce système réduirait les risques de perturbation des échantillons, garantissant ainsi des mesures plus fidèles et représentatives. En évitant les manipulations potentiellement perturbatrices des mesures continues, on obtiendrait une meilleure continuité des données et une traçabilité accrue des variations dimensionnelles.

En parallèle, une orientation à explorer réside dans la mise en œuvre de mesures de déplacement en temps réel pour saisir de manière continue le comportement réel des échantillons. Ces mesures, étendant leur champ aux variations dimensionnelles ponctuelles et surfaciques, pourraient être intégrées dans un cadre de démonstrateur à l'échelle réelle. En simultanément, le suivi du taux d'humidité et de la température extérieure, ainsi que leur prise en compte à l'intérieur des matériaux, pourrait obtenir des informations supplémentaires quant à la dualité d'influences entre l'environnement externe et les propriétés internes des matériaux.

L'analyse comparative entre les réactions observées en laboratoire et celles en situation réelle, in situ, discernera les influences spécifiques de l'environnement extérieur et des propriétés internes des matériaux sur leur comportement. Cette confrontation apporterait une profondeur supplémentaire à l'interprétation de nos résultats et contribuerait à une validation solide de nos constatations expérimentales.

De plus, il serait intéressant de prendre en considération l'adaptation du banc d'essai afin d'étudier le comportement des matériaux avec d'autres types de liants, tels qu'un liant d'argile gonflante ou de terre crue. Ces ajouts pourraient avoir une influence significative sur les propriétés du matériau. Le banc d'essai permettra la quantification et la compréhension de ces changements, offrant ainsi des indications importantes en vue d'applications potentielles dans le domaine de la construction écologique.

En conclusion, cette thèse a établi des fondements solides pour une meilleure compréhension des matériaux biosourcés, tout en ouvrant la voie à de multiples perspectives de recherche à venir. Les apports résultants de cette investigation s'avèrent précieux pour orienter les efforts en vue du développement de solutions de construction durables et écologiques.

Bibliographie

- [1] N. Belayachi, M. Bouasker, D. Hoxha, et M. Al-Mukhtar, « Thermo-Mechanical Behaviour of an Innovant Straw Lime Composite for Thermal Insulation Applications », *Appl. Mech. Mater.*, vol. 390, p. 542-546, août 2013, doi: 10.4028/www.scientific.net/AMM.390.542.
- [2] Y. Brouard, N. Belayachi, D. Hoxha, N. Ranganathan, et S. Méo, « Mechanical and hygrothermal behavior of clay – Sunflower (*Helianthus annuus*) and rape straw (*Brassica napus*) plaster bio-composites for building insulation », *Constr. Build. Mater.*, vol. 161, p. 196-207, févr. 2018, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2017.11.140.
- [3] B. Ismail, N. Belayachi, et D. Hoxha, « Optimizing performance of insulation materials based on wheat straw, lime and gypsum plaster composites using natural additives », *Constr. Build. Mater.*, vol. 254, p. 118959, sept. 2020, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2020.118959.
- [4] M. S. Abbas, « Caractérisations multi-physiques des mortiers bio-sourcés isolants et modélisation de leurs impacts sur les transferts hygrothermiques à l'échelle des parois : application aux bétons de moelles végétales », phdthesis, Université de Lyon, 2021. Consulté le: 25 août 2022. [En ligne]. Disponible sur: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-03560841>
- [5] B. Ismail, « Contribution au développement et optimisation d'un système composite biosourcé-enduit de protection pour l'isolation thermique de bâtiment », These de doctorat, Orléans, 2020. Consulté le: 20 juillet 2022. [En ligne]. Disponible sur: <http://www.theses.fr/2020ORLE3112>
- [6] T. Jami, S. R. Karade, et L. P. Singh, « A review of the properties of hemp concrete for green building applications », *J. Clean. Prod.*, vol. 239, p. 117852, déc. 2019, doi: 10.1016/j.jclepro.2019.117852.
- [7] V. Cerezo, « Propriétés mécaniques, thermiques et acoustiques d'un matériau à base de particules végétales : approche expérimentale et modélisation théorique », 2005.
- [8] S. Marceau *et al.*, « Influence of accelerated aging on the properties of hemp concretes », *Constr. Build. Mater.*, vol. 139, p. 524-530, mai 2017, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2016.11.129.
- [9] S. Amziane, *DURABILITY TEST ON HEMP CONCRETE: WEATHERING RESISTANCE*. 2017.
- [10] C. Gross et P. Walker, « Racking performance of timber studwork and hemp-lime walling », *Constr. Build. Mater.*, vol. 66, p. 429-435, sept. 2014, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2014.05.054.
- [11] C. Magniont, « Contribution à la formulation et à la caractérisation d'un écomatériau de construction à base d'agroressources », These de doctorat, Toulouse 3, 2010. Consulté le: 16 août 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.theses.fr/2010TOU30101>
- [12] D. Medjelekh, L. Ulmet, et F. Dubois, « Characterization of hygrothermal transfers in the unfired earth », *Energy Procedia*, vol. 139, p. 487-492, déc. 2017, doi: 10.1016/j.egypro.2017.11.242.
- [13] K. H. Kim, « Two-stage dilute acid-catalyzed hydrolytic conversion of softwood sawdust into sugars fermentable by ethanologenic microorganisms », *J. Sci. Food Agric.*, vol. 85, n° 14, p. 2461-2467, nov. 2005, doi: 10.1002/jsfa.2268.
- [14] S. Marceau *et al.*, « Impact de vieillissements accélérés sur les propriétés de bétons de chanvre », *Acad. J. Civ. Eng.*, p. 712-719 Pages, mars 2020, doi: 10.26168/AJCE.34.1.86.
- [15] H. N. Dhakal, Z. Y. Zhang, et M. O. W. Richardson, « Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites »,

- Compos. Sci. Technol.*, vol. 67, n° 7, p. 1674-1683, juin 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2006.06.019.
- [16] M. M. Thwe et K. Liao, « Effects of environmental aging on the mechanical properties of bamboo–glass fiber reinforced polymer matrix hybrid composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 33, n° 1, p. 43-52, janv. 2002, doi: 10.1016/S1359-835X(01)00071-9.
- [17] M. Bouasker, N. Belayachi, D. Hoxha, et M. Al-Mukhtar, « Physical Characterization of Natural Straw Fibers as Aggregates for Construction Materials Applications », *Materials*, vol. 7, n° 4, p. 3034-3048, avr. 2014, doi: 10.3390/ma7043034.
- [18] R. Walker, S. Pavia, et R. Mitchell, « Mechanical properties and durability of hemp-lime concretes », *Constr. Build. Mater.*, vol. 61, p. 340-348, juin 2014, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2014.02.065.
- [19] P. Glé, E. Gourdon, L. Arnaud, K.-V. Horoshenkov, et A. Khan, « The effect of particle shape and size distribution on the acoustical properties of mixtures of hemp particles », *J. Acoust. Soc. Am.*, vol. 134, n° 6, p. 4698-4709, déc. 2013, doi: 10.1121/1.4824931.
- [20] M. S. Abbas, F. McGregor, A. Fabbri, et M. Y. Ferroukhi, « The use of pith in the formulation of lightweight bio-based composites: Impact on mechanical and hygrothermal properties », *Constr. Build. Mater.*, vol. 259, p. 120573, oct. 2020, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2020.120573.
- [21] C. Baley, A. Le Duigou, A. Bourmaud, et P. Davies, « Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 43, n° 8, p. 1226-1233, août 2012, doi: 10.1016/j.compositesa.2012.03.005.
- [22] Y. Lo, X. F. Gao, et A. P. Jeary, « Microstructure of pre-wetted aggregate on lightweight concrete », *Build. Environ.*, vol. 34, n° 6, p. 759-764, nov. 1999, doi: 10.1016/S0360-1323(98)00060-2.
- [23] V. Nozahic et S. Amziane, « Influence of sunflower aggregates surface treatments on physical properties and adhesion with a mineral binder », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 43, n° 11, p. 1837-1849, nov. 2012, doi: 10.1016/j.compositesa.2012.07.011.
- [24] A. Rima, K. Abahri, F. Bennai, C. El Hachem, et M. Bonnet, « Microscopic estimation of swelling and shrinkage of hemp concrete in response to relative humidity variations », *J. Build. Eng.*, vol. 43, p. 102929, nov. 2021, doi: 10.1016/j.jobbe.2021.102929.
- [25] T. Ahmed, M. U. Farooqi, et M. Ali, « Compressive behavior of rice straw-reinforced concrete for rigid pavements », *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, vol. 770, n° 1, p. 012004, févr. 2020, doi: 10.1088/1757-899X/770/1/012004.
- [26] M. R. Vengatesan, A. M. Varghese, et V. Mittal, « Thermal properties of thermoset polymers », in *Thermosets*, Elsevier, 2018, p. 69-114. doi: 10.1016/B978-0-08-101021-1.00003-4.
- [27] T. T. Nguyen, « Contribution à l'étude de la formulation et du procédé de fabrication d'éléments de construction en béton de chanvre », 2010.
- [28] M. Brahim, F. Collet, et S. Pretot, « Effect of temperature on thermal and hygric properties of hemp-lime plasters », in *First International Conference on Bio-based Building Materials, ICBBM 2015*, Clermont-Ferrand, France, juin 2015. Consulté le: 20 août 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://hal.science/hal-01169090>
- [29] A. Avellaneda *et al.*, « Evaluation of the Potential of Plant Aggregates from Corn and Sunflower Stalks for the Design of Building Materials », in *Bio-Based Building Materials*, S. Amziane, I. Merta, et J. Page, Éd., in RILEM Bookseries, vol. 45. Cham: Springer Nature Switzerland, 2023, p. 70-86. doi: 10.1007/978-3-031-33465-8_7.

- [30] M. Sinka, G. Sahmenko, A. Korjakins, L. Radina, et D. Bajare, « Hemp Thermal Insulation Concrete with Alternative Binders, Analysis of their Thermal and Mechanical Properties », *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, vol. 96, p. 012029, nov. 2015, doi: 10.1088/1757-899X/96/1/012029.
- [31] G. Huang, A. Abou-Chakra, J. Absi, et S. Geoffroy, « Optimization of mechanical properties in anisotropic bio-based building materials by a multiscale homogenization model », *J. Build. Eng.*, vol. 57, p. 104890, oct. 2022, doi: 10.1016/j.jobbe.2022.104890.
- [32] A. D. Tran-Le, S.-T. Nguyen, et T. Langlet, « A novel anisotropic analytical model for effective thermal conductivity tensor of dry lime-hemp concrete with preferred spatial distributions », *Energy Build.*, vol. 182, p. 75-87, janv. 2019, doi: 10.1016/j.enbuild.2018.09.043.
- [33] T. T. Nguyen, V. Picandet, P. Carre, T. Lecompte, S. Amziane, et C. Baley, « Effect of compaction on mechanical and thermal properties of hemp concrete », *Eur. J. Environ. Civ. Eng.*, vol. 14, n° 5, p. 545-560, mai 2010, doi: 10.1080/19648189.2010.9693246.
- [34] F. Collet, S. Pretot, B. Mazhoud, L. Bessette, et C. Lanos, « Comparing hemp composites made with mineral or organic binder on thermal, hygric and mechanical point of view », *Acad. J. Civ. Eng.*, p. 228-234 Pages, juin 2015, doi: 10.26168/ICBBM2015.35.
- [35] F. Benmahiddine, « Études des transferts couplés de chaleur, d'air et d'humidité par des techniques de changement d'échelle (microscopique-macroscopique) : Application à l'évaluation de la performance énergétique et la durabilité des matériaux de construction », phdthesis, Université de La Rochelle ; Université Abderrahmane Mira - Bejaïa (Bejaïa, Algérie), 2020. Consulté le: 23 mai 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-03516072>
- [36] P. B. De Bruijn, K.-H. Jeppsson, K. Sandin, et C. Nilsson, « Mechanical properties of lime-hemp concrete containing shives and fibres », *Biosyst. Eng.*, vol. 103, n° 4, p. 474-479, août 2009, doi: 10.1016/j.biosystemseng.2009.02.005.
- [37] F. Benmahiddine, R. Cherif, F. Bennai, R. Belarbi, A. Tahakourt, et K. Abahri, « Effect of flax shives content and size on the hygrothermal and mechanical properties of flax concrete », *Constr. Build. Mater.*, vol. 262, p. 120077, nov. 2020, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2020.120077.
- [38] G. C. Cordeiro et C. P. Sales, « Pozzolan activity of elephant grass ash and its influence on the mechanical properties of concrete », *Cem. Concr. Compos.*, vol. 55, p. 331-336, janv. 2015, doi: 10.1016/j.cemconcomp.2014.09.019.
- [39] A. Bourdot, C. Magniont, M. Lagouin, C. Niyigena, P. Evon, et S. Amziane, « Impact of Bio-Aggregates Properties on the Chemical Interactions with Mineral Binder, Application to Vegetal Concrete », *J. Adv. Concr. Technol.*, vol. 17, n° 9, p. 542-558, sept. 2019, doi: 10.3151/jact.17.542.
- [40] A. Kriker, G. Debicki, A. Bali, M. M. Khenfer, et M. Chabannet, « Mechanical properties of date palm fibres and concrete reinforced with date palm fibres in hot-dry climate », *Cem. Concr. Compos.*, vol. 27, n° 5, p. 554-564, mai 2005, doi: 10.1016/j.cemconcomp.2004.09.015.
- [41] A. K. Tedjditi, F. Ghomari, R. Belarbi, R. Cherif, F. Boukhelf, et R. T. Bouhraoua, « Towards understanding cork concrete behaviour: Impact of considering cork absorption during mixing process », *Constr. Build. Mater.*, vol. 317, p. 125905, janv. 2022, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2021.125905.
- [42] M. Rahim, O. Douzane, A. D. Tran Le, G. Promis, et T. Langlet, « Characterization and comparison of hygric properties of rape straw concrete and hemp concrete », *Constr. Build. Mater.*, vol. 102, p. 679-687, janv. 2016, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2015.11.021.

- [43] E. C. Pachla, D. B. Silva, K. J. Stein, E. Marangon, et W. Chong, « Sustainable application of rice husk and rice straw in cellular concrete composites », *Constr. Build. Mater.*, vol. 283, p. 122770, mai 2021, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2021.122770.
- [44] B. Belhadj, M. Bederina, Z. Makhoulfi, A. Goullieux, et M. Quéneudec, « Study of the thermal performances of an exterior wall of barley straw sand concrete in an arid environment », *Energy Build.*, vol. 87, p. 166-175, janv. 2015, doi: 10.1016/j.enbuild.2014.11.034.
- [45] Y. Brouard, « Caractérisation et optimisation d'un composite biosource pour l'habitat », These de doctorat, Tours, 2018. Consulté le: 25 août 2022. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.theses.fr/2018TOUR4024>
- [46] V. Cérézo, « Propriétés mécaniques, thermiques et acoustiques d'un matériau à base de particules végétales : approche expérimentale et modélisation théorique », These de doctorat, Lyon, INSA, 2005. Consulté le: 25 août 2022. [En ligne]. Disponible sur: <http://www.theses.fr/2005ISAL0037>
- [47] B. Niez, « Développement d'un matériau bio-sourcé pour la construction : le béton de tournesol - PDF Téléchargement Gratuit », 2015. <https://docplayer.fr/44873687-Developpement-d-un-materiau-bio-source-pour-la-construction-le-beton-de-tournesol.html> (consulté le 23 mai 2023).
- [48] F. Collet, M. Bart, L. Serres, et J. Miriel, « Porous structure and water vapour sorption of hemp-based materials », *Constr. Build. Mater.*, vol. 22, n° 6, p. 1271-1280, juin 2008, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2007.01.018.
- [49] N. Issaadi, « Effets de la variabilité des propriétés de matériaux cimentaires sur les transferts hygrothermiques : développement d'une approche probabiliste », These de doctorat, La Rochelle, 2015. Consulté le: 23 mai 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.theses.fr/2015LAROS028>
- [50] F. Bennai, C. El Hachem, K. Abahri, et R. Belarbi, « Microscopic hydric characterization of hemp concrete by X-ray microtomography and digital volume correlation », *Constr. Build. Mater.*, vol. 188, p. 983-994, nov. 2018, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2018.08.198.
- [51] V. Nozahic, S. Amziane, G. Torrent, K. Saïdi, et H. De Baynast, « Design of green concrete made of plant-derived aggregates and a pumice–lime binder », *Cem. Concr. Compos.*, vol. 34, n° 2, p. 231-241, févr. 2012, doi: 10.1016/j.cemconcomp.2011.09.002.
- [52] K. Charlet, C. Baley, C. Morvan, J. P. Jernot, M. Gomina, et J. Bréard, « Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 38, n° 8, p. 1912-1921, août 2007, doi: 10.1016/j.compositesa.2007.03.006.
- [53] A. Bourmaud, M. Gibaud, et C. Baley, « Impact of the seeding rate on flax stem stability and the mechanical properties of elementary fibres », *Ind. Crops Prod.*, vol. 80, p. 17-25, févr. 2016, doi: 10.1016/j.indcrop.2015.10.053.
- [54] O. Faruk, A. K. Bledzki, H.-P. Fink, et M. Sain, « Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010 », *Prog. Polym. Sci.*, vol. 37, n° 11, p. 1552-1596, nov. 2012, doi: 10.1016/j.progpolymsci.2012.04.003.
- [55] N. Nishimura, A. Izumi, et K. Kuroda, « Structural characterization of kenaf lignin: differences among kenaf varieties », *Ind. Crops Prod.*, vol. 15, n° 2, p. 115-122, mars 2002, doi: 10.1016/S0926-6690(01)00101-7.
- [56] C. Ververis, K. Georghiou, N. Christodoulakis, P. Santas, et R. Santas, « Fiber dimensions, lignin and cellulose content of various plant materials and their suitability for paper production », *Ind. Crops Prod.*, vol. 19, n° 3, p. 245-254, mai 2004, doi: 10.1016/j.indcrop.2003.10.006.
- [57] C. T. Brett et K. W. Waldron, *Physiology and Biochemistry of Plant Cell Walls*. Springer Science & Business Media, 1996.

- [58] C. Baley, « Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites », p. 37, 2020.
- [59] C. Chen *et al.*, « Structure–property–function relationships of natural and engineered wood », *Nat. Rev. Mater.*, vol. 5, n° 9, p. 642-666, mai 2020, doi: 10.1038/s41578-020-0195-z.
- [60] I. Sakurada, Y. Nukushina, et T. Ito, « Experimental determination of the elastic modulus of crystalline regions in oriented polymers », *J. Polym. Sci.*, vol. 57, n° 165, p. 651-660, mars 1962, doi: 10.1002/pol.1962.1205716551.
- [61] H.-P. Fink, E. Walenta, et J. Kunze, « Zur Struktur cellulosischer Naturfasern. Teil 2. Übermolekulare Struktur von Bastfasern und deren Veränderung infolge Mercerisierung mittels Röntgenbeugung und ¹³C-NMR-Spektroskopie », *Pap. Darmstadt*, vol. 53, n° 9, p. 534-542, 1999.
- [62] J. Müssig, H. Fischer, N. Graupner, et A. Drieling, « Testing Methods for Measuring Physical and Mechanical Fibre Properties (Plant and Animal Fibres) », in *Industrial Applications of Natural Fibres*, J. Müssig, Éd., Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd, 2010, p. 267-309. doi: 10.1002/9780470660324.ch13.
- [63] A. K. Mohanty, M. Misra, et L. T. Drzal, *Natural Fibers, Biopolymers, and Biocomposites*. CRC Press, 2005.
- [64] D. Ding, X. Zhou, T. You, X. Zhang, X. Zhang, et F. Xu, « Exploring the mechanism of high degree of delignification inhibits cellulose conversion efficiency », *Carbohydr. Polym.*, vol. 181, p. 931-938, févr. 2018, doi: 10.1016/j.carbpol.2017.11.057.
- [65] J. Müssig, *Industrial Applications of Natural Fibres: Structure, Properties and Technical Applications*. John Wiley & Sons, 2010.
- [66] K. T. Hodgson et J. C. Berg, « Dynamic Wettability Properties of Single Wood Pulp Fibers and Their Relationship to Absorbency », *Wood Fiber Sci.*, p. 3-17, 1988.
- [67] Y. Zhang, X. Lu, A. Pizzi, et L. Delmotte, « Wheat straw particleboard bonding improvements by enzyme pretreatment », *Holz Als Roh- Werkst.*, vol. 61, n° 1, p. 49-54, févr. 2003, doi: 10.1007/s00107-002-0349-2.
- [68] N. Reddy et Y. Yang, « Biofibers from agricultural byproducts for industrial applications », *Trends Biotechnol.*, vol. 23, n° 1, p. 22-27, janv. 2005, doi: 10.1016/j.tibtech.2004.11.002.
- [69] S. Basu, U. S. Shivhare, et S. Muley, « Moisture adsorption isotherms and glass transition temperature of pectin », *J. Food Sci. Technol.*, vol. 50, n° 3, p. 585-589, juin 2013, doi: 10.1007/s13197-011-0327-y.
- [70] C. Morvan, C. Andème-Onzighi, R. Girault, D. S. Himmelsbach, A. Driouich, et D. E. Akin, « Building flax fibres: more than one brick in the walls », *Plant Physiol. Biochem.*, vol. 41, n° 11-12, p. 935-944, nov. 2003, doi: 10.1016/j.plaphy.2003.07.001.
- [71] A. Bourmaud, J. Beaugrand, D. U. Shah, V. Placet, et C. Baley, « Towards the design of high-performance plant fibre composites », *Prog. Mater. Sci.*, vol. 97, p. 347-408, août 2018, doi: 10.1016/j.pmatsci.2018.05.005.
- [72] J. Beaugrand, S. Guessasma, et J.-E. Maigret, « Damage mechanisms in defected natural fibers », *Sci. Rep.*, vol. 7, n° 1, Art. n° 1, oct. 2017, doi: 10.1038/s41598-017-14514-6.
- [73] L. Burhenne, J. Messmer, T. Aicher, et M.-P. Laborie, « The effect of the biomass components lignin, cellulose and hemicellulose on TGA and fixed bed pyrolysis », *J. Anal. Appl. Pyrolysis*, vol. 101, p. 177-184, mai 2013, doi: 10.1016/j.jaap.2013.01.012.
- [74] M. Kaltschmitt et W. Streicher, « Energie aus Biomasse », in *Regenerative Energien in Österreich*, M. Kaltschmitt et W. Streicher, Éd., Wiesbaden: Vieweg+Teubner, 2009, p. 339-532. doi: 10.1007/978-3-8348-9327-7_9.
- [75] C. E. Greenhalf *et al.*, « Thermochemical characterisation of straws and high yielding perennial grasses », *Ind. Crops Prod.*, vol. 36, n° 1, p. 449-459, mars 2012, doi: 10.1016/j.indcrop.2011.10.025.

- [76] A. Demirbaş, « Calculation of higher heating values of biomass fuels », *Fuel*, vol. 76, n° 5, p. 431-434, avr. 1997, doi: 10.1016/S0016-2361(97)85520-2.
- [77] M. Viel, F. Collet, et C. Lanos, « Chemical and multi-physical characterization of agro-resources' by-product as a possible raw building material », *Ind. Crops Prod.*, vol. 120, p. 214-237, sept. 2018, doi: 10.1016/j.indcrop.2018.04.025.
- [78] S. Arufe, A. Hellouin de Menibus, N. Leblanc, et H. Lenormand, « Physico-chemical characterisation of plant particles with potential to produce biobased building materials », *Ind. Crops Prod.*, vol. 171, p. 113901, nov. 2021, doi: 10.1016/j.indcrop.2021.113901.
- [79] K. Goda et Y. Cao, « Research and Development of Fully Green Composites Reinforced with Natural Fibers », *J. Solid Mech. Mater. Eng.*, vol. 1, n° 9, p. 1073-1084, 2007, doi: 10.1299/jmmp.1.1073.
- [80] Z. N. Azwa, B. F. Yousif, A. C. Manalo, et W. Karunasena, « A review on the degradability of polymeric composites based on natural fibres », *Mater. Des.*, vol. 47, p. 424-442, mai 2013, doi: 10.1016/j.matdes.2012.11.025.
- [81] D. Ren, Z. Yu, W. Li, H. Wang, et Y. Yu, « The effect of ages on the tensile mechanical properties of elementary fibers extracted from two sympodial bamboo species », *Ind. Crops Prod.*, vol. 62, p. 94-99, déc. 2014, doi: 10.1016/j.indcrop.2014.08.014.
- [82] P. Cappelletto *et al.*, « Italy-grown hemp: yield, composition and cannabinoid content », *Ind. Crops Prod.*, vol. 13, n° 2, p. 101-113, mars 2001, doi: 10.1016/S0926-6690(00)00057-1.
- [83] Y. Millogo, J.-E. Aubert, E. Hamard, et J.-C. Morel, « How Properties of Kenaf Fibers from Burkina Faso Contribute to the Reinforcement of Earth Blocks », *Materials*, vol. 8, n° 5, p. 2332-2345, avr. 2015, doi: 10.3390/ma8052332.
- [84] A. Akkaoui, S. Caré, et M. Vandamme, « Experimental and micromechanical analysis of the elastic properties of wood-aggregate concrete », *Constr. Build. Mater.*, vol. 134, p. 346-357, mars 2017, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2016.12.084.
- [85] C. Magniont, G. Escadeillas, M. Coutand, et C. Oms-Multon, « Use of plant aggregates in building ecomaterials », *Eur. J. Environ. Civ. Eng.*, vol. 16, n° sup1, p. s17-s33, juin 2012, doi: 10.1080/19648189.2012.682452.
- [86] C. Niyigena, S. Amziane, et A. Chateaneuf, « Multicriteria analysis demonstrating the impact of shiv on the properties of hemp concrete », *Constr. Build. Mater.*, vol. 160, p. 211-222, janv. 2018, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2017.11.026.
- [87] R. Hanley et S. Pavía, « A study of the workability of natural hydraulic lime mortars and its influence on strength », *Mater. Struct.*, vol. 41, n° 2, p. 373-381, mars 2008, doi: 10.1617/s11527-007-9250-0.
- [88] S. T. Nguyen, A. D. Tran-Le, M. N. Vu, Q. D. To, O. Douzane, et T. Langlet, « Modeling thermal conductivity of hemp insulation material: A multi-scale homogenization approach », *Build. Environ.*, vol. 107, p. 127-134, oct. 2016, doi: 10.1016/j.buildenv.2016.07.026.
- [89] T. M. Dinh, C. Magniont, M. Coutand, et G. Escadeillas, *Hemp concrete using innovative pozzolanic binder*. 2012.
- [90] V. Picandet, *Hemp Shives characterisation.(accessed in may 2012) Vincent Picandet, Biomaterials & Binder Laboratoire d'Ingénierie des MATériaux de Bretagne Université de Bretagne Sud, Lorient*. 2011.
- [91] F. Collet et S. Pretot, « Thermal conductivity of hemp concretes: Variation with formulation, density and water content », *Constr. Build. Mater.*, vol. 65, p. 612-619, août 2014, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2014.05.039.

- [92] A. K. Mohanty, M. Misra, et G. Hinrichsen, « Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites: An overview », *Macromol. Mater. Eng.*, vol. 276-277, n° 1, p. 1-24, mars 2000, doi: 10.1002/(SICI)1439-2054(20000301)276:1<1::AID-MAME1>3.0.CO;2-W.
- [93] M. R. Ahmad, B. Chen, M. A. Haque, S. M. Saleem Kazmi, et M. J. Munir, « Development of plant-concrete composites containing pretreated corn stalk bio-aggregates and different type of binders », *Cem. Concr. Compos.*, vol. 121, p. 104054, août 2021, doi: 10.1016/j.cemconcomp.2021.104054.
- [94] F. El Fgaier, Z. Lafhaj, C. Chapiseau, et E. Antczak, « Effect of sorption capacity on thermo-mechanical properties of unfired clay bricks », *J. Build. Eng.*, vol. 6, p. 86-92, juin 2016, doi: 10.1016/j.jobe.2016.02.011.
- [95] A. Thuault, S. Eve, D. Blond, J. Bréard, et M. Gomina, « Effects of the hygrothermal environment on the mechanical properties of flax fibres », *J. Compos. Mater.*, vol. 48, n° 14, p. 1699-1707, juin 2014, doi: 10.1177/0021998313490217.
- [96] N. Belayachi, D. Hoxha, et I. Redikutseva, « Etude comparative du comportement hygrothermique des matériaux à base de fibres végétales », in *Rencontres Universitaires de Génie Civil*, Bayonne, France, mai 2015. Consulté le: 25 août 2022. [En ligne]. Disponible sur: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01167655>
- [97] F. Bennai, « Étude des mécanismes de transferts couplés de chaleur et d'humidité dans les matériaux poreux de construction en régime insaturé », phdthesis, Université de La Rochelle ; Université Abderrahmane Mira - Bejaïa (Bejaïa, Algérie), 2017. Consulté le: 25 août 2022. [En ligne]. Disponible sur: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01865834>
- [98] F. Collet-Foucault, « Caractérisation hydrique et thermique de matériaux de génie civil à faibles impacts environnementaux », These de doctorat, Rennes, INSA, 2004. Consulté le: 25 août 2022. [En ligne]. Disponible sur: <http://www.theses.fr/2004ISAR0016>
- [99] M. Maddison, T. Muring, K. Kirsimäe, et Ü. Mander, « The humidity buffer capacity of clay-sand plaster filled with phytomass from treatment wetlands », *Build. Environ.*, vol. 44, n° 9, p. 1864-1868, sept. 2009, doi: 10.1016/j.buildenv.2008.12.008.
- [100] F. Bennai, N. Issaadi, K. Abahri, R. Belarbi, et A. Tahakourt, « Experimental characterization of thermal and hygric properties of hemp concrete with consideration of the material age evolution », *Heat Mass Transf.*, vol. 54, n° 4, p. 1189-1197, avr. 2018, doi: 10.1007/s00231-017-2221-2.
- [101] N. Chennouf, B. Agoudjil, A. Boudenne, K. Benzarti, et F. Bouras, « Hygrothermal characterization of a new bio-based construction material: Concrete reinforced with date palm fibers », *Constr. Build. Mater.*, vol. 192, p. 348-356, déc. 2018, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2018.10.089.
- [102] M. Maaroufi, F. Bennai, R. Belarbi, et K. Abahri, « Experimental and numerical highlighting of water vapor sorption hysteresis in the coupled heat and moisture transfers », *J. Build. Eng.*, vol. 40, p. 102321, août 2021, doi: 10.1016/j.jobe.2021.102321.
- [103] N. Reuge, S. Moissette, M. Bart, F. Collet, et C. Lanos, « Modèle de cinétique locale de sorption couplé au phénomène d'hystérésis pour les matériaux biosourcés », *Acad. J. Civ. Eng.*, p. 43-46 Pages, mars 2019, doi: 10.26168/AJCE.36.1.11.
- [104] M. M. Kabir, H. Wang, K. T. Lau, et F. Cardona, « Chemical treatments on plant-based natural fibre reinforced polymer composites: An overview », *Compos. Part B Eng.*, vol. 43, n° 7, p. 2883-2892, oct. 2012, doi: 10.1016/j.compositesb.2012.04.053.
- [105] M. Abdelmouleh, S. Boufi, M. Belgacem, et A. Dufresne, « Short natural-fibre reinforced polyethylene and natural rubber composites: Effect of silane coupling agents and fibres loading », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 67, n° 7-8, p. 1627-1639, juin 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2006.07.003.

- [106] B. Pejic, M. Kostic, P. Skundric, et J. Praskalo, « The effects of hemicelluloses and lignin removal on water uptake behavior of hemp fibers », *Bioresour. Technol.*, vol. 99, p. 7152-9, nov. 2008, doi: 10.1016/j.biortech.2007.12.073.
- [107] M. U. De La Orden, M. C. Matias, et J. Martínez Urreaga, « Spectroscopic study of the modification of cellulose with polyethylenimines: Cellulose Modification with Polyethylenimines », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 92, n° 4, p. 2196-2202, mai 2004, doi: 10.1002/app.20236.
- [108] A. Valadez-Gonzalez, J. M. Cervantes-Uc, R. Olayo, et P. J. Herrera-Franco, « Effect of fiber surface treatment on the fiber–matrix bond strength of natural fiber reinforced composites », *Compos. Part B Eng.*, vol. 30, n° 3, p. 309-320, avr. 1999, doi: 10.1016/S1359-8368(98)00054-7.
- [109] A. Oushabi, S. Sair, F. Oudrhiri Hassani, Y. Abboud, O. Tanane, et A. El Bouari, « The effect of alkali treatment on mechanical, morphological and thermal properties of date palm fibers (DPFs): Study of the interface of DPF–Polyurethane composite », *South Afr. J. Chem. Eng.*, vol. 23, p. 116-123, juin 2017, doi: 10.1016/j.sajce.2017.04.005.
- [110] S. S. Kumar et V. M. Raja, « Processing and determination of mechanical properties of Prosopis juliflora bark, banana and coconut fiber reinforced hybrid bio composites for an engineering field », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 208, p. 108695, mai 2021, doi: 10.1016/j.compscitech.2021.108695.
- [111] A. Anandha Moorthy, R. Girimurugan, E. Prakash, S. Madheswaran, A. Naveen Sankar, et P. Sriraman, « Investigations on flexural performance of epoxy matrix composites strengthened with chemically modified and unmodified banana fiber/Used Camellia Sinensis (UCS) particles », *Mater. Today Proc.*, mars 2021, doi: 10.1016/j.matpr.2021.01.686.
- [112] N. S. Binti Mohd Hafidz, M. S. Bin Mohamed Rehan, et H. Binti Mokhtar, « Effect of alkaline treatment on water absorption and thickness swelling of natural fibre reinforced unsaturated polyester composites », *Mater. Today Proc.*, mars 2021, doi: 10.1016/j.matpr.2021.02.209.
- [113] K. Zhang *et al.*, « Influence of chemical treatment and drying method on the properties of cellulose fibers of luffa sponge », *Int. J. Biol. Macromol.*, vol. 180, p. 112-120, juin 2021, doi: 10.1016/j.ijbiomac.2021.03.053.
- [114] R. Verma, M. Shukla, et D. K. Shukla, « Effect of glass fibre hybridization on the water absorption and thickness of alkali treated kenaf-epoxy composites », *Mater. Today Proc.*, janv. 2021, doi: 10.1016/j.matpr.2020.12.181.
- [115] P. Karthick, A. Abraham Eben Andrews, K. Subbareddy, K. Basha, V. Harshavardhan, et S. Goutha Sai Kumar Reddy, « Investigation of mandatory properties of NaOH – KMnO₄ Treated Banana/Fiberglass Hybrid Composite », *Mater. Today Proc.*, vol. 37, p. 63-66, janv. 2021, doi: 10.1016/j.matpr.2020.03.072.
- [116] H. Burrola-Núñez, P. J. Herrera-Franco, D. E. Rodríguez-Félix, H. Soto-Valdez, et T. J. Madera-Santana, « Surface modification and performance of jute fibers as reinforcement on polymer matrix: an overview », *J. Nat. Fibers*, vol. 16, n° 7, p. 944-960, oct. 2019, doi: 10.1080/15440478.2018.1441093.
- [117] P. E. Imoisili, K. J. Fakinlede, E. A. V. Popoola, et A. E. Okoronkwo, « Effect of Potassium Permanganate Treatment on the Macromolecular, Morphological, Thermal and crystallographic structures of Plantain (*Musa paradisiaca*) Fiber », *Moroc. J. Chem.*, vol. 5, n° 4, Art. n° 4, juill. 2017, doi: 10.48317/IMIST.PRSM/morjchem-v5i4.7865.
- [118] A. Patra, D. K. Bisoyi, P. K. Manda, et A. K. Singh, « Electrical and mechanical properties of the potassium permanganate treated short sisal fiber reinforced epoxy composite in correlation to the macromolecular structure of the reinforced fiber », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 128, n° 2, p. 1011-1019, avr. 2013, doi: 10.1002/app.38195.

- [119] P. Madhu, M. R. Sanjay, M. Jawaidd, S. Siengchin, A. Khan, et C. I. Pruncu, « A new study on effect of various chemical treatments on Agave Americana fiber for composite reinforcement: Physico-chemical, thermal, mechanical and morphological properties », *Polym. Test.*, vol. 85, p. 106437, mai 2020, doi: 10.1016/j.polymertesting.2020.106437.
- [120] P. Manimaran, P. Sentharamaikkannan, M. R. Sanjay, M. K. Marichelvam, et M. Jawaidd, « Study on characterization of Furcraea foetida new natural fiber as composite reinforcement for lightweight applications », *Carbohydr. Polym.*, vol. 181, p. 650-658, févr. 2018, doi: 10.1016/j.carbpol.2017.11.099.
- [121] P. E. Imoisili et T.-C. Jen, « Mechanical and water absorption behaviour of potassium permanganate (KMnO₄) treated plantain (Musa Paradisiacal) fibre/epoxy bio-composites », *J. Mater. Res. Technol.*, vol. 9, n° 4, p. 8705-8713, juill. 2020, doi: 10.1016/j.jmrt.2020.05.121.
- [122] C. A. S. Hill, D. Jones, G. Strickland, et N. S. Cetin, « Kinetic and Mechanistic Aspects of the Acetylation of Wood with Acetic Anhydride », *Holzforschung*, vol. 52, n° 6, p. 623-629, janv. 1998, doi: 10.1515/hfsg.1998.52.6.623.
- [123] C. A. S. Hill, S. C. Forster, M. R. M. Farahani, M. D. C. Hale, G. A. Ormondroyd, et G. R. Williams, « An investigation of cell wall micropore blocking as a possible mechanism for the decay resistance of anhydride modified wood », *Int. Biodeterior. Biodegrad.*, vol. 55, n° 1, p. 69-76, janv. 2005, doi: 10.1016/j.ibiod.2004.07.003.
- [124] M. Li, X. Yang, T. Lu, et L. Zhou, « Selective hydrolysis of hemicellulose component of wheat straw in high-pressure CO₂ and water with low concentration of acetic acid », *J. Chem. Technol. Biotechnol.*, vol. 95, n° 8, p. 2237-2242, août 2020, doi: 10.1002/jctb.6411.
- [125] M. D. de Klerk, M. Kayondo, G. M. Moelich, W. I. de Villiers, R. Combrinck, et W. P. Boshoff, « Durability of chemically modified sisal fibre in cement-based composites », *Constr. Build. Mater.*, p. 13, 2020.
- [126] V. Fiore, C. Sanfilippo, et L. Calabrese, « Influence of sodium bicarbonate treatment on the aging resistance of natural fiber reinforced polymer composites under marine environment », *Polym. Test.*, vol. 80, p. 106100, déc. 2019, doi: 10.1016/j.polymertesting.2019.106100.
- [127] V. Fiore, T. Scalici, F. Nicoletti, G. Vitale, M. Prestipino, et A. Valenza, « A new eco-friendly chemical treatment of natural fibres: Effect of sodium bicarbonate on properties of sisal fibre and its epoxy composites », *Compos. Part B Eng.*, vol. 85, p. 150-160, févr. 2016, doi: 10.1016/j.compositesb.2015.09.028.
- [128] J. C. dos Santos, R. L. Siqueira, L. M. G. Vieira, R. T. S. Freire, V. Mano, et T. H. Panzera, « Effects of sodium carbonate on the performance of epoxy and polyester coir-reinforced composites », *Polym. Test.*, vol. 67, p. 533-544, mai 2018, doi: 10.1016/j.polymertesting.2018.03.043.
- [129] S. Chaitanya et I. Singh, « Sisal fiber-reinforced green composites: Effect of ecofriendly fiber treatment », *Polym. Compos.*, vol. 39, n° 12, p. 4310-4321, déc. 2018, doi: 10.1002/pc.24511.
- [130] M. J. Negro, P. Manzanares, J. M. Oliva, I. Ballesteros, et M. Ballesteros, « Changes in various physical/chemical parameters of Pinus pinaster wood after steam explosion pretreatment », *Biomass Bioenergy*, vol. 25, n° 3, p. 301-308, sept. 2003, doi: 10.1016/S0961-9534(03)00017-5.
- [131] Q. A. Nguyen, M. P. Tucker, B. L. Boynton, F. A. Keller, et D. J. Schell, « Dilute acid pretreatment of softwoods: Scientific note », *Appl. Biochem. Biotechnol.*, vol. 70-72, n° 1, p. 77-87, mars 1998, doi: 10.1007/BF02920125.
- [132] R. B. Stoffel, P. V. Neves, F. E. Felissia, L. P. Ramos, L. M. Gassa, et M. C. Area, « Hemicellulose extraction from slash pine sawdust by steam explosion with sulfuric

- acid », *Biomass Bioenergy*, vol. 107, p. 93-101, déc. 2017, doi: 10.1016/j.biombioe.2017.09.019.
- [133] A. Shahbazi, Y. Li, et M. R. Mims, « Application of Sequential Aqueous Steam Treatments to the Fractionation of Softwood », in *Twenty-Sixth Symposium on Biotechnology for Fuels and Chemicals*, B. H. Davison, B. R. Evans, M. Finkelstein, et J. D. McMillan, Éd., in ABAB Symposium. Totowa, NJ: Humana Press, 2005, p. 973-987. doi: 10.1007/978-1-59259-991-2_83.
- [134] M. H. H. Mohamad Rosdi et N. A. Ahad, « The Changes on Morphological and Absorption Ability of Treated Corn Stalk Fiber », *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 1529, p. 052009, mai 2020, doi: 10.1088/1742-6596/1529/5/052009.
- [135] A. G. Gereziher, H. A. Bsrat, A. Simon, et T. Szabó, « Development and Characterization of Sisal Fiber Reinforced Polypropylene Composite Materials », *Int. J. Eng. Manag. Sci.*, vol. 4, n° 1, Art. n° 1, mars 2019, doi: 10.21791/IJEMS.2019.1.43.
- [136] V. T. de O. Santos, G. Siqueira, A. M. F. Milagres, et A. Ferraz, « Role of hemicellulose removal during dilute acid pretreatment on the cellulose accessibility and enzymatic hydrolysis of compositionally diverse sugarcane hybrids », *Ind. Crops Prod.*, vol. 111, p. 722-730, janv. 2018, doi: 10.1016/j.indcrop.2017.11.053.
- [137] T. Setyayunita, R. Widyorini, S. N. Marsoem, et D. Irawati, « Study on The Characteristics of NaCl Treated Kenaf Fiber Epoxy Composite Board », *IOP Conf. Ser. Earth Environ. Sci.*, vol. 891, n° 1, p. 012006, nov. 2021, doi: 10.1088/1755-1315/891/1/012006.
- [138] L. Day, C. Fayet, et S. Homer, « Effect of NaCl on the thermal behaviour of wheat starch in excess and limited water », *Carbohydr. Polym.*, vol. 94, n° 1, p. 31-37, avr. 2013, doi: 10.1016/j.carbpol.2012.12.063.
- [139] H. Afrin, « Stabilization of Clayey Soils Using Chloride Components », *Am. J. Civ. Eng.*, vol. 5, n° 6, p. 365, 2017, doi: 10.11648/j.ajce.20170506.18.
- [140] M. J. Adamson, « Thermal expansion and swelling of cured epoxy resin used in graphite/epoxy composite materials », *J. Mater. Sci.*, vol. 15, n° 7, p. 1736-1745, juill. 1980, doi: 10.1007/BF00550593.
- [141] F. BELAN, « Amélioration de la résistance à l'hydrolyse de résines polyester », These de doctorat, Paris, ENSAM, 1995. Consulté le: 16 avril 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://www.theses.fr/1995ENAM0036>
- [142] W. Garat, « Contribution à l'analyse dimensionnelle et mécanique des fibres végétales en environnement humide contrôlé », p. 200, 2021.
- [143] A. Rafsanjani, M. Stiefel, K. Jefimovs, R. Mokso, D. Derome, et J. Carmeliet, « Hygroscopic swelling and shrinkage of latewood cell wall micropillars reveal ultrastructural anisotropy », *J. R. Soc. Interface*, vol. 11, n° 95, p. 20140126, juin 2014, doi: 10.1098/rsif.2014.0126.
- [144] M. M. Lu, C. A. Fuentes, et A. W. Van Vuure, « Moisture sorption and swelling of flax fibre and flax fibre composites », *Compos. Part B Eng.*, vol. 231, p. 109538, févr. 2022, doi: 10.1016/j.compositesb.2021.109538.
- [145] M. Chen, B. Coasne, R. Guyer, D. Derome, et J. Carmeliet, « Role of hydrogen bonding in hysteresis observed in sorption-induced swelling of soft nanoporous polymers », *Nat. Commun.*, vol. 9, n° 1, p. 3507, août 2018, doi: 10.1038/s41467-018-05897-9.
- [146] W. Garat, N. Le Moigne, S. Corn, J. Beaugrand, et A. Bergeret, « Swelling of natural fibre bundles under hygro- and hydrothermal conditions: Determination of hydric expansion coefficients by automated laser scanning », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 131, p. 105803, avr. 2020, doi: 10.1016/j.compositesa.2020.105803.

- [147] J. Sheridan, M. Sonebi, S. Taylor, et S. Amziane, « The effect of long term weathering on hemp and rapeseed concrete », *Cem. Concr. Res.*, vol. 131, p. 106014, mai 2020, doi: 10.1016/j.cemconres.2020.106014.
- [148] T. Oksanen, J. Buchert, et L. Viikari, « The Role of Hemicelluloses in the Hornification of Bleached Kraft Pulps », *Holzforschung*, vol. 51, n° 4, p. 355-360, janv. 1997, doi: 10.1515/hfsg.1997.51.4.355.
- [149] M. Hietala, S. Sain, et K. Oksman, « Highly redispersible sugar beet nanofibers as reinforcement in bionanocomposites », *Cellulose*, vol. 24, n° 5, p. 2177-2189, mai 2017, doi: 10.1007/s10570-017-1245-6.
- [150] T. Uesaka, « DIMENSIONAL STABILITY AND ENVIRONMENTAL EFFECTS ON PAPER PROPERTIES », in *Handbook of Physical Testing of Paper*, 2^e éd. CRC Press, 2002.
- [151] G. V. Laivins et A. M. Scallan, « THE MECHANISM OF HORNIFICATION OF WOOD PULPS », 1993, doi: 10.15376/frc.1993.2.1235.
- [152] B. Koo, J. Jo, et S.-M. Cho, « Drying Effect on Enzymatic Hydrolysis of Cellulose Associated with Porosity and Crystallinity », *Appl. Sci.*, vol. 10, n° 16, p. 5545, août 2020, doi: 10.3390/app10165545.
- [153] L. Gautier, B. Mortaigne, V. Bellenger, et J. Verdu, « Osmotic cracking nucleation in hydrothermal-aged polyester matrix », *Polymer*, vol. 41, n° 7, p. 2481-2490, mars 2000, doi: 10.1016/S0032-3861(99)00383-3.
- [154] E. Kollia, Th. Loutas, E. Fiamgkou, A. Vavouliotis, et V. Kostopoulos, « Degradation behavior of glass fiber reinforced cyanate ester composites under hydrothermal ageing », *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 121, p. 200-207, nov. 2015, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2015.08.015.
- [155] X. Colin, E. Richaud, C. Monchy-Leroy, et J. Verdu, « Couplages dans le vieillissement des matériaux organiques », *Matér. Tech.*, vol. 97, n° 5, p. 325-337, 2009, doi: 10.1051/mattech/2009046.
- [156] M. Rouch, « Contribution à la compréhension des mécanismes de vieillissement hydrothermique de matériaux composites unidirectionnels polyester insaturé/fibre de lin », phdthesis, Normandie Université, 2018. Consulté le: 17 avril 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-01842261>
- [157] A. Chilali, W. Zouari, M. Assarar, H. Kebir, et R. Ayad, « Effect of water ageing on the load-unload cyclic behaviour of flax fibre-reinforced thermoplastic and thermosetting composites », *Compos. Struct.*, vol. 183, p. 309-319, janv. 2018, doi: 10.1016/j.compstruct.2017.03.077.
- [158] A. Le Duigou, P. Davies, et C. Baley, « Exploring durability of interfaces in flax fibre/epoxy micro-composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 48, p. 121-128, mai 2013, doi: 10.1016/j.compositesa.2013.01.010.
- [159] A. Simar, « Impact du vieillissement humide sur le comportement d'un composite à matrice organique tissé fabriqué par injection RTM : Mise en évidence d'un couplage entre absorption d'eau et thermo-oxydation de la matrice », phdthesis, ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique - Poitiers, 2014. Consulté le: 17 avril 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-01127544>
- [160] W. Garat, N. Moigne, S. Corn, J. Beaugrand, et A. Bergeret, « Swelling of Plant Fibers under Hygro/Hydrothermal Conditions: Determination of Hygro/Hydroexpansion Coefficients », *Rev. Compos. Matér. Avancés*, vol. 29, n° 4, p. 225-232, nov. 2019, doi: 10.18280/rcma.290406.
- [161] A. le Duigou, J. Merotte, A. Bourmaud, P. Davies, K. Belhouli, et C. Baley, « Hygroscopic expansion: A key point to describe natural fibre/polymer matrix interface

- bond strength », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 151, p. 228-233, oct. 2017, doi: 10.1016/j.compscitech.2017.08.028.
- [162] J. Viguié *et al.*, « Analysis of the hygroexpansion of a lignocellulosic fibrous material by digital correlation of images obtained by X-ray synchrotron microtomography: application to a folding box board », *J. Mater. Sci.*, vol. 46, n° 14, p. 4756-4769, juill. 2011, doi: 10.1007/s10853-011-5386-y.
- [163] A. C. Karmaker, A. Hoffmann, et G. Hinrichsen, « Influence of water uptake on the mechanical properties of jute fiber-reinforced polypropylene », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 54, n° 12, p. 1803-1807, déc. 1994, doi: 10.1002/app.1994.070541203.
- [164] A. Amiri, C. A. Ulven, et S. Huo, « Effect of Chemical Treatment of Flax Fiber and Resin Manipulation on Service Life of Their Composites Using Time-Temperature Superposition », *Polymers*, vol. 7, n° 10, Art. n° 10, oct. 2015, doi: 10.3390/polym7101493.
- [165] S. S. Munawar, K. Umemura, et S. Kawai, « Characterization of the morphological, physical, and mechanical properties of seven nonwood plant fiber bundles », *J. Wood Sci.*, vol. 53, n° 2, Art. n° 2, avr. 2007, doi: 10.1007/s10086-006-0836-x.
- [166] F. Ilczyszyn, A. Cherouat, et G. Montay, « Effect of Hemp Fibre Morphology on the Mechanical Properties of Vegetal Fibre Composite Material », *Adv. Mater. Res.*, vol. 875-877, p. 485-489, févr. 2014, doi: 10.4028/www.scientific.net/AMR.875-877.485.
- [167] K. Haag et J. Müssig, « Scatter in tensile properties of flax fibre bundles: influence of determination and calculation of the cross-sectional area », *J. Mater. Sci.*, vol. 51, n° 17, p. 7907-7917, sept. 2016, doi: 10.1007/s10853-016-0052-z.
- [168] F. de A. Silva, N. Chawla, et R. D. de T. Filho, « Tensile behavior of high performance natural (sisal) fibers », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 68, n° 15, p. 3438-3443, déc. 2008, doi: 10.1016/j.compscitech.2008.10.001.
- [169] A. Bezazi, A. Belaadi, M. Bourchak, F. Scarpa, et K. Boba, « Novel extraction techniques, chemical and mechanical characterisation of Agave americana L. natural fibres », *Compos. Part B Eng.*, vol. 66, p. 194-203, nov. 2014, doi: 10.1016/j.compositesb.2014.05.014.
- [170] V. Placet, F. Trivaudey, O. Cisse, V. Gucheret-Retel, et M. L. Boubakar, « Diameter dependence of the apparent tensile modulus of hemp fibres: A morphological, structural or ultrastructural effect? », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 43, n° 2, p. 275-287, févr. 2012, doi: 10.1016/j.compositesa.2011.10.019.
- [171] B. Yang *et al.*, « Temperature effect on graphene-filled interface between glass-carbon hybrid fibers and epoxy resin characterized by fiber-bundle pull-out test: Research Article », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 135, p. 46263, janv. 2018, doi: 10.1002/app.46263.
- [172] G. Vasconcelos, A. Camões, A. Martins, C. Jesus, R. Figueiro, et L. Silva, *Experimental characterization of gypsum-cork composite material reinforced with textile fibers*. 2014.
- [173] N. Razali, S. Sapuan, M. Jawaid, M. Ishak, et L. Yusriah, « Material characterization of Roselle fibre as potential reinforcement material for polymer composites », *Fibres Text. East. Eur.*, vol. 23, juill. 2015, doi: 10.5604/12303666.1167413.
- [174] K. Charlet, J. P. Jernot, S. Eve, M. Gomina, et J. Bréard, « Multi-scale morphological characterisation of flax: From the stem to the fibrils », *Carbohydr. Polym.*, vol. 82, n° 1, p. 54-61, août 2010, doi: 10.1016/j.carbpol.2010.04.022.
- [175] C. Alves *et al.*, « Ecodesign of automotive components making use of natural jute fiber composites », *J. Clean. Prod.*, vol. 18, n° 4, p. 313-327, mars 2010, doi: 10.1016/j.jclepro.2009.10.022.

- [176] K. Thangavel et R. Murugan, « Characterization and analysis of ligno-cellulosic seed fiber from *Pergularia Daemia* plant for textile applications », *Fibers Polym.*, vol. 14, mars 2013, doi: 10.1007/s12221-013-0465-0.
- [177] S. R. Ferreira, F. de A. Silva, P. R. L. Lima, et R. D. Toledo Filho, « Effect of hornification on the structure, tensile behavior and fiber matrix bond of sisal, jute and curauá fiber cement based composite systems », *Constr. Build. Mater.*, vol. 139, p. 551-561, mai 2017, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2016.10.004.
- [178] M. Gregoire, E. De Luycker, M. Bar, S. Musio, S. Amaducci, et P. Ouagne, « Study of solutions to optimize the extraction of hemp fibers for composite materials », *SN Appl. Sci.*, vol. 1, n° 10, p. 1293, oct. 2019, doi: 10.1007/s42452-019-1332-4.
- [179] W. Garat, S. Corn, N. Le Moigne, J. Beaugrand, et A. Bergeret, « Analysis of the morphometric variations in natural fibres by automated laser scanning: Towards an efficient and reliable assessment of the cross-sectional area », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 108, p. 114-123, mai 2018, doi: 10.1016/j.compositesa.2018.02.018.
- [180] Y. Sinchuk, Y. Pannier, M. Gueguen, D. Tandiang, et M. Gigliotti, « Computed-tomography based modeling and simulation of moisture diffusion and induced swelling in textile composite materials », *Int. J. Solids Struct.*, vol. 154, p. 88-96, déc. 2018, doi: 10.1016/j.ijsolstr.2017.05.045.
- [181] W. Garat, S. Corn, N. Moigne, J. Beaugrand, P. Ienny, et A. Bergeret, « Dimensional Variations and Mechanical Behavior of Various Plant Fibre Species under Controlled Hydro / Hygrothermal Conditions », *Rev. Compos. Matér. Avancés*, vol. 29, n° 5, p. 299-304, nov. 2019, doi: 10.18280/rcma.290504.
- [182] T. Joffre *et al.*, « A Method to Measure Moisture Induced Swelling Properties of a Single Wood Cell », *Exp. Mech.*, vol. 56, n° 5, p. 723-733, juin 2016, doi: 10.1007/s11340-015-0119-9.
- [183] C. A. S. Hill, A. Norton, et G. Newman, « The water vapor sorption behavior of natural fibers », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 112, n° 3, p. 1524-1537, mai 2009, doi: 10.1002/app.29725.
- [184] T. UESAKA, C. MOSS, et Y. NANRI, « The characterization of hygroexpansivity of paper », *Charact. Hygroexpansivity Pap.*, vol. 18, n° 1, p. J11-J16, 1992.
- [185] T. Stuart, R. D. McCall, H. S. S. Sharma, et G. Lyons, « Modelling of wicking and moisture interactions of flax and viscose fibres », *Carbohydr. Polym.*, vol. 123, p. 359-368, juin 2015, doi: 10.1016/j.carbpol.2015.01.053.
- [186] M. F. Pucci, P.-J. Liotier, et S. Drapier, « Capillary wicking in flax fabrics – Effects of swelling in water », *Colloids Surf. Physicochem. Eng. Asp.*, vol. 498, p. 176-184, juin 2016, doi: 10.1016/j.colsurfa.2016.03.050.
- [187] E. Marklund et J. Varna, « Modeling the hygroexpansion of aligned wood fiber composites », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 69, n° 7-8, p. 1108-1114, juin 2009, doi: 10.1016/j.compscitech.2009.02.006.
- [188] F. Cichocki Jr., « Thermoelastic anisotropy of a natural fiber », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 62, n° 5, p. 669-678, avr. 2002, doi: 10.1016/S0266-3538(02)00011-8.
- [189] Y. Brouard, N. Belayachi, D. Hoxha, S. Méo, et W. Abdallah, « Hygrothermal Behavior of Clay - Sunflower (*Helianthus annuus*) and Rape Straw (*Brassica napus*) Plaster Bio-Composites for Building Insulation », *Adv. Eng. Forum*, vol. 21, p. 242-248, mars 2017, doi: 10.4028/www.scientific.net/AEF.21.242.
- [190] J. Lanas et J. I. Alvarez-Galindo, « Masonry repair lime-based mortars: factors affecting the mechanical behavior », *Cem. Concr. Res.*, vol. 33, n° 11, p. 1867-1876, nov. 2003, doi: 10.1016/S0008-8846(03)00210-2.
- [191] J. C. dos Santos, L. Á. de Oliveira, L. M. Gomes Vieira, V. Mano, R. T. S. Freire, et T. H. Panzera, « Eco-friendly sodium bicarbonate treatment and its effect on epoxy and

- polyester coir fibre composites », *Constr. Build. Mater.*, vol. 211, p. 427-436, juin 2019, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2019.03.284.
- [192] R. B. Valença *et al.*, « Influence of sodium bicarbonate (NaHCO₃) on the methane generation potential of organic food waste », *J. Clean. Prod.*, vol. 317, p. 128390, oct. 2021, doi: 10.1016/j.jclepro.2021.128390.
- [193] F. Guilak, « Volume and surface area measurement of viable chondrocytes in situ using geometric modelling of serial confocal sections », *J. Microsc.*, vol. 173, n° 3, p. 245-256, mars 1994, doi: 10.1111/j.1365-2818.1994.tb03447.x.
- [194] C. Rivetti et S. Codeluppi, « Accurate length determination of DNA molecules visualized by atomic force microscopy: evidence for a partial B- to A-form transition on mica », *Ultramicroscopy*, vol. 87, n° 1-2, p. 55-66, mars 2001, doi: 10.1016/S0304-3991(00)00064-4.
- [195] Y. Nikishkov, L. Airoidi, et A. Makeev, « Measurement of voids in composites by X-ray Computed Tomography », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 89, p. 89-97, déc. 2013, doi: 10.1016/j.compscitech.2013.09.019.
- [196] A. Ghavidel, J. Gelbrich, A. Kuqo, V. Vasilache, et I. Sandu, « Investigation of Archaeological European White Elm (*Ulmus laevis*) for Identifying and Characterizing the Kind of Biological Degradation », *Heritage*, vol. 3, n° 4, Art. n° 4, déc. 2020, doi: 10.3390/heritage3040060.
- [197] J. Li *et al.*, « Sustainable environmental remediation via biomimetic multifunctional lignocellulosic nano-framework », *Nat. Commun.*, vol. 13, n° 1, p. 4368, déc. 2022, doi: 10.1038/s41467-022-31881-5.
- [198] Š. Hýsek et S. Żółtowska, « Novel Lignin–Beeswax adhesive for production of composites from beech and spruce particles », *J. Clean. Prod.*, vol. 362, p. 132460, août 2022, doi: 10.1016/j.jclepro.2022.132460.
- [199] S. Chaitanya et I. Singh, « Ecofriendly treatment of aloe vera fibers for PLA based green composites », *Int. J. Precis. Eng. Manuf.-Green Technol.*, vol. 5, n° 1, p. 143-150, janv. 2018, doi: 10.1007/s40684-018-0015-8.
- [200] P. W. Raharjo, R. Soenoko, A. Purnowidodo, et A. Choiron, « Characterization of Sodium-Bicarbonate-Treated Zalacca Fibers as Composite Reinforcements », *Evergreen*, vol. 6, n° 1, p. 29-38, mars 2019, doi: 10.5109/2321001.
- [201] P. Sahu et M. K. Gupta, « Effect of ecofriendly coating and treatment on mechanical, thermal and morphological properties of sisal fibre », *Indian J. Fibre Text. Res. IJFTR*, vol. 44, n° 2, Art. n° 2, juin 2019, doi: 10.56042/ijftr.v44i2.21100.
- [202] S. I. Hossain, M. Hasan, M. N. Hasan, et A. Hassan, « Effect of Chemical Treatment on Physical, Mechanical and Thermal Properties of Ladies Finger Natural Fiber », *Adv. Mater. Sci. Eng.*, vol. 2013, p. e824274, oct. 2013, doi: 10.1155/2013/824274.
- [203] F. Sarker, M. Z. Uddin, K. Sowrov, M. S. Islam, et A. Miah, « Improvement of mechanical and interfacial properties of hot water and sodium bicarbonate treated jute fibers for manufacturing high performance natural composites », *Polym. Compos.*, vol. 43, n° 3, p. 1330-1342, mars 2022, doi: 10.1002/pc.26451.
- [204] D. Zindani, S. Kumar, S. R. Maity, et S. Bhowmik, « Mechanical Characterization of Bio-epoxy Green Composites Derived from Sodium Bicarbonate Treated Punica Granatum Short Fiber Agro-waste », *J. Polym. Environ.*, vol. 29, n° 1, p. 143-155, janv. 2021, doi: 10.1007/s10924-020-01868-8.
- [205] S. R. Culler, S. Naviroj, H. Ishida, et J. L. Koenig, « Analytical and spectroscopic investigation of the interaction of CO₂ with amine functional silane coupling agents on glass fibers », *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 96, n° 1, p. 69-79, nov. 1983, doi: 10.1016/0021-9797(83)90009-7.

- [206] Q. Zhang, L. Cheng, X. Ma, X. Zhou, et Y. Xu, « Revalorization of sunflower stalk pith as feedstock for the coproduction of pectin and glucose using a two-step dilute acid pretreatment process », *Biotechnol. Biofuels*, vol. 14, n° 1, p. 194, déc. 2021, doi: 10.1186/s13068-021-02045-2.
- [207] L. Zhang *et al.*, « A Comparative Investigation on Structural and Chemical Differences between the Pith and Rind of Sunflower Stalk and Their Influences on Nanofibrillation Efficiency », *Polymers*, vol. 14, n° 5, p. 930, févr. 2022, doi: 10.3390/polym14050930.
- [208] R. Morcillo-Martín, E. Espinosa, L. Rabasco-Vílchez, L. M. Sanchez, J. de Haro, et A. Rodríguez, « Cellulose Nanofiber-Based Aerogels from Wheat Straw: Influence of Surface Load and Lignin Content on Their Properties and Dye Removal Capacity », *Biomolecules*, vol. 12, n° 2, Art. n° 2, févr. 2022, doi: 10.3390/biom12020232.
- [209] L. Wang, C. Chen, J. Wang, D. J. Gardner, et M. Tajvidi, « Cellulose nanofibrils versus cellulose nanocrystals: Comparison of performance in flexible multilayer films for packaging applications », *Food Packag. Shelf Life*, vol. 23, p. 100464, mars 2020, doi: 10.1016/j.fpsl.2020.100464.
- [210] B. K. Stefanowski, S. F. Curling, et G. A. Ormondroyd, « A rapid screening method to determine the susceptibility of bio-based construction and insulation products to mould growth », *Int. Biodeterior. Biodegrad.*, vol. 116, p. 124-132, janv. 2017, doi: 10.1016/j.ibiod.2016.10.025.
- [211] M. Viel *et al.*, « Resistance to mold development assessment of bio-based building materials », *Compos. Part B Eng.*, vol. 158, p. 406-418, févr. 2019, doi: 10.1016/j.compositesb.2018.09.063.
- [212] G. Delannoy *et al.*, « Aging of hemp shiv used for concrete », *Mater. Des.*, vol. 160, p. 752-762, déc. 2018, doi: 10.1016/j.matdes.2018.10.016.
- [213] A. Ledhem, R. M. Dheilly, M. L. Benmalek, et M. Quéneudec, « Properties of wood-based composites formulated with aggregate industry waste », *Constr. Build. Mater.*, vol. 14, n° 6-7, p. 341-350, sept. 2000, doi: 10.1016/S0950-0618(00)00037-4.
- [214] A. Regazzi, S. Corn, P. Ienny, J.-C. Bénézet, et A. Bergeret, « Reversible and irreversible changes in physical and mechanical properties of biocomposites during hydrothermal aging », *Ind. Crops Prod.*, vol. 84, p. 358-365, juin 2016, doi: 10.1016/j.indcrop.2016.01.052.
- [215] A. Stamboulis, C. A. Baillie, S. K. Garkhail, H. G. H. van Melick, et T. Peijs, « Environmental Durability of Flax Fibres and their Composites based on Polypropylene Matrix », *Appl. Compos. Mater.*, vol. 7, n° 5, p. 273-294, nov. 2000, doi: 10.1023/A:1026581922221.
- [216] S. Rosa Latapie, A. Abou-Chakra, et V. Sabathier, « Microstructure of Bio-Based Building Materials: New Insights into the Hysteresis Phenomenon and Its Consequences », *Buildings*, vol. 13, n° 7, p. 1650, juin 2023, doi: 10.3390/buildings13071650.
- [217] F. Benmahiddine, F. Bennai, R. Cherif, R. Belarbi, A. Tahakourt, et K. Abahri, « Experimental investigation on the influence of immersion/drying cycles on the hygrothermal and mechanical properties of hemp concrete », *J. Build. Eng.*, vol. 32, p. 101758, nov. 2020, doi: 10.1016/j.job.2020.101758.
- [218] E. Kollia, X. Saridaki, D. Karagiannis, et V. Kostopoulos, « Effect of water aging on the mechanical properties of flax fiber/bio-based resin composites », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 137, n° 13, p. 48787, avr. 2020, doi: 10.1002/app.48787.
- [219] J. Monge, « Fissuration des mortiers en couches minces - Effet de l'hydratation, du séchage et de la carbonatation », phdthesis, École normale supérieure de Cachan - ENS Cachan, 2007. Consulté le: 23 août 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-00256911>

- [220] H. Beushausen et N. Bester, « The influence of curing on restrained shrinkage cracking of bonded concrete overlays », *Cem. Concr. Res.*, vol. 87, p. 87-96, sept. 2016, doi: 10.1016/j.cemconres.2016.05.007.
- [221] S. Igarashi, H. R. Kubo, et M. Kawamura, « Long-term volume changes and microcracks formation in high strength mortars », *Cem. Concr. Res.*, vol. 30, n° 6, p. 943-951, juin 2000, doi: 10.1016/S0008-8846(00)00251-9.
- [222] M. S. Matthieu, « Potentiel des fibres végétales courtes dans l'amélioration du comportement mécanique des mortiers », phdthesis, INSA de Toulouse, 2022. Consulté le: 17 août 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://theses.hal.science/tel-03772550>
- [223] S. Garcia-Boivin, « Retrait au jeune age du beton : Developpement d'une methode experimentale et contribution a l'analyse physique du retrait endogene », *THESE Present. POUR OBTENIR TITRE Dr. ECOLE Natl. PONTS CHAUSSEES - Spec. Struct. Mater.*, juill. 1999, Consulté le: 17 août 2023. [En ligne]. Disponible sur: <https://trid.trb.org/view/960738>