HAL
archives-ouvertes.fr

# Mise au point de nouveaux bio-composites verts innovants à base de roseau commun Phragmites australis : applications en plasturgie et en éco-construction pour le bâtiment

Mathilde Honore

**To cite this version:**

Mathilde Honore. Mise au point de nouveaux bio-composites verts innovants à base de roseau commun Phragmites australis : applications en plasturgie et en éco-construction pour le bâtiment. Matériaux. Université de Bretagne Sud, 2020. Français. NNT : 2020LORIS572 . tel-03173230

**HAL Id: tel-03173230**

**https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-03173230**

Submitted on 18 Mar 2021

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THÈSE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE BRETAGNE SUD

École Doctorale n° 602

*Sciences pour l'Ingénieur*

Spécialité « *Génie des Matériaux* »

Par

**Mathilde HONORE**

## Mise au point de nouveaux bio-composites verts innovants à base de roseau commun *Phragmites australis*

Applications en Plasturgie et Éco-construction pour le bâtiment

**Thèse présentée et soutenue à Lorient, le 3 novembre 2020**

**Unité de recherche : Institut de Recherche Dupuy de Lôme UMR CNRS 6027**

**Thèse n° 572**

**Composition du jury :**

| | | |
|---|---|---|
| Rapporteurs : | Johnny Beaugrand | Directeur de Recherches, INRA Nantes |
| | Camille Magniont | Professeure, IUT Tarbes/LMDC Toulouse |
| Examinateurs : | Sofiane Amziane | Professeur, Polytech Clermont-Ferrand |
| | Vincent Placet | Ingénieur de Recherche HDR, Université de Franche-Comté/Institut FEMTO-ST |
| Directrice de thèse : | Sylvie Pimbert | Maître de Conférence HDR, Université Bretagne Sud |
| Co-directeur de thèse : | Thibaut Lecompte | Maître de Conférence HDR, Université Bretagne Sud |

**Invité**

| | |
|---|---|
| Arthur Hellouin de Menibus | Chercheur, Eco-Pertica |

*"It always seems impossible until it is done"*

**Nelson Mandela**

# REMERCIEMENTS

Je remercie en premier lieu Camille Magniont et Johnny Beaugrand pour avoir accepté d'être rapporteurs des travaux de cette thèse ainsi que Sofiane Amziane et Vincent Placet pour en avoir été les examinateurs.

Ces trois années de thèse sont de loin les années les plus enrichissantes de mes études. Les ingrédients de cette folle aventure sont tout d'abord un bon encadrement et pour cela je remercie mes directeurs de thèse, Sylvie Pimbert et Thibaut Lecompte, pour leur accompagnement scientifique sans faille tout au long de ces trois années. Je vous remercie d'avoir cru en moi et de m'avoir apporté toute la confiance et la volonté afin d'accomplir un tel travail. Merci Sylvie pour les nombreux repas passés en ta compagnie, ta disponibilité pour la thèse et les nombreux cadeaux offerts au fil de tes voyages. Merci Thibaut d'avoir su me guider dans ce domaine de l'éco-construction encore inconnu pour moi au début de la thèse et pour toutes ces discussions rassurantes sans parler de ton humour qui te caractérise si bien !

Je remercie Authur Hellouin de Menibus et Alain Bourmaud pour leur implication dans ma thèse en tant que membres de mon comité de suivi et pour leurs conseils permettant plus de recul et de perspectives pour continuer les recherches.

Merci également aux stagiaires, Antoine, Gauthier et Lydia, avec qui j'ai travaillé et qui ont contribué aux résultats de cette thèse.

Mes remerciements s'adressent aussi à tous les acteurs de la filière roseau en France pour leur aide dans l'approvisionnement de matières premières mais également pour les discussions enrichissantes que j'ai pu avoir avec eux. Merci à Alexandre Capelle et Sébastien Illovic (ADEV Environnement), Mireille Avril (RizHome), Christian Danilo (Marais de Pen-Mané), Louise Debout (Parc Naturel des Vosges du Nord), Jean-Yves Fery (Conservatoire d'espaces naturels Lorraine), Manuel Zaepffel et Luc Moritz (Bâtilibre), Richard Lacortiglia (Le Gabion), Carole Lemans (École Nationale Supérieure d'Architecture de Normandie) et Anne Brasselet (Parc Naturel Régional de Brière).

Le bon déroulement d'une thèse n'est possible que grâce à une équipe technique au top et je remercie pour cela Hervé, Françoise, Anthony M, Isabelle, Anthony J et William pour leur disponibilité et leurs conseils toujours avisés. Mes remerciements s'adressent particulièrement à Antoine qui n'a jamais manqué de voler à mon secours lors de mes manips (on connait tous ma chance légendaire !). Merci également à mes « collègues du midi » Laëtitia, Jean-Marc, Arnaud, Vincent, Laurent, Hervé, Julien, Thomas, Yann et Noëlie (<3) pour leur bonne humeur et les sujets de discussion passionnants permettant de passer d'agréables pauses. Je n'oublie pas Séverine et Gwénola, deux merveilleuses personnes avec qui j'ai pu échanger de nombreuses fois sur des sujets aussi variés qu'intéressants.

La thèse est également une aventure humaine et pour cela je remercie mes collègues doctorants/docteurs qui ont fait de ces trois années un cocktail de souvenirs inoubliables et je pense bien évidemment à Tatiana, Samuel, Victor, Lucile, Delphin, Chloé, Mickaël, Dihya et bien d'autres que j'oublie mais qui m'excuseront sûrement !

Je remercie infiniment mes collègues de bureau qui ont embelli mes journées, Yohan pour ton altruisme et ta gentillesse, Théo pour ta bonne humeur et ta plus belle qualité, celle d'être Normand, Adrien pour les innombrables répliques au second degré qui m'ont (presque) toujours fait rire, Florent pour ta patience et ta maturité (liée à ton grand âge sûrement). Merci à vous Adrien et Florent d'avoir toujours su trouver les mots lorsqu'il m'arrivait de douter. Pour finir, un grand merci à Monia, ma super copiiiiiine Moniaaaaaaa, merci pour tous ces moments passés à discuter, échanger nos astuces jardinage, cuisine et tant d'autres sujets. J'associe ces remerciements à Clémence, Katy et Rémi, les conjoints.

Je finis ces remerciements par le plus essentiel: ma famille ! Merci à mes parents, mes trois sœurs, ma belle-sœur et mon beau-frère sans oublier mes deux amours (mon neveu et ma nièce). Je vous remercie de m'avoir toujours soutenue quel que soit le chemin que j'empruntais et de m'avoir appris que lorsque l'on réalise quelque chose avec passion la réussite est toujours à la clef ! Merci à mon oncle et ma tante pour les moments passés en leur compagnie au cours de ces trois années et pour leur accueil pour la fin de ma rédaction. Merci à mes beaux-parents pour leurs encouragements. Enfin, merci à mon chéri de m'avoir suivie dans cette aventure les yeux fermés. Nous repartons de Bretagne chacun avec un nouveau diplôme et pour de nouvelles aventures qui seront, je l'espère, tout aussi épanouissantes.

# INTRODUCTION GÉNÉRALE

Quelque peu abandonnées depuis les révolutions industrielles du XIX$^{ème}$ siècle, les fibres végétales ont connu ces dernières années un véritable regain d'intérêt dans les secteurs de l'industrie et de la construction. Les enjeux environnementaux actuels nous orientent vers l'utilisation de nouveaux matériaux et procédés de mise en œuvre permettant de limiter l'impact de l'activité humaine sur l'environnement dans les différents secteurs d'activité. Il est donc légitime de s'interroger sur l'utilisation de nouveaux matériaux plus écologiques et notamment l'utilisation des bio-composites qui semble devenir de plus en plus pertinente en permettant l'allègement des matériaux et l'augmentation de leur contenu carbone, tout en préservant ou améliorant leurs propriétés d'usage, comme par exemple la rigidité ou l'esthétique. Ainsi, l'intérêt pour les bio-composites utilisant des végétaux tels que le chanvre, le lin, le bois mais également le roseau miscanthus ne cesse d'augmenter, notamment dans les domaines de la plasturgie et dans le secteur de la construction.

Un composite est défini par l'assemblage d'un ou plusieurs constituants dont les propriétés se complètent. L'ajout du préfixe bio- signifie que ces composites sont constitués en partie ou dans leur totalité de constituants issus de la biomasse.

Présent sur la majorité des continents et considéré comme une espèce invasive, le roseau commun, appelé *Phragmites australis*, se retrouve principalement dans les zones humides. Ses propriétés et sa disponibilité font de cette plante un matériau renouvelable et performant. De plus, n'utilisant pas les surfaces de cultures, ce roseau naturel est indépendant des enjeux agricoles et ne demande aucun intrant chimique, contrairement au miscanthus, au lin et au chanvre . La récolte du roseau s'inscrit donc dans une démarche de gestion des zones humides tout en valorisant un matériau aux multiples propriétés.

Cette thèse est un travail exploratoire sur le potentiel du roseau phragmites dans les domaines du bâtiment et de la plasturgie. Les travaux ont été réalisés en partenariat avec ADEV Environnement et RizHome, deux acteurs de la filière roseau en France et financés pour moitié par le Conseil Général du Morbihan et l'autre moitié par une Bourse du Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche. Ils sont consacrés à la caractérisation du matériau brut *Phragmites australis* et à l'étude de son éligibilité comme matériau en substitution de trois matériaux de référence, le bois, le miscanthus et la chènevotte, actuellement utilisés comme charges en plasturgie et granulats en éco-construction.

Le manuscrit comprend quatre chapitres.

Le premier chapitre est consacré au *Phragmites australis*, sa structure et ses propriétés. Le rôle de cette plante dans l'écosystème et sa répartition géographique en France et dans le monde sont également développés avant une présentation des objectifs et points clefs de recherche de la thèse. Ce chapitre se termine par une présentation détaillée des matériaux utilisés pendant l'étude, les différents échantillons de roseaux récoltés ainsi que des références choisies.

Les trois autres chapitres s'articulent autour de trois grands axes d'étude:

Le premier axe (chapitre 2) concerne l'étude du matériau brut, c'est-à-dire le roseau en tiges entières ou broyées plus ou moins finement. Il s'agit de caractériser au maximum ce matériau peu étudié et d'identifier les facteurs clés pour une application dans le domaine des composites. Cela va des caractéristiques intrinsèques du matériau : morphologie selon l'aspect (tiges, broyat, farine…), composition chimique, dégradation et stabilité thermique, à des propriétés plus spécifiques selon les applications souhaitées, à savoir en plasturgie et en béton isolant, comme les caractéristiques mécaniques en traction ou les mesures de conductivité thermique. Toutes ces caractéristiques sont également comparées à celles du bois et du miscanthus pour la partie composites à matrices polymères et à celles de la chènevotte pour la partie composites à matrices minérales ou argileuses. Ce chapitre est un point central de la thèse dans la connaissance du matériau qui nous permettra d'analyser et interpréter les résultats obtenus dans les chapitres à suivre.

Le second axe (chapitre 3) est consacré à l'étude des composites à matrices polymères thermoplastiques pour des applications en plasturgie. Deux matrices ont été utilisées ; une matrice pétro-sourcée d'usage très courant, le PolyPropylène (PP), avec laquelle les propriétés de premières formulations à différents taux de farines végétales sont évaluées. L'objectif de cette première campagne est de mettre en évidence les formulations les plus intéressantes en termes de composition pour ensuite se focaliser sur des bio-composites à matrice bio-sourcée et biodégradable à base de PolyButylène Succinate (PBS). Le comportement mécanique de ces composites sera caractérisé en traction/flexion et en choc Charpy ; leurs caractéristiques physico-chimiques comme l'absorption d'eau seront également évaluées ainsi que la cohésion charges/matrice dans ces composites. Le Polypropylène étant un polymère non polaire, des formulations avec un agent compatibilisant ont également été testées pour améliorer les propriétés de ces composites. L'influence de la taille des particules végétales sur les propriétés en traction et en absorption d'eau des composites à base PP a été étudiée.

Le troisième et dernier axe (chapitre 4) concerne l'étude de l'éligibilité du roseau en tant que matériau pour la construction. Nous avons choisi d'axer nos travaux sur la valorisation du *Phragmites australis* sous forme de béton de remplissage. L'étude s'appuie principalement sur des bétons réalisés avec un mélange de chaux, le Bâtichanvre®, conçu pour les bétons de chènevotte de chanvre. D'autres formulations ont également été testées avec une terre de référence afin de comparer les propriétés des mélanges terre/roseau et terre/chènevotte. La variabilité du roseau est également un point clef de l'étude afin de permettre une utilisation locale de la ressource sur les chantiers de construction. En effet, selon le lieu et la période de récolte, les propriétés intrinsèques du roseau peuvent varier ; c'est pourquoi, nous avons fait varier la taille des granulats, le lieu de récolte et la période de fauche (roseau d'été ou roseau d'hiver).

À partir de l'ensemble des résultats de ce travail exploratoire, une conclusion générale présentera une vue d'ensemble des principales avancées de la thèse ainsi que les perspectives pertinentes pour de futurs travaux.

# TABLE DES MATIÈRES

**INTRODUCTION GÉNÉRALE** ..... **1**

**Liste des figures** ..... **14**

**Liste des tableaux** ..... **20**

CHAPITRE 1 : PRESENTATION DU ROSEAU COMMUN *PHRAGMITES AUSTRALIS* ET ENJEUX DE LA THESE ..... 23

**Introduction** ..... **25**

I. Historique ..... 26

**I.1.** Apparition et usages ..... 26

**I.2.** Développement de l'utilisation du roseau commun ..... 26

II. Structure et propriétés ..... 27

**II.1.** Morphologie ..... 27

**II.2.** Propagation et croissance ..... 28

**II.3.** Composition ..... 30

**II.3.a.** Généralités ..... 30

**II.3.b.** Composition du roseau ..... 32

**II.4.** Plantes de la même famille ..... 34

**II.4.a.** Graminées ..... 34

**II.4.b.** Confusion Miscanthus/Phragmites ..... 35

III. Répartition géographique et habitat ..... 36

**III.1.** À l'échelle mondiale ..... 36

**III.2.** En France ..... 37

**III.2.a.** En superficie ..... 38

**III.2.b.** En nombre de sites ..... 39

**III.3.** En Bretagne ..... 39

IV. Le roseau *Phragmites australis* dans l'écosystème ..... 40

**IV.1.** Le rôle des roselières ..... 41

**IV.2.** Contrôle de l'expansion ..... 42

**IV.3.** Entretien des roselières ..... 43

**IV.3.a.** Le roseau d'hiver ..... 43

**IV.3.b.** Le roseau d'été dit vert ..... 44

**IV.3.c.** Méthodes de récolte ..... 45

V. Voies de valorisation du roseau commun ..... 47

**V.1.** Utilisation du roseau phragmites et études actuelles ..... 47
**V.2.** Objectifs des travaux de thèse ..... 48
VI. Présentation des matériaux de l'étude ..... 49
**VI.1.** Les différents échantillons de roseaux ..... 49
**VI.2.** Les références ..... 51

**Conclusion ..... 52**

CHAPITRE 2 : CARACTÉRISATION DES MATÉRIAUX DE PREMIÈRE TRANSFORMATION ..... 53

**Introduction ..... 55**

**Partie 1 : Présentation des échantillons de roseaux utilisés pendant la thèse ..... 56**
I. Matériaux de première transformation ..... 56
II. Échantillons pour le volet plasturgie ..... 56
**II.1.** Farines de roseau Phragmites ..... 56
**II.2.** Problèmes rencontrés sur les premiers échantillons ..... 57
**II.2.a.** Sable ..... 57
**II.2.b.** Copeaux métalliques ..... 59
**II.3.** Échantillons broyés à l'IRDL ..... 59
III. Échantillons pour le volet Écoconstruction ..... 60

**Partie 2 : Caractéristiques intrinsèques des matériaux ..... 61**
I. Composition chimique : méthodes et comparaisons ..... 61
**I.1.** Méthode de Van Soest ..... 61
**I.1.a.** La matière sèche ..... 62
**I.1.b.** Les NDF : Neutral Detergent Fibres ..... 62
**I.1.c.** Les ADF : Acid Detergent Fibres ..... 62
**I.1.d.** L'ADL : Acid Detergent Lignin ..... 63
**I.1.e.** Minéraux ..... 63
**I.1.f.** Quantités lignocellulosiques ..... 63
**I.2.** Méthode de TAPPI ..... 64
**I.2.a.** Les extractibles ..... 64
**I.2.b.** La lignine ..... 65
**I.2.c.** La cellulose ..... 67
**I.3.** Comparaison des méthodes ..... 68
**I.4.** Analyses INRA ..... 70
**I.5.** Résultats ..... 70
**I.5.a.** Comparaison Van Soest et TAPPI ..... 70

**I.5.b.** Comparaison des méthodes de quantification de la lignine ..... 72
**I.5.c.** Comparaison de Van Soest LDA56 et IRDL ..... 74
**I.5.d.** Résultats pour l'ensemble des échantillons de roseaux ..... 75
II. Composition chimique : taux de Silicium et Sodium ..... 76
**II.1.** Teneur en Silicium (Si) ..... 76
**II.1.a.** Méthode ..... 76
**II.1.b.** Résultats et discussion ..... 77
**II.2.** Teneur en Sodium (Na) ..... 78
**II.2.a.** Méthode ..... 78
**II.2.b.** Résultats et discussion ..... 78

**Partie 3 : Caractérisation granulométrique et comportement à l'eau ..... 79**
I. Distribution granulométrique ..... 79
**I.1.** Évaluation de la granulométrie ..... 79
**I.1.a.** Prises de clichés ..... 79
**I.1.b.** Analyse par ImageJ® ..... 80
**I.2.** Répartition granulométrique des farines ..... 80
**I.3.** Répartition granulométrique des granulats ..... 82
II. Courbes de sorption ..... 84
**II.1.** Protocole ..... 84
**II.2.** Influence de la taille des particules ..... 86
**II.3.** Courbes de sorption : résultats ..... 87

**Partie 4 : Caractérisation des farines pour une valorisation en plasturgie ..... 88**
I. Analyses ThermoGravimétriques ..... 88
**I.1.** ATG en dynamique ..... 89
**I.2.** ATG en isotherme ..... 90
II. Comportement des farines à l'eau liquide ..... 91
**II.1.** Méthode de Washburn – mesure indirecte ..... 92
**II.2.** Méthode de la goutte sessile – mesure directe ..... 95

**Partie 5 : Caractérisation des granulats pour valorisation en écoconstruction ..... 100**
I. Taux de poussières ..... 101
**I.1.** Protocole ..... 101
**I.2.** Résultats ..... 101
II. Morphologies ..... 102
**II.1.** Préparation des échantillons ..... 102
**II.2.** Les différents tissus du roseau phragmites ..... 103
**II.2.a.** Roseau sec d'hiver ..... 103

**II.3.** Comparaison avec la chènevotte ..... 105
III. Masses volumiques ..... 106
**III.1.** Masse volumique des parois ..... 107
**III.2.** Masse volumique vrac ..... 108
IV. Capacité d'absorption d'eau ..... 109

**Conclusion ..... 112**

CHAPITRE 3 : ÉTUDE DE LA VALORISATION DU ROSEAU *PHRAGMITES AUSTRALIS* EN PLASTURGIE ..... 115

**Introduction ..... 117**

**Partie 1 Revue de la littérature scientifique ..... 118**
I. Catégories de matrices polymères ..... 118
- Les non biodégradables ..... 118
- Les bioplastiques ..... 119
II. Renforts et charges utilisés dans les bio-composites ..... 120
- Les fibres lignocellulosiques ..... 121
III. Travaux scientifiques sur les bio-composites ..... 122
**III.1.** Vue d'ensemble des travaux sur le phragmites, le miscanthus et le bois ..... 122
**III.2.** Influence de la taille de particules ..... 124
**III.3.** Influence de la teneur en charges ..... 124
IV. Compatibilisation matrice/charges ..... 124

**Partie 2 Étude expérimentale : matériaux et méthodes ..... 126**
I. Choix des formulations ..... 126
**I.1.** Les matrices ..... 126
**I.2.** Les charges végétales ..... 127
**I.3.** Formulations et nomenclature ..... 127
II. Procédés de mise en forme ..... 127
**II.1.** Mélange des formulations par extrusion ..... 127
**II.2.** Injection d'éprouvettes ..... 128
III. Techniques de caractérisation ..... 130
**III.1.** Caractérisations mécaniques ..... 130
**III.1.a.** Essai de traction ..... 130
**III.1.b.** Essai de flexion 3 points ..... 131
**III.1.c.** Essai de choc Charpy ..... 132
**III.2.** Propriétés physico-chimiques ..... 132

**III.2.a.** Absorption d'eau ..... 132
**III.2.b.** Analyses morphologiques ..... 133

**Partie 3 Étude expérimentale : résultats ..... 133**
I. Propriétés mécaniques ..... 133
**I.1.** Essais de traction ..... 133
**I.2.** Essais de flexion ..... 141
**I.3.** Résistance aux chocs ..... 144
II. Propriétés physico-chimiques ..... 148
**II.1.** Absorption d'eau ..... 148
**II.2.** Morphologies ..... 153

**Conclusion ..... 158**

CHAPITRE 4 : ÉTUDE DE LA VALORISATION DU ROSEAU *PHRAGMITES AUSTRALIS* EN ÉCO-CONSTRUCTION ..... 161

**Introduction ..... 163**

**Partie 1 Contexte de l'étude ..... 165**
I. Chiffres clefs ..... 165
II. Utilisation du végétal dans le domaine du génie civil ..... 167
**II.1.** Utilisation du matériau vrac ..... 167
**II.2.** Bio-composites pour le bâtiment ..... 167
**II.2.a.** Granulats ..... 167
**II.2.b.** Liant ..... 168
**II.2.c.** Formulations ..... 168
III. Utilisation du roseau commun dans le génie civil ..... 169
IV. Évaluation des propriétés ..... 169
**IV.1.** Propriétés mécaniques en compression ..... 170
**IV.1.a.** Littérature scientifique ..... 170
**IV.1.b.** Règles professionnelles d'exécution d'ouvrages en chanvre ..... 172
**IV.1.c.** Forme des échantillons ..... 173
**IV.2.** Propriétés thermiques ..... 173

**Partie 2 Étude expérimentale : Matériaux et mise en œuvre ..... 175**
I. Choix des formulations ..... 175
**I.1.** Les liants ..... 175
**I.2.** Les granulats végétaux ..... 175

**I.3.** Formulations et nomenclature ..... 176
**I.3.a.** 1ère campagne : formulations Saint-Astier ..... 176
**I.3.b.** 2ème campagne : variation de la quantité d'eau ..... 176
**I.3.c.** 3ème campagne : variation de la masse volumique ..... 177
**I.3.d.** 4ème campagne : variation du liant ..... 177
**I.3.e.** 5ème campagne : variabilité du granulat ..... 178
**I.4.** Méthodes de mise en œuvre des éprouvettes ..... 178
**I.4.a.** Mélange des constituants ..... 178
**I.4.b.** Compactage ..... 178

**Partie 3 Étude expérimentale : Protocoles et méthodes d'analyse ..... 179**
I. Essais de compression ..... 179
**I.1.** Cylindre ..... 180
**I.1.a.** Dispositif ..... 180
**I.1.b.** Méthode machine ..... 181
**I.2.** Cube ..... 181
**I.2.a.** Dispositif ..... 181
**I.2.b.** Méthode machine ..... 182
**I.3.** Types de courbes ..... 182
**I.4.** Évaluation de la rigidité : modules d'élasticité ..... 184
**I.5.** Évaluation de la limite d'élasticité ..... 185
II. Conductivité thermique ..... 186
**II.1.** Principe de l'appareil ..... 186
**II.2.** Mesures thermiques durant la thèse ..... 187

**Partie 4 Étude expérimentale : résultats ..... 187**
I. Propriétés mécaniques en compression ..... 187
**I.1.** Liant Bâtichanvre : formulations Saint-Astier ADEV1 et ADEV2 ..... 187
**I.2.** ADEV3/REF3 et ADEV-F1/REF-F1 : comparaison cylindres/cubes ..... 189
**I.2.a.** Compression des cylindres ..... 189
**I.2.b.** Compression des cubes ..... 191
**I.3.** Compression des cubes : comparaison des modules Traverse et Aramis ..... 192
**I.4.** ADEV-F1.2.3 et REF-F1.2.3 : Influence de la quantité d'eau ..... 193
**I.5.** BREN-F2-300.350.400 et ADEV-F1bis : Influence de la masse volumique ..... 196
**I.6.** Influence de la taille de granulats ..... 198
**I.7.** Influence de l'origine du roseau ..... 200
**I.7.a.** Influence de l'année de récolte ..... 200
**I.7.b.** Influence du lieu de récolte ..... 201
**I.7.c.** Influence du rouissage ..... 202

**I.7.d.** Influence de la salinité du roseau ..... 202
**I.7.e.** Lien entre la masse volumique et le module d'élasticité ..... 203
**I.7.f.** Explications de la mauvaise prise des bétons chaux/roseau ..... 204
**I.8.** Liant terre : ADEV-T et REF-T ..... 204
**I.9.** Liant PCC 24bis : comparaison ADEV-F1 et ADEV-P1 ..... 206
II. Propriétés thermiques ..... 207
**II.1.** ADEV1 et ADEV2 : comparaison de la conductivité selon le sens de découpe ..... 207
**II.2.** Conductivité à 23°C selon le type de liant et le granulat ..... 208
**II.3.** Conductivité après un séchage à 70°C en fonction de la masse volumique ..... 209

**Conclusion ..... 211**

CONCLUSION GÉNÉRALE ..... 215

COMMUNICATIONS ET PUBLICATIONS ..... 221

BIBLIOGRAPHIE ..... 225

**Annexes ..... 236**

## LISTE DES FIGURES


FIGURE 1 TOIT D'UN TEMPLE MAYA DATÉ AU CARBONE 14 À 1400 ANS ..... 26
FIGURE 2 DESCRIPTION DU ROSEAU PHRAGMITES AUSTRALIS [10] ..... 28
FIGURE 3 PHOTOS DES MODES DE PROPAGATION DU PHRAGMITES : RHIZOMES ET STOLONS (A) ET GRAINES DANS LES FLEURONS (B) 29
FIGURE 4 VARIATIONS DE LA MORPHOLOGIE DU ROSEAU EN FONCTION DU TAUX DE SEL [11] ..... 30
FIGURE 5 STRUCTURE ET ORGANISATION DES POLYSACCHARIDES COMPOSANT LE VÉGÉTAL [12] [13] ..... 31
FIGURE 6 COMPOSITION (% MASSIQUE) DU PHRAGMITES AUSTRALIS SELON LA PARTIE DE LA PLANTE [10] ..... 33
FIGURE 7 COMPOSITION (% MASSIQUE) DU PHRAGMITES AUSTRALIS (TIGE ENTIÈRE) AU COURS DE SA CROISSANCE [10] ..... 33
FIGURE 8 COMPOSITION MINÉRALE DES CENDRES DU ROSEAU PHRAGMITES AUSTRALIS [2] ..... 33
FIGURE 9 FAMILLE DES HERBES ET CANNES [19] ..... 34
FIGURE 10 COMPOSITION CHIMIQUE DE DIFFÉRENTES FIBRES VÉGÉTALES [90] ..... 35
FIGURE 11 RÉPARTITION DU PHRAGMITES AUSTRALIS DANS LE MONDE [10] ..... 37
FIGURE 12 RÉPARTITION DE LA SURFACE DES ROSELIÈRES SELON LEUR STATUT ..... 38
FIGURE 13 SUPERFICIE DES ROSELIÈRES SELON LES RÉGIONS DE FRANCE (HA=HECTARE) [24] ..... 38
FIGURE 14 NOMBRE DE ROSELIÈRES SELON LES RÉGIONS DE FRANCE [24] ..... 39
FIGURE 15 RÉPARTITION DE LA SUPERFICIE DES ROSELIÈRES EN BRETAGNE ..... 40
FIGURE 16 LES ESPÈCES VÉGÉTALES PRÉSENTES DANS LES ROSELIÈRES [26] ..... 40
FIGURE 17 PHOTO DE LA ROSELIÈRE DE PEN MANÉ À LOCMIQUÉLIC (56), © C. DANILO ..... 43
FIGURE 18 PHOTOS D'UNE DAMEUSE MODIFIÉE POUR LA RÉCOLTE DU ROSEAU, © C. DANILO ..... 45
FIGURE 19 PHOTOS DU BOTTELAGE DU ROSEAU FAUCHÉ, © C. DANILO ..... 46
FIGURE 20 PHOTO DU FANAGE DU ROSEAU FAUCHÉ, © C. DANILO ..... 46
FIGURE 21 LIEUX DE RÉCOLTE DES ÉCHANTILLONS DE ROSEAUX PHRAGMITES ..... 50
FIGURE 22 PROCESSUS DE BROYAGE POUR L'OBTENTION DES MATÉRIAUX DE PREMIÈRE TRANSFORMATION ..... 56
FIGURE 23 MISE EN ÉVIDENCE DE PARTICULES MINÉRALES DANS LES FORMULATIONS À BASE DE PHRAGMITES ..... 57
FIGURE 24 ANALYSE EDS D'UN GRAIN DE SABLE ..... 58
FIGURE 25 MISE EN ÉVIDENCE DE SABLE DANS LA FARINE DE PHRAGMITES AVEC UNE SOLUTION DE NAI ..... 58
FIGURE 26 COPEAUX MÉTALLIQUES PRÉSENTS DANS LA FARINE DE BRENNE SUR BARREAU AIMANTÉ ..... 59
FIGURE 27 MONTAGE SOXHLET ..... 65
FIGURE 28 ÉCHANTILLONS POUR L'ANALYSE AU SPECTROMÈTRE UV ..... 66
FIGURE 29 DIAGRAMME DE COMPARAISON DES MÉTHODES DE DOSAGE DES CONSTITUANTS ..... 69
FIGURE 30 EXTRACTIBLES/SOLUBLES - COMPARAISON DES MÉTHODES VAN SOEST ET TAPPI ..... 71
FIGURE 31 HÉMICELLULOSE - COMPARAISON DES MÉTHODES VAN SOEST ET TAPPI ..... 71
FIGURE 32 CELLULOSE - COMPARAISON DES MÉTHODES VAN SOEST ET TAPPI ..... 71
FIGURE 33 LIGNINE- COMPARAISON DES MÉTHODES VAN SOEST ET TAPPI ..... 71
FIGURE 34 DIAGRAMME DE COMPARAISON DES MÉTHODES DE DOSAGE DE LA LIGNINE PAR LA TAPPI ..... 72

Figure 35 Diagramme de comparaison des méthodes de dosage de la lignine à l'acide sulfurique et au bromure d'acétyle ..... 73
Figure 36 NDF – Comparaison Van Soest IRDL et LDA56 ..... 74
Figure 37 ADF - Comparaison Van Soest IRDL et LDA56 ..... 74
Figure 38 ADL - Comparaison Van Soest IRDL et LDA56 ..... 74
Figure 39 Matière sèche des échantillons de roseaux ..... 75
Figure 40 Résultats NDF pour l'ensemble des échantillons ..... 75
Figure 41 Résultats ADF pour l'ensemble des échantillons ..... 75
Figure 42 Résultats ADL pour l'ensemble des échantillons ..... 75
Figure 43 Taux de Silicium dans les échantillons de roseaux et les références ..... 77
Figure 44 Cartographie du silicium au MEB-EDS d'une tige de phragmites d'hiver ..... 78
Figure 45 Taux de Sodium dans les échantillons de roseaux et les références ..... 78
Figure 46 Traitement d'image avec le logiciel ImageJ®. (a) Image originale, (b) Contraste particules noires sur fond blanc, (c) Analyse des particules sous la forme d'ellipses ..... 80
Figure 47 Distribution de la largueur des particules ..... 81
Figure 48 Distribution de la longueur des particules ..... 81
Figure 49 Rapport d'aspect des farines végétales ..... 81
Figure 50 Distribution de la largeur des granulats ..... 82
Figure 51 Distribution de la longueur des granulats ..... 82
Figure 52 Largeur à 50 % de fraction volumique cumulée ..... 83
Figure 53 Longueur à 50 % de fraction volumique cumulée ..... 83
Figure 54 Rapport d'aspect des granulats ..... 84
Figure 55 Échantillons dans l'enceinte à humidité contrôlée ..... 85
Figure 56 Description d'un isotherme de sorption ..... 86
Figure 57 Roseau de Bretagne - farine (a), granulats 2-6 mm (b) and granulats 2-8 cm (c) ..... 86
Figure 58 Courbes de sorption du roseau de Bretagne selon la taille de particules ..... 87
Figure 59 Courbes de sorption de la chènevotte selon les deux tailles de particules ..... 87
Figure 60 Courbes de sorption des farines végétales ..... 87
Figure 61 Zoom sur la courbe de sorption entre 0,9 et 1,0 ..... 87
Figure 62 Analyses ThermoGravimétriques des farines végétales en perte de masse ..... 89
Figure 63 ATG : Dérivée de la perte de masse des farines ..... 89
Figure 64 Zoom sur la courbe de la dérivée de perte masse entre 180 et 270°C ..... 89
Figure 65 Représentation de l'équation de Young ..... 91
Figure 66 Tensiomètre KRUSS K100 ..... 92
Figure 67 Tensions superficielles du PP [154] et du PBS [155] ..... 95
Figure 68 Cylindres de farine compressée, (a) Phragmites Bretagne, (b) Miscanthus, (c) Bois ..... 95
Figure 69 Goutte d'eau sur de la farine de phragmites compressée ..... 96
Figure 70 Corrélation entre l'angle de contact et la taille de particules de l'échantillon ..... 97

FIGURE 71 MODÈLE DE CASSIS-BAXTER [156] ..... 97
FIGURE 72 CORRÉLATION ENTRE LA VALEUR D'ANGLE DE CONTACT DES FARINES ET L'ADSORPTION DE CELLES-CI À 97 % D'HUMIDITÉ RELATIVE ..... 98
FIGURE 73 CINÉTIQUE D'ABSORPTION D'UNE GOUTTE D'EAU SELON L'ESPÈCE VÉGÉTALE ..... 99
FIGURE 74 CINÉTIQUE D'ABSORPTION DES GOUTTES D'EAU ..... 99
FIGURE 75 DÉTERMINATION DES TEMPS LIMITES MOYENS D'ABSORPTION DES GOUTTES D'EAU ..... 100
FIGURE 76 TAUX DE POUSSIÈRE DES DIFFÉRENTS ÉCHANTILLONS DE ROSEAUX ET LA RÉFÉRENCE ..... 101
FIGURE 77 PHOTOS DE LA DÉCOUPE D'UN ÉCHANTILLON ENROBÉ D'AGAROSE (A) ET ÉCHANTILLONS SUR PLOTS AVANT OBSERVATIONS AU MEB (B) ..... 102
FIGURE 78 LES DIFFÉRENTS TISSUS DU ROSEAU PHRAGMITES D'HIVER ..... 103
FIGURE 79 VAISSEAU DE XYLÈME PONCTUÉE ET TRACHÉIDE ANNELÉE DU ROSEAU PHRAGMITES – COUPE LONGITUDINALE ..... 104
FIGURE 80 PAROIS DES VAISSEAUX DE XYLÈME PONCTUÉS – COUPE TRANSVERSALE ..... 104
FIGURE 81 TRACHÉIDE SPIRALÉE DU ROSEAU PHRAGMITES ..... 104
FIGURE 82 FIBRES DANS LE ROSEAU VERT FRAIS ..... 104
FIGURE 83 COUPE TRANSVERSALE D'UNE TIGE DE ROSEAU D'HIVER VUE AU MEB ..... 105
FIGURE 84 COUPE TRANSVERSALE D'UN GRANULAT DE CHÈNEVOTTE VUE AU MEB ..... 105
FIGURE 85 TRACHÉIDE PONCTUÉE DE LA CHÈNEVOTTE - COUPE LONGITUDINALE ..... 106
FIGURE 86 CELLULES PARENCHYMATEUSES DE LA CHÈNEVOTTE - COUPE TRANSVERSALE ..... 106
FIGURE 87 DESCRIPTION DES DIFFÉRENTS TYPES DE POROSITÉS DE GRANULATS VÉGÉTAUX EN VRAC D'APRÈS [157] ..... 107
FIGURE 88 MASSES VOLUMIQUES DES PAROIS DES ROSEAUX DE BRENNE ET BRETAGNE ET DE LA CHÈNEVOTTE ..... 108
FIGURE 89 MASSES VOLUMIQUES DES DIFFÉRENTS ÉCHANTILLONS POUR L'APPLICATION EN CONSTRUCTION ..... 108
FIGURE 90 LIEN ENTRE LE RAPPORT L/D DES GRANULATS ET LEUR MASSE VOLUMIQUE VRAC ..... 109
FIGURE 91 COURBES D'ABSORPTION DES DIFFÉRENTS GRANULATS DE ROSEAU ET LA RÉFÉRENCE ..... 110
FIGURE 92 ABSORPTION À SATURATION DES GRANULATS DE ROSEAU ET LA RÉFÉRENCE ..... 110
FIGURE 93 CINÉTIQUE D'ABSORPTION DES GRANULATS DE VELVING ET WALDHOUSE EN 6 ET 12 MM ..... 111
FIGURE 94 LIEN ENTRE L'ABSORPTION D'EAU DES GRANULATS ET LEUR TAUX DE SILICIUM ..... 111
FIGURE 95 ENSEMBLE DES POLYMÈRES DÉCRIT PAR LE TERME BIOPLASTIQUE [158] ..... 119
FIGURE 96 COMPARAISON DES PROPRIÉTÉS DE TROIS POLYMÈRES BIODÉGRADABLES [159] ..... 120
FIGURE 97 CLASSIFICATION DES FIBRES NATURELLES ET SYNTHÉTIQUES [92] ..... 120
FIGURE 98 PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DES COMPOSITES PP ET PLA ET DIFFÉRENTS TAUX DE FARINE DE PHRAGMITES AVEC AJOUT DE COMPATIBILISANT [101] ..... 125
FIGURE 99 MATRICES ET COMPATIBILISANT UTILISÉS DANS L'ÉTUDE DE LA VALORISATION DU PHRAGMITES EN PLASTURGIE ..... 126
FIGURE 100 MÉLANGE PBS / FARINE DE ROSEAU 50 % MASSIQUE ..... 128
FIGURE 101 SCHÉMA ET DIMENSIONS D'UNE ÉPROUVETTE NORMALISÉE ISO 3167 ..... 129
FIGURE 102 MISE EN PLACE DE L'ÉPROUVETTE ET DE L'EXTENSOMÈTRE POUR UN ESSAI DE TRACTION ..... 130
FIGURE 103 DÉTERMINATION DU MODULE D'ÉLASTICITÉ ET DE LA CONTRAINTE MAXIMALE SUR UNE COURBE DE TRACTION ..... 131
FIGURE 104 ÉPROUVETTES POUR LES ESSAIS DE CHOC CHARPY ..... 132
FIGURE 105 ÉVOLUTION DU MODULE D'ÉLASTICITÉ EN TRACTION SELON LA TENEUR MASSIQUE EN CHARGES POUR LA MATRICE PP 134

FIGURE 106 ÉVOLUTION DU MODULE D'ÉLASTICITÉ SELON LA TENEUR MASSIQUE EN CHARGES POUR LA MATRICE PBS ..... 134
FIGURE 107 ÉVOLUTION DU MODULE D'ÉLASTICITÉ EN TRACTION SELON LE TAUX D'AGENT COMPATIBILISANT ..... 135
FIGURE 108 MODULE D'ÉLASTICITÉ DES COMPOSITES PP CHARGÉS À 20 % AVEC DIFFÉRENTES FRACTIONS DE ROSEAU DE BRENNE 136
FIGURE 109 RÉPARTITION MASSIQUE DE LA FARINE DE BRENNE 0-500 µM ..... 137
FIGURE 110 ÉVOLUTION DE LA CONTRAINTE MAXIMALE EN TRACTION SELON LA TENEUR MASSIQUE EN CHARGES POUR LA MATRICE PP ..... 137
FIGURE 111 ÉVOLUTION DE LA CONTRAINTE MAXIMALE SELON LA TENEUR MASSIQUE EN CHARGES POUR LA MATRICE PBS ..... 137
FIGURE 112 ÉVOLUTION DE LA CONTRAINTE MAXIMALE EN TRACTION SELON LE TAUX D'AGENT COMPATIBILISANT ..... 138
FIGURE 113 CONTRAINTE MAXIMALE DES COMPOSITES PP CHARGÉS À 20 % AVEC DIFFÉRENTES FRACTIONS DE ROSEAU DE BRENNE ..... 139
FIGURE 114 ÉVOLUTION DE LA DÉFORMATION À RUPTURE EN TRACTION SELON LA TENEUR MASSIQUE EN CHARGES POUR LA MATRICE PP ..... 139
FIGURE 115 ÉVOLUTION DE LA DÉFORMATION À RUPTURE EN TRACTION SELON LA TENEUR MASSIQUE EN CHARGES POUR LA MATRICE PBS ..... 139
FIGURE 116 ÉVOLUTION DE LA DÉFORMATION À RUPTURE EN TRACTION SELON LE TAUX D'AGENT COMPATIBILISANT ..... 140
FIGURE 117 DÉFORMATION À LA RUPTURE DES COMPOSITES CHARGÉS AVEC DIFFÉRENTES FRACTIONS DE ROSEAU DE BRENNE ..... 141
FIGURE 118 ÉVOLUTION DU MODULE D'ÉLASTICITÉ EN FLEXION SELON LA TENEUR MASSIQUE EN CHARGES DANS LA MATRICE PP ... 142
FIGURE 119 ÉVOLUTION DU MODULE D'ÉLASTICITÉ EN FLEXION SELON LE TAUX D'AGENT COMPATIBILISANT DANS LES COMPOSITES PP/30 % ..... 142
FIGURE 120 ÉVOLUTION DE LA CONTRAINTE MAXIMALE EN FLEXION SELON LA TENEUR MASSIQUE EN CHARGES DANS LA MATRICE PP ..... 142
FIGURE 121 ÉVOLUTION DE LA CONTRAINTE MAXIMALE EN FLEXION SELON LE TAUX D'AGENT COMPATIBILISANT DANS LES COMPOSITES PP/30 % ..... 142
FIGURE 122 ÉVOLUTION DE LA DÉFORMATION À RUPTURE EN FLEXION SELON LA TENEUR MASSIQUE EN CHARGES DANS LA MATRICE PP ..... 143
FIGURE 123 ÉVOLUTION DE LA DÉFORMATION À RUPTURE EN FLEXION SELON LE TAUX D'AGENT COMPATIBILISANT ..... 143
FIGURE 124 RÉSILIENCE DES COMPOSITES À TEMPÉRATURE AMBIANTE SELON LA TENEUR EN CHARGES DANS LA MATRICE PP ..... 144
FIGURE 125 RÉSILIENCE DES COMPOSITES À FROID SELON LA TENEUR EN CHARGES DANS LA MATRICE PP ..... 144
FIGURE 126 ÉVOLUTION DE LA RÉSILIENCE DES COMPOSITES SELON LE TAUX D'AGENT COMPATIBILISANT ..... 145
FIGURE 127 ÉVOLUTION DE LA RÉSILIENCE À FROID DES COMPOSITES SELON LE TAUX D'AGENT COMPATIBILISANT ..... 145
FIGURE 128 RÉSILIENCE DES COMPOSITES SELON LA TENEUR MASSIQUE EN CHARGES ..... 146
FIGURE 129 RELATION ENTRE LA RÉSILIENCE DES COMPOSITES ET LEUR MODULE D'ÉLASTICITÉ EN TRACTION ..... 146
FIGURE 130 RELATION ENTRE LA RÉSILIENCE DES COMPOSITES ET LEUR DÉFORMATION À RUPTURE EN TRACTION ..... 147
FIGURE 131 COURBES D'ABSORPTION DES COMPOSITES À MATRICE PP CHARGÉS À 30 ET 50 % EN CHARGES VÉGÉTALES ..... 148
FIGURE 132 COURBES D'ABSORPTION DES COMPOSITES À MATRICE PBS CHARGÉS À 30 ET 50 % EN CHARGES VÉGÉTALES ..... 148
FIGURE 133 ABSORPTION À SATURATION DES COMPOSITES À MATRICE PP EN FONCTION DU TAUX DE CHARGES VÉGÉTALES ..... 149
FIGURE 134 ABSORPTION À SATURATION DES COMPOSITES À MATRICE PBS EN FONCTION DU TAUX DE CHARGES VÉGÉTALES ..... 149

FIGURE 135 COURBES D'ABSORPTION DES COMPOSITES CHARGÉS À 30 % EN CHARGES VÉGÉTALES SANS ET AVEC 8% DE COMPATIBILISANT ..... 150
FIGURE 136 COMPARAISON DES ABSORPTIONS DES COMPOSITES NON COMPATIBILISÉS ET COMPATIBILISÉS À 8 % APRÈS 411 JOURS D'IMMERSION ..... 150
FIGURE 137 CINÉTIQUE D'ABSORPTION DES COMPOSITES CHARGÉS À 30 % EN CHARGES VÉGÉTALES SANS ET AVEC COMPATIBILISANT ..... 151
FIGURE 138 ABSORPTION DES COMPOSITES CHARGÉS AVEC DIFFÉRENTES FRACTIONS DE ROSEAU DE BRENNE ..... 152
FIGURE 139 COMPOSITION CHIMIQUES DES DIFFÉRENTES FRACTIONS DE ROSEAU COMMUN ..... 153
FIGURE 140 BILAN CARBONE DE 1M$^2$ DE DIVERS ISOLANTS POUR UNE ÉPAISSEUR CORRESPONDANT À UNE RÉSISTANCE THERMIQUE DE 5M$^2$.K/W (EN KG CO2 EQ/UF) [160] ..... 165
FIGURE 141 ENERGIE GRISE DE 1 M² DE DIVERS ISOLANTS POUR UNE ÉPAISSEUR CORRESPONDANT À UNE RÉSISTANCE THERMIQUE DE 5 M$^2$.K/W (ENKWH/UF) ..... 166
FIGURE 142 UTILISATION DU BÉTON DE CHANVRE DANS LA CONSTRUCTION D'UNE HABITATION [51] ..... 168
FIGURE 143 COURBES DE COMPRESSION D'UN MÉLANGE CHAUX-CHANVRE SELON LE DOSAGE EN CHANVRE (FORT DOSAGE À GAUCHE ET FAIBLE À DROITE) [161] ..... 170
FIGURE 144 ALLURES DES COURBES DE COMPRESSION DE MÉLANGES CHAUX-CHANVRE À FAIBLE DOSAGE EN LIANT EN FONCTION DU TEMPS [139] ..... 170
FIGURE 145 LES DIFFÉRENTES PHASES DE LA COURBE DE COMPRESSION D'UN BÉTON DE CHANVRE [162] ..... 171
FIGURE 146 DEUX GRAPHIQUES REPRÉSENTATIFS DU COMPORTEMENT DU CHAUX-CHANVRE [163] ..... 171
FIGURE 147 DÉTERMINATION DES MODULES D'ÉLASTICITÉ [52] ..... 172
FIGURE 148 ÉPAISSEUR ÉQUIVALENTE MOYENNE POUR UNE RÉSISTANCE THERMIQUE R = 5 M$^2$.K.W$^{-1}$ ..... 174
FIGURE 149 NOMENCLATURE DES ÉCHANTILLONS DE BÉTONS VÉGÉTAUX ..... 177
FIGURE 150 ÉPROUVETTE ADEV1 AVEC DISPOSITIF D'ACQUISITION DE DÉFORMATION EXTENSOMÈTRE SUR MACHINE ZWICK ..... 180
FIGURE 151 EXEMPLE D'ESSAI DE COMPRESSION À GRANDE DÉFORMATION SUR CYLINDRE ADEV3 ..... 181
FIGURE 152 ÉPROUVETTE CUBIQUE AVEC DISPOSITIF D'ACQUISITION D'IMAGES SUR MACHINE INSTRON 5969 ..... 182
FIGURE 153 TRAITEMENT DES IMAGES SUR LE LOGICIEL ARAMIS : (A) IMAGE CAMÉRA DE LA SURFACE DE L'ÉCHANTILLON, (B) EXTENSOMÈTRES VIRTUELS PLACÉS SUR LA SURFACE DE L'ÉPROUVETTE ..... 182
FIGURE 154 COURBE DE COMPRESSION TYPE DES BÉTONS CHAUX/ROSEAU ..... 183
FIGURE 155 ZOOM SUR LES CYCLES DE LA COURBE DE COMPRESSION ..... 183
FIGURE 156 COURBE DE COMPRESSION TYPE DES BÉTONS CHAUX/CHÈNEVOTTE ..... 184
FIGURE 157 ZOOM SUR LES CYCLES DE LA COURBE DE COMPRESSION ..... 184
FIGURE 158 CALCUL DES MODULES D'APRÈS LES COURBES DE COMPRESSION ..... 185
FIGURE 159 DÉTERMINATION DE LA LIMITE D'ÉLASTICITÉ ..... 185
FIGURE 160 DISPOSITIF DE MESURE DE LA CONDUCTIVITÉ THERMIQUE SUIVANT LA MÉTHODE DE LA PLAQUE CHAUDE GARDÉE ..... 186
FIGURE 161 COMPARAISON DE MÉTHODES DE MESURES DU MODULE D'ÉLASTICITÉ DES ÉCHANTILLONS ADEV-F1 ET REF-F1 ..... 192
FIGURE 162 COMPARAISON DES MÉTHODES DE MESURE DU MODULE D'ÉLASTICITÉ SUR LES CUBES ..... 193
FIGURE 163 ÉVOLUTION DU MODULE D'ÉLASTICITÉ MESURÉ D'APRÈS LE DÉPLACEMENT TRAVERSE SELON LA QUANTITÉ D'EAU DANS LA FORMULATION DES BÉTONS ..... 196

FIGURE 164 ÉVOLUTION DU MODULE D'ÉLASTICITÉ MESURÉ D'APRÈS LES EXTENSOMÈTRES VIRTUELS SUR ARAMIS SELON LA QUANTITÉ D'EAU DANS LA FORMULATION DES BÉTONS ..... 196
FIGURE 165 COMPARAISON DES COURBES DE COMPRESSION DES FORMULATIONS FABRIQUÉES AVEC LE ROSEAU DE VELVING 6 ET 12 MM ..... 199
FIGURE 166 LIEN ENTRE LA MASSE VOLUMIQUE DES ÉCHANTILLONS ET LEUR MODULE D'ÉLASTICITÉ SELON LES MESURES ARAMIS... 203
FIGURE 167 COMPARAISON DE MÉTHODES DE MESURES DU MODULE D'ÉLASTICITÉ DES CYLINDRES ADEV-T ET REF-T..... 206
FIGURE 168 COMPARAISON DE MÉTHODES DE MESURES DU MODULE D'ÉLASTICITÉ DES CUBES ADEV-T ET REF-T ..... 206
FIGURE 169 CONDUCTIVITÉ THERMIQUE DES FORMULATIONS ADEV1 ET ADEV2 SELON LE STOCKAGE ET LE SENS DE DÉCOUPE DES ÉPROUVETTES ..... 208
FIGURE 170 CONDUCTIVITÉ THERMIQUE À 23°C DES FORMULATIONS SELON LA MASSE VOLUMIQUE ..... 209
FIGURE 171 CONDUCTIVITÉ THERMIQUE À 70°C DES FORMULATIONS SELON LA MASSE VOLUMIQUE ..... 209

# LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 1 RÉCAPITULATIF DES UTILISATIONS ACTUELLES DU ROSEAU COMMUN ..... 47
TABLEAU 2 DONNÉES SUR LES ÉCHANTILLONS DE ROSEAU UTILISÉS POUR LE VOLET PLASTURGIE ..... 49
TABLEAU 3 DONNÉES SUR LES ÉCHANTILLONS DE ROSEAU UTILISÉS POUR LE VOLET ÉCOCONSTRUCTION..... 49
TABLEAU 4 DONNÉES SUR LES ÉCHANTILLONS DE ROSEAU UTILISÉS POUR LE VOLET PLASTURGIE ..... 57
TABLEAU 5 TAUX DE CENDRES DES FARINES ET GRANULATS DE ROSEAUX PHRAGMITES ..... 59
TABLEAU 6 ABRÉVIATIONS DES ÉCHANTILLONS DE ROSEAUX..... 60
TABLEAU 7 COMPOSITION DES SOLUTIONS DÉTERGENTES NDS ET ADS ..... 61
TABLEAU 8 ORDRE DU DOSAGE POUR LES MÉTHODES DE VAN SOEST ET TAPPI ..... 70
TABLEAU 9 PERTES DE MASSE DES FARINES VÉGÉTALES EN ISOTHERME À 180 ET 210°C ..... 90
TABLEAU 10 TENSIONS SUPERFICIELLES : COMPOSANTES POLAIRE ET DISPERSIVE DES SOLVANTS DE L'ÉTUDE..... 94
TABLEAU 11 TENSIONS SUPERFICIELLES ET ANGLE DE CONTACT DES FARINES VÉGÉTALES D'APRÈS LA MÉTHODE DE WASHBURN..... 94
TABLEAU 12 ANGLE DE CONTACT SUIVANT LA TAILLE DE PARTICULES DE L'ÉCHANTILLON..... 96
TABLEAU 13 ANGLE DE CONTACT SUR LA BASE DES CYLINDRES COMPRIMÉS ..... 98
TABLEAU 14 TRAVAUX DE LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE PERTINENTS POUR LA THÈSE..... 123
TABLEAU 15 NOMENCLATURE DES FORMULATIONS COMPOSITES..... 127
TABLEAU 16 CONDITIONS D'EXTRUSION SELON LA MATRICE POLYMÈRE..... 128
TABLEAU 17 PARAMÈTRES DU PROCÉDÉ D'INJECTION DES ÉPROUVETTES NORMALISÉES EN FONCTION DE LA MATRICE UTILISÉ ET DU TAUX DE CHARGES ..... 129
TABLEAU 18 RAPPORTS DU MODULE D'ÉLASTICITÉ DE LA MATRICE PURE ET DES COMPOSITES CHARGÉS À 50 % EN FARINE VÉGÉTALE ..... 135
TABLEAU 19 IMAGES AU MEB DES COUPES TRANSVERSALE ET LONGITUDINALE DU BOIS, DU PHRAGMITES ET DU MISCANTHUS. ..... 154
TABLEAU 20 INFLUENCE DE LA COMPATIBILISATION SUR L'ADHÉSION CHARGE/MATRICE - OBSERVATIONS MEB ..... 156
TABLEAU 21 IMAGES MEB DES COMPOSITES PBS CHARGÉS À 50 % EN FARINES VÉGÉTALES..... 157
TABLEAU 22 RECOMMANDATIONS SUR LES PERFORMANCES MÉCANIQUES DES FORMULATIONS CHAUX/CHÈNEVOTTE SELON LES APPLICATIONS ..... 172
TABLEAU 23 RECOMMANDATIONS SUR LES PERFORMANCES THERMIQUES DES FORMULATIONS CHAUX/CHÈNEVOTTE SELON LES APPLICATIONS ..... 174
TABLEAU 24 DONNÉES SUR LES ÉCHANTILLONS DE ROSEAU UTILISÉS POUR LE VOLET ÉCOCONSTRUCTION..... 175
TABLEAU 25 FORMULATIONS DE LA PREMIÈRE CAMPAGNE DE BÉTONS VÉGÉTAUX ..... 176
TABLEAU 26 RÉCAPITULATIF DES ÉCHANTILLONS TESTÉS EN COMPRESSION ..... 179
TABLEAU 27 RAPPEL DE FORMULATIONS ADEV1 ET ADEV2 ..... 187
TABLEAU 28 MODULES D'ÉLASTICITÉ DES CYLINDRES ADEV1 ET ADEV2..... 188
TABLEAU 29 LIMITE D'ÉLASTICITÉ ET RÉSISTANCE MAXIMALE EN COMPRESSION DES CYLINDRES ADEV1 ET ADEV2..... 189
TABLEAU 30 RAPPEL DE FORMULATIONS ADEV3, REF3, ADEV-F1 ET REF-F1 ..... 189

TABLEAU 31 MODULES D'ÉLASTICITÉ MESURÉS SUR LES CYLINDRES ADEV3, REF3, ADEV-F1 ET REF-F1 ..... 190
TABLEAU 32 LIMITE D'ÉLASTICITÉ EN COMPRESSION DES CYLINDRES ADEV3, REF3, ADEV-F1 ET REF-F1 ..... 191
TABLEAU 33 MODULES D'ÉLASTICITÉ DES CYLINDRES ADEV3, REF3, ADEV-F1 ET REF-F1 ..... 191
TABLEAU 34 RAPPEL DE FORMULATIONS F1, F2 ET F3 ..... 194
TABLEAU 35 MASSES VOLUMIQUES DES ÉCHANTILLONS CUBES APRÈS 90 JOURS DE PRISE ..... 194
TABLEAU 36 MODULES D'ÉLASTICITÉ DES CUBES ADEV-F1, ADEV-F2, ADEV-F3, REF-F1, REF-F2 ET REF-F3 ..... 195
TABLEAU 37 LIMITE D'ÉLASTICITÉ DES CUBES ADEV-F1, ADEV-F2, ADEV-F3, REF-F1, REF-F2 ET REF-F3 ..... 196
TABLEAU 38 MASSES VOLUMIQUES DES ÉCHANTILLONS CUBES APRÈS 90 JOURS DE PRISE ..... 197
TABLEAU 39 MODULES D'ÉLASTICITÉ DES CUBES ADEV-F1, ADEV-F1BIS, BREN-F2-300, BREN-F2-350 ET BREN-F2-400 ... 197
TABLEAU 40 LIMITE D'ÉLASTICITÉ DES CUBES ADEV-F1, ADEV-F1BIS, BREN-F2300, BREN-F2-350 ET BREN-F2-400 ..... 198
TABLEAU 41 MASSES VOLUMIQUES DES ÉCHANTILLONS CUBES APRÈS 90 JOURS DE PRISE ..... 198
TABLEAU 42 COMPARAISON DES MODULES ET LIMITES D'ÉLASTICITÉ DES ÉCHANTILLONS CUBES SELON LA TAILLE DES GRANULATS ... 199
TABLEAU 43 MASSES VOLUMIQUES, MODULES D'ÉLASTICITÉ ET LIMITE D'ÉLASTICITÉ DES FORMULATIONS FABRIQUÉES AVEC LE ROSEAU DE WALDHOUSE ..... 200
TABLEAU 44 MASSES VOLUMIQUES, MODULES D'ÉLASTICITÉ ET LIMITE D'ÉLASTICITÉ DES FORMULATIONS FABRIQUÉES AVEC LES ROSEAUX DE BRENNE, WALDHOUSE ET BRETAGNE ..... 201
TABLEAU 45 MASSES VOLUMIQUES, MODULES D'ÉLASTICITÉ ET LIMITE D'ÉLASTICITÉ DES FORMULATIONS FABRIQUÉES AVEC DU ROSEAU SEC ET DU ROSEAU VERT ROUI DE VELVING ..... 202
TABLEAU 46 MASSES VOLUMIQUES, MODULES D'ÉLASTICITÉ ET LIMITE D'ÉLASTICITÉ DES FORMULATIONS FABRIQUÉES AVEC DU ROSEAU DE BRENNE ET DE CAMARGUE ..... 203
TABLEAU 47 MASSES VOLUMIQUES DES ÉCHANTILLONS TERRE ..... 205
TABLEAU 48 MODULES D'ÉLASTICITÉ DES CYLINDRES ET CUBES À BASE DE TERRE ..... 205
TABLEAU 49 COMPARAISON DES MODULES D'ÉLASTICITÉ DES FORMULATIONS ADEV-F1 ET ADEV-P1 ..... 207

# CHAPITRE 1 : PRESENTATION DU ROSEAU COMMUN *PHRAGMITES AUSTRALIS* ET ENJEUX DE LA THESE

## INTRODUCTION

Les travaux présentés dans cette thèse traitent de l'utilisation potentielle du roseau commun en plasturgie et dans le secteur du bâtiment.

Le roseau commun, de nom propre *Phragmites australis* (Cav.) Trin. Ex Steud, est aussi nommé Phragmites communis Trin. ou Arundo Phragmites. Le nom de genre « Phragmites », issu du mot grec « phragma » qui signifie clôture/cloison, fait référence à la croissance du roseau le long de l'eau. Le nom de l'espèce « australis » vient du latin et signifie « sud » ; en effet, cette référence est due à la région la plus chaude dans laquelle a été identifié pour la première fois le roseau commun.

Le *Phragmites australis* est classé comme une plante semi-aquatique poussant dans différents habitats, eaux douces ou saumâtres. Ce roseau commun est étudié dans le monde entier du fait de l'importance écologique de sa présence dans le maintien des zones humides.

Cette gestion des plans d'eau doit faire l'objet d'une récolte annuelle d'une partie de la roselière afin de permettre à celle-ci de se regénérer et permettre aux êtres vivants peuplant les marais et autres espaces naturels humides d'accéder à la roselière.

Cette plante cosmopolite a longtemps été et est toujours utilisée pour la couverture des toits en chaume. Désormais, la recherche scientifique se tourne vers cette espèce aux multiples propriétés pour une valorisation dans des domaines variés : phytoremédiation, production de bioéthanol, ou même de pâte à papier. Du fait de son caractère hydrophobe, le roseau commun peut être utilisé dans des domaines où certains matériaux n'ont pas démontré des propriétés correctes de vieillissement. Il devient ainsi intéressant d'étudier le roseau Phragmites et d'évaluer son éligibilité comme matériau innovant ou de substitution.

Ce premier chapitre présente un historique du roseau commun *Phragmites australis*, ses principales propriétés connues ainsi que sa répartition géographique à travers le monde, avec un focus sur la France et la Bretagne. L'intérêt du Phragmites dans l'écosystème des zones humides est également abordé, de même que des solutions pour limiter l'expansion de cette plante invasive. La récolte étant à ce jour la solution la plus efficace et la moins dévastatrice pour l'écosystème, les méthodes de fauche et récolte sont expliquées.

Enfin, une partie présentant les différentes voies de valorisation du roseau commun actuelles et possibles sera développée pour ensuite décrire les objectifs de la thèse.

Pour finir, l'étude s'appuiera sur des travaux existants sur d'autres matériaux qui seront pris comme références pour la suite. Une présentation est donnée de ces différents matériaux : le bois, le miscanthus et la chènevotte de chanvre.

# I. HISTORIQUE

## I.1. Apparition et usages

Le roseau commun (*Phragmites australis (Cav.) trin ex Steud*), appartient à la famille des graminées et est considéré comme une plante invasive. Tout commence à la Préhistoire où l'Homme utilisait le roseau comme revêtement des toits et sols, brise-vent et barrière mais également pour se chauffer. Des fragments de Phragmites australis de 40 000 ans ont été retrouvés dans le Sud-Ouest des Etats-Unis démontrant le caractère natif de celui-ci dans cette région [1].

Le toit d'un temple Maya fabriqué en roseau commun a été daté au Carbone 14 et son âge a été évalué à 1400 ans (Figure 1). Le roseau commun était également utilisé sous forme de flèches pour la chasse mais également sous la forme d'instruments de musique et autres objets de cérémonie [2].

*Figure 1 Toit d'un temple Maya daté au Carbone 14 à 1400 ans*

## I.2. Développement de l'utilisation du roseau commun

Jusqu'au XXème siècle, par difficulté de transport de la matière première (tiges de roseau), la plante a été utilisée à des fins domestiques comme évoqué précédemment ; de façon artisanale comme agricole pour la litière du bétail. Bien qu'il possède un nombre important d'usages et soit très abondant, le roseau commun n'accède pas au rang de plante utile ; bien au contraire, il est déjà considéré comme nuisible de par son caractère invasif.

Les chinois ont commencé dans les années 40 à cultiver le roseau dans le but de reconstituer les réserves des sols jusqu'alors épuisées par la culture du riz. Cela les a amenés à utiliser le roseau récolté pour la fabrication de papier et autres dérivés [2].

Parallèlement , les Roumains ont étudié le potentiel du roseau dans une papeterie située à Braila pour pouvoir valoriser les 135 000 hectares de roselières présentes en Roumanie, soit théoriquement 1 600 000 tonnes de roseau [3]. En 1957, 6 000 tonnes étaient récoltées pour être transformées en cellulose et cartons par exemple. Les connaissances et techniques rassemblées par le « projet

international Phragmites », lancé par le Tchèque J. Kvet et constitué de plusieurs États comme la Russie et la Roumanie, permettent de lancer un programme de conservation et de mise en valeur du roseau dans le Delta du Danube dans le but de rentabiliser les roselières sans nuire à la faune et à la flore [4].

Le roseau, longtemps vu comme une mauvaise herbe, ce qui lui valut le surnom de « gale du delta », est désormais étudié comme une ressource naturelle à exploiter.

De là, apparaissent les premières machines de récolte en zones humides en Europe. Le roseau est récolté pour la fabrication des toits en chaume, aux Pays-Bas et en Angleterre. Cependant, en France la récolte se fait toujours à la main dans l'Ouest (Parc Naturel de Brière, Baie de Somme …). Peu à peu, les exploitants mécanisent la récolte, dans le Nord-Ouest de la France puis en Camargue. Malgré cette avancée, le roseau ne demeure, pour le reste du territoire français, qu'un lieu de nidification pour les espèces sauvages.

Plus récemment, le roseau Phragmites a été étudié pour ses propriétés de phytoremédiation[1] dans les zones humides [5]. En effet, son pouvoir absorbant a été démontré pour certains métaux : Al (96 %), Cu (91 %), Pb (88 %) et Zn (85 %) [6].

Des essais de pyrolyse sur des tiges de roseau sec ont démontré une vitesse de chauffage optimale et une plus grande stabilité thermique du Phragmites comparé au miscanthus [7].

Les études récentes réalisées sur le *Phragmites australis* seront détaillées dans la partie V page 47.

## II. STRUCTURE ET PROPRIÉTÉS

### II.1. Morphologie

Le roseau commun (Figure 2) est constitué d'une tige solide dont la taille est comprise entre 1,5 et 4 mètres, parfois même jusqu'à 6 mètres de hauteur, et dont le diamètre varie de 5 à 15 mm à la base. Cette tige est divisée en tronçons séparés par des nœuds, les feuilles (ou limbe) sont plates et peuvent mesurer jusqu'à 60 cm de long et 8 à 60 mm de large, s'effilant en pointe, rigides. La ligule[2] peut atteindre 1,5 mm de long et est bordée d'une frange de poils. Cette particularité distingue le Phragmites du Phalaris, faux roseau. Les tiges sont surmontées d'une inflorescence en forme de panicule[3] longue de 15 à 50 cm de long, brunâtre ou violacée, assez dense et formée d'épillets. Chaque épillet contient de 1 à 10 fleurons.

Le *Phragmites australis* possède un vaste réseau de rhizomes dont la profondeur de pénétration varie de 10 à 200 cm selon les sols dans lesquels évolue la plante. Les rhizomes représentent l'appareil

[1] Dépollution des sols par des plantes
[2] Appendice de la feuille des graminées, limite entre la gaine et le limbe.
[3] Grande inflorescence en grappes, ramifiée et lâche.

végétatif souterrain du roseau et portent à chaque extrémité de leurs nœuds des racines ; ils ont une durée de vie comprise entre 3 et 8 ans [8]. Ce sont de véritables tiges souterraines assurant un rôle important dans la reproduction de la plante.

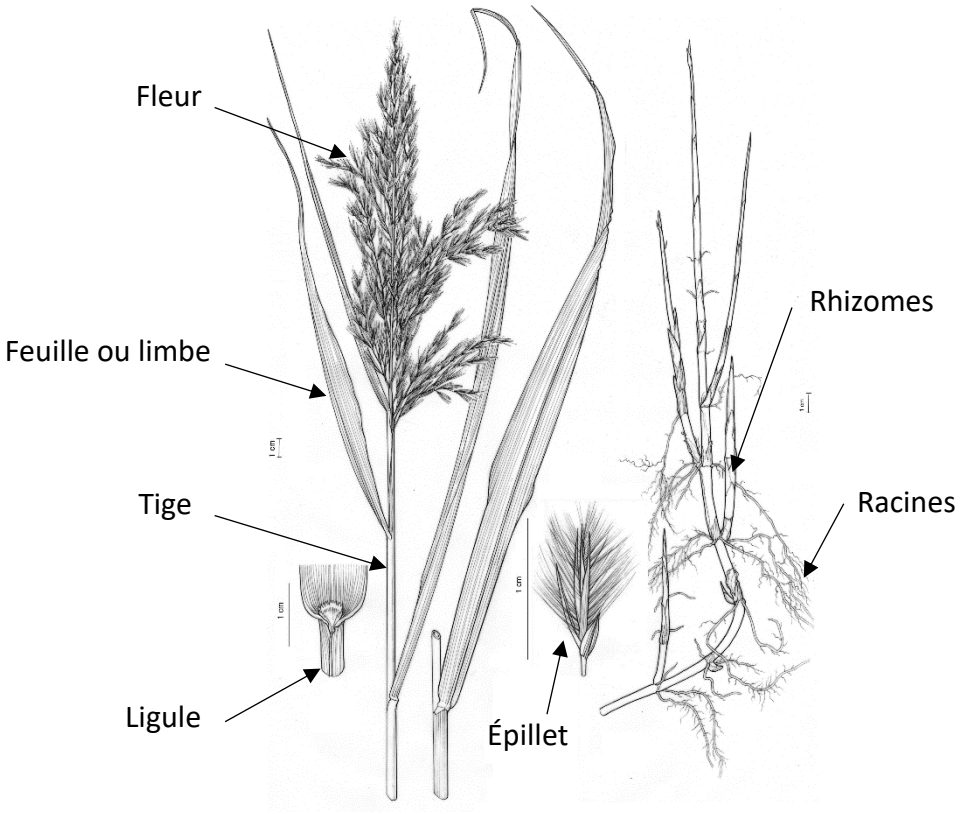



*Figure 2 Description du roseau Phragmites australis [10]*

Il existe deux formes possibles de roseau Phragmites, native et non-native, il pourra donc être observé une différence de morphologie. En effet, les feuilles du roseau natif sont plus facilement détachables de la tige sur le roseau d'hiver et le roseau non-natif a une densité de tiges par mètre carré beaucoup plus importante que le natif qui doit cohabiter avec d'autres espèces végétales [1]. De plus, les tiges du roseau natif ne persistent, pour la plupart, pas jusqu'à la prochaine saison de croissance. Ces différences peuvent modifier les propriétés de la plante. Dans le cadre de cette thèse, seul du roseau français a été étudié, c'est-à-dire la forme native.

### **II.2.** Propagation et croissance

Le roseau *Phragmites australis* est une plante annuelle possédant deux modes de multiplication : par semence et végétative.

Les graines du roseau, contenues dans les fleurons (Figure 3), sont dispersées par le vent mais également transportées par certains oiseaux. Elles ont la capacité de flotter, ce qui leur permet, après

leur chute, de rester à la surface de l'eau pendant plusieurs mois et de circuler afin de coloniser un autre endroit. Chaque inflorescence produit jusqu'à 1 000 graines [8] dont la fertilité est comprise entre 0,1 et 59,6 % [9]. Lorsqu'une graine s'ancre dans le sol (2 à 3 mm d'eau) et germe, une jeune tige de 20 à 40 cm sort de terre en trois mois. Les rhizomes n'étant pas encore développés à ce stade, cette jeune pousse doit avoir accès à la lumière solaire. Cette période de croissance est un passage critique car si la pousse est immergée dans l'eau, elle mourra faute de photosynthèse. Passé ce stade, à l'automne, la tige atteint 30 à 70 cm de haut et possède un rhizome de 50 à 70 cm de long. Ces jeunes pousses restent dans le sol pendant tout l'hiver sans évoluer avant de croître de façon très rapide au printemps.

Lorsque la roselière est déjà constituée, la multiplication végétative est plus efficace. En effet, le réseau de rhizomes souterrains permet d'apporter tous les nutriments pour la production de nouvelles pousses. Les stolons[4] permettent également à la plante de se multiplier [10].

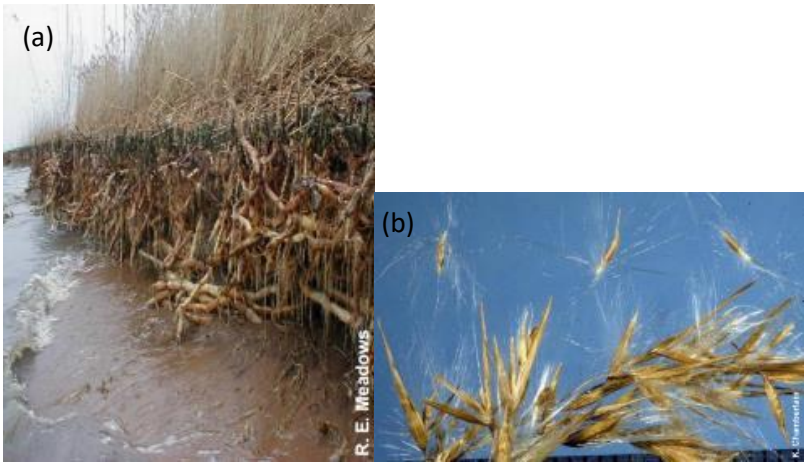



*Figure 3 Photos des modes de propagation du Phragmites : rhizomes et stolons (a) et graines dans les fleurons (b)*

Après quelques années, la stabilité de la roselière est renforcée par les rhizomes ancrés profondément dans le sol, lui permettant ainsi de résister aux périodes de sécheresse. Lorsqu'une zone de la roselière est submergée de façon prolongée, les roseaux produisent des rhizomes à l'horizontal vers des niveaux d'eau plus faibles. Cette réaction permet non seulement la survie de la roselière mais également l'accélération de son expansion [2].

Les tiges atteignent leur hauteur totale en 4 à 5 mois lorsque le climat le permet. Dans un climat plus froid, la pousse est retardée de même que la fertilité des semences. Plus le climat est froid plus la présence du roseau se raréfie [2]. La hauteur des tiges est directement liée à la hauteur de l'eau. La densité des tiges est également dépendante de cette hauteur d'eau et peut être optimale lorsque celle-ci se situe entre 70 et 120 cm. La salinité de cette eau est de même un facteur prépondérant dans

[4] Tige aérienne rampante qui s'enracine en produisant de nouveaux pieds

la taille finale des tiges et des feuilles ainsi que dans leur développement (Figure 4) [11]. En effet, le *Phragmites australis* est tolérant aux conditions salines mais ses performances diminuent avec l'augmentation du taux de sel [12].

Le Phragmites pousse majoritairement là où le courant est moins rapide et dans des fonds limoneux et boueux [8]. Son développement devient difficile lorsque les courants dépassent 0,20 m/s, il est remplacé par des plantes comme les Scirpes ou les Typha qui sont moins sensibles aux forts courants [2].

Le roseau commun possède une capacité remarquable à évoluer dans des eaux chargées en métaux lourds et une adaptabilité à l'environnement qui l'entoure, comme des eaux à pH fortement variable [13], faisant de cette plante une espèce invasive et facilement acclimatée.

Plusieurs moyens de contrôler son expansion existent ; ces méthodes seront détaillées dans la partie IV.2 page 42.

| | Salinity | | |
|---|---|---|---|
| Variable | High (means ± se) | Medium | Low |
| Stem diameter (mm) | 1.8 ± 0.6 (a) | 3.2 ± 0.2 (ab) | 3.8 ± 0.3 (b) |
| Stem length (cm) | 89 ± 15.0 (a) | 105 ± 10.4 (a) | 152 ± 7.2 (b) |
| Leaf length (cm) | 27 ± 3.2 (a) | 27 ± 1.5 (a) | 38 ± 2.2 (b) |
| Leaf width (mm) | 15 ± 2.5 (a) | 19 ± 1.8 (a) | 22 ± 1.7 (a) |
| Yield (*Fv/Fm*) | 0.6 ± 0.03 (a) | 0.7 ± 0.04 (ab) | 0.8 ± 0.02 (b) |

* Significant.

High > 20 g/L, Medium = 10-20 g/L, Low < 10 g/L
Fm = Fluorescence maximale de la plante mesurée avec une lumière vive
Fv = Fm – $F_0$ avec $F_0$ la fluorescence de la feuille dans le noir

*Figure 4 Variations de la morphologie du roseau en fonction du taux de sel* [11]

## II.3. Composition

### *II.3.a. Généralités*

Dans cette partie, la composition chimique fait référence à la composition lignocellulosique c'est-à-dire à la teneur en polysaccharides[5] (cellulose et hémicelluloses) et la teneur en lignines principalement (Figure 5).

[5] Polymères de la famille des glucides constitués de plusieurs oses (glucose, fructose, galactose…etc)

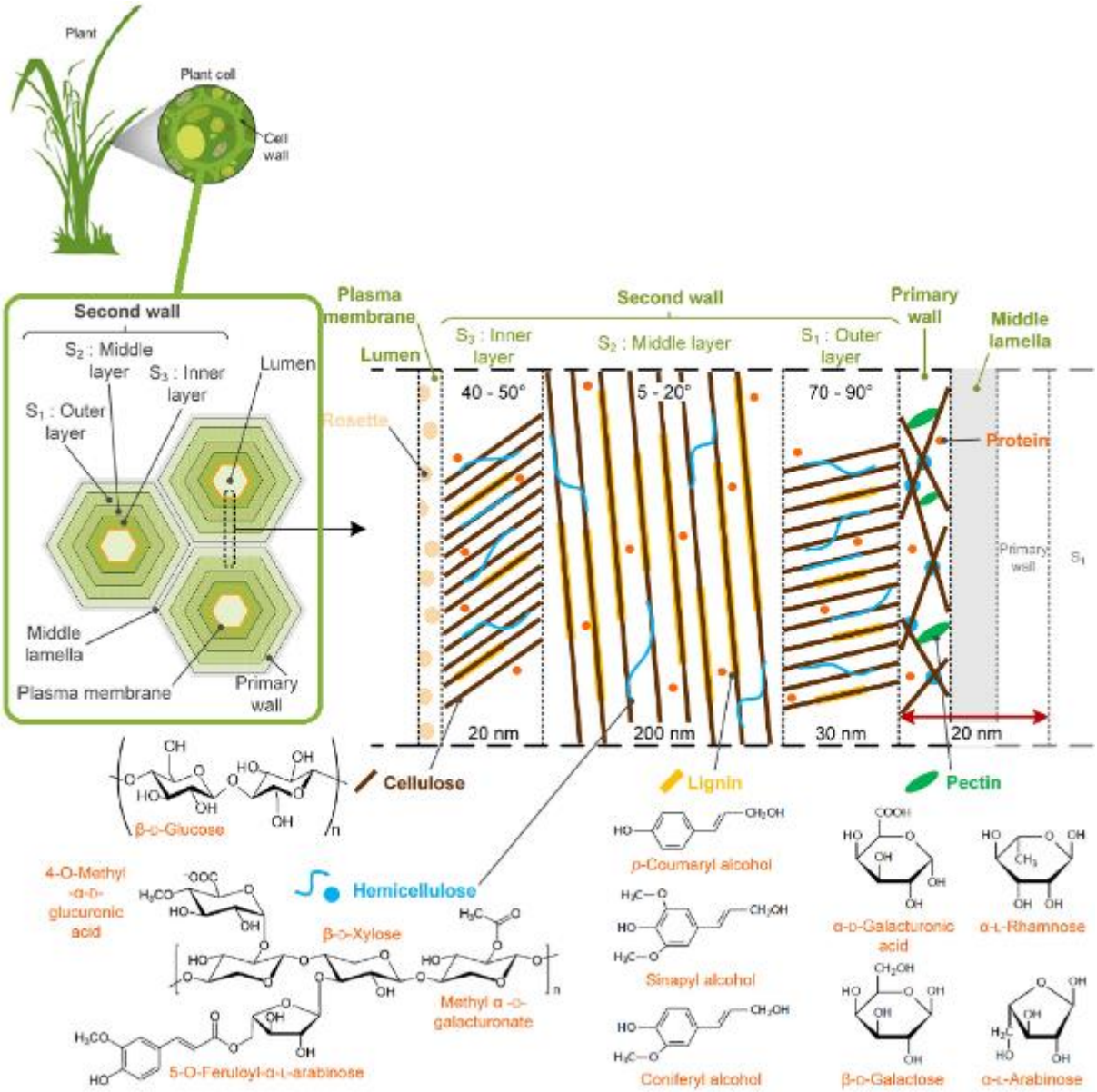



*Figure 5 Structure et organisation des polysaccharides composant le végétal [12] [13]*

La cellulose est constituée d'une chaine linéaire de D-glucose uniquement et représente le squelette de la fibre dont la structure est en grande partie cristalline. Les fibrilles de cellulose sont orientées en hélice suivant un angle (appelé angle micro fibrillaire) propre à chaque végétal. Plus l'angle est faible, plus la résistance et la rigidité de la fibre seront élevées. A l'inverse, plus l'angle est important et plus l'allongement à la rupture sera important [14].

Les hémicelluloses sont sous la forme d'hétéros polysaccharides. Il n'existe pas une seule et unique hémicellulose mais plusieurs selon la nature de l'espèce végétale. Ces hémicelluloses sont solubles dans des solutions alcalines (soude ou potasse), à la différence de la cellulose. Au sein de la paroi cellulaire, les hémicelluloses sont un groupe de polymères étroitement liés à la surface des microfibrilles de cellulose par liaison hydrogène. Contrairement à la cellulose, les hémicelluloses sont

composées de plusieurs sucres comme par exemple le xylose, le glucose, et le mannose. Il existe quatre groupes d'hémicellulose : les xyloglucanes, les xylanes, les mannanes et les β-1,3 ;1,4-glucanes [15]. Dans la suite de ce mémoire, le terme hémicellulose sera utilisé au singulier en sachant que la molécule peut contenir des variantes d'une espèce végétale à une autre.

Lorsque l'on parle de la lignine, ce terme regroupe en réalité un important groupe de polymères aromatiques[6]. Le terme au pluriel est utilisé car cette macromolécule est propre à chaque végétal ; il y a autant de lignines que de plantes sur Terre. La lignine est en effet un polymère composé de trois monomères : les alcools paracoumarylique, sinapylique et coniférylique décrits dans la Figure 5 et dont la fraction varie selon l'espèce végétale. Le terme au singulier sera employé dans la suite de cet écrit en gardant à l'esprit que cette molécule est caractéristique du végétal. La lignine est sous la forme de polymères amorphes tridimensionnels qui ont pour rôle de rendre rigides et imperméables les parois secondaires des cellules. La lignine agit en tant que protectrice des polysaccharides (cellulose et hémicellulose) les rendant plus résistants à la putréfaction [17].

La lignocellulose peut donc être vue comme un composite dont la cellulose est le renfort grâce à ses microfibrilles, la lignine la matrice, l'hémicellulose permettant la compatibilité entre ces derniers.

Les cendres sont également étudiées car elles permettent de mettre en évidence une grande quantité de Silicium (Si) dans le roseau et un effet de ce Silicium dans le développement de la plante [18].

Selon l'application souhaitée, la quantité et la nature des extractibles (ou solubles) pourront être des paramètres déterminants. En effet, les extractibles sont les molécules dites « libres » dans le végétal, ces molécules étant solubles dans l'eau ou dans des solvants organiques tels que le toluène ou l'éthanol. Dans le végétal, les extractibles peuvent être des graisses, des cires, des pectines mais également des tanins.

### ***II.3.b.*** *Composition du roseau*

Le roseau possède une composition chimique variable selon son lieu de croissance, c'est-à-dire dépendante du climat et de la qualité du sol. De plus, la composition chimique varie selon la partie du roseau analysée : par exemple, les nœuds des tiges contiennent plus de lignines alors que le reste de la tige est composé principalement de cellulose (Figure 6).

[6] Un aromatique est une molécule présentant un ou plusieurs cycles comportant 4n+2 électrons délocalisés ce qui lui confère une stabilité remarquable.

| | Internodes | Nodes | Leaf sheaths | Shoot |
|---|---|---|---|---|
| Ash | 2·81 | 3·95 | 11·20 | 7·0 |
| Water-soluble compounds | 3·22 | 5·44 | 8·42 | 4·2 |
| Lignin | 19·29 | 23·56 | 18·90 | 20·0 |
| Cellulose | 52·30 | 49·87 | 45·41 | 44·0 |

*Figure 6 Composition (% massique) du Phragmites australis selon la partie de la plante* [10]

La composition évolue également tout au long du développement de la plante. En effet, au début de sa croissance, elle est principalement constituée de composés hydrolysables. Au fil des mois, ces composés étant plus facilement décomposés, ils laissent la place à la cellulose, à l'hémicellulose et à la lignine (Figure 7). Le roseau sèche à l'arrivée de l'automne avec une composition pouvant varier pendant l'hiver et avant récolte conduisant à une augmentation de la quantité de lignine [10].

| | March | April | May | June | December |
|---|---|---|---|---|---|
| Starch | 50·3 | 18·5 | 16·6 | 12·0 | 10·0 |
| Lignin | 8·0 | 8·5 | 12·0 | 16·3 | 20·0 |
| Cellulose | 15·5 | 31·9 | 35·4 | 41·3 | 44·0 |
| Hydrolysable compounds | 82·9 | 66·0 | 46·5 | 32·4 | 20·0 |
| Ash | 3·7 | 3·7 | 4·0 | 7·0 | 7·0 |

*Figure 7 Composition (% massique) du Phragmites australis (tige entière) au cours de sa croissance* [10]

La composition lignocellulosique est une donnée importante pour les applications visées. En effet, selon la période de récolte différentes voies de valorisation peuvent être empruntées. Par exemple, la forte teneur en lignine dans un roseau récolté l'hiver peut permettre la fabrication de panneaux agglomérés sans ajout de résine, la lignine agissant comme un liant.

Le roseau contient une quantité importante de silice ($SiO_2$) mais également de phosphates et calcium (Figure 8).

| | $SiO_2$ | CaO | $N_2O_5$ | $P_2O_5$ | $K_2O$ | $MnO_2$ |
|---|---|---|---|---|---|---|
| Composition chimique des cendres de Roseau (%) | 42 à 70 | 2 à 10 | 0,3 à 0,7 | 0,2 à 0,3 | 8 à 16 | 0,6 à 4 |

*Figure 8 Composition minérale des cendres du roseau Phragmites australis* [2]

## II.4. Plantes de la même famille

### *II.4.a. Graminées*

Le *Phragmites australis* appartient à la famille des graminées. Gramineae (également appelée Poaceae) est le nom scientifique donné à une grande famille botanique (11 000 espèces). Les Poacées incluent des herbes et céréales mais également des bambous (Figure 9) [19]. On utilise généralement le terme chaume pour identifier ces graminées.

*Figure 9 Famille des herbes et cannes* [19]

Les traits caractéristiques de cette famille sont :

- Une tige cylindrique et souvent creuse par résorption de la moelle centrale.
- Des faisceaux qui permettent la circulation de la sève entrecroisés et renfermant des fibres de renfort de la tige.
- Des tiges comportant des nœuds d'où émerge une feuille. Ces nœuds servent au maintien vertical de la tige.

Le roseau commun aura donc des propriétés similaires aux autres végétaux de cette famille en plus d'avoir un aspect visuel comparable. Pour ce qui est de la composition, si l'on compare le roseau Phragmites aux cannes (Bagasse et Bambou), le taux de cellulose est plus important pour le Phragmites tandis que les taux de lignine et hémicellulose sont comparables (Figure 10). Les fibres issues des herbes (Spart et Sabai) contiennent moins de cellulose mais plus d'hémicellulose que le Phragmites.

| Type of fiber | Cellulose | Lignin | Pentosan | Ash | Silica | Spiral Angle (deg) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| **Stalk Fiber** | | | | | | |
| Straw | | | | | | |
| Rice | 28-48 | 12-16 | 23-28 | 15-20 | 9-14 | - |
| Wheat | 29-51 | 16-21 | 26-32 | 4.5-9 | 3-7 | - |
| Barley | 31-45 | 14-15 | 24-29 | 5-7 | 3-6 | - |
| Oat | 31-48 | 16-19 | 27-38 | 6-8 | 4-6.5 | - |
| Rye | 33-50 | 16-19 | 27-30 | 2-5 | 0.5-4 | - |
| **Cane fiber** | | | | | | |
| Bagasse | 32-48 | 19-24 | 27-32 | 1.5-5 | 0.7-3.5 | - |
| Bamboo | 26-43 | 21-31 | 15-26 | 1.7-5 | 0.7 | - |
| **Grass fiber** | | | | | | |
| Esparto | 33-38 | 17-19 | 27-32 | 6-8 | - | - |
| Sabai | - | 22 | 24 | 6 | - | - |
| **Reed fiber** | | | | | | |
| Phragmites | | | | | | |
| Communis | 44-46 | 22-24 | 20 | 3 | 2 | - |
| **Bast Fiber** | | | | | | |
| Seed flax | 43-47 | 21-23 | 24-26 | 5 | - | 8-10 |
| Kenaf | 44-57 | 15-19 | 22-23 | 2-5 | - | 8 |
| Jute | 45-63 | 21-26 | 18-21 | 0.5-2 | | 8 |
| Hemp | 57-77 | 9-13 | 14-17 | 0.8 | - | 6 |
| Ramie | 89-91 | - | 5-8 | - | - | 8 |
| **Core fiber** | | | | | | |
| Kenaf | 37-49 | 15-21 | 18-24 | 2-4 | - | - |
| Jute | 41-48 | 21-24 | 18-22 | 0.8 | | - |
| **Leaf fiber** | | | | | | |
| Abaca | | | - | | | |
| (Manila) | 56-63 | 7-9 | 15-17 | 1-3 | - | - |
| **Sisal** | | | | | | |
| (agave) | 43-62 | 7-9 | 21-24 | 0.6-1 | - | 10-25 |
| **Seed Hull fiber** | | | | | | |
| Cotton | 85-96 | 0.7-1.6 | 1-3 | 0.8-2 | - | - |
| **Wood fiber** | | | | | | |
| Coniferous | 40-45 | 26-34 | 7-14 | <1 | - | - |
| Deciduous | 38-49 | 23-30 | 19-26 | <1 | - | - |

*Figure 10 Composition chimique de différentes fibres végétales* [90]

Les compositions chimiques étant assez variables pour un même végétal, les travaux de la thèse seront axés sur la comparaison des méthodes existantes pour le dosage des constituants et les différences observées selon le procédé utilisé. La composition du phragmites sera également étudiée selon différents paramètres (lieu et période de récolte) dans un but de consolider les connaissances actuelles sur le roseau phragmites.

### *II.4.b. Confusion Miscanthus/Phragmites*

Il n'existe que très peu de publications étudiant le roseau Phragmites, une réelle confusion étant faite entre le miscanthus et le roseau commun.

Il existe de nombreuses variétés de miscanthus ; trois en particulier sont étudiées : le Sinensis, le Sacchariflorus et le Giganteus [20]. Le Miscanthus Giganteus est une espèce hybride stérile issue d'un croisement entre le Miscanthus Sinensis et le Miscanthus Sacchariflorus. Cet hybride stérile a été développé pour la production d'énergie et plus précisément de bioéthanol, puis a été plus largement étudié pour l'application en composites. Le miscanthus est plus grand en taille que le Phragmites, de même pour le diamètre des tiges qui est plus important chez le roseau de culture et comparable à celui de la canne de Provence (Figure 9).

Sa stérilité en fait une espèce non invasive mais dont le semis est obligatoire pour que les rhizomes se développent et perdurent. Il s'agit d'une plante se cultivant sur les terres agricoles et sur des sols drainés, contrairement au roseau commun qui évolue dans les zones humides, lacs et rivières. Le *Phragmites australis* est donc indépendant des enjeux agricoles et ne demande aucun semis ni intrant chimique pour sa croissance. Cette différence est un réel avantage en termes écologiques et agricoles compte tenu des enjeux actuels et l'augmentation de la population.

## III. RÉPARTITION GÉOGRAPHIQUE ET HABITAT

### III.1. À l'échelle mondiale

Le roseau commun a la particularité de pouvoir se développer dans toutes les zones humides, des étangs aux marais mais également dans certains fossés. Il peut aussi bien évoluer dans des eaux douces ou saumâtres, c'est pourquoi ce roseau s'est implanté sur tous les continents excepté l'Antarctique [10]. De ce fait, le *Phragmites australis* est reconnu comme la plante angiosperme[7] la plus répandue sur Terre (Figure 11).

Sous formes native et non-native, il s'agit d'une plante pouvant résister aux conditions extrêmes comme la sécheresse ou bien le gel. Ce caractère non-natif est dû, d'une part, au déplacement intentionnel de plants de Phragmites pour stabiliser des berges [21] et d'autre part, de façon accidentelle, par exemple avec le transfert du Phragmites de l'Europe à l'Amérique du Nord [22]. Ces mouvements construisent alors un réseau mondial de Phragmites natifs et non-natifs.

7 Plante à graines dont l'ovule, fécondé par l'intermédiaire d'un tube pollinique, se transforme en un fruit.

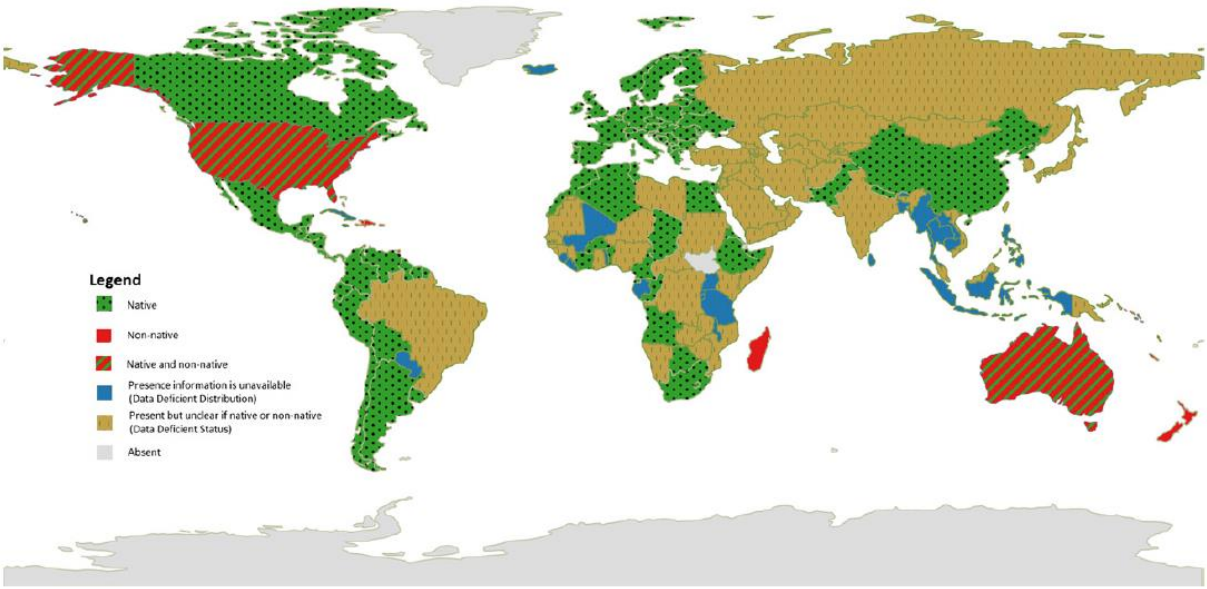



*Figure 11 Répartition du Phragmites Australis dans le monde [10]*

Bien que le Phragmites soit considéré comme une seule et unique espèce, les formes native et non-native créent des variations considérables de caractéristiques morphologiques et écophysiologiques. Ces variations sont dues à la compétition des deux formes dans l'invasion de certaines zones.

Les deux formes sont présentes aux Etats-Unis et des recherches ont montré que la forme introduite dominait la forme indigène grâce à des rhizomes et stolons plus grands encourageant de ce fait la reproduction végétative [23]. D'importantes ressources économiques sont utilisées en Amérique du Nord pour contrôler la propagation de ces lignées envahissantes. En Europe, bien qu'il n'y ait pas de formes non-natives, des moyens financiers sont utilisés pour préserver et gérer les zones humides et les roselières qui abritent des oiseaux menacés. Les voies de contrôle de l'expansion du roseau seront détaillées dans la partie IV.2 page 42.

### **III.2.** En France

La majorité des roselières en France sont privées et appartiennent à des particuliers ; cela représente 71 % des sites, soit 83 % de la superficie totale des roselières françaises (Figure 12). Les trois quarts de la surface de roselières sont dans des zones humides littorales (marais, estuaires…) tandis que le reste appartient aux zones humides intérieures (bordure de cours d'eau, étangs, lacs…) [24]. Si l'on raisonne en nombre de sites, les deux tiers des roselières sont dans les zones intérieures et principalement au niveau des étangs.

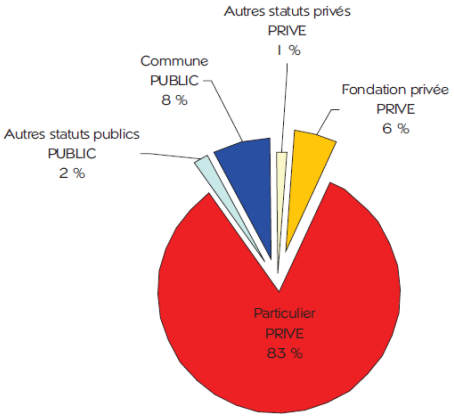



*Figure 12 Répartition de la surface des roselières selon leur statut*

### ***III.2.a.*** *En superficie*

Le Phragmites est présent dans toutes les régions de France sur des surfaces plus ou moins étendues (Figure 13).

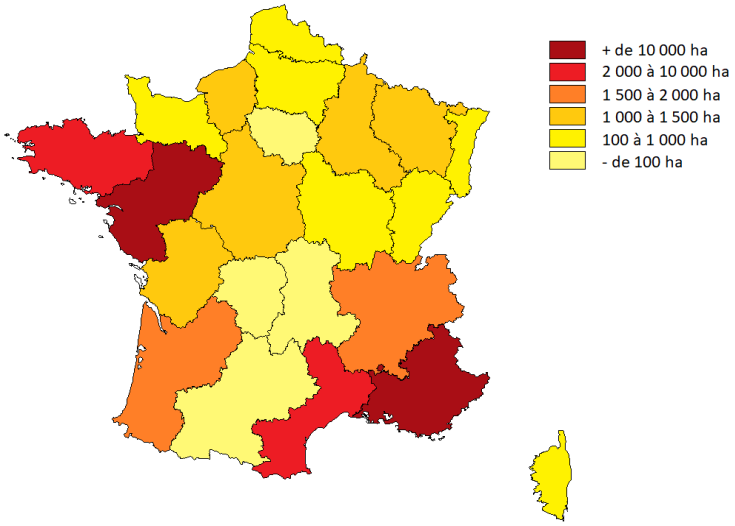



*Figure 13 Superficie des roselières selon les régions de France (ha=hectare)* [24]

Les régions Provence-Alpes-Côte-d'Azur et Pays-de-la-Loire comptabilisent à elles deux 14 300 et 18 100 hectares respectivement, soit plus de la moitié de la superficie nationale qui est de 55 300 hectares (données 2008) [24] ; viennent ensuite le Languedoc-Roussillon avec 7 500 hectares et la Bretagne avec 2000 hectares.

La Camargue (13) est de loin la roselière la plus grande de France avec presque 14 000 hectares, suivie du Marais de la Brière (44) avec 7 700 hectares et de la Rivière et du Marais de l'Erdre (44) avec 5 400 hectares. Sept zones ont des surfaces comprises entre 1 000 et 4 000 hectares, dans l'ordre : les Étangs Palavasiens (34), l'Estuaire de la Loire (44), la Petite Camargue (30), le Lac de Grand-Lieu (44), l'Estuaire de la Seine (14-27-76), les Étangs de le Brenne (36) et l'Estuaire de la Gironde (17-33). Deux

zones ont des surfaces comprises entre 500 et 1 000 hectares tandis que huit sont comprises entre 300 et 500 hectares.

#### ***III.2.b.*** *En nombre de sites*

En raison de la présence des Étangs de la Dombes et de la Plaine du Forez, la région Rhône-Alpes compte plus de 400 roselières. La Bretagne est la deuxième région avec 183 sites suivie de la région Champagne-Ardenne avec 163 roselières (Figure 14). Quatre régions ont plus d'une centaine de sites (Poitou-Charentes, Lorraine, Pays de la Loire et Centre).

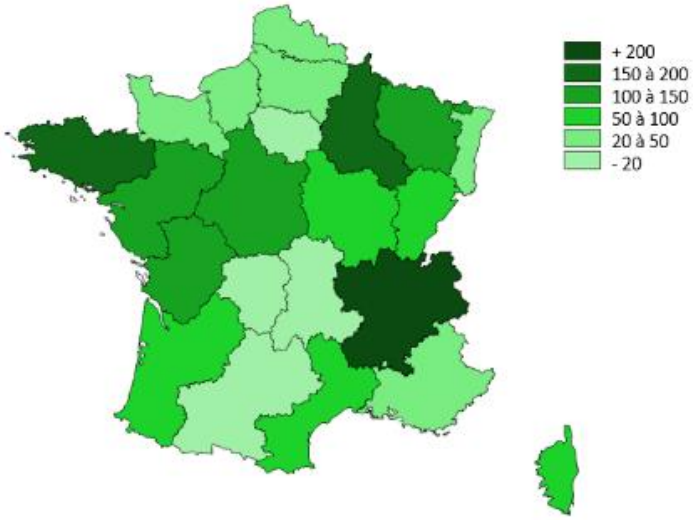



*Figure 14 Nombre de roselières selon les régions de France* [24]

### **III.3.** En Bretagne

La surface des roselières en Bretagne, comme dans le reste du pays, tend à diminuer depuis le début du XX$^{ème}$ siècle. En effet, ce constat est lié d'une part à l'abandon de la gestion traditionnelle et d'autre part à l'intensification des pratiques agricoles également liée à la pression urbaine. Tous ces facteurs tendent à faire disparaitre les roselières pourtant vitales au maintien d'un écosystème dans les zones humides.

Un inventaire a été réalisé entre 1998 et 2008 par l'ONCFS (Office Nationale de le Chasse et de la Faune Sauvage).

Comme évoqué précédemment, la Bretagne possède près de 2 000 hectares répartis dans 183 roselières. Le littoral breton s'étendant sur plus de 1 700 kms [25], la moitié de la superficie des roselières se trouve dans des marais (Figure 15). Le roseau se développe en plus grande surface dans les marais car le niveau d'eau est quasiment identique sur une surface importante.

Le quart de ces surfaces correspond aux étangs, là où le roseau joue un rôle dans la qualité de l'eau par son action d'épuration.

Les rivières et fleuves accueillent également des roselières (15 % de la superficie totale), plus petites en surface. Ces roselières servent de zones d'expansion des crues et protègent les rives de l'érosion [26]. Quelques exemples : le Scorff et la rivière d'Auray dans le Morbihan, la Laïta et l'Aulne dans le Finistère.

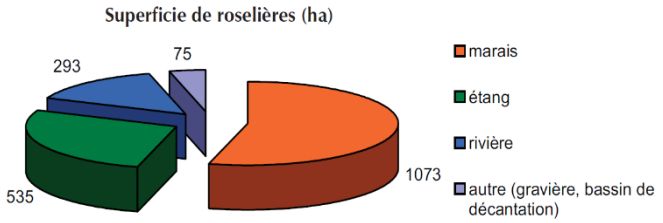



*Figure 15 Répartition de la superficie des roselières en Bretagne*

## IV. Le roseau *Phragmites australis* dans l'écosystème

Le terme « écosystème » a été utilisé pour la première fois par le botaniste Arthur George Tansley en 1935 [27]. Un écosystème est caractérisé par un milieu dans lequel les conditions physicochimiques sont homogènes et permettent le développement d'un ensemble d'organismes vivants.

Comme évoqué précédemment, le roseau commun joue un rôle important dans la sauvegarde de l'écosystème des zones humides. Les roselières formées par le Phragmites et d'autres espèces végétales participent au développement et à la survie de la biodiversité animale.

D'après le recensement réalisé par l'ONCFS en 2008 [24], il existe deux types de roselières : les roselières basses et les roselières hautes. On compte sept espèces végétales dans les roselières hautes qui forment une végétation compacte et élevée : Le roseau commun (*Phragmites australis*), la baldingère faux-roseau (Phalaris arundinacea), les massettes (Typha latifolia et T. angustifolia), le scirpe lacustre (Scirpus lacustris), le scirpe maritime (Bolboschoenus maritimus), et la grande glycérie (Glyceria maxima) (Figure 16).

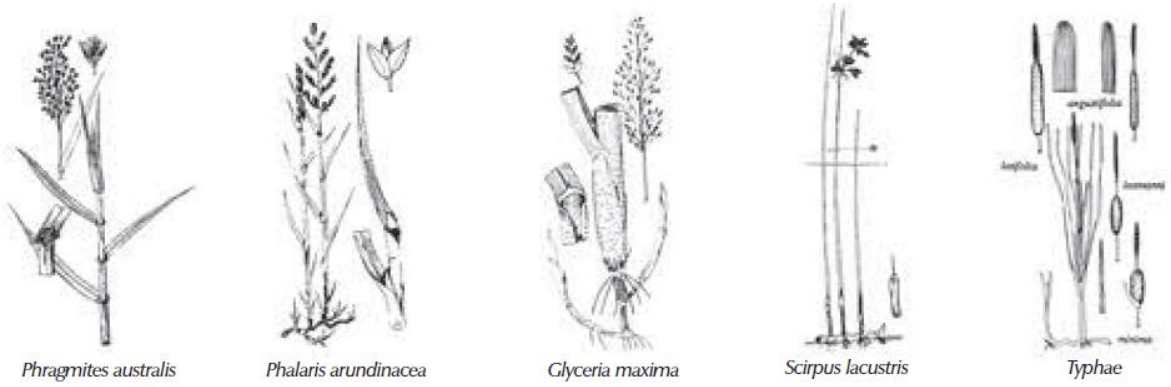



*Figure 16 Les espèces végétales présentes dans les roselières* [26]

Si toutefois le roseau commun est essentiel pour son rôle dans l'écosystème, celui-ci est également vu comme une menace pour son caractère invasif. En effet, le Phragmites étant capable d'évoluer dans les eaux saumâtres, de nombreuses espèces végétales sont étouffées par ce roseau, c'est le cas de la Spartine qui, par manque de lumière, ne survit pas [28].

Le roseau est alors indispensable à la pérennité des zones humides à condition d'entretenir les roselières de façon responsable.

Cette partie aborde ces deux aspects, l'importance du phragmites dans l'équilibre de l'écosystème et les moyens mis en place pour conserver ces zones humides, c'est-à-dire l'entretien des roselières pour contenir l'invasion du Phragmites.

### **IV.1.** Le rôle des roselières

Pour tout plan d'eau (lac, rivière, étang…) dont la hauteur atteint deux mètres, une roselière peut se former ; le roseau commun est le premier végétal à s'implanter lorsque les conditions sont réunies. Lorsque la roselière est formée, elle progresse d'environ six mètres tous les ans.

Sans entretien, c'est-à-dire sans coupe ni récolte du roseau, il y a un phénomène d'atterrissement[8] qui apparait. Les tiges sèchent pendant l'hiver et tombent au sol créant ainsi de la nouvelle matière organique. La vitesse d'atterrissement de certains plans d'eau peut atteindre un mètre en sept ans [2]. Cette matière organique créée par la décomposition des roseaux diminue la quantité d'eau dans les marais et permet l'implantation de nouvelles espèces végétales comme le saule ou bien le bouleau qui sont les premiers arbres à s'implanter. Cette dynamique d'atterrissement entraine la formation à terme de milieux forestiers, la disparition de la zone humide et donc la disparition des espèces aquatiques précédemment présentes dans la roselière [2]. De plus la gestion de zones humides est un élément clef dans la lutte contre le réchauffement climatique [29].

Les roselières ont plusieurs rôles ; le premier est la protection des rives contre l'érosion ; en effet, elles amortissent les courants apportés par les marées et les crues. Elles servent également de filtres pour les sédiments et absorbent les nutriments de l'eau participant ainsi à son épuration et son oxygénation [30].

Entretenir les roselières c'est également permettre une grande diversité biologique. En effet, les roselières permettent non seulement l'accueil d'une centaine d'espèces d'insectes (libellules…) mais également des espèces d'oiseaux protégées. Les poissons, batraciens, reptiles et mammifères font aussi partie de cet écosystème [24]. Les roselières sont un refuge pour les poissons lors des crues importantes, la densité des tiges atténuant le courant.

[8] En bordure d'une étendue d'eau, accumulation de matériel (terre, limon, sable, gravier) qui en réduit la surface.

Certaines espèces d'oiseaux ne font leur nid que dans les roselières, c'est le cas de la Rousserolle turdoïde qui accroche son nid aux tiges du roseau. Le Héron pourpré, le Butor étoilé, le Busard des roseaux et le Hibou des marais sont également des espèces présentes dans les roselières.

Parmi les mammifères présents dans ces plans d'eau se trouvent en abondance le Rat des moissons. Le Campagnol amphibie, la Musaraigne aquatique, le Rat musqué et le Ragondin sont également des espèces habitant les roselières et s'alimentant des rhizomes et pousses de roseau. Un peu plus gros, on y trouve aussi des Putois, Belettes, Hermine, Vison et Loutre. Lorsque la roselière a une taille assez importante, le sanglier y trouve refuge [2].

Pour résumer, les roselières sont le berceau d'un écosystème riche et varié. Il est d'une importance capitale de préserver ces zones humides pour assurer la pérennité des êtres vivants qui y résident.

### **IV.2.** Contrôle de l'expansion

Il existe plusieurs options pour contrôler la propagation du Phragmites, des contrôles biologiques, physiques ou bien chimiques [31].

Le contrôle biologique peut se faire par l'introduction d'insectes comme la Cochenille farineuse sans pattes (Chaetococcus phragmitis) et la Noctuelle (Rhizedra lutosa) qui se nourrissent des rhizomes du Phragmites. Certaines études ont été réalisées en Amérique du Nord pour démontrer l'efficacité de la méthode [32]. Toutefois, il est important de prendre toutes les précautions nécessaires lors de l'introduction de ces insectes qui peuvent être tout aussi ravageurs sur d'autres espèces végétales non invasives.

Le contrôle chimique a été expérimenté pour la première fois en 1985 avec l'utilisation d'un herbicide appelé RodeoTM pulvérisé dans les zones aquatiques plusieurs années de suite à des taux élevés [33]. Cependant, ces expérimentations ne sont pas concluantes au vu de la reprise du Phragmites quelques années plus tard. D'autres études ont été menées en 1999 en combinant la coupe du roseau et l'utilisation de glyphosate. L'herbicide pouvait alors s'infiltrer dans les rhizomes [34]. Depuis cette étude, la dangerosité du glyphosate a été démontrée et fait désormais appel à certaines réglementations.

Le contrôle physique correspond à la gestion mécanique des roselières, c'est-à-dire la récolte. Cette solution est la plus viable à long terme.

De nos jours, la propagation du roseau commun est gérée différemment suivant les États. Au Canada, des groupes de Recherche étudient les contrôles chimiques et le brûlage des parcelles [35]. En Europe, la coupe est utilisée en priorité.

### IV.3. Entretien des roselières

Une roselière régulièrement entretenue, c'est-à-dire fauchée, a vu s'enrichir de plus de trente

*Figure 17 Photo de la roselière de Pen Mané à Locmiquélic (56), © C. Danilo*

espèces sa composition floristique en Brière [36]. Cette observation est la preuve que la fauche du roseau est un point clef dans la sauvegarde des roselières.

La question est désormais : Quelle est la période idéale pour la fauche d'une roselière ?

#### ***IV.3.a.*** *Le roseau d'hiver*

Le roseau peut être récolté à des fins commerciales, par exemple pour la couverture des toits en chaume mais également pour la confection de palissages et coupe-vent.

Comme abordé dans la partie I.1 page 26, le roseau commun est utilisé depuis des millénaires pour les toitures. Cette utilisation nécessite de récolter le roseau l'hiver, c'est-à-dire aux premières gelées, afin que la plupart des plantes dites d'accompagnements soient sèches et aux pieds des tiges de roseau. La coupe se fait ensuite entre 10 et 20 cm du pied, il ne faut pas récolter plus bas au risque de ne pas voir le roseau repousser et il ne faut pas non plus récolter plus haut car la tige devient trop fragile pour l'application souhaitée [37].

La coupe du roseau ayant lieu après la période de végétation, la roselière voit alors un impact positif sur son développement. En effet, la récolte du roseau améliore la luminosité et augmente la température du sol pour les jeunes pousses en développement dans celui-ci. Toutes conditions égales par ailleurs, une parcelle récoltée l'hiver de l'année n verra sa densité de tiges doubler l'année n+1 [2].

La coupe hivernale est utilisée dans beaucoup de régions d'Europe, c'est même la période privilégiée dans les milieux humides menacés par l'activité humaine. La récolte du roseau en hiver permet le maintien des roselières.

Cependant, il est à noter que cette coupe modifie la physionomie du milieu. En effet, la roselière passe d'un ensemble de tiges hautes et denses à un milieu où les tiges dépassent à peine de quelques

centimètres. Cette récolte a donc pour conséquences une modification de l'habitat pour tous les êtres vivants de la roselière et en particulier les oiseaux qui se reproduisent dans les tiges sèches (Mésange à moustaches, Busard des roseaux et Râle d'eau) et ceux ayant besoin de vieux matériaux pour la constitution de leur nid (Canard colvert et Fuligule milouin). Le constat est le même pour les mammifères qui sont plus sédentaires que les oiseaux l'hiver [2].

Afin de protéger les roselières et d'assurer la pérennité de l'écosystème, la récolte du roseau ne doit pas se faire sur la totalité de la surface de la roselière.

Toutefois, la non-récolte du roseau est également problématique car elle entraine une densification des tiges telle qu'il devient impossible pour les oiseaux d'y construire un nid, notamment pour ceux s'y rendant à la nage.

La récolte du roseau améliore la circulation de l'air et de l'eau et permet un meilleur ensoleillement, augmentant ainsi la productivité de celle-ci. Une roselière produit en moyenne de 30 à 45 tonnes par hectare de roseau par an [24].

#### ***IV.3.b.*** *Le roseau d'été dit vert*

Il est à noter que les réserves naturelles sont protégées et donc fauchées à la fin de l'été pour limiter l'expansion du roseau et pour ne pas perturber les animaux présents. C'est le cas pour 40 % de la superficie des roselières bretonnes qui est sous la protection du réseau Natura 2000 [26]. L'idée étant de préserver l'écosystème des marais principalement, un règlement est appliqué au sujet de la fauche (outil utilisé, surface récoltée…).

Un roseau vert est un roseau coupé avant la fin de la période de végétation, entre mi-août et mi-octobre. Cette coupe est défavorable au roseau en termes de capacité de propagation. En effet, lorsque la récolte est réalisée mi-août, elle diminue de moitié le nombre de tiges l'année suivante. Même constat lorsque la coupe est faite mi-septembre mais moins dramatique avec un tiers des tiges ne repoussant pas [38].

Cette récolte estivale a également des conséquences sur la morphologies des tiges ; celles-ci pousseront plus petites en taille et en diamètre l'année suivante. La coupe faite à partir de mi-octobre n'a que très peu voire pas d'influence sur les propriétés morphologiques des tiges ni sur leur nombre l'année d'après [2].

Lorsque la coupe est réalisée pendant la période de végétation, c'est-à-dire en mai ou en juin, les conséquences sont beaucoup plus marquées. En effet, les rhizomes n'ont pas le temps de reconstituer leurs réserves pour l'hiver. Après trois années consécutives de fauche estivales, certaines roselières se sont transformées en prairies à herbes courtes, lisières et chardons [31]. De même, une roselière

fauchée deux fois dans l'année (juin et septembre) a une repousse quatre fois moins importante l'année suivante.

En conclusion, la période de récolte du roseau est un élément essentiel à prendre en compte pour le maintien de l'écosystème des zones humides. La fauche du roseau a des impacts négatifs comme positifs sur les êtres vivants peuplant les roselières. Lorsque le roseau est coupé trop tôt, c'est-à-dire en période de végétation (de mai à août), le milieu sera alors défavorable pour certains oiseaux faisant leur nid au début du printemps. Cependant, cette fauche estivale, lorsqu'elle est faite à la fin de l'été, permettra l'accès à la nage à l'intérieur de la roselière.

La coupe hivernale est celle qui est la plus favorable aux roseaux car elle n'appauvrit pas les rhizomes et démultiplie le nombre de tiges mais elle est défavorable à l'écosystème. En effet, les roselières deviennent plus denses car les rhizomes ne sont pas appauvris. Elles ne peuvent plus accueillir d'oiseaux sauf si elles sont entretenues régulièrement. Il devient donc indispensable de les entretenir en effectuant des rotations tous les 3 à 5 ans.

Ainsi, la récolte du roseau, bien que complexe, est nécessaire. Elle doit être faite suivant des rotations chaque année afin de ne pas déséquilibrer l'écosystème des marais.

Lorsque les parcelles sont exploitées l'hiver, le roseau est utilisé pour le bâtiment principalement avec l'utilisation dans la couverture des toits en chaume. Les grandes étendues de roselières sont découpées en une mosaïque de parcelles récoltées en alternance, certaines ne l'étant jamais pour permettre la pérennité de certaines espèces.

### ***IV.3.c.*** *Méthodes de récolte*

*Figure 18 Photos d'une dameuse modifiée pour la récolte du roseau, © C. Danilo*

Il existe différents types de récolte. La récolte manuelle a longtemps été utilisée et est encore employée pour certaines parcelles en Europe. En effet, les roselières étant des plans d'eau, l'accès en bateau peut y être nécessaire. La récolte se fait donc à la faux à bords de bateaux [39]. La fauche peut également se faire à la faucille, dans ce cas, le récoltant travaille à même le sol ou dans l'eau.

La récolte mécanisée a vu le jour dans les années 50 en France, avec l'adaptation d'engins agricoles pour la coupe du roseau et bottelage manuel après tri. Cette mécanisation devient quasiment universelle à partir de 1970 même si les méthodes varient. Le métier de récoltant de roseau étant assez peu répandu, il a fallu une adaptation des machines agricoles pour un passage dans un milieu humide. C'est le cas pour la machine en Figure 18, une dameuse modifiée pour pouvoir récolter le roseau en zones humides. Munie de chenilles, celle-ci ne détériore pas les sols après son passage et peut récolter le roseau dans des eaux peu profondes ce qui n'est pas le cas pour des tracteurs. Dans le marais de Pen Mané à Locmiquélic (56) (Figure 17), une partie de la roselière, fauchée en septembre (roseau vert), est récoltée avec cette machine. Un nouveau procédé a été testé depuis peu, il s'agit de la même technique que pour du foin, c'est-à-dire fauchage, fanage[9] (Figure 20), andainage[10] et bottelage (Figure 19). Cet essai a été réalisé sur une zone sèche c'est-à-dire accessible en tracteur.

Le roseau peut être récolté soit sous forme de tiges entières, pour l'application de couverture des toits, soit pré-broyé en tronçons de tailles variables selon la machine utilisée.

Les utilisations faites de ce roseau et le potentiel à exploiter seront abordés dans la partie V Page 47.

*Figure 20 Photo du fanage du roseau fauché, © C. Danilo*

*Figure 19 Photos du bottelage du roseau fauché, © C. Danilo*

[9] Aération de la matière coupée pour faciliter le séchage
[10] Formation de tas allongés

# V. VOIES DE VALORISATION DU ROSEAU COMMUN

## V.1. Utilisation du roseau phragmites et études actuelles

Le roseau commun est utilisé dans différents domaines et sous diverses formes. Dans le Tableau 1 est détaillée une liste non exhaustive des différentes utilisations du phragmites avec le type de roseau (hivernal ou estival), la partie de la plante utilisée et les transformations nécessaires (séchage, broyage…).

Dans cette thèse, la valorisation du phragmites sera étudiée dans deux domaines : en écoconstruction qui est un domaine assez large et en plasturgie, une voie de valorisation très peu étudiée dans la littérature scientifique.

| **Domaine** | **Bâtiment** | | **Industrie** | **Energie** | | **Agriculture** |
|---|---|---|---|---|---|---|
| **Utilisation** | Couverture des toits | Panneaux isolants | Pâte à papier | Combustion | Biogaz Bioéthanol | Phytoremédiation |
| **Récolte** | Hiver | Hiver | Hiver | Hiver | Été | Toute l'année |
| **Formes du roseau** | Tiges entières, longues et flexibles | Paille compressée | Roseau sec | Tiges entières | Plantes entières | Roseau sur pieds |
| **Transformation nécessaire** | Retirer les feuilles résiduelles Tiges diamètre homogène | Séchage, compression des granulats et ajout de colle | Broyage et pressage | Séchage, broyage et fabrication des pellets | Broyage, extraction | Récolte régulière pour l'optimisation de la fonction |
| **Références** | [40] | [41] | [39] [42] | [43] | [44] [45] | [46] |

*Tableau 1 Récapitulatif des utilisations actuelles du roseau commun*

Le matériau de 1ère transformation correspond au roseau ayant été pré-broyé en tronçons (quelques cm) ou broyé en granulats (quelques mm).

En éco-construction, le roseau a principalement été étudié pour la couverture des toits. Plusieurs paramètres sont importants pour cette application, la provenance du roseau ainsi que la période de récolte. En effet, il s'agit de deux paramètres faisant varier la composition en polysaccharides mais également en minéraux (silicium, magnésium, phosphore, calcium, potassium et sulfure). Cette composition varie également suivant la hauteur de la tige. Le roseau sera plus ou moins sensible à l'humidité selon sa composition. Le diamètre et la morphologie des tiges jouent également un rôle

important dans cette application. Des tiges avec un diamètre trop petit peuvent casser et lorsque le diamètre atteint une valeur trop importante, la tige n'est plus assez souple [47].

Dans la construction, le roseau est de plus en plus étudié comme barrière acoustique et comme panneau d'isolation thermique. Les propriétés acoustiques et thermiques des tiges de roseau phragmites ont été étudiées par différentes équipes de Recherche [48]–[50].

### **V.2.** Objectifs des travaux de thèse

Le phragmites est très peu étudié comme matériau de renfort dans les composites, à matrice minérale ou polymère. Pourtant, au vu des propriétés remarquables de cette plante, il nous a semblé intéressant de l'étudier dans le but de valoriser ce produit issu de la gestion des zones humides et qui n'utilise pas de surfaces agricoles.

Pour cela, étant donné le peu de travaux sur les composites à base de roseau, il est nécessaire de disposer de données expérimentales pour certains matériaux de références auxquels comparer les résultats obtenus sur le roseau.

Pour le volet plasturgie, le roseau n'étant pas une plante fibreuse comme le lin ou le chanvre, les composites seront réalisés à partir de farines (0-500 µm), c'est-à-dire des tiges entières de roseau broyées. Les propriétés pourront donc être comparées à celles des composites à base de farine de bois, communément appelés WPC (Wood Plastic Composites), ou bien aux composites à base de miscanthus.

Pour le volet éco-construction, et pour l'isolation en particulier, la chènevotte de chanvre a été choisie comme granulat de référence. En effet, la chènevotte a été et est encore très étudiée dans le bâtiment [51]–[53]. Issue de l'intérieur de la tige du chanvre, ce granulat très poreux est utilisé en vrac mais également dans des bétons. Il sera intéressant d'explorer différents type de liants minéraux, à base de chaux ou de terre, pour comparer les comportements du phragmites et de la chènevotte associés à différents liants.

Dans la suite du manuscrit, nous présenterons les principaux résultats des travaux scientifiques utiles à notre étude à chaque début de chapitre.

# VI. PRÉSENTATION DES MATÉRIAUX DE L'ÉTUDE

## VI.1. Les différents échantillons de roseaux

Les échantillons utilisés dans l'étude « plasturgie » sont détaillés dans le Tableau 2. Il s'agit de farines de roseaux venant de Bretagne et du Parc Naturel de la Brenne fournies par un partenaire de la thèse ADEV Environnement. Ce sont tous deux des échantillons de récolte hivernale. Le tableau détaille deux broyages différents. En effet, il sera expliqué dans la suite du mémoire une problématique de sable et de copeaux métalliques contenus dans la farine broyée par ADEV Environnement. Il a donc été décidé de broyer directement les granulats 2-6 mm de la même récolte au Centre de Recherche.

| | 1ère campagne | | Campagnes suivantes | |
|---|---|---|---|---|
| Nom de l'échantillon | Brenne | Bretagne | Brenne | Bretagne |
| Abréviation | Échantillons non utilisés | | BR | BZ |
| Origine | Parc de la Brenne (33) | Roselière Finistère (29) | Parc de la Brenne | Roselière Finistère (29) |
| Période de récolte | Hiver 2016-17 | Hiver 2016-17 | Hiver 2016-17 | Hiver 2016-17 |
| Récoltant | ADEV Environnement | M. Volant | ADEV Environnement | M. Volant |
| Broyage | ADEV Environnement | | IRDL à partir de granulats 2-6 mm | |
| Taille | 0-500 µm | | 0-500 µm | |

*Tableau 2 Données sur les échantillons de roseau utilisés pour le volet plasturgie*

Le Tableau 3 récapitule les données sur les échantillons étudiés dans le volet Écoconstruction.

| Nom de l'échantillon | Bretagne bigbiag | Camargue | Brenne | Velving | Velving | Waldhouse | Waldhouse |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Abréviation | ADEV | CAM | BREN BREN50 | VEL-S6 VEL-S12 | VEL-V12 | WAL19-S6 WAL-S12 | WAL20-S6 |
| Origine | Roselière Finistère (29) | Parc Naturel Régional de Camargue (13) | Parc de la Brenne | Réserve naturelle de Velving (57) | | Waldhouse, (57) | |
| Période de coupe | Hiver 2015-2016 | Mars 2019 | Hiver 2016-2017 | 11/02/2020 | 18/09/2019 | Mars 2019 | Mars 2020 |
| Récolte | Lors de la coupe | | | 11/02/2020 | 11/02/2020 | Lors de la coupe | |
| Récoltant | NC | | ADEV | Conservatoire d'espaces naturels - Lorraine | | Parc Naturel Régional des Vosges du Nord (PNRVN) | |
| Broyage | ADEV | | | Tuilerie Briqueterie Lanter (67) | | | |
| Taille | 10-30 mm | | 10-30 mm | 6 mm | 12 mm | 12 mm | 6 mm |
| | | | 30-50 mm | 12 mm | | 6 mm | |

*Tableau 3 Données sur les échantillons de roseau utilisés pour le volet Écoconstruction*

Comme évoqué précédemment, les propriétés du phragmites peuvent varier selon différents paramètres. Tout d'abord, le lieu donnera des informations sur l'environnement dans lequel a évolué le roseau. La Figure 21 récapitule les lieux de récolte des échantillons du volet écoconstruction.

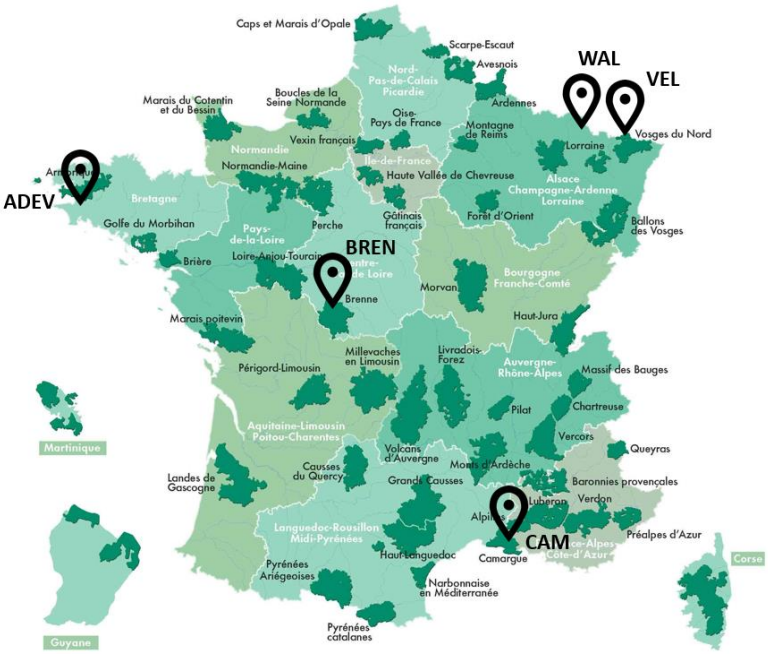



*Figure 21 Lieux de récolte des échantillons de roseaux Phragmites*

La période de récolte est également un élément à considérer car elle donnera des indications sur l'état du roseau (roseau vert ou roseau sec). Un roseau récolté à la fin de l'été ne sera pas sec et les nutriments encore présents dans la tige pourront avoir une influence dans la formulation des bétons. Une roselière récoltée à la fin de l'été aura environ 70 % en masse de phragmites seulement. En effet, cette roselière qui doit être fauchée l'été se trouve, en France, dans des parcs naturels préservés avec une variété d'espèces végétales plus importante que pour une roselière d'hiver. Par exemple, dans l'échantillon récolté dans la réserve naturelle de Velving, le phragmites est mêlé aux espèces Juncus Subnodulosus, Lysimachia Vulgaris et Mentha Aquatica principalement.

Lorsque le roseau est récolté après les premières gelées, les espèces végétales de petites tailles, une fois sèches et au sol, ne seront pas récoltées. L'hypothèse qu'il n'y a que du phragmites dans les échantillons récoltés sera donc faite pour tous les échantillons de roselières fauchées l'hiver.

Des échantillons de la Réserve Naturelle de Velving ont été récoltés en septembre (fauchage annuel) et en février (prélèvement manuel) pour évaluer l'effet d'un échantillon vert séché et roui car récolté cinq mois après le fauchage et d'un échantillon sec sur pieds.

La répartition granulométrique est également importante, les roseaux de la Réserve Naturelle de Velving et de Waldhouse ont été broyés à 6 et 12 mm pour étudier l'influence de la taille des particules sur les propriétés d'un béton. Il en est de même pour les trois échantillons broyés par ADEV, les roseaux de Bretagne, de Brenne et de Camargue.

### **VI.2.** Les références

Pour le volet plasturgie, les farines de bois (BO) et de miscanthus (MI) sont les références. Le bois utilisé provient de la scierie d'un des partenaires de cette thèse. Il s'agit de bois de pins et d'épicéas provenant du Morbihan principalement. Le miscanthus provient de Loire-Atlantique ; il s'agit de miscanthus giganteus, l'espèce hybride, qui a également été broyée par la scierie.

Dans le volet écoconstruction on s'appuie sur la chènevotte (REF) comme référence. Il s'agit d'une chènevotte artisanale d'un producteur faisant partie de l'association des Chanvriers en Circuit Court (3C).

# CONCLUSION

L'utilisation du roseau commun *Phragmites australis* date de plusieurs millénaires. En effet, cette plante à caractère invasif est utilisée depuis la Préhistoire dans les habitations. Le phragmites est une espèce cosmopolite capable de croître dans n'importe quel milieu humide en eaux douces ou saumâtres mais également à pH élevé. Sa grande adaptabilité en a fait la plante angiosperme la plus répandue sur Terre. Du fait de son caractère invasif, ce roseau se reproduisant par voies végétative et par semence domine les zones humides. Cette invasion menace l'écosystème des marais en réduisant la richesse des espèces végétales et animales qui y vivent. De nombreuses espèces végétales sont étouffées par ce roseau, de même pour certaines espèces d'oiseaux faisant leur nid dans les roselières. La densification d'une roselière non entretenue rend difficile voire impossible d'accès les zones pourtant indispensables aux espèces menacées. Un fauchage et une récolte responsables, c'est-à-dire en alternant les zones, pour ne pas laisser sans abris les êtres vivants peuplant les zones humides, font partie de la gestion des roselières et permettent la sauvegarde de cette riche diversité. Le roseau pouvant être récolté à différentes périodes, il aura des propriétés différentes, tout comme le lieu de récolte qui pourra avoir une incidence sur ses propriétés.

L'objectif de ce travail de thèse concerne l'étude de la valorisation du roseau pour des applications en composites. En effet, que ce soit dans le domaine de la plasturgie ou de l'écoconstruction pour l'isolation, l'utilisation de granulats végétaux est de plus en plus étudiée. L'impact environnemental des matériaux est un point clef lors de l'élaboration de ceux-ci. L'utilisation des granulats végétaux se présente comme une solution durable et peu énergivore pour les enjeux environnementaux du XXI$^{ème}$ siècle.

# CHAPITRE 2 : CARACTÉRISATION DES MATÉRIAUX DE PREMIÈRE TRANSFORMATION

# INTRODUCTION

Une bonne connaissance de la matière première lors d'une étude scientifique de valorisation est indispensable, d'autant plus lorsque le matériau concerné a fait l'objet de très peu d'études scientifiques, ce qui est le cas du roseau commun *Phragmites australis*. Afin de mieux comprendre les phénomènes observés lors de l'élaboration de composites (en plasturgie comme en éco-construction), il est donc très important de réaliser une caractérisation approfondie des matériaux utilisés. Ce sera l'objet de ce deuxième chapitre qui présente la totalité des méthodes et des résultats de caractérisation.

Une définition des matériaux de première transformation sera donnée dans la première partie du chapitre ainsi qu'une présentation des échantillons analysés pour le volet plasturgie et pour le volet écoconstruction.

La seconde partie sera consacrée à la détermination de la composition chimique des différents échantillons et plus précisément de la teneur en extractibles et composés lignocellulosiques. En effet, ces données sont un élément important pour la compréhension du comportement d'un matériau végétal, que ce soit seul, en présence d'humidité, en température mais également quand on l'intègre dans des matrices polymères ou minérales. Plusieurs méthodes de dosage chimique, dites gravimétriques, existent dans la littérature ; c'est pourquoi une comparaison sera faite entre les deux procédures principalement utilisées, l'une issue de l'industrie papetière et l'autre de l'industrie agroalimentaire.

La troisième partie concernera la caractérisation réalisée sur l'ensemble des échantillons pour les deux voies de valorisation, à savoir la distribution granulométrique des farines et granulats végétaux ainsi que leur courbe de sorption.

La quatrième partie présentera les méthodes employées pour la caractérisation des farines uniquement (phragmites, bois et miscanthus) pour une utilisation en plasturgie ainsi que les résultats. Cette caractérisation se définit par l'Analyse ThermoGravimérique (ATG) et par la mouillabilité des farines selon deux méthodes là aussi comparées.

La cinquième et dernière partie du chapitre concernera l'étude des granulats de roseau pour l'application en béton isolant. La morphologie des granulats sera étudiée pour comparer le roseau phragmites et la chènevotte de chanvre. L'absorption d'eau est également un point clef de l'étude pour mieux comprendre le comportement du granulat dans des formulations de béton. Enfin, toujours dans le but de comparer la chènevotte et le roseau commun, différentes masses volumiques seront mesurées ainsi que le taux de poussière.

# PARTIE 1 : PRÉSENTATION DES ÉCHANTILLONS DE ROSEAUX UTILISÉS PENDANT LA THÈSE

## I. MATÉRIAUX DE PREMIÈRE TRANSFORMATION

*Figure 22 Processus de broyage pour l'obtention des matériaux de première transformation*

Les matériaux dits de première transformation sont les matériaux n'ayant subi que des étapes de broyage. Les différentes étapes sont données en Figure 22. Tout commence dans la roselière où les tiges sont pré-broyées par l'ensileuse sous la forme de tronçons de 20-30 cm. Dans le cadre de cette thèse, différents échantillons ont été utilisés, des granulats pour l'application en béton isolant pour le bâtiment et de la farine pour l'application en plasturgie avec la micronisation des granulats.

Différents roseaux phragmites ont été étudiés ; c'est pourquoi la caractérisation de chacun a été réalisée pour les applications visées.

## II. ÉCHANTILLONS POUR LE VOLET PLASTURGIE

### II.1. Farines de roseau Phragmites

Comme expliqué dans le Chapitre 1, deux roseaux d'origines différentes ont été utilisés pour l'étude de la valorisation dans des composites à matrices polymères, un roseau de Bretagne et un du parc de la Brenne (Tableau 4).

| | 1ère campagne | | Campagnes suivantes | |
|---|---|---|---|---|
| Nom de l'échantillon | Brenne | Bretagne | Brenne | Bretagne |
| Abréviation | - | | BR | BZ |
| Origine | Parc de la Brenne (33) | Roselière Finistère (29) | Parc de la Brenne | Roselière Finistère (29) |
| Période de récolte | Hiver 2016-17 | Hiver 2016-17 | Hiver 2016-17 | Hiver 2016-17 |
| Récoltant | ADEV Environnement | M. Volant | ADEV Environnement | M. Volant |
| Broyage | ADEV Environnement | | IRDL à partir de granulats 2-6 mm | |
| Taille | 0-500 µm | | 0-500 µm | |

*Tableau 4 Données sur les échantillons de roseau utilisés pour le volet plasturgie*

## II.2. Problèmes rencontrés sur les premiers échantillons

### *II.2.a. Sable*

Une première campagne de formulation a été réalisée avec les deux échantillons (Brenne et Bretagne) en parallèle de la caractérisation de ceux-ci. Il s'est avéré que les échantillons comportaient des grains minéraux en assez grande quantité qui ont été mis en évidence dans les formulations composites réalisées et lorsque nous avons calciné les farines pour calculer leur taux de cendres.

Les éprouvettes correspondant aux différentes formulations ont été observées au MEB (Microscope Électronique à Balayage JEOL JSM 6460LV) muni d'une sonde EDS (Spectroscopie à Dispersion d'Energie) permettant de réaliser un spectre des éléments présents sur une surface donnée. Les grains minéraux sont visibles sur les images MEB en Figure 23 ; il s'agit des particules en surbrillance.

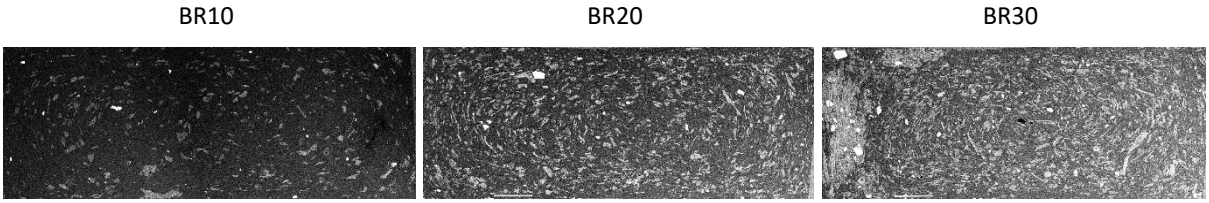
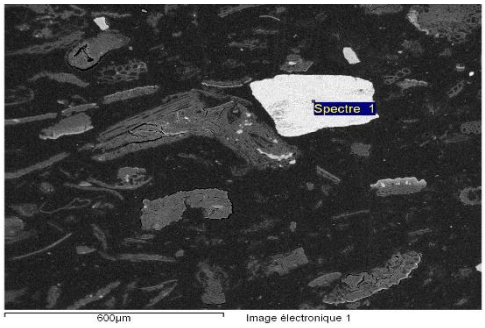



*Figure 23 Mise en évidence de particules minérales dans les formulations à base de phragmites*

L'analyse EDS de l'échantillon BR20 en Figure 24 met en évidence les éléments chimiques (Carbone, Oxygène, Sodium, Aluminium, Silicium, Chlore et Potassium) caractéristiques des feldspaths ; il s'agit très probablement de roches/cailloux présents parmi les tiges récoltées et broyés lors de la micronisation des granulats en farines.

Échantillon : BR20




| Élément | %Masse | %Atomique |
|---|---|---|
| C | 12.76 | 19.48 |
| O | 50.24 | 57.59 |
| Na | 0.68 | 0.55 |
| Al | 6.81 | 4.63 |
| Si | 21.17 | 13.82 |
| Cl | 0.33 | 0.17 |
| K | 8.01 | 3.76 |
| Total | 100.00 | |

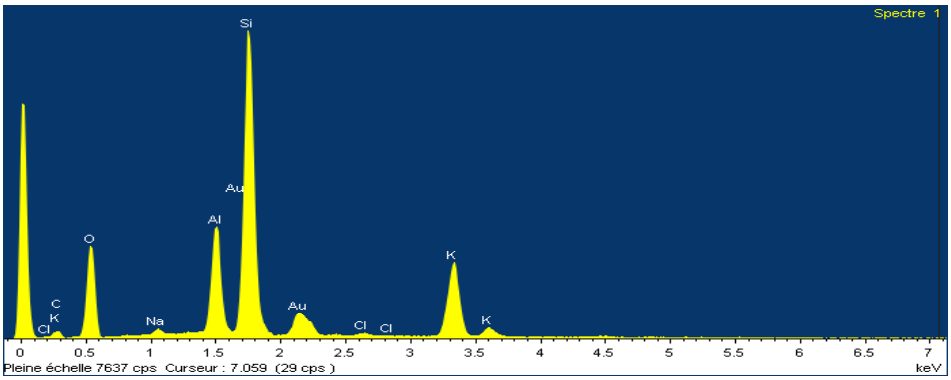



*Figure 24 Analyse EDS d'un grain de sable*

La présence de sable a également été mise en évidence en plongeant quelques grammes de farine dans une solution d'Iodure de Sodium (NaI) de densité 1,6. La farine de roseau phragmites étant de densité inférieure à 1, elle reste en surface tandis que les particules de sable plus denses que la solution de NaI se retrouvent dans le fond du tube à essai (Figure 25).

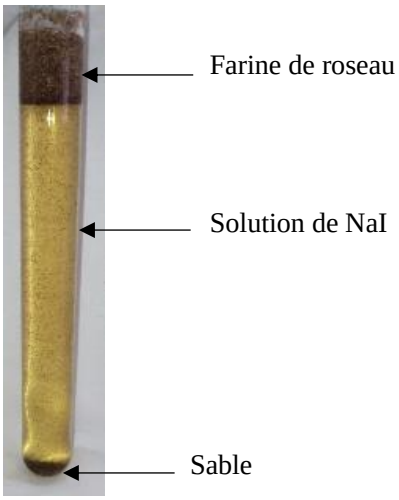



*Figure 25 Mise en évidence de sable dans la farine de Phragmites avec une solution de NaI*

Le sable a donc été quantifié par calcination des farines 4 heures à 550°C. Ce protocole permet d'obtenir la partie minérale d'un échantillon. Les granulats de roseau sont également calcinés pour comparer les valeurs obtenues. Les résultats sont présentés dans le Tableau 5.

Pour le roseau de Brenne, la quantité de cendres dans la farine est quatre fois supérieure à celle des granulats du même lot. Pour le roseau de Bretagne, il y a deux fois plus de cendres dans la farine que dans les granulats.

Ces différences de quantités viennent des particules de minéraux présents dans les farines fournies par ADEV. En effet, lors de la micronisation, les sacs de granulats sont directement versés dans le broyeur, cailloux et roches compris. Les minéraux se retrouvent ainsi broyés et mélangés aux particules végétales. Le taux de cendres des granulats correspond à la quantité intrinsèque liée au matériau en lui-même.

| | Brenne | | Bretagne | |
|---|---|---|---|---|
| | Farine | Granulat | Farine | Granulat |
| Taux de cendres (%massique sur échantillon sec) | 16,9 ± 1,4 % | 3,7 ± 0,1 % | 9,0 ± 0,4 % | 4,3 ± 0,1 % |

*Tableau 5 Taux de cendres des farines et granulats de roseaux Phragmites australis*

### *II.2.b. Copeaux métalliques*

La filière de récolte du roseau commun n'étant pas encore développée, certaines parcelles sont récoltées pour la première fois. Il est donc possible de trouver des débris de clôture à certains endroits qui se retrouvent récoltés et broyés lors de la micronisation. Nous avons observé des copeaux métalliques lors du dosage des constituants du roseau. En effet, lors des réactions sous agitation magnétique, un barreau aimanté est utilisé récoltant ainsi les copeaux de métaux mélangés à la farine (copeaux visibles en Figure 26).

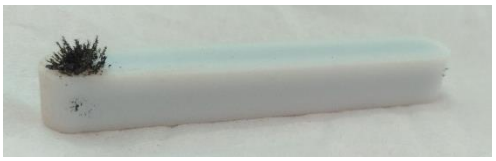


*Figure 26 Copeaux métalliques présents dans la farine de Brenne sur barreau aimanté*

## II.3. Échantillons broyés à l'IRDL

La présence de ces éléments (minéraux et métaux) dans les farines modifie les formulations des composites réalisés. Dans un souci de fiabilité des résultats nous avons mis de côté les formulations polluées pour en faire de nouvelles avec cette fois-ci des granulats directement broyés à l'IRDL. Les farines ainsi broyées ont été calcinées afin de vérifier que le taux de cendres correspondait à celui des

granulats. De plus, un aimant a été passé dans les farines pour s'assurer qu'il n'y avait pas de copeaux métalliques.

Pour l'application en plasturgie, ce sont les deux farines de phragmites (Brenne et Bretagne) qui ont été caractérisées du point de vue de leur stabilité thermique par Analyse ThermoGravimétrique (ATG), de leur comportement en présence d'eau par le tracé des courbes de sorption et de la mouillabilité des farines grâce à l'utilisation de méthodes permettant de mesurer l'angle de contact de deux manières différentes, directe et indirecte.

## III. ÉCHANTILLONS POUR LE VOLET ÉCOCONSTRUCTION

Pour caractériser l'éligibilité du roseau dans des formulations de bétons isolants, la variabilité du roseau a été plus largement explorée, les paramètres principaux étant le lieu et la période de récolte et la taille des granulats. Pour cela, tous les échantillons ont été analysés pour connaitre précisément leurs granulométrie et taux de poussière ainsi que leurs masses volumiques et capacité d'absorption d'eau. Les morphologies sont également étudiées pour comprendre les différences entre un roseau vert et un roseau sec séché sur pied. Toutes ces caractérisations ont été réalisées de la même manière sur le matériau de référence qui est la chènevotte de chanvre (nommée REF) pour le volet écoconstruction.

Ainsi différents échantillons ont été considérés selon leur lieu de récolte (différents parcs naturels de France), la période de coupe (S pour roseau sec sur pied et V pour roseau coupé vert et roui) et la taille des granulats (50 pour une taille moyenne de 50 mm, 6 pour 6 mm et 12 pour 12 mm). Deux échantillons ont été récoltés à un an d'intervalle, le roseau de Waldhouse WAL19 pour l'année 2019 et WAL20 pour l'année 2020.

Pour rappel, le Tableau 6 présente les abréviations utilisées pour tous les échantillons analysés dans le volet écoconstruction.

| Lieu de récolte | Bretagne | Camargue | Brenne | Velving | Waldhouse |
|---|---|---|---|---|---|
| Abréviation | ADEV | CAM | BREN<br>BREN50 | VEL-S6<br>VEL-S12<br>VEL-V12 | WAL19-S12<br>WAL19-S6<br>WAL20-S6 |

*Tableau 6 Abréviations des échantillons de roseaux*

# PARTIE 2 : CARACTÉRISTIQUES INTRINSÈQUES DES MATÉRIAUX

## I. COMPOSITION CHIMIQUE : MÉTHODES ET COMPARAISONS

Il existe plusieurs méthodes permettant de déterminer la composition chimique de la matière lignocellulosique. La plupart de ces méthodes sont fondées sur le principe de dissolution des composants par différents solvants, organiques comme aqueux. Selon la méthode utilisée, les réactifs sont différents ce qui modifie l'ordre de dissolution. Pour certains composés ayant des similarités de composition, la cellulose et l'hémicellulose par exemple, les temps de réaction seront déterminants et pourront affecter les résultats. En effet, un réactif dissolvant l'hémicellulose pourra dissoudre la cellulose si le temps de réaction est trop important.

Les méthodes sont dites gravimétriques ; c'est-à-dire que les résultats sont calculés par rapport à la perte de masse d'un échantillon après dissolution d'un de ses composants. L'erreur de mesure sur la première étape sera donc répercutée sur les valeurs suivantes. Dans cette partie, différentes méthodes ont été utilisées afin d'évaluer la composition des farines végétales. Dans un premier temps, une comparaison sera faite de ces méthodes avant de discuter des résultats pour tous les échantillons de l'étude. La méthode la plus répandue est issue de l'industrie agroalimentaire : c'est la méthode de Van Soest. Elle emploie des solutions détergentes neutre et acide pour la dissolution des composés (lignines, hémicelluloses et cellulose) [54]. La seconde méthode, appelée TAPPI (Technical Association of Pulp and Paper Industry), est issue de l'industrie du bois et s'appuie sur la dissolution des composés par des solutions d'acide chlorhydrique et de soude [55].

Les différentes étapes de ces deux méthodes seront largement détaillées dans la suite dans un soucis de clarté, et afin d'éviter certaines erreurs de calculs et d'interprétation que nous avons pu observer dans la littérature.

### I.1. Méthode de Van Soest

La méthode de Van Soest fait partie des techniques les moins spécifiques mais des plus robustes dans les résultats. La norme AFNOR NF V 18-122 [56] est utilisée pour la procédure de caractérisation. Les réactifs sont donnés dans le Tableau 7.

| Neutral Detergent Solution | Acid Detergent Solution |
|---|---|
| Eau<br>Acide Ethylène Diamine Tétraacétique (EDTA) (1,5-2 %)<br>Sulfate de sodium et de dodécyle (3 %)<br>Tétraborate de disodium décahydraté (0,5-0,7 %) | Eau<br>Acide sulfurique (1-5 %)<br>Bromure de Cétrimonium (CTAB) (1-5 %) |

*Tableau 7 Composition des solutions détergentes NDS et ADS*

### *I.1.a. La matière sèche*

La teneur en eau est tout d'abord quantifiée en effectuant un séchage à 103°C jusqu'à obtention d'une masse constante (≈ 4 heures). L'échantillon est pesé avant séchage (m') et après séchage (m'').

Il est à noter que la température de séchage est un élément important. En effet, une température plus faible n'entrainera pas la même perte d'eau ; de même qu'une température plus forte pourra dégrader certains composés et entrainer une perte de masse plus importante. Pour résumer, la température doit être la même quelle que soit la méthode afin de pouvoir les comparer entre elles. De plus cette valeur devrait être systématiquement renseignée lors de la publication des résultats.

La teneur en eau est calculée comme suit :

$$eau\ (\%) = \frac{m' - m''}{m'} \times 100$$ *Équation 1*

### *I.1.b. Les NDF : Neutral Detergent Fibres*

Une Solution Détergente Neutre (NDS) est utilisée pour cette étape qui permet de quantifier les solubles, c'est-à-dire les composés non-pariétaux (protéines, lipides, pectines…). Cette réaction est réalisée sur 1 g d'échantillon ($m_0$) et 50 mL de réactif mis au reflux dans un ballon pendant une heure. Le résidu de la réaction est lavé à l'eau bouillante puis rincé à l'acétone avant d'être séché à 103°C. Le résidu ($m_1$) correspond aux NDF (Neutral Detergent Fibres) c'est-à-dire à l'hémicellulose, la cellulose et la lignine ainsi qu'aux minéraux (($m_4$) qui seront quantifiés dans la partie I.1.e.

Les NDF sont calculées en utilisant l'équation suivante :

$$NDF\ (\%) = \frac{m_1 - m_4}{m_0} \times 100$$ *Équation 2*

### *I.1.c. Les ADF : Acid Detergent Fibres*

La seconde réaction, utilisant une solution détergente acide à base de CTAB, permet de solubiliser l'hémicellulose. Le résidu de la réaction NDS est incorporé dans un ballon est mis au reflux avec la solution ADS pendant 1 heure. Après réaction, le résidu est lavé à l'eau bouillante puis à l'acétone avant d'être séché à 103°C. Ce résidu ($m_2$) contient la cellulose, la lignine et les minéraux du végétal.

Les ADF sont calculées en utilisant l'équation suivante :

$$ADF\ (\%) = \frac{m_2 - m_4}{m_0} \times 100$$ *Équation 3*

### *I.1.d. L'ADL : Acid Detergent Lignin*

La troisième et dernière réaction consiste en la dissolution de la cellulose qui est un composé très peu soluble dans de nombreux solvants. Pour cela, de l'acide sulfurique concentré (72 %) est utilisé. 50 mL sont ajoutés au résidu séché de l'étape précédente pour une réaction de 4 heures à température ambiante. Le résidu est ensuite lavé à l'eau puis à l'acétone et séché à 103°C dans l'étuve avant d'être pesé ($m_3$). Ce résidu correspond à la lignine et aux minéraux.

L'ADL correspondant à la lignine est calculé avec l'équation suivante :

$$ADL\ (\%) = \frac{m_3 - m_4}{m_0} \times 100$$ *Équation 4*

### *I.1.e. Minéraux*

Les minéraux sont quantifiés suivant la Norme NF V 18101 [57]. L'échantillon ADL est calciné à 550°C pendant 3 heures. Les cendres sont ensuite refroidies et pesées ($m_4$).

### *I.1.f. Quantités lignocellulosiques*

Les résultats Van Soest peuvent être exprimés en termes de composés pariétaux. Les quantités d'hémicellulose, cellulose et lignine correspondent à la différence entre les valeurs obtenues pour les NDF, ADF et ADL.

La fraction soluble contient des monosaccharides, des gommes, des tannins, des protéines et des lipides (cire et graisse). La fraction NDF est principalement composée d'hémicellulose, de cellulose et de lignine, mais peut également contenir des tanins insolubles et des protéines insolubles dans un détergent neutre. Ces composés sont généralement en quantités négligeables. La fraction ADF est principalement composée de cellulose et de lignine, mais peut également contenir des tanins insolubles et des protéines insolubles à pH acide. De même, ce n'est pas seulement l'hémicellulose qui est solubilisée dans la solution détergente acide, mais aussi les tanins, les protéines et les lignines solubles à pH acide. D'après les travaux de la littérature [54], [58]–[60], ces quantités sont négligeables par rapport à la quantité d'hémicellulose dissoute. Dans l'étape de réaction de l'acide sulfurique, les protéines insolubles au pH acide sont dissoutes tandis que les tanins insolubles au pH acide se trouvent dans le résidu. Dans le cas où ces molécules seraient présentes dans la plante, celles-ci le seraient en très petites quantités [60].

Ainsi, les quantités des constituants sont calculées d'après les équations suivantes :

$$Solubles\ (\%) = 100 - eau\ (\%) - \ NDF\ (\%) \qquad \textit{Équation 5}$$

$$Hémicellulose\ (\%) = NDF\ (\%) - \ ADF\ (\%) \qquad \textit{Équation 6}$$

$$Cellulose\ (\%) = \ ADF\ (\%) - \ ADL\ (\%) \qquad \textit{Équation 7}$$

$$Lignine\ (\%) = \ ADL\ (\%) \qquad \textit{Équation 8}$$

## **I.2.** Méthode de TAPPI

La méthode de l'Association Technique de l'Industrie de Pâte à Papier est une méthode utilisée dans l'industrie du bois. Cette technique est employée principalement pour isoler la cellulose dans le but de fabriquer des produits cellulosiques mais permet également de quantifier les autres constituants.

### ***I.2.a.*** *Les extractibles*

La première étape consiste à enlever les extractibles des farines végétales selon la Norme D 1105-96 de l'American Society for Testing and Materials (ASTM) [61]. L'extraction se fait en trois fois, la première avec un mélange toluène-éthanol (2 :1), la deuxième avec uniquement de l'éthanol et la dernière avec de l'eau déminéralisée.

Les deux premières extractions (avec solvants organiques) sont réalisées avec un montage Soxhlet (Figure 27). Les vapeurs du solvant chauffé dans le ballon (boiling flask) se dirigent vers le réfrigérant (condenser) et sont condensées. Le solvant à l'état liquide va alors immerger la cartouche en cellulose contenant l'échantillon (farine végétale) dans le Soxhlet jusqu'à arriver au même niveau que le haut du siphon (siphon arm). La vidange du Soxhlet est alors initiée par le siphon ce qui permet au mélange solvant-extractibles d'être envoyé dans le ballon. Seules les vapeurs de solvants retournent vers le réfrigérant, celui-ci n'est donc jamais saturé en molécules extraites. Cette méthode permet une économie non négligeable de solvant car le cycle se répète indéfiniment. Chaque extraction dure quatre heures à raison de quatre vidanges par heure.

La dernière extraction en milieu aqueux doit se faire selon la Norme en trois fois dans un litre d'eau déminéralisée bouillante. Cette étape est réalisée dans le cadre de la thèse de la même manière que les extractions organiques. Cela permet de minimiser la perte de masse liée à la filtration des échantillons entre chaque extraction aqueuse. De plus, l'utilisation du montage Soxhlet permet de

vérifier qu'il ne reste plus d'extractibles dans l'échantillon, le solvant immergeant la cartouche devenant translucide.

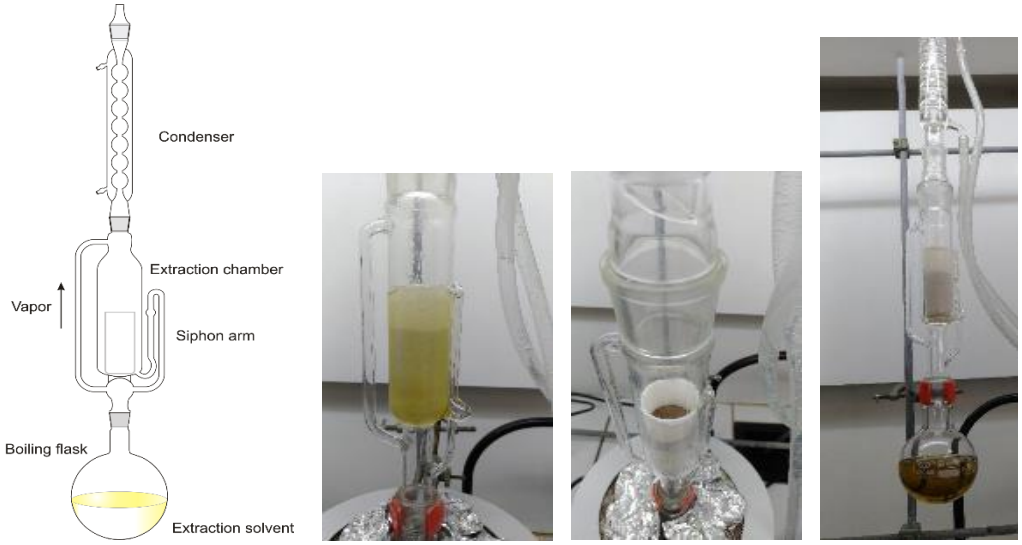



*Figure 27 Montage Soxhlet*

*https://glossary.periodni.com/glossary.php?en=Soxhlet+extractor*

Les farines sont étuvées et entre 6 et 9 g d'échantillon ($m_0$) sont insérés dans la cartouche en cellulose. L'échantillon est séché à l'air entre chaque extraction ; à la fin de la dernière il est séché en étuve est pesé ($m_1$) pour le calcul des extractibles selon l'équation :

$$Extractibles\ (\%) = \frac{m_0 - m_1}{m_0} \times 100$$ *Équation 9*

### *I.2.b. La lignine*

La teneur en lignine est déterminée d'après la méthode de TAPPI T222 om-88 [62][55]. La lignine identifiée est la « lignine Klason », composant insoluble dans une solution d'acide sulfurique 72 %. Il s'agit du même réactif que pour la méthode de Van Soest. 150 mg d'échantillon sans extractibles sont traités avec 3 mL d'acide pendant 1 heure dans un bain-marie à 30°C. Tous les hydrates de carbones sont solubilisés. L'échantillon est ensuite dilué avec 84 mL d'eau déminéralisée puis porté à ébullition pendant 45 minutes. L'échantillon est ensuite filtré et lavé. Le résidu est séché à l'étuve et représente l'AIL (Acid-Insoluble Lignin).

$$m_{AIL} = W_{Residue}$$ *Équation 10*

Une faible partie de la lignine est soluble dans l'acide sulfurique concentré, il s'agit de l'ASL (Acid-Soluble Lignin) qui est quantifiée par spectrométrie UV selon la méthode « Chemical analysis and testing task laboratory analytical procedure, LAP-004 » [63]. L'absorbance des solutions est mesurée à une longueur d'onde de 205 nm (Figure 28).

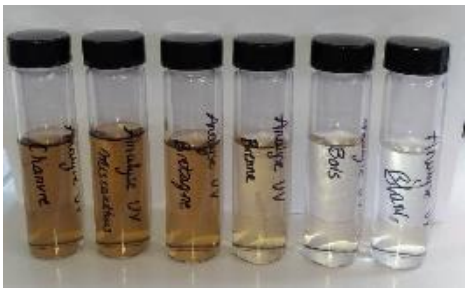



*Figure 28 Échantillons pour l'analyse au spectromètre UV*

La quantité d'ASL est calculée selon l'équation :

$$m_{ASL} = C_0 \times V \qquad \textit{Équation 11}$$

Avec

Loi de Beer-Lambert $\boxed{C_0 = \frac{A}{l \times \varepsilon} \times df}$

$C_0$ : *concentration en ASL dans le tube échantillon*

$A$ : *Absorbance de l'échantillon* à 205 $nm$

$\varepsilon$ : *Coefficient d'extinction de la lignine*, 110 $L/g.cm$ [63]

$l$ : *Longueur de cuve pour l'analyse*, 1 $cm$

$df$ : *Facteur de dilution*

$V$ : *Volume du filtrat*

La teneur en lignine dans les farines végétales est donc calculée comme suit :

$$\%lignine = \frac{m_{AIL} + m_{ASL}}{m_{SE}} \times (100 - \%\, extractibles) \qquad \textit{Équation 12}$$

Avec

$m_{SE}$: *masse de l'échantillon Sans Extractibles (SE)*

Il existe une réaction inverse utilisant un réactif qui dissout la lignine, il s'agit d'un processus de délignification. Cette réaction se fait avec une solution de chlorite de sodium et permet d'obtenir la quantité d'holocelluloses, c'est-à-dire de cellulose et d'hémicellulose [64]. Pour cela, 200 mg de chlorite de sodium sont ajoutés à 500 mg d'échantillon sans extractibles et 30 mL d'eau déminéralisée. Un ajout de 0,04 mL d'une solution d'acide peracétique 10 % est réalisé pour acidifier le milieu réactionnel qui est chauffé au bain-marie à 85°C pendant 30 min. Passé ce temps d'incubation, 200 mg de chlorite de sodium et 0,04 mL d'acide peracétique 10 % sont ajoutés au milieu réactionnel toujours chauffé au bain-marie. Cette étape est répétée 8 fois avant que l'échantillon soit filtré, lavé avec de l'eau bouillante et séché dans une étuve. La masse récoltée après réaction correspond à la holocellulose ($m_{HO}$).

La teneur en lignine est calculée selon la formule suivante :

$$\%lignine' = \frac{m_{SE} - m_{HO}}{m_{SE}} \times (100 - \%extractibles)$$ *Équation 13*

### *I.2.c. La cellulose*

La teneur en cellulose est déterminée d'après la méthode : KS M 7044 « Testing method for alpha, beta and gamma cellulose in pulp » [65]. La réaction est réalisée à partir du résidu obtenu après la délignification, c'est-à-dire l'holocellulose. 3 mL d'une solution d'hydroxyde de sodium (NaOH) 17,5 % sont ajoutés à 300 mg d'holocellulose ($m_{HO}$) et mis au bain-marie à 20°C pendant une heure après humidification totale des particules. Le résidu de réaction est ensuite filtré et lavé à l'eau déminéralisée et à l'acide acétique 10 % pour neutraliser l'échantillon puis séché en étuve. Ce résidu correspond à la cellulose ($m_C$), l'hémicellulose étant le composé dissout dans cette réaction.

Il est à noter que le temps de réaction est important dans cette étape ; ces deux polymères naturels ayant des similarités dans leur composition, un temps de réaction trop important avec la soude peut engendrer une dégradation de la cellulose et donc maximiser la teneur en hémicellulose (minimiser la teneur en cellulose).

Les quantités de cellulose et hémicellulose sont calculées en utilisant les équations suivantes :

$$\%cellulose = \frac{m_C}{m_{HO}} \times (100 - \%extractibles - \%lignine)$$ *Équation 14*

$$\%hémicellulose = \frac{m_{HO} - m_C}{m_{HO}} \times (100 - \%extractibles - \%lignine)$$

### **I.3.** Comparaison des méthodes

Afin de mieux comprendre les différences entre les deux méthodes de dosages des constituants présentées précédemment, la Figure 29 récapitule les différentes étapes de fractionnement.

La première étape pour les deux méthodes permet d'enlever les extractibles (ou solubles pour Van Soest). Les techniques étant différentes, elles permettent cependant d'arriver au même produit, à savoir un échantillon sans les constituants cellulaires.

Les deux méthodes diffèrent dès la deuxième étape : Van Soest élimine l'hémicellulose et une partie des minéraux solubles à pH acide (quantité négligeable) tandis que TAPPI dissout la lignine de deux manières différentes, soit en éliminant cette dernière avec un traitement au chlorite de sodium soit en la conservant seule avec une réaction à l'acide sulfurique concentré.

La troisième étape de Van Soest correspond à la deuxième de TAPPI cependant la lignine soluble à pH acide est négligée dans le calcul. Nous verrons dans la partie I.5 qu'il est concevable de négliger cette quantité pour le calcul de la lignine. La troisième et dernière étape de la méthode de TAPPI consiste à séparer l'hémicellulose de la cellulose par un traitement à la soude.

Une analyse critique de ces méthodes amène plusieurs remarques :

Il est à noter que la teneur en minéraux insolubles est soustraite lors du calcul des NDF, ADF et ADL, ce qui n'est pas le cas dans la méthode de TAPPI ; les minéraux insolubles se retrouvent donc dans le résidu à chaque étape.

Lors de la réaction avec l'acide sulfurique concentré, le résidu comporte la lignine et les minéraux insolubles ; cependant dans le calcul de la lignine totale, la lignine soluble est également quantifiée (méthode spectrométrique).

Le traitement au chlorite de sodium élimine les deux formes de lignine mais également les minéraux solubles qui seront négligés dans le calcul.

La séparation de l'hémicellulose et de la cellulose semble assez complexe dans la méthode de TAPPI. En effet, la soude peut, avec un contact prolongé, commencer à dégrader la cellulose.

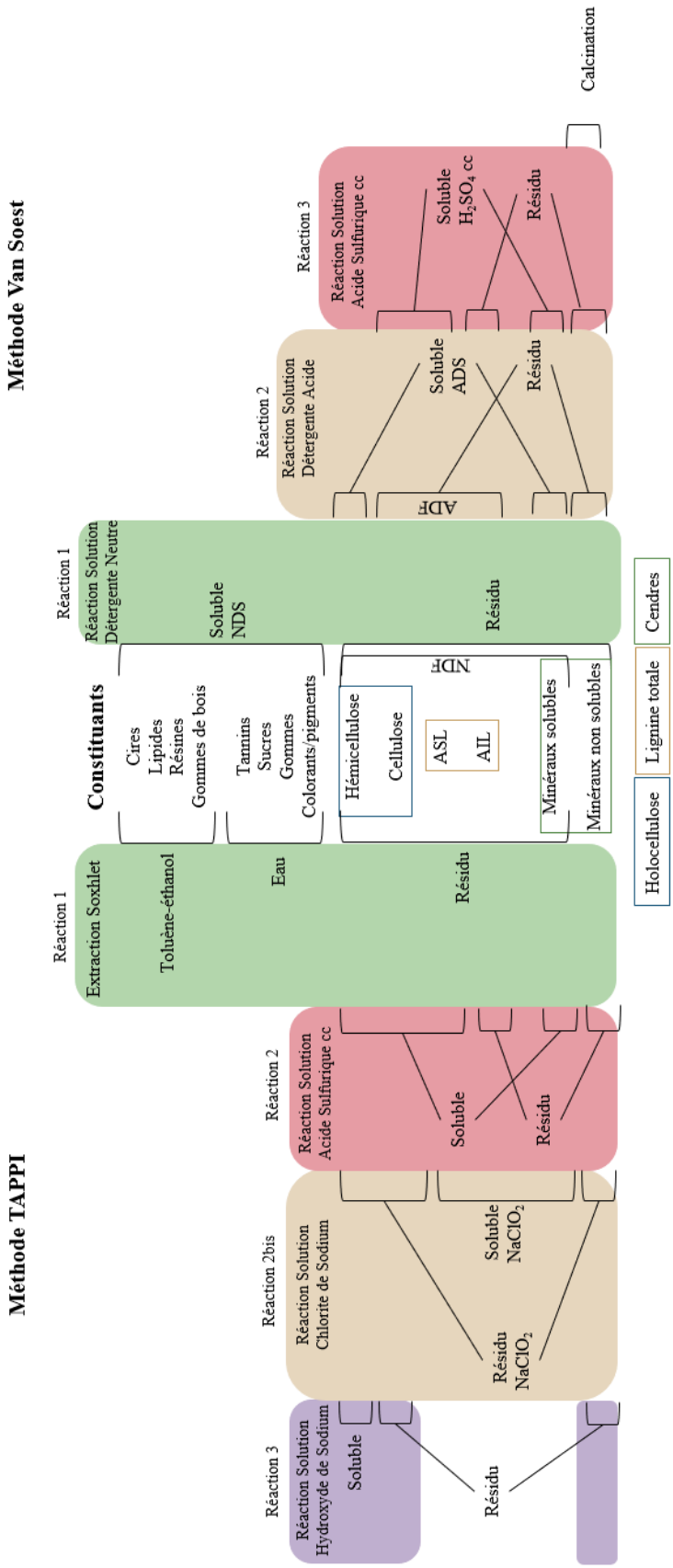



*Figure 29 Diagramme de comparaison des méthodes de dosage des constituants*

## **I.4.** Analyses INRA

Parallèlement à ces analyses effectuées à l'IRDL et par le LDA56[11], les échantillons ont été confiés à l'INRA de Nantes pour évaluer les teneurs en monosaccharides et en lignine. La teneur en glucose, évaluée par Chromatographie en Phase Gazeuse (CPG) après hydrolyse, sera comparée à la teneur en cellulose déterminée par les méthodes précédemment décrites.

La teneur en lignine est déterminée par une méthode spectrophotométrique utilisant le Bromure d'Acétyle.

## **I.5.** Résultats

Dans le but de réaliser une comparaison des valeurs obtenues avec les deux méthodes, seuls le bois, le miscanthus, la chènevotte et les deux roseaux de Brenne et Bretagne ont été analysés à l'IRDL.

Les résultats obtenus avec la méthode Van Soest par le LDA56 et au laboratoire IRDL sont également comparés ainsi que les méthodes d'évaluation de la teneur en lignine.

Les échantillons de roseaux pour l'étude en écoconstruction ont été micronisés au laboratoire puis dosés en suivant les normes de la méthode de Van Soest par le LDA56.

### ***I.5.a.*** *Comparaison Van Soest et TAPPI*

L'ordre de dissolution ayant un impact sur les teneurs obtenues, un rappel de cet ordre est présenté dans le Tableau 8. Les résultats sont présentés dans les Figure 30 à Figure 33 ; il s'agit des fractions massiques par rapport à l'échantillon sec.

| | **1** | **2** | **3** | **4** |
|---|---|---|---|---|
| **VAN SOEST** | Solubles/Extractibles | Hémicellulose | Cellulose | Lignine |
| **TAPPI** | Solubles/Extractibles | Lignine | Hémicellulose | Cellulose |

*Tableau 8 Ordre du dosage pour les méthodes de Van Soest et TAPPI*

[11] Laboratoire Départemental d'Analyses du Morbihan

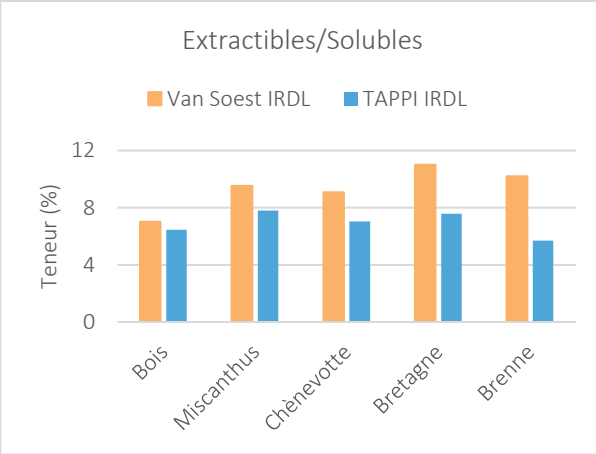



*Figure 30 Extractibles/solubles - Comparaison des méthodes Van Soest et TAPPI*

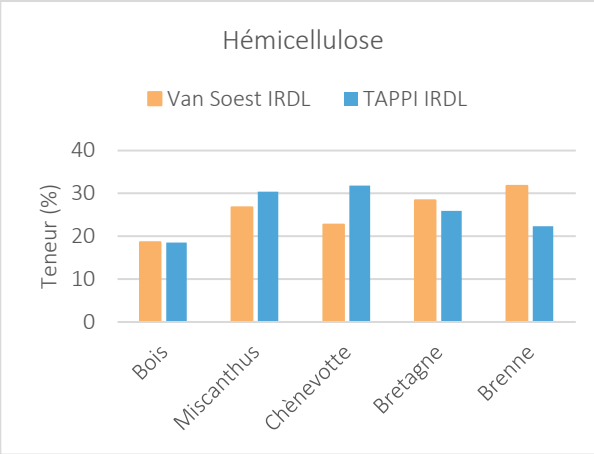



*Figure 31 Hémicellulose - Comparaison des méthodes Van Soest et TAPPI*

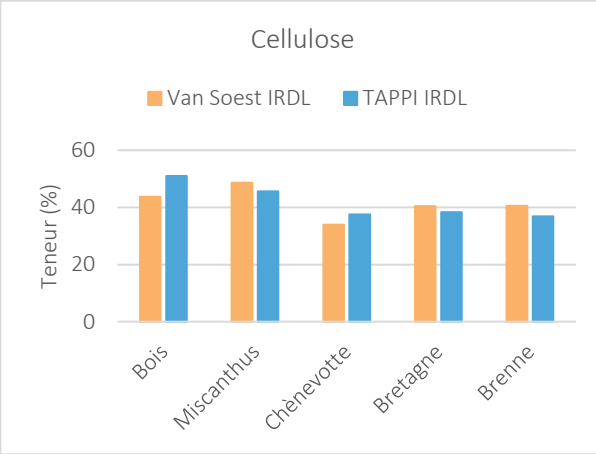



*Figure 32 Cellulose - Comparaison des méthodes Van Soest et TAPPI*

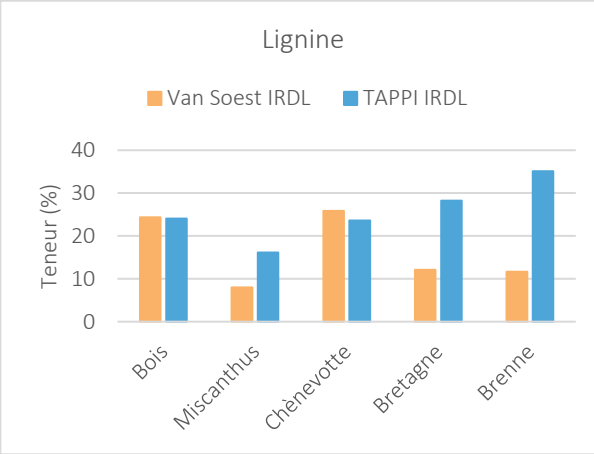



*Figure 33 Lignine- Comparaison des méthodes Van Soest et TAPPI*

Nous pouvons observer que la teneur en extractibles ou solubles diffère d'une méthode à l'autre ; la solution détergente neutre (NDS) semble attaquer plus fortement les échantillons car la teneur en solubles est plus importante. La première étape de TAPPI, avec le montage Soxhlet et les solvants organiques (toluène et éthanol) et aqueux, ne permet pas une dissolution totale des extractibles d'où une sous-estimation. De plus, l'extraction se fait en trois fois, c'est-à-dire avec l'utilisation de trois cartouches en cellulose, le transfert des échantillons pouvant engendrer une perte de matière.

La quantité de lignine pour la méthode de TAPPI a été quantifiée en utilisant la réaction à l'acide sulfurique concentré. Le réactif est donc le même pour les deux méthodes mais le protocole diffère (quantité de réactif, solvant…) ainsi que l'ordre de dissolution. En effet, pour Van Soest la lignine est quantifiée en dernier, en éliminant la cellulose, alors que pour TAPPI elle est quantifiée en second en éliminant l'hémicellulose et la cellulose (Tableau 8). La lignine soluble (ASL) n'est pas quantifiée dans Van Soest ; il est donc observé une teneur plus faible dans les résultats pour le bois et la chènevotte (Figure 33). La teneur est deux fois plus importante pour les roseaux (miscanthus et *Phragmites*) dans

la méthode de TAPPI. Cette différence peut être expliquée par le fait que les extractibles ne sont pas totalement extraits dans l'étape au Soxhlet. La méthode de TAPPI est donc efficace pour les extractibles du bois et de la chènevotte mais n'est pas complète pour ceux des roseaux. En effet, il s'agit d'une méthode de l'industrie papetière et donc les produits analysés sont issus du bois ; l'expérience nous montre que cette méthode, ou du moins l'étape d'extraction des solubles, n'est pas applicable aux roseaux, miscanthus comme phragmites.

Par la suite, nous nous intéressons à la comparaison entre l'attaque à l'acide sulfurique et l'attaque au chlorite de sodium pour la quantification de la lignine.

Nous pouvons constater que les teneurs en hémicellulose et cellulose sont relativement similaires pour les deux méthodes.

### *I.5.b. Comparaison des méthodes de quantification de la lignine*

**Méthode de TAPPI**

Une comparaison est faite entre les deux méthodes de TAPPI, à savoir la dissolution de la lignine au chlorite de sodium et la dissolution de tous les composés sauf la lignine par l'acide sulfurique (méthode de Klason).

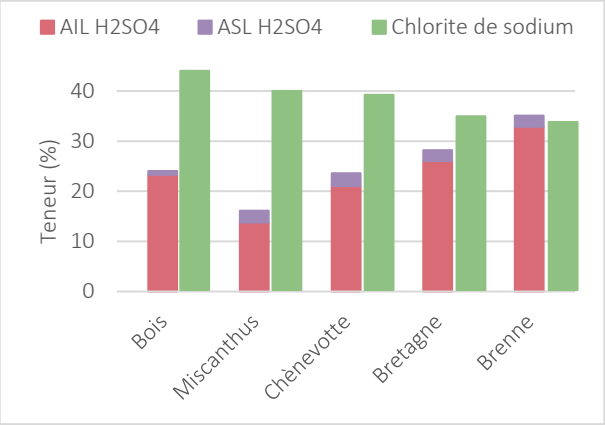



*Figure 34 Diagramme de comparaison des méthodes de dosage de la lignine par la TAPPI*

La différence de résultats est très marquée pour le bois, le miscanthus et la chènevotte (Figure 34). En effet la teneur en lignine déterminée avec le chlorite de sodium comme solvant est beaucoup plus importante ; cette différence peut être expliquée par une plus forte attaque de la solution de chlorite de sodium. La réaction permettant d'obtenir l'holocellulose entraine l'élimination de tous les autres composants. La méthode utilisant l'acide sulfurique correspond à l'inverse de la dissolution au chlorite de sodium ; celle-ci permet d'éliminer tous les constituants sauf le composé à doser (la lignine). La

réaction est donc plus fiable et la teneur en lignine est calculée par rapport au résidu de la réaction et non par rapport à ce qui a été dissous.

**Méthode de dosage de la lignine**

Nous pouvons également comparer la méthode utilisant l'acide sulfurique concentré et la méthode de l'INRA de Nantes utilisant le Bromure d'acétyle. Les résultats sont présentés en Figure 35.

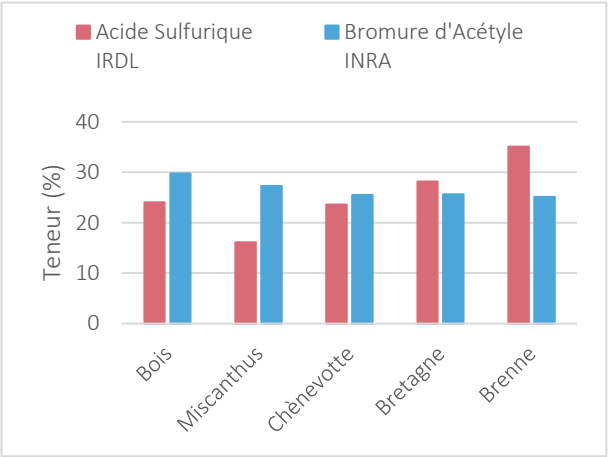



*Figure 35 Diagramme de comparaison des méthodes de dosage de la lignine à l'acide sulfurique et au bromure d'acétyle*

La teneur calculée en lignine est plus faible pour le bois et le miscanthus lorsque la méthode à l'acide sulfurique est utilisée, alors que l'inverse est observé pour l'échantillon de phragmites de la Brenne où la teneur est plus faible avec la méthode au bromure d'acétyle. Les résultats obtenus pour le roseau de Bretagne et la chènevotte de chanvre semblent en accord pour les deux méthodes.

Les teneurs en lignine déterminées par la méthode au bromure d'acétyle sont comprises entre 25 et 30 % alors que celles obtenues avec la méthode à l'acide sulfurique concentré présentent une plus grande dispersion (entre 16 et 35 %). Ces différences peuvent s'expliquer par le fait qu'il existe autant de lignines que d'espèces végétales. En effet, comme évoqué dans le chapitre 1, « lignine » est le terme générique regroupant un ensemble de substances à haut poids moléculaire et non glucidique. Il n'existe à ce jour aucune méthode permettant de déterminer la teneur réelle en lignines sachant la diversité moléculaire que ce terme comporte. Il est donc nécessaire de préciser la méthode utilisée lorsque qu'une composition chimique est exprimée. Pour le choix de la méthode, celle déterminant la lignine de Klason est répétable mais demande pour cela une quantité plus importante d'échantillon et un temps de manipulation plus grand tandis que la méthode au bromure d'acétyle est rapide et ne demande que très peu d'échantillon ; cependant les résultats peuvent être plus variables [66].

### *I.5.c. Comparaison de Van Soest LDA56 et IRDL*

Les mêmes échantillons ont été analysés avec la méthode de Van Soest à la fois au laboratoire (IRDL) et par le LDA56. Les résultats pour NDF, ADF et ADL sont donnés en Figure 36, Figure 37 et Figure 38 respectivement.

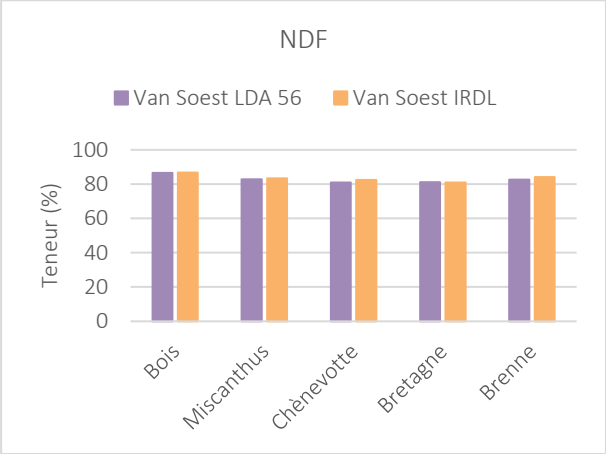



*Figure 36 NDF – Comparaison Van Soest IRDL et LDA56*

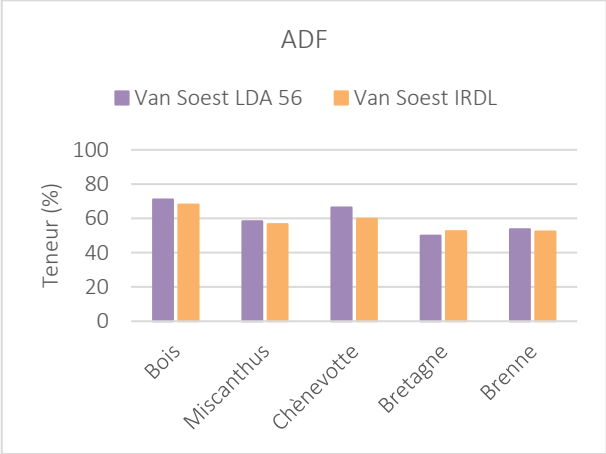



*Figure 37 ADF - Comparaison Van Soest IRDL et LDA56*

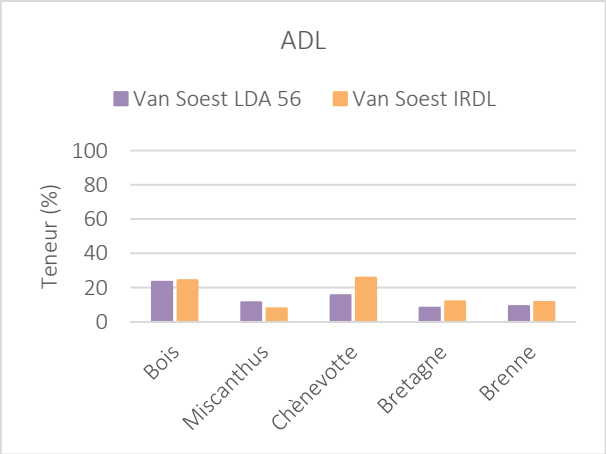



*Figure 38 ADL - Comparaison Van Soest IRDL et LDA56*

Selon la Norme, l'analyse des échantillons pour chaque teneur (extractibles/solubles, hémicellulose, cellulose et lignine) n'est réalisée qu'une seule fois, il n'y a donc pas de valeurs d'incertitudes. Cependant, au vu des résultats et malgré une différence minime entre les deux laboratoires, nous pouvons considérer les résultats des deux entités.

### *I.5.d. Résultats pour l'ensemble des échantillons de roseaux*

Les analyses Van Soest de l'ensemble des échantillons de roseaux, farines et granulats, ont été réalisées par le LDA56. Pour faciliter l'extraction des constituants les granulats ont été broyés de la même manière que les échantillons utilisés dans le volet plasturgie, c'est-à-dire en farine 0-500 µm. Les résultats du taux de matière sèche, NDF, ADF et ADL sont présentés en Figure 39 à Figure 42. L'échelle a été adaptée pour chaque graphe afin de mieux observer les différences entre chaque échantillon.

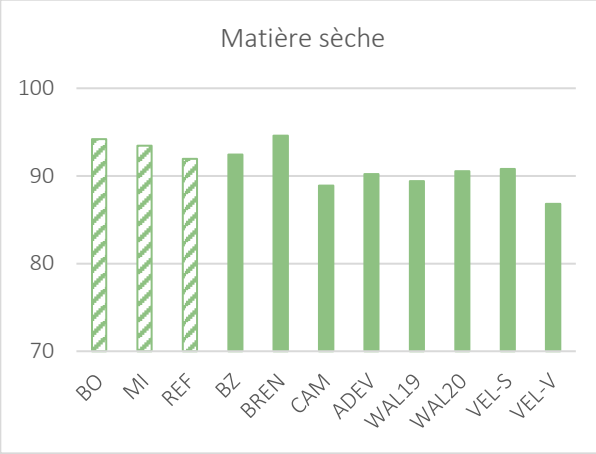



*Figure 39 Matière sèche des échantillons de roseaux*

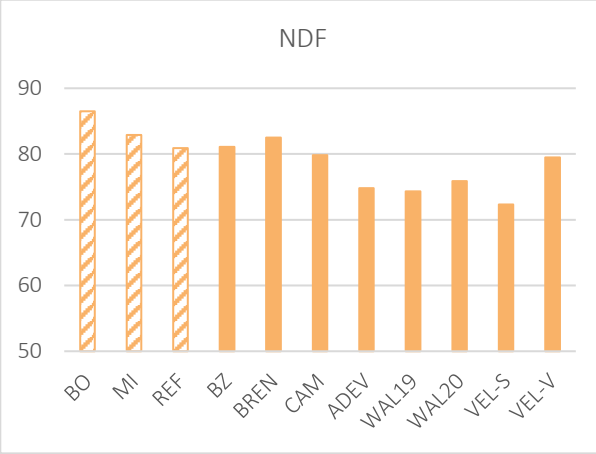



*Figure 40 Résultats NDF pour l'ensemble des échantillons*

*Figure 41 Résultats ADF pour l'ensemble des échantillons*

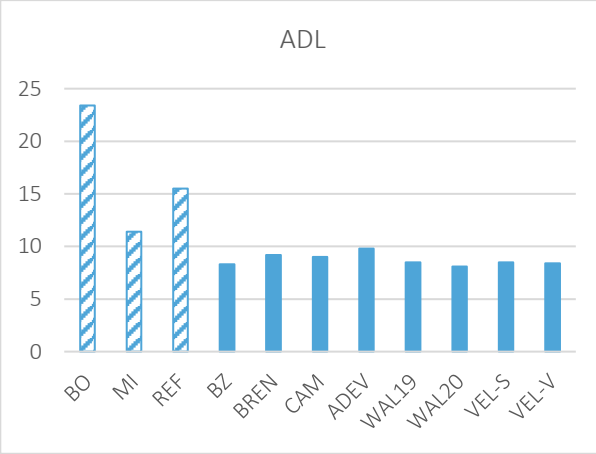



*Figure 42 Résultats ADL pour l'ensemble des échantillons*

Nous pouvons observer un taux d'humidité assez comparable et proche de 10 % pour les échantillons CAM, ADEV, WAL19, WAL20 et VEL-S. Un taux d'humidité inférieur est observé pour les roseaux de Brenne et Bretagne (5,4 et 7,6 % respectivement) et supérieur pour le roseau de Velving vert avec 13,2 %. Cette dernière valeur peut être expliquée par le fait que le roseau coupé à l'état vert

a roui, lui permettant ainsi de capter plus facilement l'humidité grâce à des porosités plus importantes dues à ce rouissage.

Les résultats sont assez dispersés pour les fibres NDF ; une plus faible quantité de NDF se traduit par une plus grande quantité de solubles extraits lors de la réaction avec la solution NDS. Ainsi, les roseaux ADEV, WAL19, WAL20 et VEL-S sont les échantillons comportant le plus de solubles. On retrouve ensuite les roseaux de Brenne, Bretagne et Camargue. Cette différence vient probablement de la période de récolte ; même si tous ces échantillons ont été coupés en hiver, la quantité de solubles varie pendant cette période (de décembre à mars). La différence peut également provenir de la qualité du sol dans lequel évolue le roseau.

L'échantillon VEL-V12 possède le moins de solubles. Ce résultat est en accord avec le fait qu'il ait roui ; en effet, lors du rouissage les solubles sont digérés par des enzymes et donc en plus faible quantité dans le roseau vert laissé sur le lieu de fauchage pendant cinq mois.

Les échantillons sont composés de 43 à 53 % de fibres ADF. En faisant la différence entre les NDF et les ADF, nous obtenons la quantité d'hémicellulose. Les résultats sont très comparables avec un taux d'hémicellulose proche de 30 % pour l'ensemble des échantillons excepté pour WAL19 dont la valeur est de seulement 23 %.

La dernière réaction donne le taux d'ADL c'est-à-dire la lignine directement. Les valeurs sont ici également assez similaires et comprises entre 8 et 10 %.

Pour conclure sur ces analyses Van Soest , nous pouvons observer que la distinction entre les échantillons de roseaux se fera principalement sur les teneurs en solubles ou extractibles. Dans la suite du chapitre, nous tenterons d'établir un lien entre la composition chimique et les propriétés liées à l'absorption d'eau des granulats.

## II. COMPOSITION CHIMIQUE : TAUX DE SILICIUM ET SODIUM

### II.1. Teneur en Silicium (Si)

#### *II.1.a. Méthode*

Tous les échantillons utilisés ont été analysés par le LDA56 pour doser les taux de Silicium (Si) et de Sodium (Na).

Il a été exposé dans le Chapitre 1 que le silicium pouvait avoir un lien avec certaines propriétés du roseau Phragmites comme la résistance au développement de champignons lors de la croissance et au

cours de la vie de la plante [67]–[69] et donc potentiellement expliquer une certaine hydrophobie du roseau commun.

Le silicium est dosé par spectroscopie d'émission atomique à plasma à Couplage Inductif (ICP-OES) suivant la Norme NF EN ISO 11885.

### *II.1.b. Résultats et discussion*

Les résultats obtenus pour les différents roseaux ainsi que pour les références sont présentés en Figure 43 ; les teneurs sont données en pourcentage massique par rapport à l'échantillon sec.

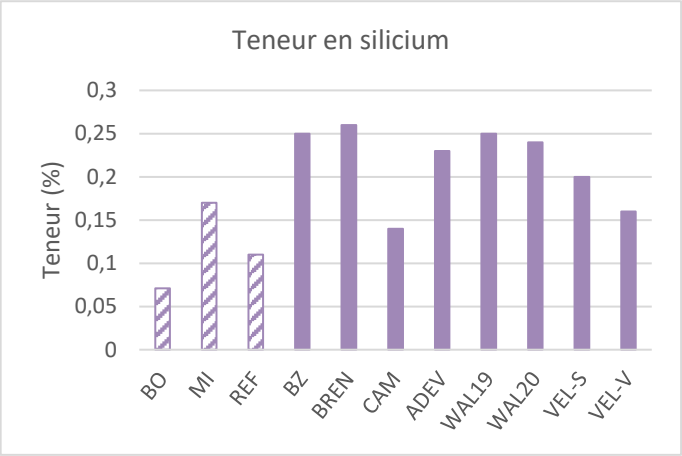



*Figure 43 Taux de Silicium dans les échantillons de roseaux et les références*

Les roseaux (phragmites et miscanthus) possèdent plus de silicium que le bois et la chènevotte de chanvre avec des teneurs supérieures à 0,1 %. Les valeurs atteignent 0,25 % pour les roseaux de Bretagne, Brenne et Waldhouse2019.

Les plantes absorbent le silicium sous la forme soluble d'acide silicique ($Si(OH)_4$) dans le sol. Une fois absorbé, le silicium est transporté vers les tissus aériens de la plante et polymérisé en silice amorphe ($SiO_2$) ; cette forme ne peut alors plus circuler dans la plante car insoluble ; il s'agit donc d'un processus irréversible [67], [70].

Le silicium a un double rôle chez les plantes ; il est tout d'abord utilisé comme renfort, au même titre que la lignine [67], [71]. Pour les roseaux possédant de longues tiges de faible diamètre le silicium renforce celles-ci et leur permet de résister aux intempéries. Ce silicium est visible sur des clichés MEB-EDS d'une tige de roseau où les atomes sont cartographiés (Figure 44).

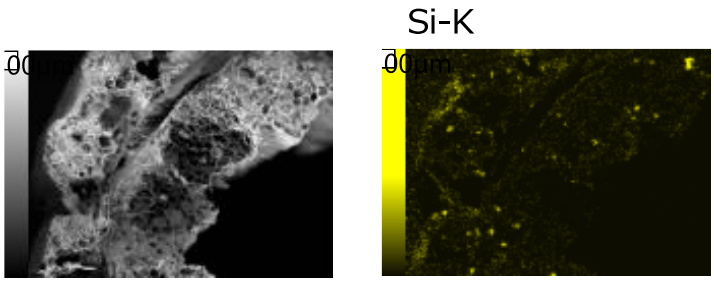



*Figure 44 Cartographie du silicium au MEB-EDS d'une tige de phragmites d'hiver*

Le silicium est également connu et étudié depuis les années 1990 pour son rôle dans la défense des plantes aquatiques contre l'invasion de champignons ou de certaines maladies en diminuant le stress des celles-ci [67]. Cependant, les mécanismes provoquant ces phénomènes demeurent inconnus.

## II.2. Teneur en Sodium (Na)

### *II.2.a. Méthode*

La méthode utilisée pour doser le sodium dans les farines et granulats est identique à celle permettant de déterminer la quantité de silicium. Le sodium est dosé par ICP-OES suivant la Norme NF EN ISO 11885. Les échantillons ont été confiés au LDA56 pour effectuer ce dosage.

### *II.2.b. Résultats et discussion*

La teneur en sodium, en pourcentage massique par rapport à l'échantillon sec, des différents échantillons est donnée en Figure 45.

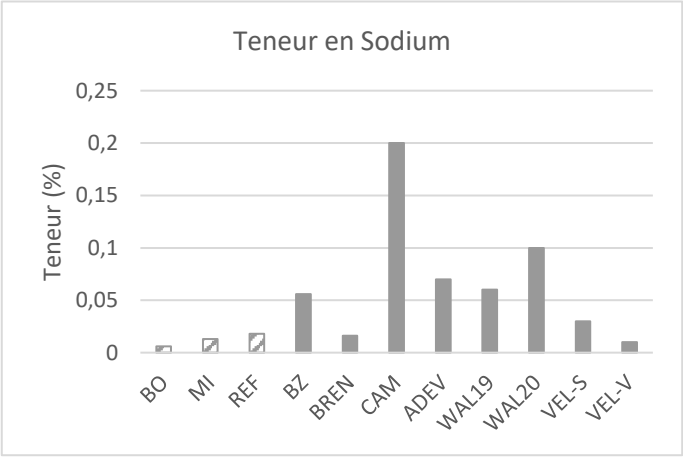



*Figure 45 Taux de Sodium dans les échantillons de roseaux et les références*

Cette donnée nous renseigne sur l'environnement dans lequel a évolué la plante et notamment si le milieu est salin ou non dans le cas du phragmites. En effet, la quantité de sodium est directement liée au sel (NaCl) présent dans le milieu de croissance. Au-delà de 0,2 % le roseau commun s'est développé dans des eaux salines ; c'est le cas du phragmites provenant de Camargue. Entre 0,1 et 0,2 % le phragmites a poussé dans des eaux saumâtres : on retrouve le roseau de Waldhouse récolté en 2019 ; le même roseau récolté l'année précédente possède une teneur plus faible en sodium. Le reste de l'échantillonnage a évolué dans des eaux douces.

La teneur en sodium est également un indicateur de la durabilité du roseau. En effet, plus le taux de sodium est élevé (forte teneur en sel) et plus l'eau sera captée par le roseau une fois coupé ; celui-ci sera donc plus sujet à la dégradation en milieu humide [72].

# PARTIE 3 : CARACTÉRISATION GRANULOMÉTRIQUE ET COMPORTEMENT À L'EAU

## I. DISTRIBUTION GRANULOMÉTRIQUE

La caractérisation en taille des granulats et des farines se fait par l'analyse de la morphologie des particules, la détermination des diamètres et longueurs permettant le calcul du rapport d'aspect défini par L/D et la mesure de la densité vrac des empilements [73]. La longueur et le diamètre (ou largeur) des particules peuvent être mesurés par microscopie optique ou scanner puis traités par analyse d'images avec le logiciel ImageJ®.

### **I.1.** Évaluation de la granulométrie

#### ***I.1.a.*** *Prises de clichés*

Pour pouvoir réaliser la courbe de distribution granulométrique de chaque farine, il faut réaliser des clichés avec une loupe trinoculaire équipée d'une caméra. Le grossissement utilisé pour observer les plus grosses particules ne convenant pas pour les plus petites, les farines sont donc préalablement tamisées pendant 40 minutes sur des tamis de différentes ouvertures carrées de côté 630, 400, 315, 250, 100 et 50 µm. La masse relevée sur chaque tamis donne la fraction massique et donc la courbe de farine passante en fonction de la taille des particules. Cette taille correspond à la largeur des particules qui passent dans la diagonale du tamis, c'est-à-dire le côté du carré (ouverture du tamis) multiplié par √2. Des clichés de 100 particules par tamis sont réalisés puis traités avec le logiciel ImageJ®.

Les clichés pour l'analyse des granulats de roseaux et chènevotte sont réalisés avec un scanner Canoscan lide 110 Canon. Pour un tracé des courbes de répartition granulométrique le plus représentatif possible, environ 1000 particules sont analysées.

#### *I.1.b. Analyse par ImageJ®*

Le même traitement est appliqué pour les particules de farine et pour les granulats. Les images sont travaillées pour obtenir des particules noires sur fond blanc avant d'être analysées par un plugin « Fit Ellipse » permettant de déterminer les contours des particules suivant une ellipse. Les paramètres de chaque ellipse donneront la longueur (L) et la largeur (l) de chaque particule (Figure 46).

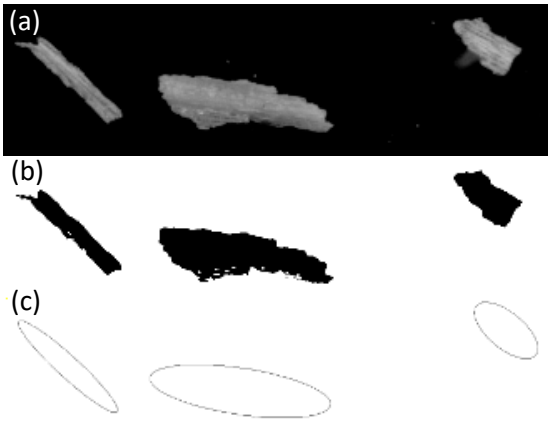



*Figure 46 Traitement d'image avec le logiciel ImageJ®. (a) Image originale, (b) Contraste particules noires sur fond blanc, (c) Analyse des particules sous la forme d'ellipses*

Le volume des particules est ensuite calculé en faisant l'hypothèse que les particules sont des parallélépipèdes rectangles, c'est-à-dire que la largeur est égale à l'épaisseur de la particule. Pour les farines, le volume de chaque particule ($L \times l^2$) est ensuite pondéré par le pourcentage massique de la fraction (tamis) dans laquelle elle se trouve. Il est ensuite possible de tracer la fraction volumique cumulée en fonction de la longueur ou de la largeur des particules pour chaque farine.

### **I.2.** Répartition granulométrique des farines

Les courbes granulométriques en largeur et longueur sont présentées en Figure 47 et Figure 48.

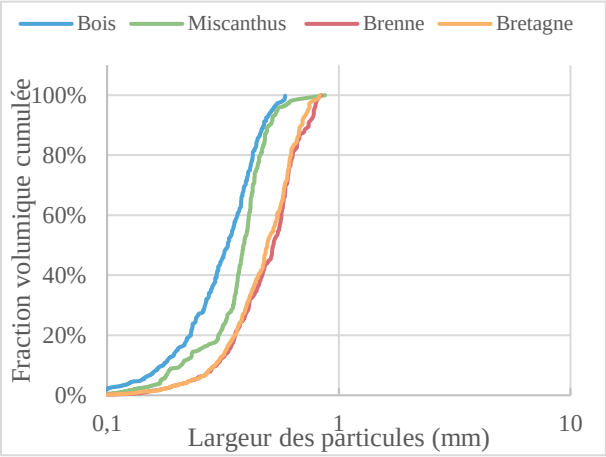



*Figure 47 Distribution de la largueur des particules*

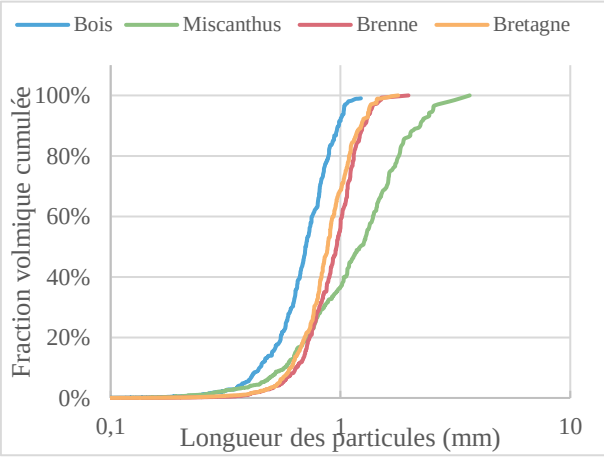



*Figure 48 Distribution de la longueur des particules*

Les distributions de largeur des particules sont similaires pour les deux roseaux avec une valeur moyenne (à 50 % de fraction volumique cumulée) de 500 µm (Figure 47) tandis que les valeurs moyennes de la largeur des particules de bois et de miscanthus sont situées à 330 et 390 µm respectivement. La longueur moyenne des particules varie entre 700 et 1200 µm (Figure 48), le bois possède les particules les plus courtes ; viennent ensuite les phragmites puis le miscanthus.

Une autre donnée est également importante ; il s'agit du rapport d'aspect défini par le rapport entre la longueur et la largeur de particules, pondéré par les fractions récoltées sur chaque tamis (Figure 49).

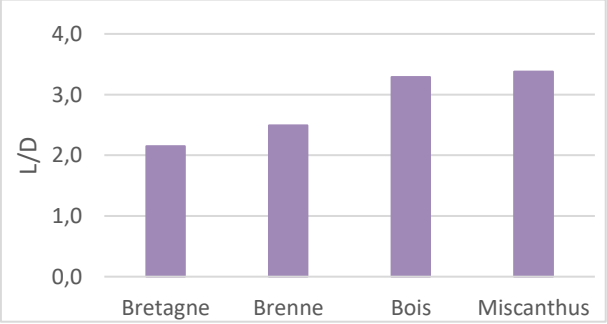



*Figure 49 Rapport d'aspect des farines végétales*

Ce rapport d'aspect se situe aux alentours de 3 pour les farines de miscanthus, qui possède le plus grand rapport avec 3,38 ; le bois est à 3,29. Les particules des roseaux de Bretagne et Brenne étant plus larges, elles présentent un rapport plus proche de 2. Le rapport d'aspect est un des nombreux critères utilisés pour déterminer les propriétés de renfort d'une charge. Plus le rapport d'aspect est grand et plus la charge renforce le composite [74], [75].

## **I.3.** Répartition granulométrique des granulats

La récolte du roseau est effectuée par ensileuse (cf. Chapitre 1) ; les tiges sont soit laissées entières soit pré-broyées. L'étape suivante consiste à broyer ces tiges ou granulats pré-broyés dans un broyeur à couteaux muni d'un tamis d'une taille choisie.

La chènevotte est obtenue après rouissage de la tige de chanvre (2 à 3 semaines) permettant de séparer les fibres du corps de celle-ci. L'ensemble de la tige est broyé avec un broyeur à couteaux ou à marteaux et ensuite passé sur une chaine de tamis vibrants pour distinguer les fibres du reste de la tige et obtenir différentes granulométrie de chènevotte.

Les distributions granulométriques de chaque échantillon selon la largeur et la longueur des granulats sont présentées en Figure 50 et Figure 51 respectivement. Pour compléter ces courbes, deux diagrammes en Figure 52 et Figure 53 présentent la largeur et la longueur des granulats à 50 % de fraction volumique cumulée. Le rapport d'aspect des granulats est également calculé et présenté en Figure 54.

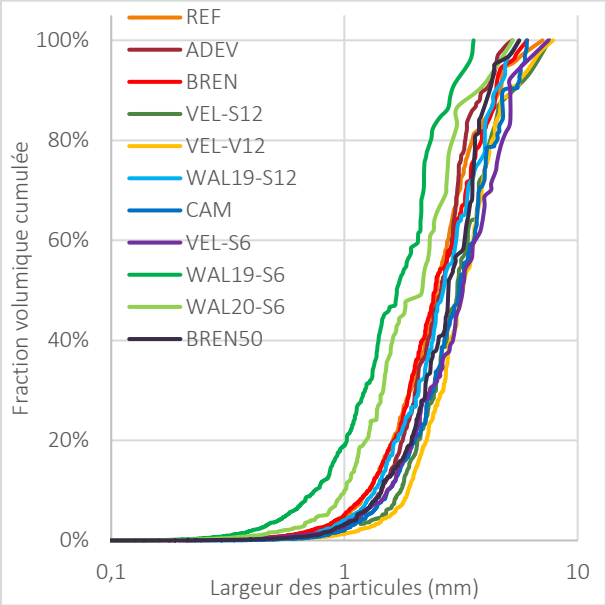



*Figure 50 Distribution de la largeur des granulats*

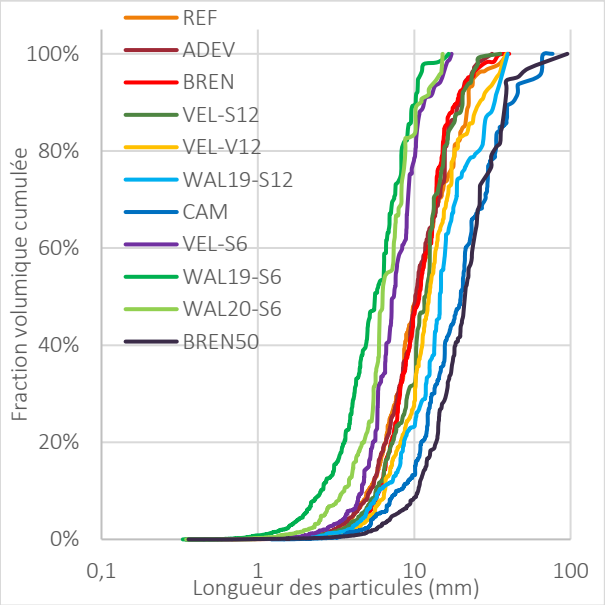



*Figure 51 Distribution de la longueur des granulats*

Plusieurs remarques ressortent de ces analyses :

Les répartitions granulométriques en largeur des roseaux de Brenne (BREN) et Bretagne (ADEV) sont assez proches, de même pour la courbe de la chènevotte (REF). La distribution du roseau de Bretagne se détache des autres à partir de 60 % de fraction volumique cumulée en ayant des particules plus fines. Même s'il n'a pas été broyé avec la même méthode, le roseau de Waldhouse (WAL19-S12) présente une distribution en largeur similaire aux broyats ADEV et BREN. Le roseau de Camargue (CAM) qui est également broyé par ADEV Environnement ne semble pas du même calibre. En effet ses

deux distributions, en longueur et en largeur, sont assez éloignées des précédentes, les granulats sont plus larges et plus longs (Longueur médiane de 21 mm). Les trois autres échantillons (ADEV, BREN et REF) sont similaires avec une longueur à 50 % de fraction volumique cumulée entre 10,2 et 10,8 mm tandis que WAL19-S12 s'éloigne un peu avec une valeur à 14,6 mm. Ces observations sont confortées par les valeurs de rapport d'aspect. En effet, le roseau de Bretagne (ADEV) possède un rapport à 3,39 tandis que la chènevotte et le roseau de Brenne ont un rapport de 6,3 et 7 respectivement. De la même manière, le roseau de Waldhouse broyé à 12 mm possède un rapport d'aspect de 7,1 suivi du roseau de Camargue, dont la répartition en longueur est plus importante, qui possède donc le plus grand rapport d'aspect (8,8).

Ces différences peuvent provenir du process de récolte et de broyage des tiges de roseau (broyeur à couteaux ou à marteaux) mais également du roseau en lui-même (plus ou moins dur à broyer).

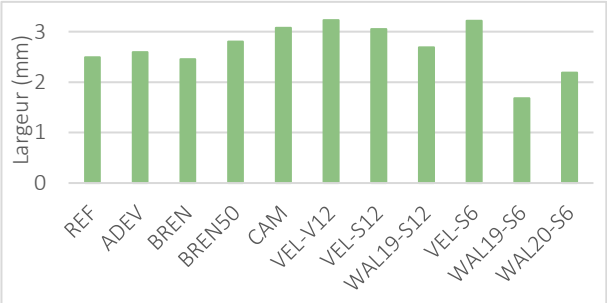



*Figure 52 Largeur à 50 % de fraction volumique cumulée*

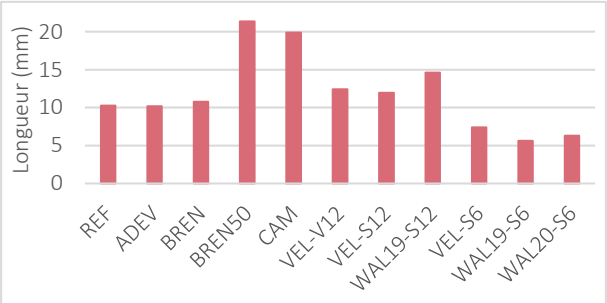



*Figure 53 Longueur à 50 % de fraction volumique cumulée*

Les roseaux de Velving (VEL-S6, VEL-S12 et VEL-V12) possèdent la même répartition granulométrique en largeur. Les deux roseaux de Waldhouse broyés à 6 mm (WAL19-S6 et WAL20-S6) sont éloignés du reste des courbes avec une largeur à 50 % de fraction volumique cumulée à 1,7 et 2,2 mm respectivement. Étonnamment, le roseau de Velving broyé à 6 mm semble plus large (largeur50% = 3,2 mm). Les distributions en longueur des roseaux broyés à 6 mm sont regroupées de la même manière que pour les distributions des roseaux broyés à 12 mm même si toutefois, comme évoqué précédemment, le roseau de Waldhouse (WAL19-S12) présente des particules très longues. Ces observations sont en accord avec le rapport d'aspect des granulats : ceux broyés à 6 mm (VEL-S6, WAL19-S6 et WAL20-S6) présentent des rapports à 5,5, 5,3 et 5,9 respectivement. L'état du roseau (sec ou vert) n'a pas d'effet sur l'efficacité du broyage des granulats et leur distribution granulométrique avec des rapports à 5,3 et 5,4 pour VEL-S12 et VEL-V12 respectivement. Le roseau WAL19-S12, comme dit précédemment, se démarque des autres avec un rapport d'aspect de 7,1 et se rapproche du roseau de Brenne.

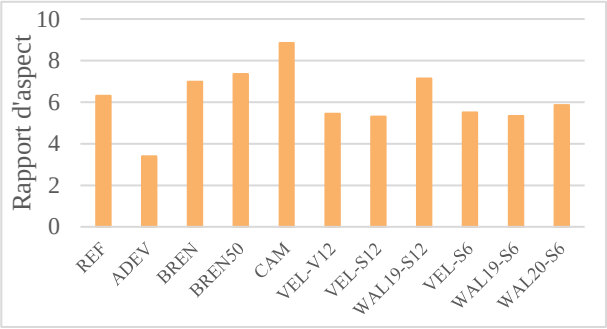



*Figure 54 Rapport d'aspect des granulats*

Toutes ces différences relevées auront potentiellement un impact sur l'empilement granulaire lors de la mise en œuvre des bétons par compaction et donc un impact sur la conductivité thermique et les propriétés thermiques.

De plus, cette différence de dimension suivant l'échantillon est directement reliée à la surface spécifique des granulats. En effet, un grand granulat possède une plus petite surface spécifique contrairement à un petit granulat. Cette surface spécifique contient un zone appelée Zone de Transition Interfaciale (ZTI) et est évoquée dans les travaux de V. Nozahic [76]. Il s'agit d'une zone correspond à la surface externe des granulats lignocellulosiques constituant des points de faiblesse dans la compatibilité entre le liant minéral et le granulat végétal. Si la surface spécifique est plus petite (cas des grands granulats) alors la ZTI sera également plus petite ce qui correspond à une plus faible interaction entre les particules végétales et le liant et donc à une meilleure prise du béton fabriqué.

## II. COURBES DE SORPTION

La détermination des courbes de sorption des granulats végétaux permet d'évaluer l'affinité de ces charges avec la vapeur d'eau. Ces courbes sont réalisées en utilisant le même protocole pour les granulats et les farines ce qui permettra ainsi de comparer le comportement en fonction de la surface spécifique de l'échantillon.

Les espèces végétales sont également comparées entre elles avec toujours comme références le bois et le miscanthus pour la partie plasturgie et la chènevotte pour la partie écoconstruction.

### II.1. Protocole

Les échantillons sont au préalable séchés en étuve à 60°C jusqu'à masse constante. Le choix est fait de ne pas sécher les farines à 100°C (température d'évaporation de l'eau) pour ne pas dégrader

d'autres composés et modifier ainsi la chimie au sein du végétal. 1 g ($m_0$) de chaque échantillon est mis dans une coupelle en verre et placé dans une enceinte à humidité contrôlée (Figure 55), en commençant par la valeur la plus faible en augmentant l'humidité relative par paliers, en partant de l'humidité relative la plus faible : à chaque augmentation d'humidité, l'état hydrique est maintenu jusqu'à stabilisation de la masse ($m_{n\%}$), correspondant à la saturation de l'échantillon à n % d'humidité relative.

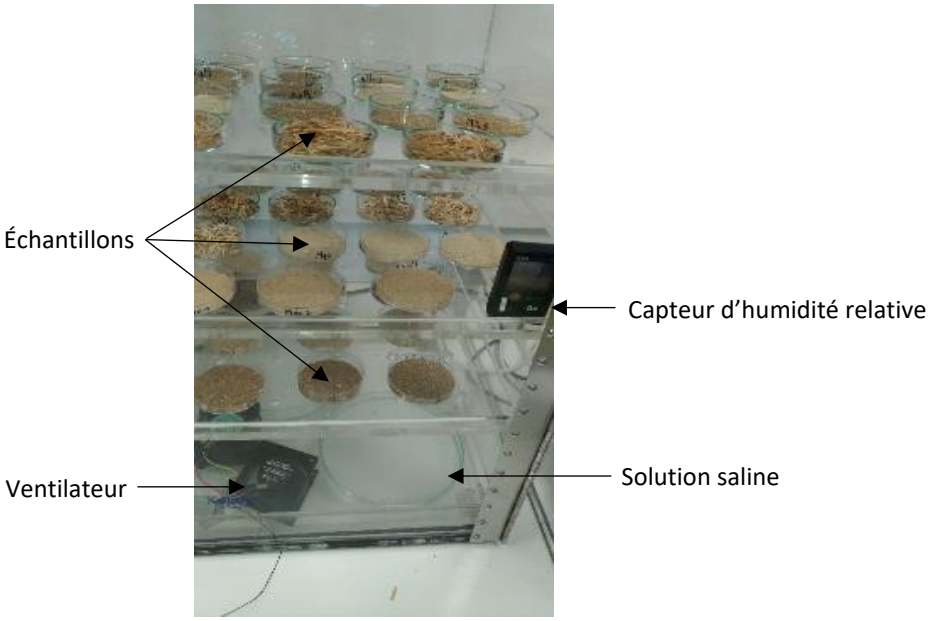



*Figure 55 Échantillons dans l'enceinte à humidité contrôlée*

L'adsorption ($A_{n\%}$) est calculée selon l'équation suivante :

$$A_{n\%}\ (\%) = \frac{m_{n\%} - m_0}{m_0} \qquad \textit{Équation 15}$$

L'humidité est pilotée dans l'enceinte par des solutions salines permettant d'atteindre 10, 25, 48, 65, 82 et 95 % d'humidité relative. Un capteur d'humidité a été inséré dans cette enceinte pour relever la valeur réelle d'humidité. Tous les échantillons analysés dans la suite de cette partie ont été mis en même temps dans l'enceinte; ceci permet de raisonner en humidité relative et non absolue et donc indépendamment de la température.

Les isothermes de sorption décrivent trois zones différentes pour trois modes de fixation de la vapeur d'eau (Figure 56) [77]. La monocouche (zone 1) correspond à un alignement des molécules d'eau en surface sous l'action des forces de Van der Waals. Le passage entre les zones 1 et 2 se fait lorsque la monocouche est saturée. La zone 2 est linéaire puisqu'elle représente l'adsorption

progressive des molécules d'eau sur la monocouche. La troisième et dernière phase correspond à l'infiltration de l'eau liquide dans les pores du matériau.

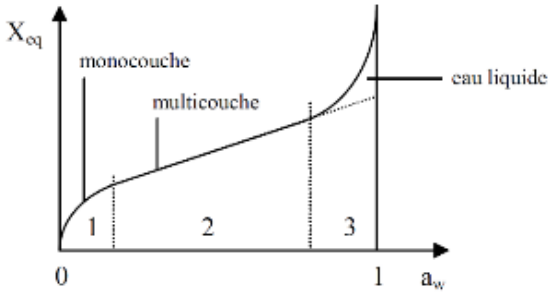



*Figure 56 Description d'un isotherme de sorption*

## II.2. Influence de la taille des particules

Afin de comparer les courbes de sorption selon la surface spécifique des échantillons, trois types de granulats du roseau breton ont été placés dans l'enceinte : de la farine (0-500 µm) et des granulats de deux tailles différentes (2-6mm et 2-8cm) (Figure 57). La même analyse est réalisée avec la chènevotte brute et broyée à 500 µm au Laboratoire.

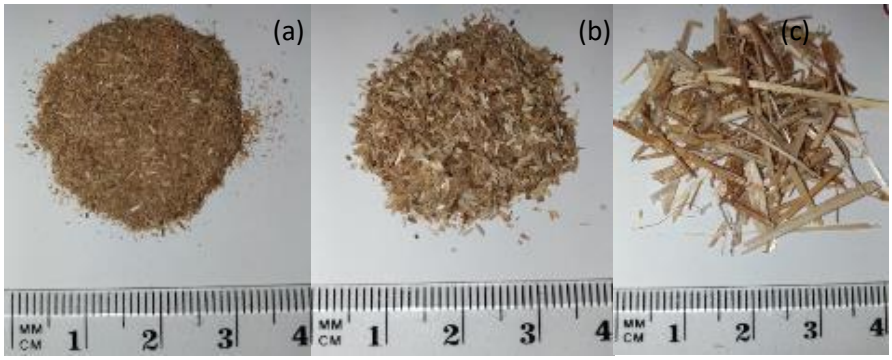



*Figure 57 Roseau de Bretagne - farine (a), granulats 2-6 mm (b) and granulats 2-8 cm (c)*

Les courbes des valeurs d'adsorption pour les trois tailles de particules de roseau en fonction de l'activité de l'eau sont données en Figure 58. Les courbes présentant les résultats pour la chènevotte sont données en Figure 59.

L'activité de l'eau est représentée par l'équation suivante :

$$a = \frac{P}{P_{100}} = HR\ (\%)$$ *Équation 16*

Avec

$$P : Pression\ de\ vapeur\ d'eau$$

$$P_{100} : Pression\ de\ vapeur\ d'eau\ pure$$

$$HR : Humidité\ Relative$$

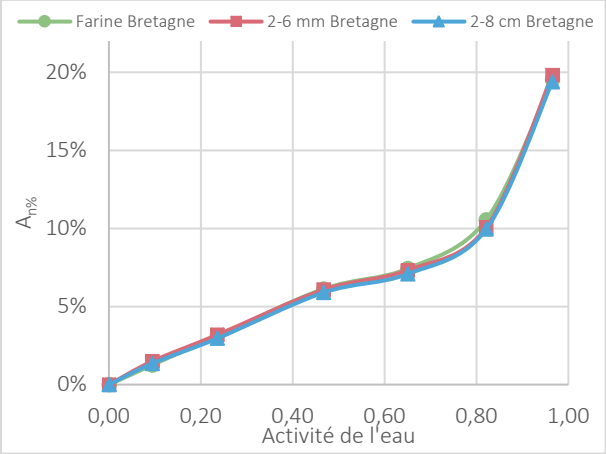



*Figure 58 Courbes de sorption du roseau de Bretagne selon la taille de particules*

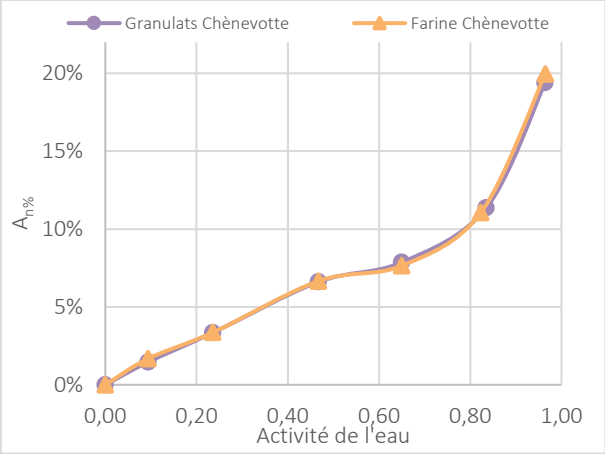



*Figure 59 Courbes de sorption de la chènevotte selon les deux tailles de particules*

Les différentes courbes sont superposées, ce qui démontre que l'adsorption de vapeur d'eau n'est pas influencée par la taille des particules de roseau ; il en est de même pour les courbes de sorption de la chènevotte suivant les deux tailles de particules.

### II.3. Courbes de sorption : résultats

Les courbes de sorption des différentes farines 0-500 µm sont présentées en Figure 60. Ces courbes étant assez similaires, un zoom sur les données entre 0,9 et 1,0 pour les valeurs d'activité de l'eau est également proposé en Figure 61.

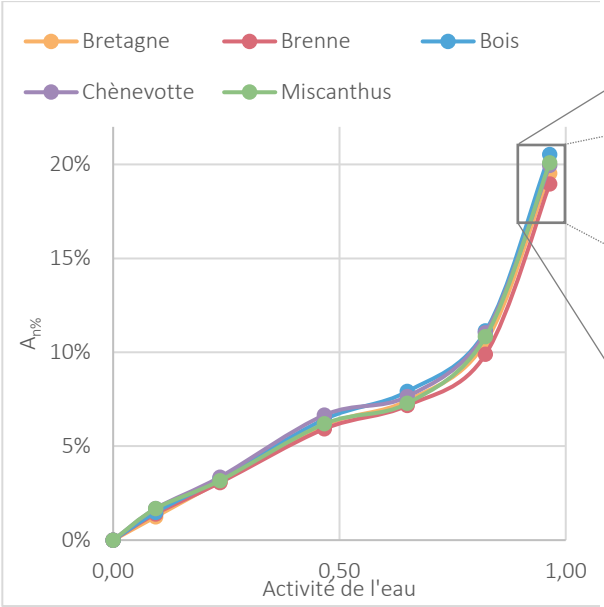



*Figure 60 Courbes de sorption des farines végétales*

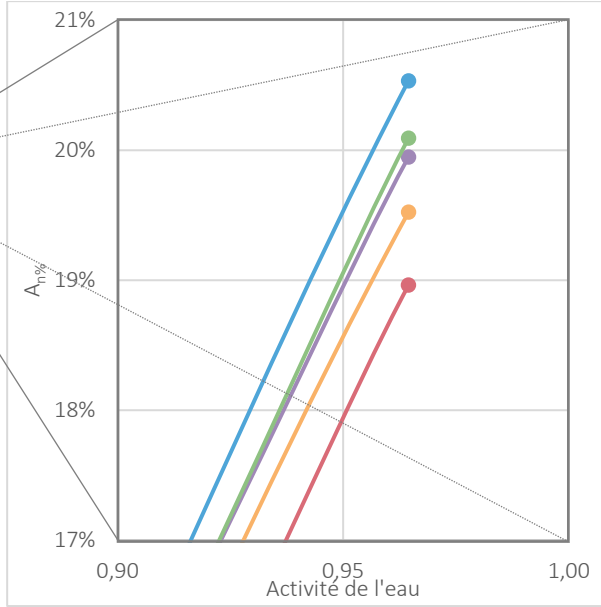



*Figure 61 Zoom sur la courbe de sorption entre 0,9 et 1,0*

Les cinq courbes présentent la même allure, la zone 1 de la courbe type de sorption est très peu visible, ceci peut être dû à un séchage partiel des échantillons. En effet, en séchant à 60°C les farines, l'eau en monocouche, qui correspond aux dernières molécules en surface, n'est pas évaporée. Le zoom de la Figure 61 permet de classer les échantillons selon leur comportement en humidité. La farine de bois est l'échantillon ayant adsorbé le maximum de vapeur d'eau avec une valeur à 20,5 % suivi du miscanthus et de la chènevotte avec des valeurs à 20 %. Les roseaux de Brenne et Bretagne sont les échantillons qui ont adsorbé le moins avec 19,5 % pour le breton et 19 % pour celui de Brenne.

Ces données pourront être corrélées aux différentes analyses effectuées sur les échantillons pour les deux domaines d'application, par exemples l'angle de contact des farines pour le volet plasturgie et l'absorption d'eau des granulats pour l'application en béton isolant.

Les analyses réalisées pour les deux voies de valorisation sont présentées dans la suite de ce chapitre, à savoir les ATG et mesures d'angle de contact pour les farines et les observations de morphologies, les masses volumiques et la capacité d'absorption d'eau des granulats pour le volet écoconstruction.

## PARTIE 4 : CARACTÉRISATION DES FARINES POUR UNE VALORISATION EN PLASTURGIE

Quatre farines ont été analysées dans cette partie, les farines de bois, de miscanthus et les deux phragmites, Brenne et Bretagne. Ce sont ces quatre échantillons qui seront utilisés dans le Chapitre 3 sur la valorisation du phragmites en plasturgie. Avant toute chose, le comportement en température des farines a été étudié en réalisant des ATG. L'adhésion charge-matrice étant un élément important pour assurer de bonnes performances au composite, nous avons réalisé des déterminations de tension de surface grâce à des mesures d'angle de contact des différents échantillons avec l'eau en utilisant deux méthodes différentes détaillées dans la suite de ce chapitre.

### I. ANALYSES THERMOGRAVIMÉTRIQUES

Les ATG sont réalisées avec une thermobalance Metler Toledo et permettent d'évaluer le comportement en température des farines végétales. Le début de la dégradation (hors évaporation de l'eau) est caractérisé par une perte de masse et détermine la température critique à ne pas dépasser lors du compoundage (extrusion) sous peine de voir les propriétés du composite dégradées. Pour ce faire, des analyses en statique et dynamique sont réalisées.

### **I.1.** ATG en dynamique

Les ATG en dynamique sont réalisées pour évaluer la température de début de dégradation des charges végétales. L'échantillon subit une augmentation de température de 20 à 700°C à une vitesse de 3°C/min sous un balayage d'air. La masse de l'échantillon est relevée en temps réel, permettant ainsi de tracer la perte de masse en fonction de la température. La dérivée de cette perte de masse peut également être tracée pour permettre de distinguer plus précisément les pics liés à la dégradation des différents composés (cellulose, hémicellulose, lignine…).

Les résultats des ATG en perte de masse des farines de bois, miscanthus et des deux roseaux phragmites sont données en Figure 62.

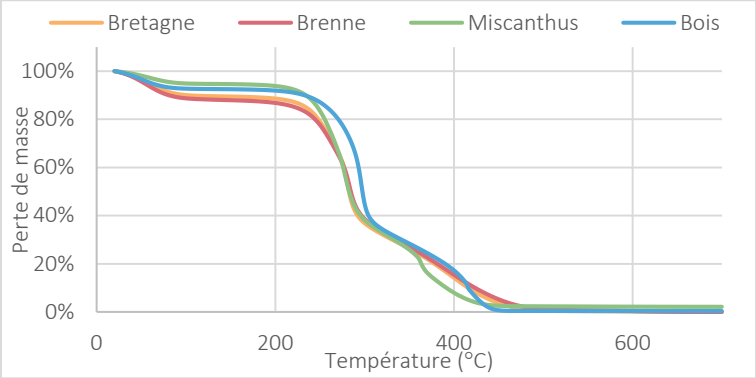



*Figure 62 Analyses ThermoGravimétriques des farines végétales en perte de masse*

Les courbes présentent la même allure ; la perte de masse aux alentours de 100°C correspond à l'évaporation de l'eau contenue dans l'échantillon. Les farines de phragmites contiennent plus d'eau (environ 10 %) que les farines de bois et miscanthus (7 et 5 % respectivement).

Les courbes de la dérivée de perte de masse des farines ainsi qu'un zoom pour des températures comprises entre 180 et 270°C sont donnés en Figure 63 et Figure 64.

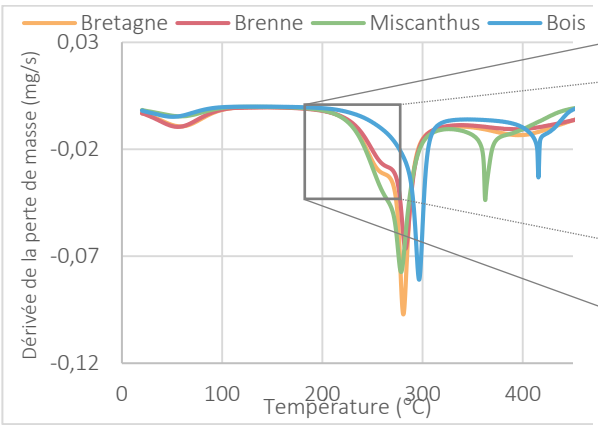



*Figure 63 ATG : Dérivée de la perte de masse des farines*

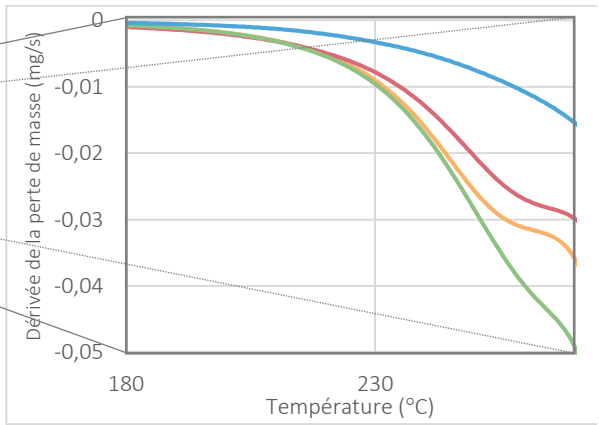



*Figure 64 Zoom sur la courbe de la dérivée de perte masse entre 180 et 270°C*

La dérivée de la perte de masse permet de distinguer des pics de dégradation, le plus grand correspondant à la cellulose. Le zoom effectué entre 180 et 270°C permet de mettre en évidence le début de dégradation des farines, 220°C pour les phragmites et le miscanthus avec une perte de masse de 5 µg/s et une dégradation plus importante pour le miscanthus, et 240°C pour le bois. Le compoundage des composites se faisant à 190°C pour les composites à matrice polypropylène, les charges ne seront pas dégradées ; néanmoins il faut vérifier la tenue des farines à une température donnée, ce qui caractérise leur stabilité thermique ; pour cela des ATG en isotherme à 180°C et 210°C ont été réalisées.

### **I.2.** ATG en isotherme

Des ATG en isotherme sont réalisées sur les quatre farines précédentes. Les échantillons sont chauffés à respectivement à 180°C et 210°C pendant une durée d'une heure, bien supérieure au temps de séjour des échantillons dans l'extrudeuse mais permettant de simuler une situation extrême. Nous avons choisi 180°C car c'est à partir de cette température que peut se faire l'extrusion du PP et nous n'observons pas de perte de masse significative en ATG dynamique à cette température néanmoins cela ne signifie pas que le matériau ne se dégrade pas. Une température plus élevée a été choisie (210°C) pour évaluer le comportement thermique des farines à une température plus élevée qui pourrait également être une température de process en industrie.

Le Tableau 9 récapitule les pourcentages de perte de masse en fonction de la température d'essai pour les différentes farines. Le bois est le moins sensible à la température avec 0,93 % et 3,98 % de perte de masse à 180°C et 210°C respectivement. Les roseaux phragmites présentent quasiment les mêmes pertes de masse, entre 1,3 et 1,5 % à 180°C et environ 6 % à 210°C. La farine de miscanthus se dégrade de façon similaire aux phragmites, 1,28 % à 180°C, mais présente une perte de masse à 210°C légèrement supérieure à 8 %. Ces données sont cohérentes avec les résultats obtenus en mode dynamique.

| | Brenne | Bretagne | Bois | Miscanthus |
|---|---|---|---|---|
| 180°C | 1,49 % | 1,29 % | 0,93 % | 1,28 % |
| 210°C | 6,16 % | 6,43 % | 3,98 % | 7,56 % |

*Tableau 9 Pertes de masse des farines végétales en isotherme à 180 et 210°C*

La tenue en température d'une charge végétale est un élément clef pour son utilisation en plasturgie. Au vu des résultats obtenus, nous pouvons conclure que les farines de phragmites peuvent être utilisées pour des formulations à base de PP mais également avec du PBS dont la température de compoundage est de 140°C. Ces polymères étant de nature chimique très différente, on peut

s'intéresser à la compatibilité charges-matrices et donc d'étudier la mouillabilité des farines pour mieux appréhender les phénomènes qui pourront être observés lors des caractérisations mécaniques des composites formulés. La partie suivante traite des méthodes mises en œuvre pour estimer la mouillabilité des farines végétales.

## II. COMPORTEMENT DES FARINES À L'EAU LIQUIDE

La mouillabilité d'un solide peut être estimée par le dépôt d'une goutte sur le solide. La goutte s'étalera plus ou moins à la surface du solide et va créer un angle plus ou moins grand à la frontière liquide/solide/gaz (Figure 65). La mouillabilité est alors définie par l'équation de Young :

$$\gamma_{LV} \times \cos(\theta) = \gamma_{SV} - \gamma_{SL}$$ *Équation 17*

Avec

$\gamma_{LV}$ : *Energie d'interface liquide/gaz*

$\gamma_{SV}$ : *Energie d'interface solide/gaz*

$\gamma_{SL}$ : *Energie d'interface solide/liquide*

L'angle de contact (noté $\theta$) correspond à l'équilibre thermodynamique des forces à l'interface triphasée solide/liquide/gaz. Le solide correspond à l'échantillon, le liquide est la goutte de solvant (dans l'étude l'eau) et le gaz (vapeur) est l'air ambiant.

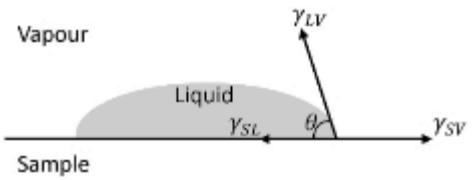



*Figure 65 Représentation de l'équation de Young*

La mesure d'un angle de contact se fait généralement par le dépôt d'une goutte d'eau sur une surface plane, non poreuse et non rugueuse, il s'agit de la méthode de la goutte sessile. Les échantillons de l'étude étant des farines, il est tout d'abord choisi d'utiliser une méthode indirecte utilisant la capillarité pour calculer cet angle de contact ; cette méthode dite de Washburn utilise un tensiomètre KRUSS K100. Dans un second temps, la méthode de la goutte sessile est employée sur des échantillons comprimés sur une presse hydraulique. Ces deux méthodes ainsi que les résultats obtenus sur les farines sont présentés dans la suite de cette partie.

## II.1. Méthode de Washburn – mesure indirecte

La théorie de Washburn [78]–[80] indique que si un solide poreux est mis en contact avec un liquide, de sorte que le solide n'est pas submergé dans le liquide, mais touche simplement la surface du liquide, alors la montée du liquide dans les pores du solide due à l'action capillaire sera régie par l'équation suivante :

$$\frac{m^2}{t} = \frac{c.\rho^2.\gamma.\cos\theta}{\eta} \qquad \textit{Équation 18}$$

Avec

$m$ = *variation de masse ( m(t) – m(0) )*

$t$ = *temps*

$\rho$ = *densité du liquide*

$\gamma$ = *tension superficielle*

$\eta$ = *viscosité du liquide*

$c$ = *constante de capillarité*

$\theta$ = *angle de contact*

L'échantillon (farine végétale) est mis dans un cylindre dont le fond est muni d'un filtre puis plongé dans un solvant. Le relevé de la masse en fonction du temps est établi par le tensiomètre KRUSS K100 (Figure 66). La pente de la courbe définie par $m^2 = f(t)$ sera exploitée pour déterminer, en premier lieu la constante de capillarité c, puis dans un second temps les tensions superficielles dispersives et polaires du solide pour en déduire l'angle de contact avec l'eau.

*Figure 66 Tensiomètre KRUSS*

**Première étape**

Dans un premier temps, la mesure est effectuée avec comme solvant le n-hexane dont la mouillabilité est totale c'est-à-dire que l'angle formé est nul et donc $cos\ \theta = 1$. Connaissant la densité, la viscosité et la tension superficielle du solvant, il ne reste plus qu'une inconnue, la constante de capillarité.

**Deuxième étape**

La deuxième étape consiste à utiliser le solvant de mesure de l'angle de contact directement, nous avons rencontré un problème lors de cette étape, l'utilisation de l'eau comme solvant n'a pas donné de résultats exploitables. En effet, l'angle de contact doit être compris entre 0 et 90° dû à l'utilisation de la fonction cosinus. Les farines étant considérées comme hydrophobe ($\theta > 90°$), la mesure doit se faire avec des solvants avec lesquels l'angle de contact est compris entre 0 et 90°. C'est pourquoi il a été choisi deux solvants différents afin de déterminer les tensions superficielles polaire et dispersive des échantillons pour en déduire l'angle de contact avec l'eau.

En combinant l'équation de Young avec les définitions des tensions de surface du liquide et du solide on obtient l'Équation 19.

$$\begin{cases} \gamma_S = \gamma_{SL} + \gamma_L . cos\ \theta \\ \gamma_L = \gamma_L^d + \gamma_L^p \\ \gamma_S = \gamma_S^d + \gamma_S^p \end{cases} \rightarrow \boxed{\sqrt{\gamma_L^d . \gamma_S^d} + \sqrt{\gamma_L^p . \gamma_S^p} = \frac{\gamma_L (cos\ \theta + 1)}{2}}$$

*Équation 19*

Le premier solvant utilisé est le diiodométhane qui possède une tension de surface polaire nulle. Cette donnée simplifie l'Équation 19 pour donner l'Équation 20 et permet de déterminer la tension superficielle dispersive des farines végétales.

$$\gamma_L^p = 0\ et\ \ \gamma_L^d = \gamma_L \rightarrow \boxed{\gamma_S^d = \frac{\gamma_L (cos\ \theta + 1)^2}{4}}$$

*Équation 20*

$\gamma_S^d$ *: tension superficielle dispersive du solide*

**Troisième étape**

Il est ensuite possible de déterminer la tension superficielle polaire des échantillons en utilisant un solvant, comme évoqué précédemment, dont l'angle de contact est compris entre 0 et 90°. Nous avons choisi l'éthylène glycol. À partir de l'Équation 19, on obtient l'Équation 21:

$$\sqrt{\gamma_L^d . \gamma_S^d} + \sqrt{\gamma_L^p . \gamma_S^p} = \frac{\gamma_L (cos\ \theta + 1)}{2} \rightarrow \boxed{\gamma_S^p = \frac{\left(\frac{\gamma_L (cos\ \theta + 1)}{2} - \sqrt{\gamma_L^d . \gamma_S^d}\right)^2}{\gamma_L^p}}$$

*Équation 21*

$\gamma_S^p$ *: tension superficielle polaire du solide*

**Quatrième étape**

La quatrième et dernière étape consiste à calculer l'angle de contact en utilisant les données de l'eau d'après l'équation suivante :

$$\theta = \cos^{-1}\left(\frac{\left(\sqrt{\gamma_L^d \cdot \gamma_S^d} + \sqrt{\gamma_L^p \cdot \gamma_S^p}\right) \times 2}{\gamma_L} - 1\right)$$

*Équation 22*

Pour chaque échantillon et pour chaque solvant, la mesure est réalisée cinq fois. Les constantes des solvants utilisés dans cette étude sont présentées dans le Tableau 10.

| | $\gamma_L = \gamma_L^p + \gamma_L^d$ | $\gamma_L^p\ (mN/m)$ | $\gamma_L^d\ (mN/m)$ |
|---|---|---|---|
| Ethylène glycol | 48,3 | 19,0 | 29,3 |
| Diiodométhane | 50,8 | 0 | 50,8 |
| Eau | 72,8 | 26,8 | 46,0 |

*Tableau 10 Tensions superficielles : composantes polaire et dispersive des solvants de l'étude*

**Résultats**

Les tensions superficielles polaire et dispersive pour les échantillons étudiés sont présentées dans le Tableau 11.

| | $\gamma_S = \gamma_S^p + \gamma_S^d$ | $\gamma_S^p\ (mN/m)$ | $\gamma_S^d\ (mN/m)$ | $\theta$ eau (°) |
|---|---|---|---|---|
| Bois | 23,09 | 22,70 | 20,82 | 86,3 ± 1,8 |
| Bretagne | 15,73 | 24,10 | 13,32 | 95,7 ± 1,3 |
| Brenne | 17,90 | 24,00 | 15,50 | 92,7 ± 1,7 |
| Miscanthus | 18,25 | 53,70 | 12,87 | 90,1 ± 3,4 |

*Tableau 11 Tensions superficielles et angle de contact des farines végétales d'après la méthode de Washburn*

Au vu des valeurs de tensions superficielles obtenues, les phragmites et le bois sont peu polaires car leur tension superficielle polaire est inférieure à 25 mN/m. La farine de miscanthus présente une valeur de sa composante polaire deux fois supérieure à celle des autres farines végétales ; on considère donc cet échantillon comme polaire avec 54 mN/m. Pour la composante dispersive, le bois possède la valeur la plus importante avec 20,8 mN/m, suivi des phragmites puis du miscanthus. Au vu de ces résultats, nous pourrons observer des différences de comportements des farines avec une meilleure cohésion bois/PP car le bois possède la tension superficielle polaire la plus faible et le PP est un

polymère très peu polaire avec 0,2 mN/m en tension superficielle (Figure 67). De la manière, nous pourrons également étudier la cohésion avec la matrice PBS et expliquer les différences observées car celle-ci possède une composante polaire de 14 mN/m, plus élevée que le PP, et une composante dispersive de 32,4 mN/m là aussi plus élevée que pour le PP (Figure 67). Avec des valeurs de tensions se rapprochant de celles des farines végétales, le PBS aura potentiellement un meilleur mouillage des particules végétales.

| Component | Surface Tension (mN/m) | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | 25 °C | | | 200 °C | | |
| | $\gamma$ | $\gamma^d$ | $\gamma^p$ | $\gamma$ | $\gamma^d$ | $\gamma^p$ |
| PP | 24.7 | 24.5 | 0.2 | 16.4 | 16.3 | 0.1 |
| PVA | 60.2 | 32.6 | 27.6 | 41.0 | 22.2 | 18.8 |
| S5505 [b] | 91.1 | 0.7 | 90.4 | 73.6 | 0.6 | 73.0 |
| R816 [b] | 88.5 | 0.4 | 88.1 | 71.0 | 0.3 | 70.7 |
| R972 [c] | 32 | 30 | 2 | 14.5 | 13.6 | 0.9 |

| Polymer | total surface tension $\gamma$ (mN/m) | Disperse component $\gamma_d$ (mN/m) | Polar component $\gamma_p$ (mN/m) |
|---|---|---|---|
| PGSMA (25 °C) | 30.1 | 29.6 | 0.5 |
| PGSMA (180 °C) | 20.8 | 20.3 | 0.5 |
| PBS | 46.4 | 32.4 | 14 |
| PLA | 34 | 30 | 4 |

*Figure 67 Tensions superficielles du PP* [154] *et du PBS* [155]

Les farines de miscanthus et phragmites sont considérées comme hydrophobes car la valeur de leur angle de contact est supérieure à 90°. Le bois lui est considéré comme hydrophile avec un angle de contact de 86,3°. Un angle de contact de 85° est mesuré par la méthode de Washburn sur de la farine de bois 177-250 µm dans les travaux de Wålinder et al. [81].

Nous avons testé une seconde méthode afin de confirmer ou infirmer les valeurs obtenues avec la méthode de Washburn.

### II.2. Méthode de la goutte sessile – mesure directe

La méthode de la goutte sessile consiste à déposer une goutte de solvant, ici l'eau, sur la surface de l'échantillon afin de mesurer directement l'angle de contact. Les mesures ont été réalisées avec un goniomètre KRUSS DSA30S. Afin d'avoir une surface d'échantillon la plus exploitable possible, des cylindres ont été fabriqués en comprimant 20 à 30 g de farine sous une pression de 142 MPa à température ambiante (Figure 68). Dix gouttes d'eau ultrapure sont déposées une à une avec une seringue sur la surface des farines (base du cylindre) tandis qu'une capture vidéo est réalisée pour chaque goutte afin de tracer l'évolution de l'angle de contact en fonction du temps.

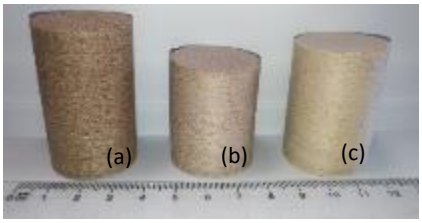



*Figure 68 Cylindres de farine compressée, (a) Phragmites Bretagne, (b) Miscanthus, (c) Bois*

Des mesures préliminaires sont effectuées sur des farines comprimées à l'aide d'une presse à plateau hydraulique dont la pression n'est pas connue mais dont le résultat est tout à fait acceptable, hormis l'épaisseur de la plaque de farine formée (quelques mm) qui reste trop faible pour une mesure correcte d'un angle de contact (Figure 69). En effet, la goutte d'eau une fois déposée se déforme à cause de la trop faible épaisseur de la plaque de farine végétale, il n'est donc pas fiable de faire des mesure de cinétique avec ces échantillons.

Néanmoins, l'idée étant de tester la faisabilité de la méthode, les mesures d'angle de contact sont réalisées sur des farines de différentes granulométries (0-500 µm, 0-250 µm et 0-100 µm), ce qui permet également d'évaluer l'influence de la taille des particules de farine sur les valeurs d'angle sans étudier la cinétique d'absorption de la goutte d'eau. La taille de la goutte, et donc l'angle mesuré, évoluant au cours du temps, la mesure de l'angle est réalisée lorsque la seringue revient en position initiale, c'est-à-dire lorsqu'elle remonte en position prête à doser une nouvelle goutte pour un nouveau dépôt.

*Figure 69 Goutte d'eau sur de la farine de phragmites compressée*

**Résultats : goutte sessile sur plaque de farines comprimées**

Les résultats des mesures réalisées sur les différents échantillons sont donnés dans le Tableau 12 en fonction de la taille de particules.

| | 0-500 µm | 0-250 µm | 0-50 µm |
|---|---|---|---|
| Bretagne | 120,0 | 127,9 | 133,6 |
| Brenne | 124,6 | 124,9 | 131,1 |
| Bois | 97,7 | 114,3 | 120,2 |
| Miscanthus | 110,4 | 122,1 | 126,0 |

*Tableau 12 Angle de contact suivant la taille de particules de l'échantillon*

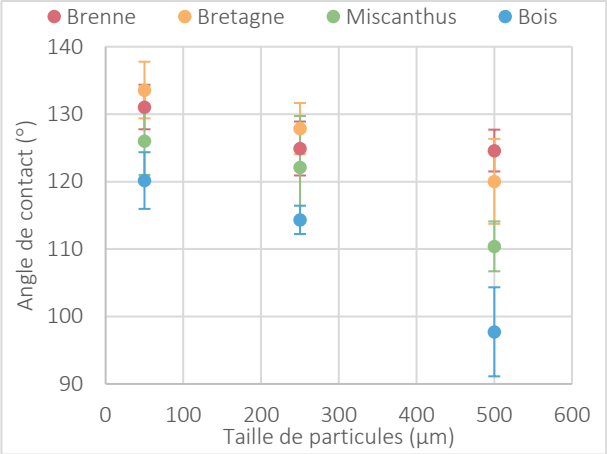



*Figure 70 Corrélation entre l'angle de contact et la taille de particules de l'échantillon*

Nous pouvons observer qu'il existe une corrélation entre la taille des charges et l'angle de contact mesuré sur la farine comprimée (Figure 70) : l'angle de contact augmente avec la diminution de la taille de particules, atteignant des valeurs de 120 à 135 degrés pour la granulométrie la plus fine (0-50 µm). Ces observations peuvent être dues aux microrugosités en surface des farines 0-100 µm créant ainsi un matériau superhydrophobe. Cet effet est expliqué par le modèle de Cassie-Baxter (Figure 71), lorsque la rugosité d'un matériau hydrophobe augmente alors l'angle de contact augmente aussi [82].

De la même manière que lorsque la mesure d'angle est réalisée avec la méthode de Washburn, la rugosité n'est pas prise en compte ; les valeurs d'angle de contact sont donc plus élevées avec la méthode de la goutte sessile. On pourrait s'attendre aux mêmes valeurs pour les deux méthodes si la surface des échantillons pour la méthode de la goutte sessile était parfaitement lisse.

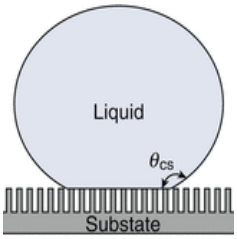



*Figure 71 Modèle de Cassis-Baxter* [156]

Si l'on corrèle l'angle de contact mesuré pour les différentes farines 0-500 µm à l'adsorption de ces mêmes farines à 97 % d'humidité relative (Cf. Figure 72), on constate que plus l'angle de contact est élevé et plus l'adsorption sera faible.

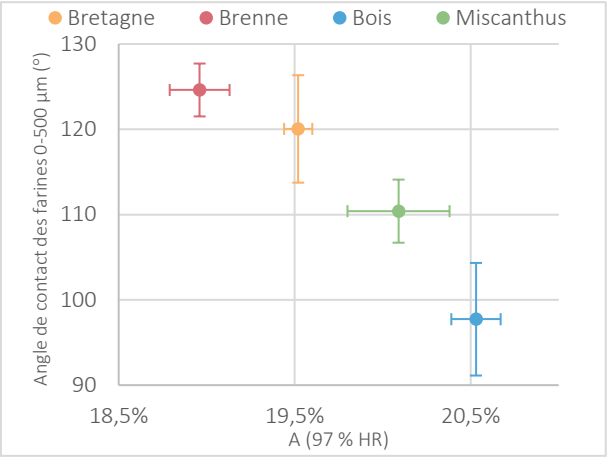



*Figure 72 Corrélation entre la valeur d'angle de contact des farines et l'adsorption de celles-ci à 97 % d'humidité relative*

Nous remarquons également une hydrophobie plus importante des deux roseaux communs quelle que soit la méthode. Dans la suite de cette partie nous n'utiliserons plus que le roseau de Bretagne, les résultats étant similaires selon les deux origines.

**Résultats : goutte sessile sur cylindre de farines**

Les mesures d'angle de contact sont également réalisées sur des cylindres, pour une plus grande épaisseur d'échantillon. Le système d'acquisition vidéo est de la même façon utilisé pour étudier la cinétique d'absorption des gouttes d'eau.

Les valeurs des angles de contact en statique, c'est-à-dire lorsque la seringue revient en position initiale sont données dans le Tableau 13. Ces données confortent les valeurs obtenues avec les plaques de farines comprimées avec une exception pour la farine de bois dont la valeur est plus importante lorsque la mesure est réalisée sur la base des cylindres. Deux explications sont possibles : la farine de bois n'a peut-être pas été assez comprimée avec la presse à plateaux ou bien la faible épaisseur de la plaque a permis une absorption rapide de la goutte d'eau d'où un angle plus faible.

| | **θ eau (°)** |
|---|---|
| Bretagne | 118,0 ± 4,5 |
| Bois | 112,4 ± 4,1 |
| Miscanthus | 112,2 ± 3,8 |

*Tableau 13 Angle de contact sur la base des cylindres comprimés*

L'examen des acquisitions vidéo permet de tracer l'évolution de l'angle de contact de la goutte d'eau en fonction du temps ; il s'agit donc d'une mesure en dynamique apportant des informations

supplémentaires quant à la cinétique d'absorption de la goutte d'eau. Des clichés ont été pris au cours du temps permettant ainsi d'observer l'évolutions d'une goutte d'eau à la surface d'une farine. La Figure 73 présente les clichés de l'absorption d'une goutte d'eau pour les trois échantillons (bois, miscanthus et phragmites). La goutte d'eau reste plus longtemps à l'équilibre sur la farine de roseau phragmites, ce qui démontre un caractère hydrophobe de l'espèce.

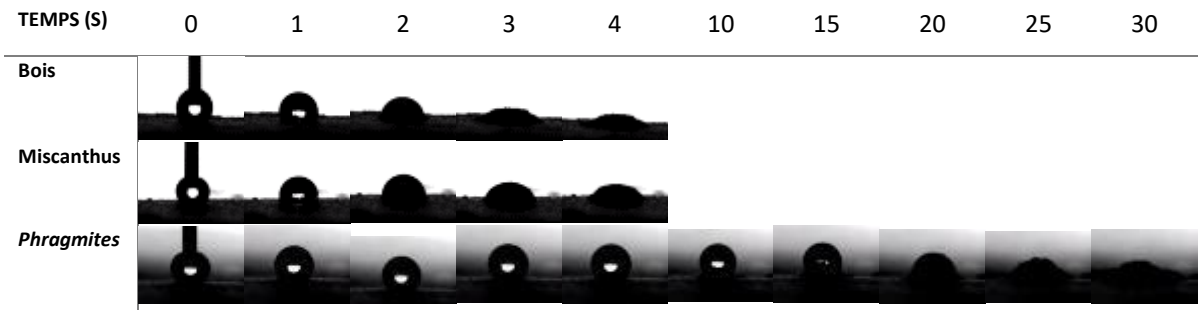



*Figure 73 Cinétique d'absorption d'une goutte d'eau selon l'espèce végétale*

Les courbes représentant la variation de l'angle de contact moyennée sur dix mesures en fonction du temps sont données en Figure 74.

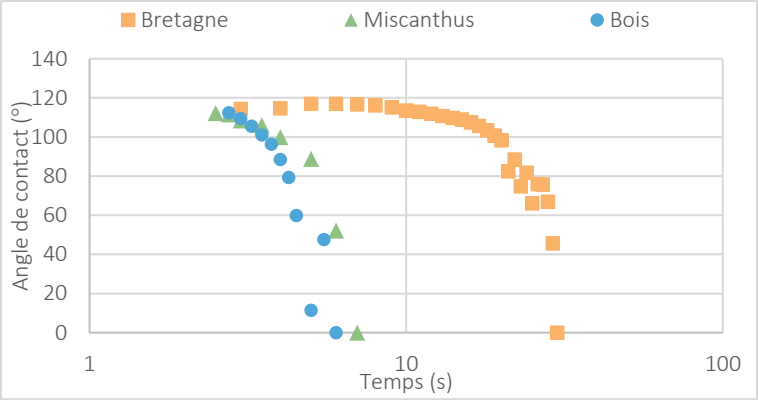



*Figure 74 Cinétique d'absorption des gouttes d'eau*

Nous pouvons observer un point d'inflexion sur ces trois courbes traduisant une durée limite d'absorption d'eau, durée qui diffère selon l'espèce végétale (Figure 75). Le bois a la durée d'absorption la plus courte (3 secondes) suivi du miscanthus avec 5 secondes tandis que le phragmites met beaucoup plus de temps à absorber la goutte avec 22,5 secondes.

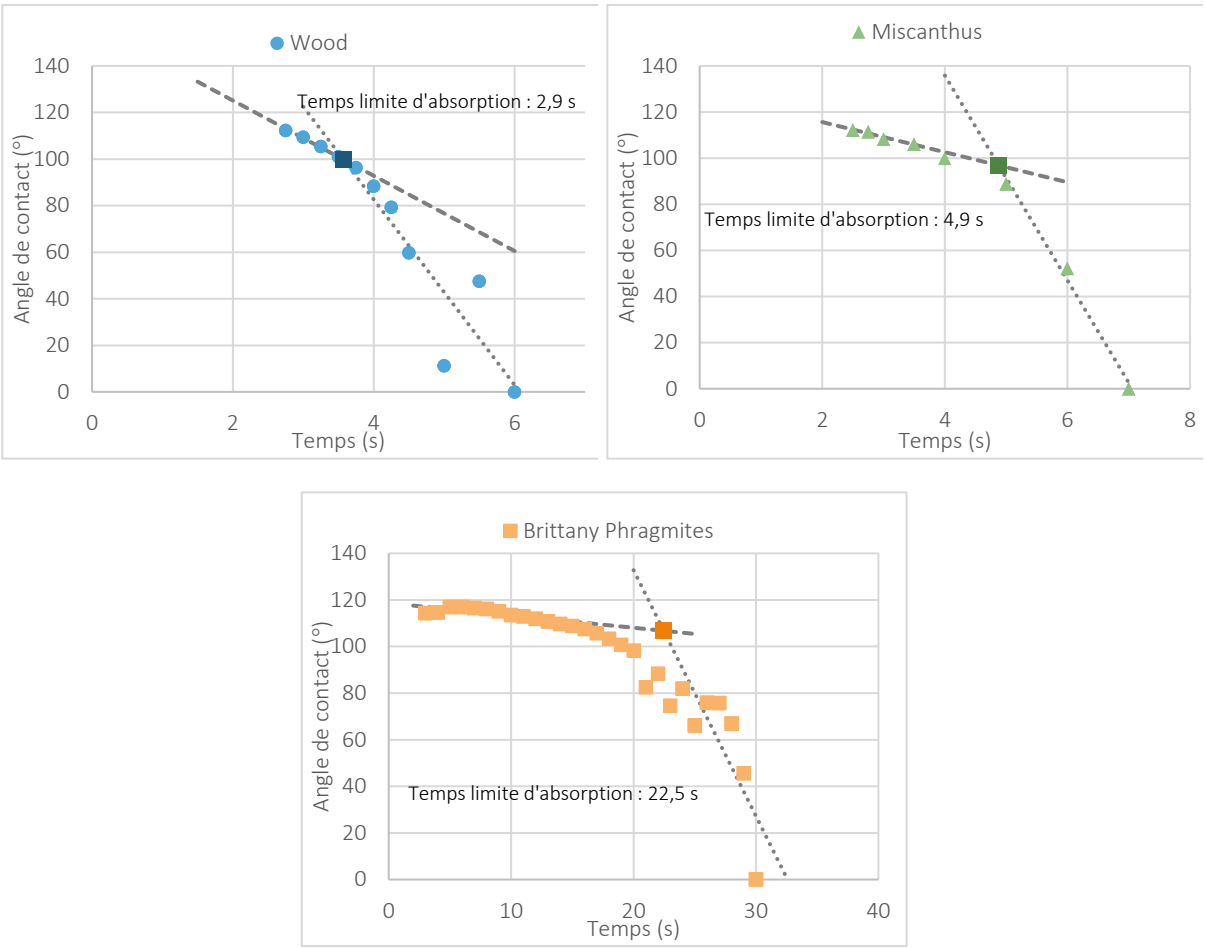



*Figure 75 Détermination des temps limites moyens d'absorption des gouttes d'eau*

Ces premiers résultats montrent un certain caractère hydrophobe du roseau commun. Ce peut être un inconvénient pour des formulations composites à matrices polymères en raison d'une plus faible compatibilité charge-matrice, par comparaison à des composites à base de bois. Mais cette hydrophobie pourrait également être un avantage vis-à-vis de la résistance à l'humidité et de la tenue au vieillissement. C'est ce qui sera étudié dans le prochain Chapitre sur l'étude de la valorisation du phragmites en plasturgie.

## PARTIE 5 : CARACTÉRISATION DES GRANULATS POUR VALORISATION EN ÉCOCONSTRUCTION

Cette partie est consacrée à l'étude du roseau phragmites pour une valorisation en écoconstruction et plus précisément pour la fabrication de béton isolant. Comme nous avons pu l'évoquer à plusieurs reprises, la chènevotte servira de référence pour cette voie d'application comme il s'agit du matériau végétal le plus étudié et utilisé dans ce domaine.

Tout d'abord, il est important de noter que les granulats de chènevotte et roseaux sont différents de par leur apparence. En effet, la chènevotte correspond à l'intérieur de la tige du chanvre ; après une étape de rouissage les fibres se détachent de l'écorce ; l'intérieur de la tige est alors broyé pour donner la chènevotte. Les granulats de roseau correspondent à l'entière partie de la tige aérienne. Le roseau ne possède pas ou très peu de fibres et comme nous avons pu le développer dans le Chapitre 1 l'intérieur de la tige du roseau est creux. Ces différences amènent bien évidemment des particularités chez chacune des espèces et c'est ce que nous cherchons à étudier dans la partie suivante, en analysant tout d'abord les morphologies des granulats de chènevotte et roseaux puis de façon plus précise en évaluant les masses volumiques des différents échantillons avant de mesurer leur capacité d'absorption d'eau. Toutes ces analyses sont primordiales pour la suite du projet et l'étude de l'éligibilité du roseau pour la fabrication de bétons isolants.

# I. TAUX DE POUSSIÈRES

## I.1. Protocole

Les granulats végétaux sont tamisés afin de connaitre leur taux de poussières. Pour cela, le protocole de la RILEM[12] est utilisé [83] ; le taux de poussières d'un granulat végétal correspond au passant d'un tamis dont la taille de maille est de 250 µm. Ainsi, tous les granulats de l'étude ont été tamisés sur un ensemble de tamis (6 - 4 - 2,5 - 1 - 0,5 - 0,25 - 0,1 mm). Le taux de poussière est calculé en divisant le passant à 250 µm par la masse totale de l'échantillon tamisé.

## I.2. Résultats

Les résultats des mesures du taux de poussières des granulats de roseaux et de la référence sont donnés en Figure 76.

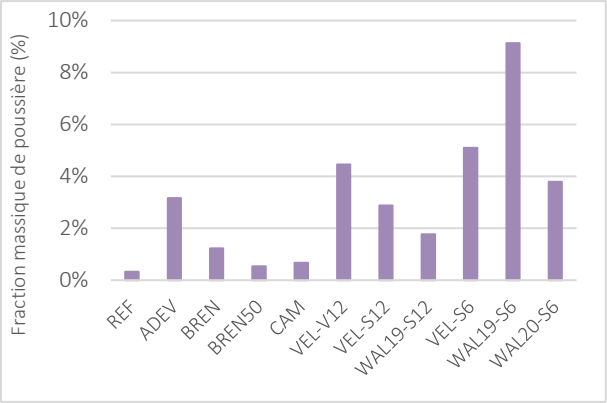



*Figure 76 Taux de poussière des différents échantillons de roseaux et la référence*

[12] Réunion Internationale des Laboratoires et Experts des Matériaux

Trois catégories de granulats se distinguent :

- Les granulats très peu poussiéreux comme la chènevotte de chanvre : le roseau de Brenne (BREN et BREN50), celui de Camargue (CAM) et le WAL19-S12 dont le taux de poussières est inférieur à 2 %.
- Les granulats de roseaux faiblement poussiéreux : le roseau breton, les VEL-S12 et WAL20-S6 dont le taux de poussière est compris entre 2 et 4 %
- Les roseaux poussiéreux : les VEL-V12, VEL-S6 et WAL19-S6 dont le taux est supérieur à 4 %, l'échantillon WAL19-S6 se démarquant avec plus de 8 % de poussières.

Ces différences peuvent être expliquées par le process de récolte et le broyage des granulats. Pour obtenir les granulats de 6 mm, ceux-ci restent plus longtemps dans le broyeur jusqu'à faire la taille requise pour leur passage à travers le tamis ; ce temps est supérieur à celui pour broyer à 12 mm et a pour conséquence de produire plus de poussière.

## II. MORPHOLOGIES

### II.1. Préparation des échantillons

Les observations de morphologies se font au MEB JEOL JSM 6460LV. Les granulats doivent au préalable être enrobés et découpés soigneusement pour ne pas refermer les cellules. La surface des échantillons est ensuite métallisée avant observation.

L'enrobage des granulats se fait avec une solution d'agarose à 5 % massique ; cette méthode permet d'humidifier les échantillons et de les rendre plus tendres pour la découpe au microtome ((a) Figure 77). L'enrobage résiduel est ensuite retiré pour placer chaque échantillon sur des plots pour l'observation au MEB ((b) Figure 77).

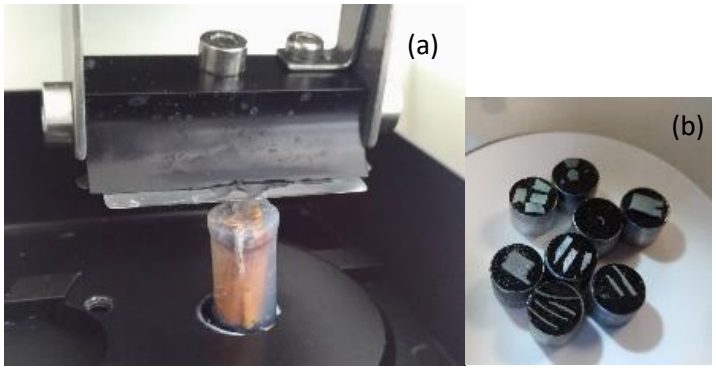



*Figure 77 Photos de la découpe d'un échantillon enrobé d'agarose (a) et échantillons sur plots avant observations au MEB (b)*

Plusieurs échantillons ont été analysés : une tige de roseau sec ainsi qu'un roseau vert 2 jours après coupe et de la chènevotte. Tous les échantillons sont découpés de façon longitudinale et transversale afin de visualiser les tailles de cellules et leur répartition ainsi que les différents vaisseaux utilisés pour le transports des fluides (nutriments, eau…).

## II.2. Les différents tissus du roseau phragmites

### *II.2.a. Roseau sec d'hiver*

Les coupes transversale et longitudinale effectuées sur une tige de roseau d'hiver sec permettent de distinguer les différents vaisseaux, leur diamètre et longueur et aussi leurs particularités. La Figure 78 présente les différents tissus retrouvés dans le roseau phragmites.

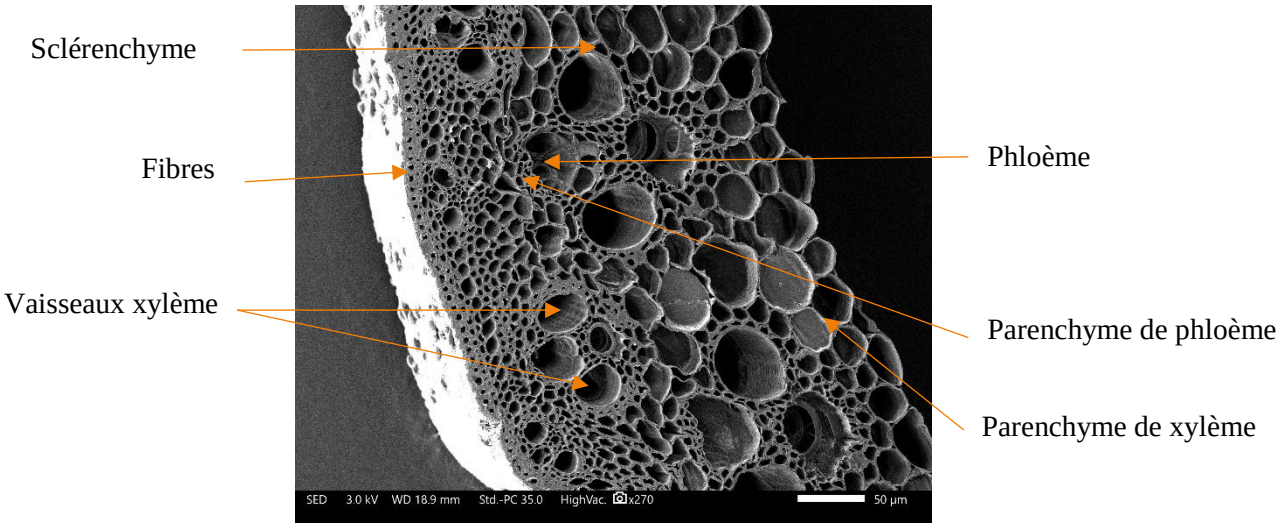



*Figure 78 Les différents tissus du roseau phragmites d'hiver*

On distingue tout d'abord les tissus fondamentaux, les parenchymes, qui servent pour la photosynthèse et le stockage des nutriments. Le parenchyme est représenté par des cellules isodiamétriques à parois fines.

Le second type de tissus agit en soutien ; il s'agit du sclérenchyme qui protège également la plante. Les parois de ses cellules sont épaisses et imprégnées de lignine ce qui leur permet un rôle de soutien de la tige.

Il y a ensuite les tissus conducteurs représentés par le xylème et le phloème. Le xylème est composé de vaisseaux et trachéides qui permettent le transport de la sève brute (eau et sels minéraux). Les vaisseaux ponctués ou réticulés (Figure 79) sont formés de cellules séparées par des parois imprégnées de lignine (Figure 80). Les trachéides peuvent être annelées (Figure 79) ou spiralées (Figure 81) et sont moins riches en lignine que les vaisseaux. L'autre type de tissus conducteurs est le phloème qui conduit la sève produite riche en matière organique.

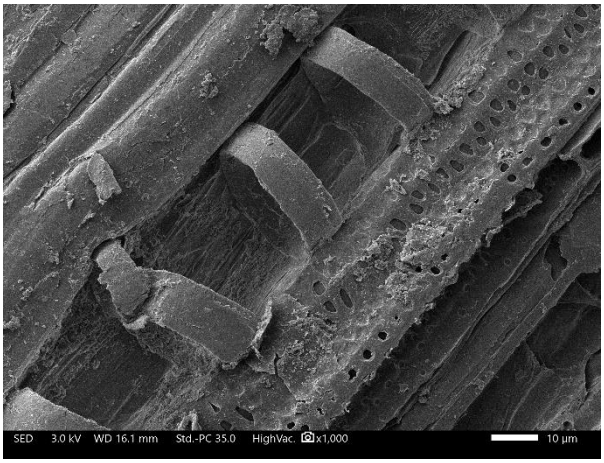



*Figure 79 Vaisseau de xylème ponctuée et trachéide annelée du roseau phragmites – Coupe longitudinale*

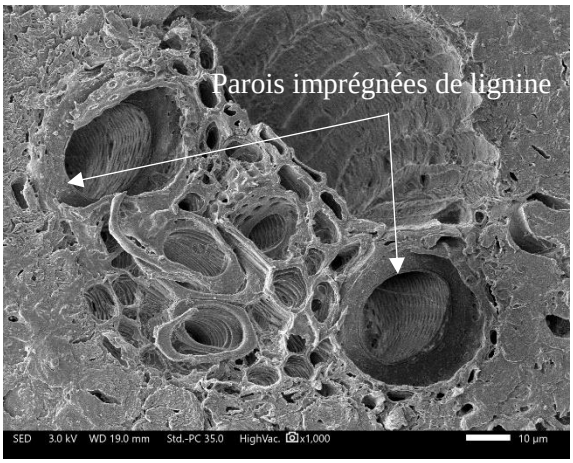



*Figure 80 Parois des vaisseaux de xylème ponctués – Coupe transversale*

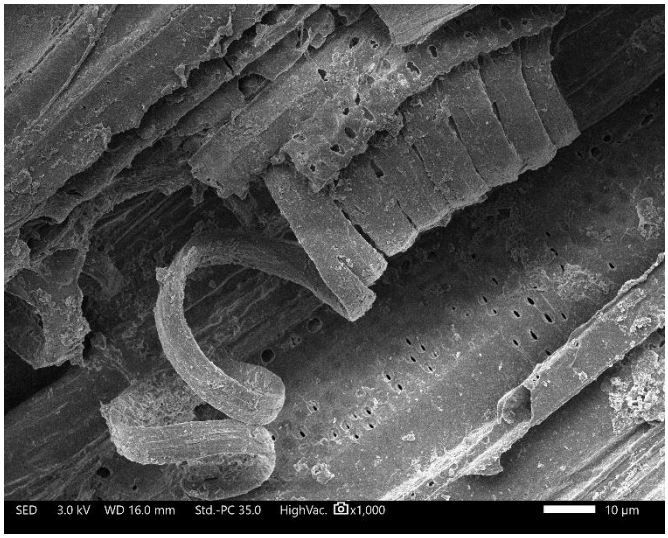



*Figure 81 Trachéide spiralée du roseau phragmites*

On retrouve les mêmes vaisseaux dans le roseau vert frais. La différence réside dans la présence de fibres en nombre plus important dans le roseau vert. Ces fibres sont visibles en Figure 82 et semblent donc disparaitre lorsque le roseau sèche pendant l'automne.

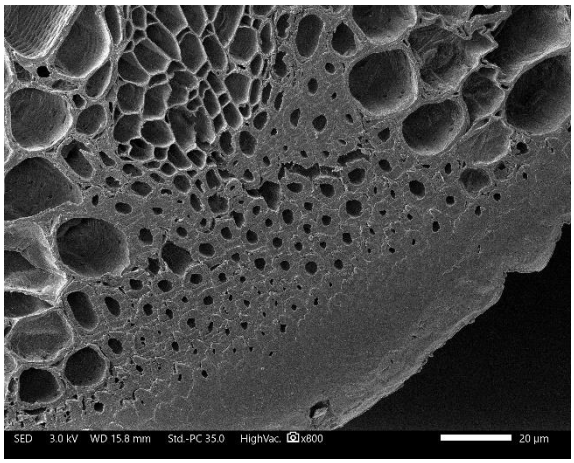



*Figure 82 Fibres dans le roseau vert frais*

### II.3. Comparaison avec la chènevotte

Une comparaison est faite entre la chènevotte et le roseau en coupe transversale en Figure 83 et Figure 84. La chènevotte étant broyée après récolte, il est difficile d'observer la totalité d'une tige ; cependant la répartition des cellules observées en Figure 84 permet d'imaginer l'ensemble de l'intérieur d'une tige. Les premières observations montrent des tailles de cellules assez similaires même si la répartition est différente.

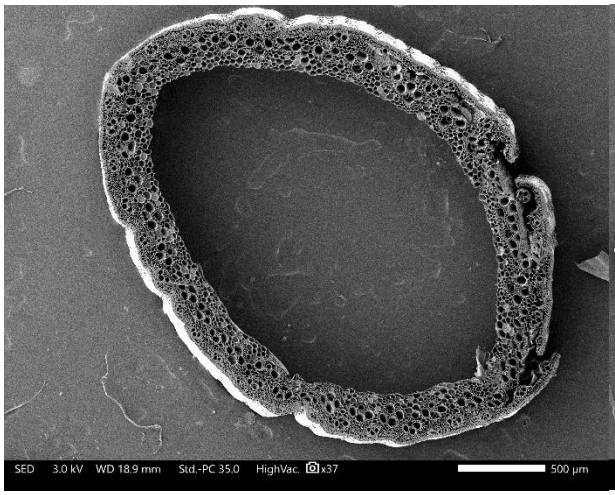



*Figure 83 Coupe transversale d'une tige de roseau d'hiver vue au MEB*

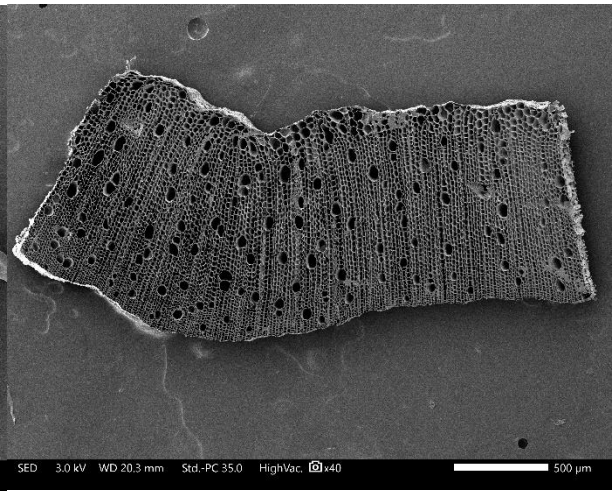



*Figure 84 Coupe transversale d'un granulat de chènevotte vue au MEB*

On retrouve dans la chènevotte les mêmes tissus que dans le roseau, à savoir les vaisseaux et trachéides de xylème (Figure 85) et en grande proportion les cellules parenchymateuses, de plus petit diamètre que les vaisseaux et trachéides (Figure 86). Toutefois, la structure et l'agencement des cellules de la chènevotte témoignent du caractère très poreux des granulats, bien plus poreux que le roseau phragmites qui n'a pas de moelle. Ces différences marqueront bien évidemment des particularités chez chacune des espèces végétales, phragmites et chènevotte, et seront détaillées dans la suite de cette partie avec la mesure des masses volumiques et des capacités d'absorption en eau.

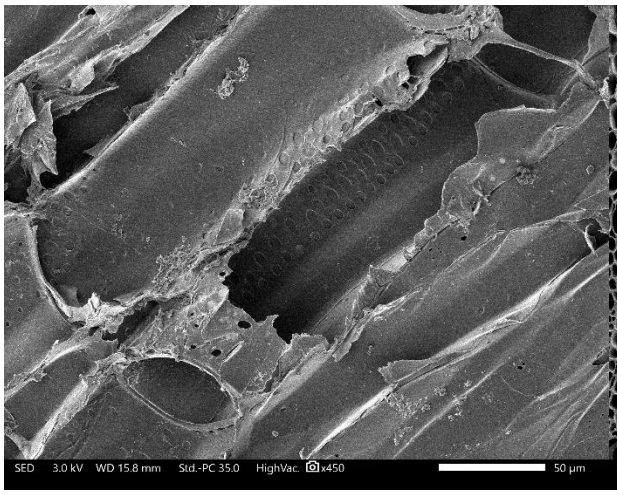



*Figure 85 Trachéide ponctuée de la chènevotte - Coupe longitudinale*

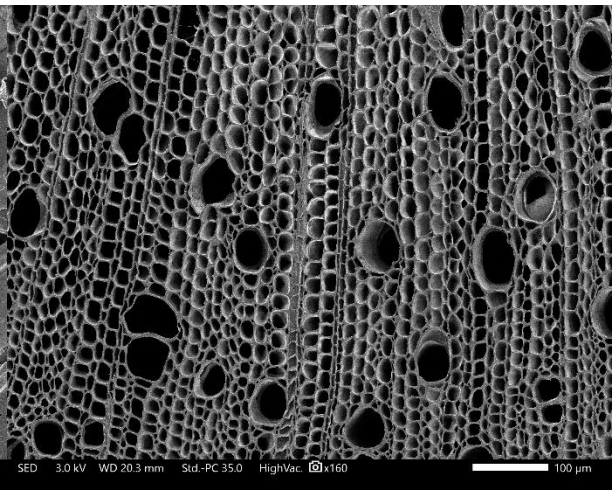



*Figure 86 Cellules parenchymateuses de la chènevotte - Coupe transversale*

## III. MASSES VOLUMIQUES

Il existe différents types de masses volumiques permettant de caractériser un granulat. La première est la masse volumique vrac de l'empilement des particules. Sur la Figure 87 sont représentés les différents types de porosités, à savoir les porosités inter particulaires, intra particulaires ouvertes et intra particulaires fermées, la masse volumique vrac incluant les trois types.

La seconde masse volumique correspond à la masse volumique particulaire, il s'agit de la donnée la plus complexe à mesurer car elle prend en compte les porosités fermées du matériau dont le volume est assez difficile à mesurer. La masse volumique particulaire est la masse d'une particule sur son volume apparent, le volume étant représenté par la paroi cellulaire et les porosités intra particulaires ouvertes et fermées. La mesure du volume d'une particule est complexe dans le sens où un granulat n'a pas une forme parfaite. Faire l'hypothèse d'une particule de forme parallélépipédique et utiliser la largeur pour l'épaisseur est trop approximatif.

La troisième et dernière masse volumique se rapporte à celle des parois (en orange sur la Figure 87). Les granulats sont broyés le plus finement possible pour ouvrir toutes les porosités et sont ensuite analysés au pycnomètre à gaz.

Deux de ces trois masses volumiques ont été mesurées sur les échantillons de roseaux et de chènevotte. Par manque de temps, la masse volumique des parois a été mesurée seulement pour les roseaux de Brenne et Bretagne (les premiers échantillons reçus). Ces mesures ont été réalisées par le service de Recherche & Développement de l'Institut UniLaSalle à Mont-Saint-Aignan (76).

Les mesures de masses volumiques apparentes ont été réalisée à l'IRDL d'après le protocole de la RILEM [83].

Pour cela, les granulats sont au préalable séchés en étuve à 60°C jusqu'à masse constante. La mesure est réalisée avec un récipient cylindrique en verre dont la hauteur est deux fois supérieure au diamètre. 100g de granulats secs sont placés dans le récipient et renversés dix fois avant d'égaliser la surface et de marquer le niveau. Le récipient est ensuite vidé et rempli jusqu'au niveau avec de l'eau pour être pesé. Connaissant la masse volumique de l'eau, le volume occupé par les granulats est facilement calculable. Cette mesure est répétée trois fois pour chaque échantillon. La masse volumique ($\rho\ app$) est ensuite calculée d'après l'équation suivante :

$$\rho\ app = \frac{M_g \times \rho_{eau}}{M_{eau}} \qquad \textit{Équation 23}$$

Avec

$$M_g : masse\ des\ granulats$$

$$\rho_{eau} : masse\ volumique\ de\ l'eau$$

$$M_{eau} : masse\ d'eau\ ajoutée\ jusqu'au\ niveau\ des\ granulats$$

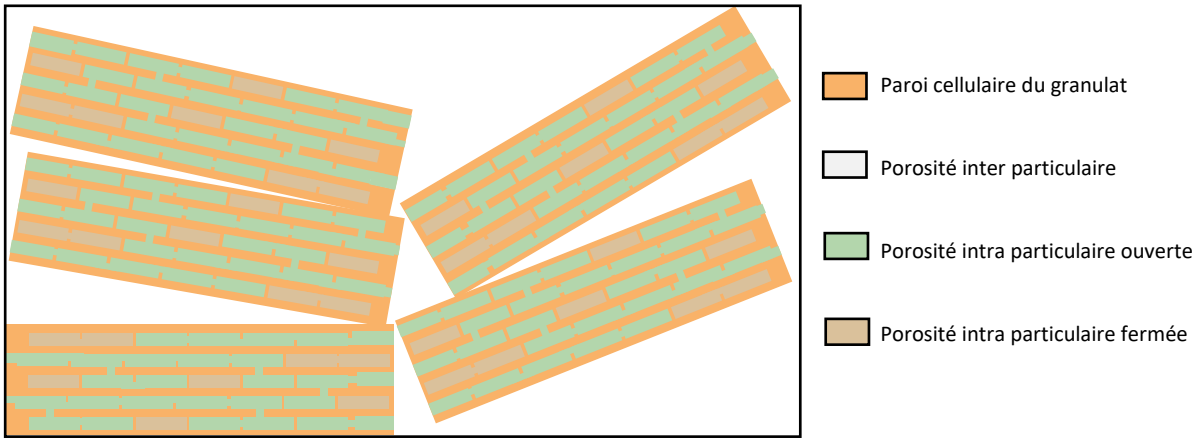



*Figure 87 Description des différents types de porosités de granulats végétaux en vrac d'après* [157]

### III.1. Masse volumique des parois

Les mesures de masse volumique des parois pour les échantillons de roseaux et la chènevotte ont été réalisées à l'aide d'un pycnomètre Pycnometric Evo de Thermoscientific, utilisant l'Argon comme gaz. Pour cela, les granulats doivent être broyés très finement afin d'ouvrir les porosités fermées. La mesure donnera alors la masse volumique des parois ; les résultats sont donnés en Figure 88. Les valeurs obtenues sont proches de la masse volumique de la cellulose qui est de 1500 kg/m$^3$ et qui représente le composé majoritaire dans ces végétaux. Les valeurs sont plus faibles pour les phragmites que pour la chènevotte.

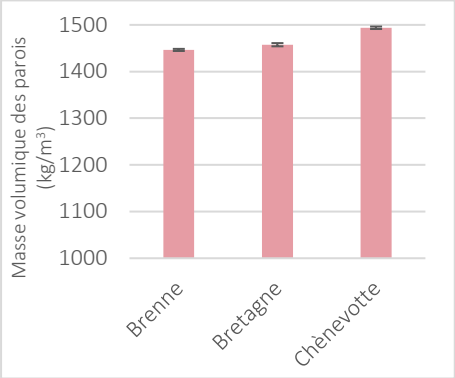



*Figure 88 Masses volumiques des parois des roseaux de Brenne et Bretagne et de la chènevotte*

### III.2. Masse volumique vrac

La masse volumique vrac a été mesurée pour tous les échantillons utilisés dans le Chapitre 4 sur la valorisation du phragmites dans l'écoconstruction. Les résultats sont présentés en Figure 89.

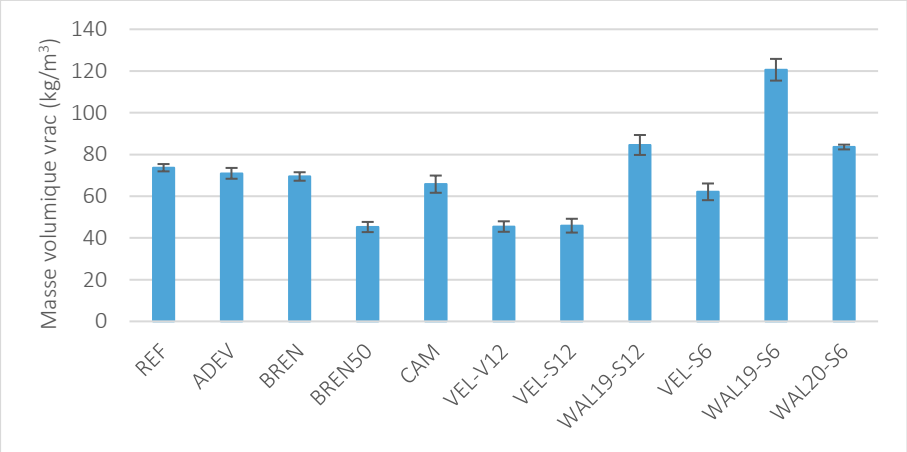



*Figure 89 Masses volumiques des différents échantillons pour l'application en construction*

Comme nous pouvons le voir, les masse volumiques vracs des roseaux sont du même ordre de grandeur que la chènevotte (REF) et trois catégories se distinguent : la première regroupe les plus petites masses volumiques avec BREN50, VEL-V12 et VEL-S12, la seconde regroupe ADEV, BREN, CAM et VEL-S6 qui ont des masses volumiques apparentes comprises entre 60 et 70 kg/m3. La troisième regroupe les masses volumiques supérieures à 80 kg/m3, il s'agit des granulats WAL19-S12, WAL19-S6 et WAL-S6.

La masse volumique vrac est en partie liée à la granulométrie (Figure 90). Généralement, plus le granulat est petit (L/D faible) et plus l'agencement entre particules est facilité ; ainsi pour un même volume la masse de petits granulats sera plus importante que celle de plus gros granulats.

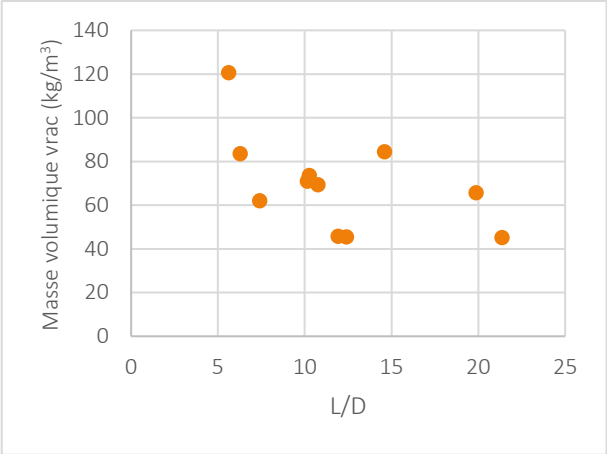



*Figure 90 Lien entre le rapport L/D des granulats et leur masse volumique*

## IV. CAPACITÉ D'ABSORPTION D'EAU

La capacité d'absorption d'eau est également mesurée d'après le protocole proposé par le comité technique RILEM [83]. Les granulats secs sont pesés (20 g), mis dans des filets (collants en polyamide) et noués, avant d'être immergés dans de l'eau à 20°C pendant différentes durées (1 minute, 15 minutes, 2 heures et 48 heures). À chaque échéance, l'échantillon est essoré à l'aide d'une essoreuse à salade pendant une minute puis retiré du filet et pesé. Pour chaque échantillon et chaque temps d'immersion, la capacité d'absorption d'eau notée $W_t$ est calculée selon l'équation suivante :

$$W_t(\%) = \frac{M_t \times M_0}{M_0} \times 100$$ *Équation 24*

Avec

$M_t$: *masse des granulats après le temps d'immersion t*

$M_0$ : *masse de granulats secs*

Les courbes d'absorption pour chaque type de granulat sont présentées en Figure 91.L'évolution de l'absorption d'eau des granulats en fonction du temps d'immersion est donnée par l'équation ci-dessous :

$$W_t(\%) = C_A \,.\log(t) + W_0$$ *Équation 25*

Avec

$C_A$: *coefficient d'absorption d'eau des granulats*

$W_0$ : *absorption d'eau initiale à la surface des granulats*

Pour mieux visualiser l'absorption à saturation des granulats, c'est-à-dire après 48 heures d'immersion, le diagramme en Figure 92 reprend les valeurs du graphe en Figure 91.

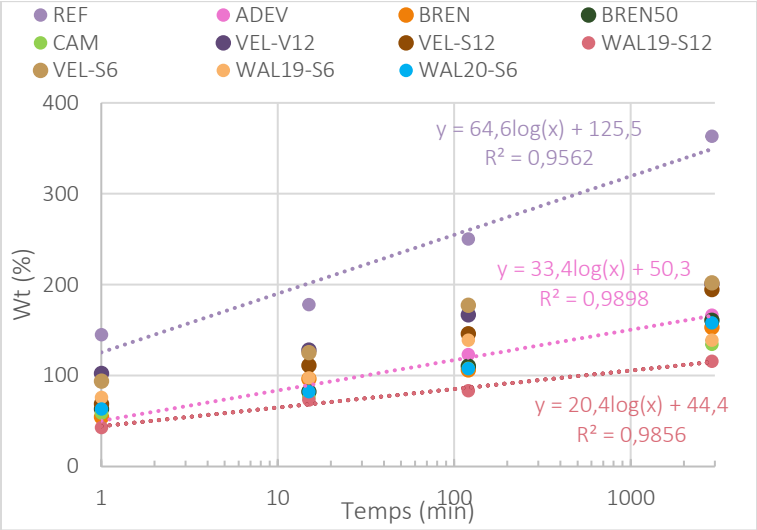



*Figure 91 Courbes d'absorption des différents granulats de roseau et la référence*

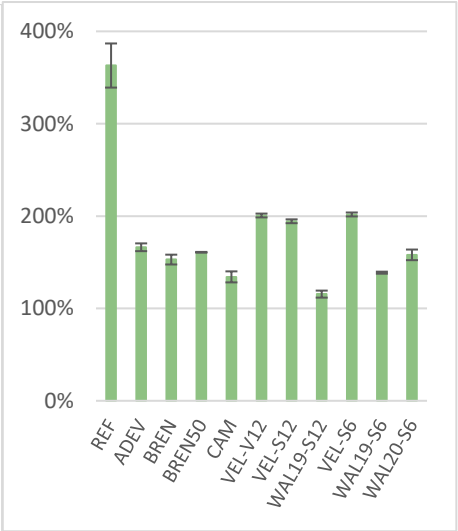



*Figure 92 Absorption à saturation des granulats de roseau et la référence*

La première observation qui ressort de ces analyses est que les roseaux se démarquent de la référence par leur faible absorption. La chènevotte de chanvre absorbe plus de 360 % d'eau tandis que le roseau phragmites absorbe moins de 200 % d'eau avec une cinétique plus lente. En effet, le coefficient d'absorption est deux fois plus faible pour les échantillons de roseau commun que pour la chènevotte. De même l'absorption d'eau initiale en surface des granulats de chènevotte est plus de deux fois supérieure comparée à celle des granulats de Phragmites australis. Parmi tous les échantillons de phragmites trois catégories se distinguent :

- Les granulats peu absorbants : CAM, WAL19-S12 et WAL19-S6
- Les granulats moyennement absorbants : ADEV, BREN, BREN50 et WAL20-19
- Les granulats absorbants 200 % d'eau : le roseau de Velving (VEL-V12, VEL-S12 et VEL-S6)

Nous pouvons également remarquer que la taille des granulats n'a pas d'incidence sur la quantité d'eau absorbée. En effet, les échantillons BREN et BREN50 ainsi que VEL-S12 et VEL-S6 absorbent la même quantité d'eau, bien que de granulométries différentes. Une légère différence est observée pour les échantillons WAL19-S12 et WAL19-S6 où ce sont les granulats de 6 mm qui absorbent le plus.

Pour ce qui est de la cinétique d'absorption, visible en Figure 93 pour les granulats de Velving et Waldhouse broyés à 6 et 12 mm, la taille des granulats a une influence sur la vitesse d'absorption. En effet, les granulats de 6 mm absorbent plus rapidement l'eau et ont déjà atteint 50 % de l'absorption finale après 1 min d'immersion contre 35 % pour ceux de 12 mm. Les granulats WAL19-S6 atteignent la valeur maximale d'absorption dès deux heures d'immersion dans l'eau. Cette différence peut provenir de la surface spécifique plus grande pour les petits granulats que pour les grands, l'eau s'infiltre donc plus rapidement.

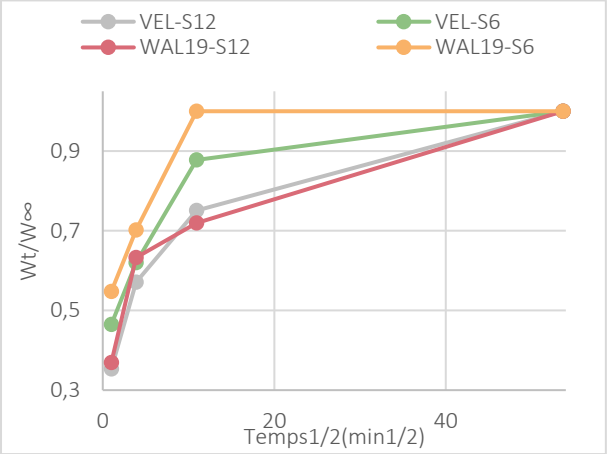



*Figure 93 Cinétique d'absorption des granulats de Velving et Waldhouse en 6 et 12 mm*

Nous notons que la capacité d'absorption d'eau des granulats est liée au taux de silicium étudié dans la partie II.1. En effet, nous observons en Figure 94 que plus la teneur en silicium augmente dans le végétal et plus l'absorption d'eau de celui-ci sera faible. Ce résultat témoigne de l'influence du silicium dans l'hydrophobie relevée du *Phragmites australis*.

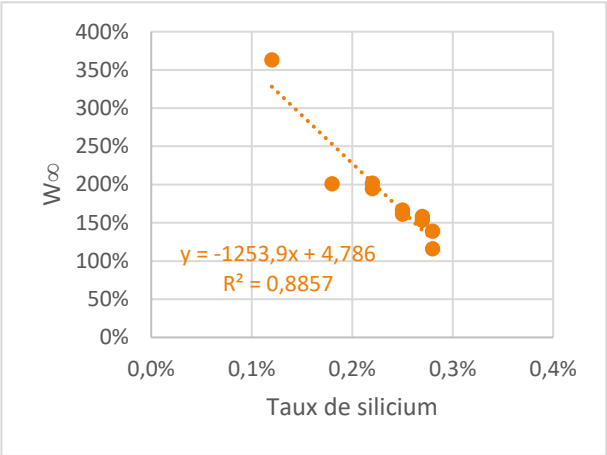



*Figure 94 Lien entre l'absorption d'eau des granulats et leur taux de silicium*

## CONCLUSION

La détermination des caractéristiques physiques et chimiques est un élément clef dans l'étude d'un végétal dans le but d'une valorisation dans différents domaines.

Ce chapitre 2 décrit toutes les caractérisations réalisées sur les deux formes d'échantillons de *Phragmites australis* (farines ou granulats) selon la voie de valorisation étudiée (plasturgie ou écoconstruction) ainsi que sur les références : le bois, le miscanthus et la chènevotte de chanvre.

Les caractéristiques intrinsèques du matériau *Phragmites australis* ont été déterminées, comme la composition chimique en solubles/extractibles, cellulose, hémicellulose et lignine ainsi que les minéraux. Une attention particulière est portée sur les méthodes de dosage utilisées et les erreurs de mesure que celles-ci comportent selon l'espèce végétale analysée. Les teneurs en silicium et sodium sont également évaluées, le silicium ayant un rôle dans l'hydrophobie constatée du *Phragmites australis* et le sodium indiquant la teneur en sel dans l'eau dans laquelle a évolué le roseau commun.

Certaines caractérisations ont été réalisées sur les deux types d'échantillons comme la répartition granulométrique, évaluée par analyse d'images, et l'adsorption de vapeur d'eau pour le tracé des courbes de sorption des granulats et farines. Une comparaison des courbes est réalisée selon la taille de granulats avant de conclure sur les comportements observés selon l'espèce végétale.

Selon la voie de valorisation, la caractérisation est différente. Pour le volet Plasturgie, deux farines de phragmites venant de Bretagne et du parc de la Brenne ont été étudiées en température par des analyses thermogravimétriques en isotherme et en dynamique afin d'évaluer la stabilité thermique de ces farines avant compoundage par extrusion. La mouillabilité des farines a également été déterminée, dans un premier temps pour évaluer le caractère hydrophobe du roseau commun et dans un second temps pour comprendre les différences de compatibilité potentielles entre les charges et les matrices. Pour cela, deux méthodes ont été utilisées, la méthode de Washburn dite indirecte et la méthode de la goutte sessile qui est une méthode directe. La valorisation du roseau en plasturgie sera étudiée dans le chapitre 3. Les analyses thermogravimétriques confirment que la tenue en température du roseau commun est suffisante et comparable au bois et au miscanthus pour la faisabilité des formulations PP-farine de roseau.

La dernière partie de ce chapitre concerne la caractérisation des granulats pour le volet écoconstruction. Cette partie est réalisée avec un plus grand panel d'échantillons de roseaux phragmites pour tenter de comprendre l'influence du lieu et des périodes de fauche et de récolte ainsi que de la taille des granulats. Ainsi cinq lieux de récolte dans des parcs naturels français sont étudiés, du roseau de Bretagne, Brenne, Camargue, Waldhouse et Velving. Les taux de poussières ainsi que les masses volumiques vracs de tous les échantillons y compris la référence (chènevotte) sont évalués. Les morphologies de roseaux (vert/sec) sont observées au MEB et comparées à celles de la chènevotte.

Enfin, l'absorption des granulats est déterminée afin de mettre en lien les différentes caractéristiques des échantillons et leur capacité à absorber l'eau.

Cette série des caractérisations nous permet d'établir plusieurs conclusions quant aux propriétés du roseau *Phragmites australis*, la principale étant son caractère hydrophobe. En effet, à travers les mesures de mouillabilité et l'analyse des courbes de sorption et d'absorption d'eau des granulats, le roseau commun présente une certaine résistance à l'humidité et donc à l'eau, comparé aux références : le bois, le miscanthus et la chènevotte de chanvre. Cette hydrophobie pourrait être expliquée par la forte présence de silicium mais cela ne reste qu'une hypothèse et le mécanisme d'action reste encore à étudier.

La variabilité concernant le lieu de récolte n'a pas d'influence significative sur les propriétés des granulats, mis à part qu'elle distingue le roseau de Camargue ayant évolué dans des eaux salines. La taille des granulats n'a pas d'incidence sur la quantité d'eau absorbée par les échantillons mais semble jouer un rôle sur la cinétique d'absorption ; plus la taille de granulats est petite et plus l'absorption est rapide. De la même manière, plus le granulat est broyé finement et plus le taux de poussière est grand. Concernant la composition chimique, le lieu et la période de récolte n'ont pas de forte incidence sur les teneurs en cellulose, hémicellulose et lignine. La différence se fera au niveau des solubles ; un roseau coupé vert et laissé sur place pendant quelques mois subira un rouissage et verra donc sa quantité d'extractibles diminuer.

L'ensemble de ces analyses confirment l'éligibilité probable du roseau phragmites pour les deux voies de valorisation étudiées dans cette thèse. La suite de ce manuscrit décrira l'ensemble de l'étude en plasturgie dans le Chapitre 3 et l'étude de la valorisation du roseau en écoconstruction dans le Chapitre 4.

# CHAPITRE 3 : ÉTUDE DE LA VALORISATION DU ROSEAU *PHRAGMITES AUSTRALIS* EN PLASTURGIE

# INTRODUCTION

La première voie de valorisation envisagée pour le roseau *Phragmites australis* est le domaine de la plasturgie et plus précisément celui des composites. Un composite est un matériau constitué d'au moins deux composants (matrice et renforts/charges) dont les propriétés sont complémentaires. Deux types de matrices polymères existent, les thermodurcissables et les thermoplastiques, de la même manière que plusieurs familles de renforts/charges peuvent être utilisées.

Le roseau phragmites ne contient pas (ou très peu) de fibres. Il sera donc utilisé uniquement en tant que charge avec des granulométries variables dans des composites. À ce jour, beaucoup d'études portent sur les composites à base de farine de bois, c'est pourquoi ce matériau sera utilisé comme référence dans cette partie. De même pour le miscanthus, le roseau de culture, très étudié ces dernières années et dont les propriétés se rapprochent de celles du *Phragmites australis* (Cf Chapitre 2). La première partie de ce chapitre sera dédiée à une revue de la littérature scientifique sur les bio-composites : nature des matrices et des renforts avec un focus sur les travaux concernant le phragmites, le miscanthus et le bois .

La seconde partie de ce chapitre présentera les deux matrices thermoplastiques choisies, polypropylène et polybutylène succinate, les formulations réalisées, ainsi que les procédés de mise en œuvre et mise en forme. Nous détaillerons aussi dans cette partie les différentes techniques utilisées pour les caractérisations mécaniques et physico-chimiques des composites.

La troisième et dernière partie de ce chapitre développera l'ensemble des résultats de ce volet plasturgie. Les composites chargés en farine de roseau phragmites seront comparés à ceux chargés en farine de bois et en farine de miscanthus d'un point de vue des propriétés en traction, flexion et choc Charpy. La caractérisation se fera également au niveau physico-chimique et plus précisément en absorption d'eau, un critère important dans le vieillissement d'un composite chargé en farine végétale.

# PARTIE 1 REVUE DE LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE

Cette partie est dédiée à une revue des travaux scientifiques existants sur les bio-composites, les matrices polymères étudiées ainsi que les charges. Nous présenterons également les formulations communément réalisées et qui ont orienté nos travaux pour le volet plasturgie.

## I. CATÉGORIES DE MATRICES POLYMÈRES

Pour l'élaboration d'un composite, le choix de la matrice va dépendre de l'application et du procédé de mise en œuvre visés.

*Les thermodurcissables*

Pour la fabrication de composites contenant des charges ou des fibres végétales, les matrices phénoliques, époxy et polyesters insaturés sont les plus utilisées [84]. De manière générale, les matrices thermodurcissables (TD) ont un meilleur mouillage des fibres naturelles dû à leurs groupements hydrophiles et une grande stabilité thermique une fois polymérisées. De plus, les composites réalisés avec des matrices thermodurcissables sont plus résistants chimiquement [85] et mécaniquement. Les formulations de composites à matrice TD ne se font pas à température élevée ce qui permet de ne pas dégrader les composés présents dans les végétaux. Cependant, ces matrices ne sont pas recyclables, elles sont à utiliser lorsque les propriétés des matrices thermoplastiques atteignent leurs limites. Dans une démarche de développement durable et de responsabilité écologique, il semble plus logique de s'orienter vers une utilisation de matrices thermoplastiques et donc recyclables, voire même biodégradables

*Les thermoplastiques*

- Les non biodégradables

Parmi les polymères thermoplastiques utilisés en plasturgie, les polyoléfines[13] sont les plus fréquemment employées avec le polyéthylène (PE) et le polypropylène (PP). Le PE peut être sous la forme HDPE (High Density PolyEthylene) ou LDPE (Low Density PolyEthylene). Issus de la pétrochimie principalement, il s'agit de deux chaînes polymères apolaires avec des taux de cristallinité pouvant varier. Le PE peut également être biosourcé ; depuis 2010 la société Braskem située au Brésil produit un PE à partir de l'éthanol issu de la canne à sucre [86]. Cependant, bien que ce PE soit recyclable et biosourcé, il n'est pas biodégradable; ses propriétés restent inchangées et seul le mode de synthèse le distingue du PE pétro-sourcé. En plasturgie, d'autres matrices comme le Nylon 6,6 [87] ou le

[13] Polymère aliphatique saturé issu de la polymérisation d'un alcène tels que l'éthylène et le propylène.

polystyrène expansé [88], recyclé ou non, sont étudiées et utilisées, dans l'industrie de l'automobile par exemple. Il existe également des polymères à la fois biosourcés et biodégradables.

- Les bioplastiques

Le terme « Bioplastique » désigne soit un polymère biosourcé, soit un polymère biodégradable, soit les deux (Figure 95)

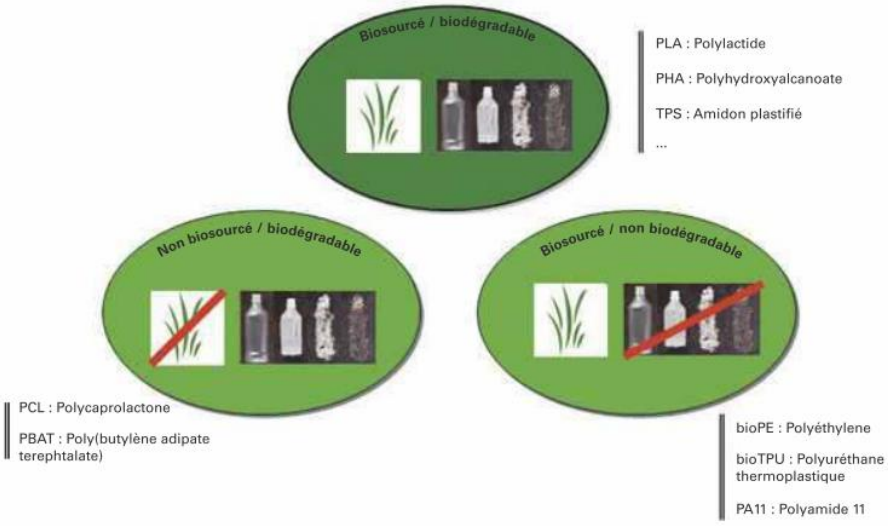



*Figure 95 Ensemble des polymères décrit par le terme bioplastique* [158]

Il existe différents types de polymères biodégradables : les polyesters tels que le PGA (Poly (Glycolic Acid)) et le PLA (Poly (Lactic Acid)) qui est un dérivé de l'amidon obtenu par condensation directe (fermentation du glucose) ou par l'intermédiaire d'un dimère cyclique (lactide). Le PHBV (Poly (HydroxyButyrate-co-hydroxyValerate)) est également un polyester produit par des micro-organismes [89] de même que les PHA (PolyHydroxyAlcanoates). Le PBS quant à lui est synthétisé à partir d'acide succinite pétro-sourcé ou biosourcé (sucres issus de la biomasse). Le PU (PolyUréthane) fait partie des polymères pétro-sourcés et biodégradables ainsi que tous les PCL (PolyCaproLactone) et les PEA (PolyEsterAmide). On retrouve également dans les polymères biodégradables et biosourcés tous les polysaccharides (cellulose, amidon, pectines, alginate…etc) et les protéines qui sont produits à partir de la biomasse.

Pour les travaux de la thèse, nous avons choisi de travailler avec le PBS. D'après la Figure 96 qui compare les propriétés du PBS à celles des PLA et PBAT pour des bio-composites, il apparait que l'un des principaux avantages du PBS est sa très bonne compatibilité avec les charges végétales grâce à ses fonctions ester.

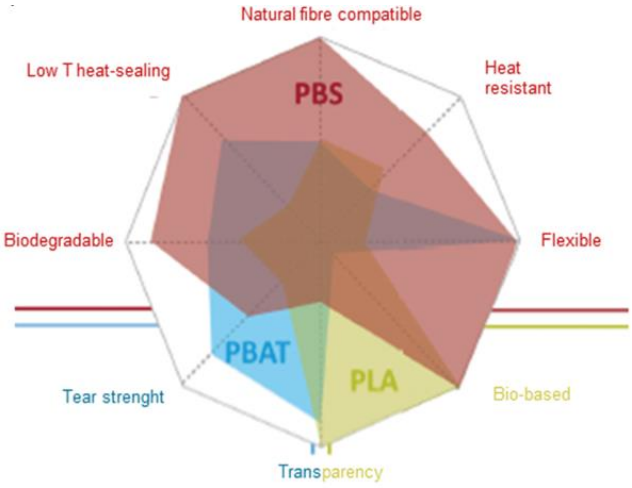



*Figure 96 Comparaison des propriétés de trois polymères biodégradables* [159]

## II. RENFORTS ET CHARGES UTILISÉS DANS LES BIO-COMPOSITES

Dans la présente étude, nous utilisons les végétaux en tant que charges, sous forme de farine. Très peu d'études traitent de ce type de matériaux biosourcés dans les composites ; c'est pourquoi dans un premier temps notre revue de littérature s'est tournée vers les fibres. Celles-ci sont divisées en deux catégories, naturelles et synthétiques, elles-mêmes divisées en sous-catégories (Figure 97). Pour notre étude, nous nous sommes intéressés exclusivement aux fibres naturelles.

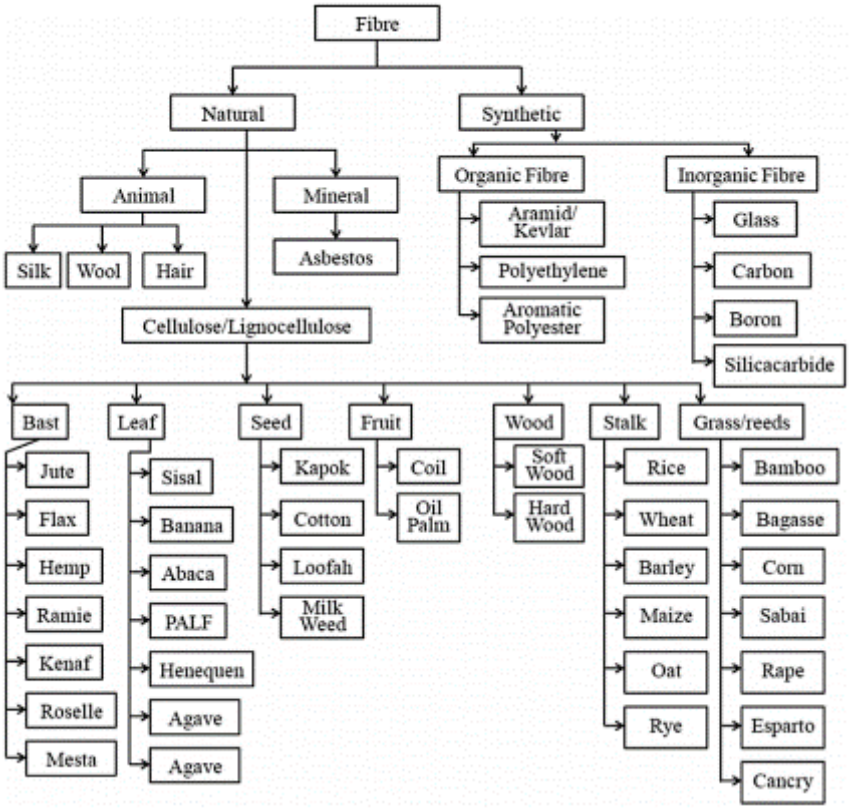



*Figure 97 Classification des fibres naturelles et synthétiques* [92]

*Les différents types de fibres naturelles*

Les fibres naturelles sont classées suivant trois catégories fondées sur leur origine [90] : minérale, animale et végétale (lignocellulosiques).

Les fibres minérales sont à base de silicium, majoritairement de l'amiante et du basalte et les fibres animales peuvent être de la laine, de la soie ou de la toile d'araignée et des poils. Ce dernier type de fibres, bien que très intéressant d'un point de vue propriétés mécaniques [91], est très peu utilisé du fait du prix élevé de la matière première et de la faible production. Il reste alors la plus grande catégorie de fibres naturelles que sont les fibres de types lignocellulosiques, c'est-à-dire faites de lignines, cellulose et hémicelluloses, trois polymères naturels; elle est divisée en sept familles: le bois, les herbes, les fibres libériennes[14], les fibres issues des tiges, des feuilles, des graines et celles issues du fruit [92]. Dans ces familles se trouvent le chanvre, le lin, le kénaf, le coton, le sisal et la coco, qui sont les plus étudiées dans le monde de la Recherche [92]. Le roseau phragmites appartient à la catégorie des herbes et cannes tout comme le bambou (Figure 97).

- Les fibres lignocellulosiques

Les fibres lignocellulosiques sont utilisées depuis des milliers d'années sous diverses formes, comme dans l'Égypte ancienne où de la paille était mélangée à de l'argile pour la construction, mais aussi dans les textiles lorsque le lin tissé était utilisé en couture ou cordage. Ce n'est que depuis quelques années qu'un intérêt pour l'étude des fibres végétales dans des bio-composites a émergé, aidée par des enjeux environnementaux visant à réduire les quantités de matières pétro-sourcées. Les fibres végétales sont également intéressantes car elles possèdent un faible coût et une grande disponibilité, en plus d'être biodégradables. Il y a autant de propriétés différentes, morphologiques comme mécaniques, qu'il y a de fibres végétales disponibles dans la nature. Ces propriétés dépendent de la structure de la plante et de son environnement de croissance ; la composition chimique déterminera la structure du végétal et l'environnement pourra développer chez la plante des propriétés telles que l'hydrophobie ou la résistance au vieillissement. Selon l'application envisagée, il sera plus intéressant d'utiliser une fibre plutôt qu'une autre.

Actuellement, les végétaux dans les composites les plus étudiés et utilisés sont le chanvre, le lin et le bois. Le chanvre et le lin possèdent des fibres libériennes de deux types : externes longues et internes ligneuses. Ces deux plantes peuvent être cultivées partout dans le monde et sont utilisées principalement pour leur résistance mécanique mais aussi en raison de leur grande disponibilité. Les fibres extraites sont employées pour réaliser des composites à fibres longues dans le secteur

[14] Fibres contenues dans l'écorce de la plante

automobile par exemple [93], ou dans le textile, alors que la chènevotte de chanvre ou les anas de lin, issus du cœur de la tige, sont utilisés dans la construction comme isolant ou bien sous forme de béton [94] ou terre allégée [95]. Le bois est utilisé dans les composites sous forme de farine (sciure) issue des déchets de scieries principalement [96]–[98]. Dans ce cas, il représente une charge, qui n'est pas supposée renforcer le composite, mais apporte d'autres propriétés : augmentation du contenu carbone ou biosourcé, rigidité, abaissement de la masse volumique, esthétique.

Le roseau phragmites est une plante à fibre non libérienne. La plante sèche sera donc elle aussi broyée et utilisée sous forme de farine. L'étude des fibres longues pour renforts ne sera donc pas détaillée dans ce travail de thèse. Dans la suite de ce chapitre, le terme charge sera privilégié au terme fibre pour éviter toute confusion.

Les particules végétales sous forme de charges auront un impact plus faible au niveau des propriétés mécaniques du composite que les fibres longues. Beaucoup de plantes sont actuellement étudiées pour une valorisation dans des composites; il s'agit d'étudier le potentiel de chacune en évaluant la disponibilité et les propriétés. Parmi les plus étudiées il y a l'abaca (espèce de bananier), le bambou, la coco, le jute, le kénaf, la ramie, la sisal (fibre extraite des feuilles de l'agave), le miscanthus et le bois [99]. Le bois étant la charge la plus étudiée [96], [98], [100], elle servira de référence pour l'étude ainsi que le miscanthus dont nous avons vu des similarités de propriétés avec le phragmites dans le chapitre précédent.

## III. TRAVAUX SCIENTIFIQUES SUR LES BIO-COMPOSITES

### III.1. Vue d'ensemble des travaux sur le phragmites, le miscanthus et le bois

Le Tableau 14 présente une liste non exhaustive de travaux scientifiques sur des bio-composites à base de phragmites, miscanthus et bois qui ont orienté les travaux du volet plasturgie. Il s'agit d'une vue d'ensemble des articles les plus pertinents suivant les matrices utilisées ainsi que les formulations fabriquées. Certains résultats sont détaillés par la suite et analysés à la lumière de nos propres résultats expérimentaux.

| Charges | Polymère | Formulation | Longueur/Diamètre | | Étude | Analyses | Référence |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| *Phragmites australis* | PP<br>PP-g-MA<br>PLA<br>PLA-g-MA | 20-30-40% charges<br>0-2-5% compatibilisant | 1,19 mm | 0,23 mm | Influence du taux de charges et de la compatibilisation | Nanoindentation, traction, morphologie MEB | [101] |
| | PHBV<br>5 % PHV | 2-5-10 % charges | 1,5-2 mm | | Influence du taux de charges | ATG, DSC, morphologie | [102] |
| | HDPE | 2,6-4-10% charges | 1,4 mm | | Influence du taux de charges | DSC, Rhéologie, Traction, morphologie MEB | [103] |
| Miscanthus (variété non communiquée) | PP<br>PLA | 20-40 % charges | 2-10 mm | | Influence du traitement corona sur la cohésion charges/matrice | MEB, tomographie, Traction, DMA | [104] |
| Miscanthus (M. x giganteus, M. sinensis, M.sacchariflorus) | PP<br>PP-g-MA | 30 % charges<br>1,5 % PP-g-MA | 0-400 µm | | Influence de la variété de miscanthus et de la tailles des charges | Traction | [105] |
| Miscanthus sinensis (Silvergrass) | HDPE<br>PE-g-MA | 30-60 % charges<br>2-10 % PE-g-MA | 175 µm | | Influence du compatibilisant | Traction, flexion, DSC, MEB | [106] |
| Miscanthus giganteus | PVA | 25 % charges | 2-4 mm | | Influence de la dissolution des extractibles du miscanthus | Flexion | [107] |
| Bois (Paulownia) | PP<br>PP-g-MA | 25-40 % charges<br>0-10 % PP-g-MA | 143-1178 µm | 73-441 µm | Influence de la taille des particules | Traction | [108] |
| Bois | PP<br>PP-g-MA<br>PE<br>PE-g-MA | 10-50 % charges<br>3 % compatibilisant | 125-850 µm | | Composites à module d'élasticité et résistance aux chocs élevés<br>Influence de la taille des particules et de l'agent compatibilisant | Traction | [109] |

*Tableau 14 Travaux de la littérature scientifique pertinents pour la thèse*

### III.2. Influence de la taille de particules

Les particules de farines végétales présentent généralement une forme ellipsoïdale [75]. La granulométrie des farines végétales se situe entre 1 et 10 mm pour la longueur et 150 et 500 µm pour la largeur (ou diamètre) dans les publications étudiant les caractéristiques mécaniques des composites à base de particules végétales [96]. Il est observé que, pour un même taux de farine de bois ajoutée à une matrice PP, plus la taille de particules augmente, plus la résistance et la rigidité du matériau augmentent en traction comme en flexion [110]. En revanche, pour une farine de miscanthus giganteus ajoutée à une matrice PVA (Poly(Vinyl Acetate), les essais de flexion effectués avec deux longueurs différentes de particules, 2 et 4 mm, montrent une diminution de la résistance et du module pour les plus grandes longueurs [110]. Cette diminution du module d'élasticité et de la résistance reste inexpliquée. Nous n'avons trouvé aucune étude sur l'effet de la taille des particules de phragmites sur les propriétés d'un composite.

### III.3. Influence de la teneur en charges

Avec du bois dans une matrice polymère de type PE ou PP, lorsque le taux de charges augmente, pour une même taille de particules, le module d'élasticité en traction augmente de façon linéaire [111]. Pour du miscanthus dans du HDPE et pour des taux d'ajout allant de 10 à 60%, une diminution linéaire de la résistance en traction est observée lorsque le taux de fibres ajoutées augmente [112]. En effet, une mauvaise cohésion fibres/matrice empêche le transfert d'énergie et le matériau casse plus facilement. L'influence du taux de farine de phragmites a été évalué dans deux matrices, du PP et du PLA [101]; le module d'élasticité en traction du composite augmente lorsque le taux de farine augmente. La résistance maximale quant à elle reste constante pour 20, 30 et 40% massique de farine ajoutée. Ces observations sont faites pour les deux matrices.

## IV. COMPATIBILISATION MATRICE/CHARGES

Différentes études ont porté sur l'effet d'un agent compatibilisant (agent de couplage) sur les propriétés mécaniques d'un composite. Pour un composite PP/bois à 40% de bois, l'ajout de PP greffé anhydride maléique (PP-g-MA) à hauteur de 3% augmente la résistance en traction mais n'a pas d'impact sur le module de Young [110]. Pour le miscanthus dans du HDPE, pour un taux de fibres fixé à 30% et un taux d'agent compatibilisant (PE greffé anhydride maléique : PE-g-MA) variant, une teneur optimale de 8% est observée. Lorsque le taux d'agent est fixé à 8%, la résistance en traction est optimale pour un taux de farine de l'ordre de 40%. La résistance en flexion quant à elle augmente de

manière continue lorsque le taux de farine végétale augmente (jusqu'à 60% de taux massique de farine) [106]. Le même agent est testé pour des formulations PP/phragmites; l'ajout de 2% d'agent de couplage permet d'améliorer la résistance en traction du matériau. Pour un taux identique en farine et un taux d'agent variant de 2 à 5%, aucune modification du module n'est observée mais une légère augmentation de la résistance en traction apparait [101]. Pour des composites PLA/phragmites, le module d'élasticité en traction augmente avec l'ajout de 2% de compatibilisant à une formulation à 20% en roseau, mais aucune autre amélioration, du module comme de la résistance, n'est constatée pour un ajout à 5% pour les formulations à 20, 30 et 40% en farine (Figure 98).

| Sample | Tensile modulus (MPa) | Tensile strength at yield (MPa) | Elongation at break (%) |
|---|---|---|---|
| 100% PP | 1051 ± 18 | 25.2 ± 0.9 | 209.3 ± 35 |
| 98% PP–2% PP-g-MA | 1108 ± 43 | 26.5 ± 0.6 | 154.0 ± 23 |
| 95% PP–5% PP-g-MA | 1044 ± 31 | 25.6 ± 0.4 | 132.0 ± 17 |
| 80% PP–20% reed fibers | 1633 ± 48 | 21.4 ± 0.3 | 8.9 ± 1.4 |
| 70% PP–30% reed fibers | 2493 ± 112 | 21.3 ± 0.5 | 6.5 ± 1.0 |
| 60% PP–40% reed fibers | 2818 ± 182 | 20.8 ± 0.7 | 3.7 ± 0.9 |
| 78% PP–2% PP-g-MA–20% reed fibers | 2309 ± 130 | 25.8 ± 0.7 | 5.2 ± 1.1 |
| 68% PP–2% PP-g-MA–30% reed fibers | 2742 ± 49 | 27.2 ± 1.3 | 3.0 ± 0.2 |
| 58% PP–2% PP-g-MA–40% reed fibers | 3453 ± 161 | 29.1 ± 0.8 | 2.9 ± 0.4 |
| 75% PP–5% PP-g-MA–20% reed fibers | 2316 ± 156 | 28.0 ± 1.0 | 5.3 ± 0.5 |
| 65% PP–5% PP-g-MA–30% reed fibers | 2740 ± 143 | 29.6 ± 1.0 | 4.0 ± 0.5 |
| 55% PP–5% PP-g-MA–40% reed fibers | 3592 ± 131 | 27.2 ± 0.8 | 2.0 ± 0.3 |
| 100% PLLA | 3401 ± 101 | 60.4 ± 0.8 | 4.1 ± 1.3 |
| 98% PLLA–2% PLA-g-MA | 3635 ± 202 | 58.7 ± 1.0 | 5.8 ± 1.0 |
| 95% PLLA–5% PLA-g-MA | 3545 ± 78 | 48.2 ± 2.7 | 5.3 ± 1.2 |
| 80% PLLA–20% reed fibers | 4375 ± 93 | 42.2 ± 1.2 | 1.5 ± 0.1 |
| 70% PLLA–30% reed fibers | 5492 ± 126 | 43.4 ± 1.4 | 1.3 ± 0.1 |
| 60% PLLA–40% reed fibers | 6652 ± 192 | 41.2 ± 1.5 | 0.9 ± 0.2 |
| 78% PLLA–2% PLA-g-MA–20% reed fibers | 5337 ± 200 | 40.8 ± 2.2 | 1.0 ± 0.1 |
| 68% PLLA–2% PLA-g-MA–30% reed fibers | 5342 ± 298 | 37.9 ± 1.3 | 0.8 ± 0.1 |
| 58% PLLA–2% PLA-g-MA–40% reed fibers | 6433 ± 113 | 39.3 ± 1.6 | 0.8 ± 0.1 |
| 75% PLLA–5% PLA-g-MA–20% reed fibers | 5278 ± 96 | 38.2 ± 2.1 | 1.2 ± 0.2 |
| 65% PLLA–5% PLA-g-MA–30% reed fibers | 5220 ± 115 | 39.3 ± 1.7 | 1.0 ± 0.1 |
| 55% PLLA–5% PLA-g-MA–40% reed fibers | 6457 ± 134 | 42.8 ± 1.1 | 0.8 ± 0.2 |

*Figure 98 Propriétés mécaniques des composites PP et PLA et différents taux de farine de phragmites avec ajout de compatibilisant* [101]

D'autres modifications peuvent être effectuées sur les fibres pour améliorer la cohésion fibres/matrice dans les composites. Un traitement corona est effectué sur des fibres de miscanthus avant formulation avec du PP et du PLA [104]; les taux d'ajout de fibres sont de 20, 30 et 40%. Le traitement des fibres permet d'augmenter le module d'élasticité ainsi que la résistance au seuil d'écoulement de ces composites. Les fibres peuvent également subir un traitement chimique à la soude pour créer des porosités et donc augmenter les interactions entre fibres et matrice [112]. De même avec un traitement aux isocynates PMDI (Polymeric Methylene Diphenyl diIsocyanate). Des fibres de miscanthus ainsi traitées sont ajoutées à une matrice HDPE et la comparaison est faite avec des composites HDPE/miscanthus non traité. La résistance en traction est augmentée pour les fibres traitées à la soude mais cette amélioration est significative que lorsque les fibres ont subi les deux traitements (NaOH et PMDI). Les résultats issus des publications sont difficilement comparables entre eux car trop de paramètres sont différents ; il sera donc important de fixer un maximum de ces paramètres pour tenter d'effectuer une comparaison. Dans la suite de nos travaux, chaque formulation

utilisant comme charge le roseau commun sera également réalisée avec les deux références, bois et miscanthus, afin de pouvoir étudier l'influence mais également l'éligibilité du phragmites en tant que charge.

La partie suivante présente les matériaux, les techniques de mise en forme et de caractérisation utilisées dans ce volet plasturgie.

# PARTIE 2 ÉTUDE EXPÉRIMENTALE : MATÉRIAUX ET MÉTHODES

## I. CHOIX DES FORMULATIONS

### I.1. Les matrices

Les matrices et compatibilisant utilisés pour l'étude de l'éligibilité du phragmites pour une utilisation en plasturgie ont été choisis d'après la littérature scientifique et sont présentés en Figure 99. Tout d'abord, une matrice pétro-sourcée, un copolymère de polypropylène fluide, le PPC 10642 de chez Total Petrochemicals (fiche technique en Annexe 1). Dans une démarche écoresponsable, il a également été utilisé une matrice biosourcée et biodégradable, le BioPBS™ FZ17PM de chez MCPP Mitsubishi Chemical (Fiche technique en Annexe 2). Le PBS est issu de la polymérisation d'acide succinique et de 1,4-butanediol, il s'agit d'un polyester semi-cristallin souple et flexible. Ce polymère est biosourcé car l'acide succinique est produit par la fermentation des sucres issus de canne à sucre, maïs ou manioc. Le 1,4-butanediol est également une molécule pouvant être synthétisée par fermentation de sucres.

Différentes formulations ont été réalisées afin d'étudier l'effet du taux de charges sur les propriétés mécaniques et physico-chimiques mais également l'influence d'un agent compatibilisant ajouté aux formulations à matrice PP. L'ajout de polypropylène greffé anhydride maléique (PP-g-MA), l'OREVAC® CA100/CA100N de chez Arkema (fiche technique en Annexe 3), a été étudié pour les différentes charges afin d'analyser l'effet de cet agent de couplage sur la cohésion charges/matrice.

| **Polypropylène** | **PolyButylène Succinate** | **PP-g-MA** |
|---|---|---|
| **PPC 10642** | **BioPBS™ FZ17PM** | **OREVAC CA100/CA100N** |

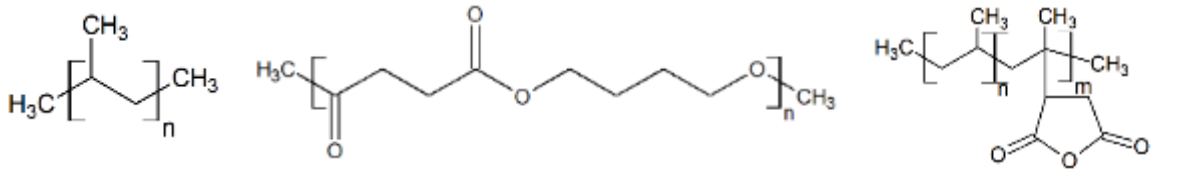



*Figure 99 Matrices et compatibilisant utilisés dans l'étude de la valorisation du phragmites en plasturgie*

### **I.2.** Les charges végétales

Comme évoqué précédemment, différentes charges ont été étudiées. Tout d'abord, deux roseaux phragmites, provenant de Brenne et de Bretagne, mais également du miscanthus giganteus, le roseau de culture, et du bois. Dans un but de comparaison des résultats et propriétés, chaque formulation a été réalisée avec les différentes charges. Les procédés de mise en œuvre et mise en forme seront présentés dans la partie II. Les différentes formulations sont détaillées dans la partie suivante.

### **I.3.** Formulations et nomenclature

Dans la suite de ce chapitre, les formulations seront désignées suivant une certaine nomenclature présentée dans le Tableau 15.

| **MM-CC00-G0** | | | | |
|---|---|---|---|---|
| **MM** : matrice | **CC** : Charges | **00** : Teneur massique en charges | **G** : Greffé | **0** : Teneur massique en compatibilisant |
| PP = PolyPropylène<br>PBS = PolyButylène Succinate | BO = Bois<br>BR = Brenne<br>BZ = Bretagne<br>MI = Miscanthus | 20 = 20 %<br>30 = 30 %<br>40 = 40 %<br>50 = 50 % | | 0 = 0 %<br>4 = 4 %<br>6 = 6 %<br>8 = 8 % |

*Tableau 15 Nomenclature des formulations composites*

Les formulations réalisées avec la matrice PP vont de 20 à 50 % en masse de charges, de même avec la matrice PBS. La compatibilisation charges/matrice avec l'ajout de PP-g-MA a été étudiée sur des formulations chargées à 30 %, le taux d'agent de couplage variant de 4 à 8 %. L'influence de la taille des charges a également été étudiée en réalisant des formulations PP chargées à 20 % utilisant trois fractions de roseau tamisé, à savoir 0 - 160, 160 - 315 et 315 - 500 µm.

## II. PROCÉDÉS DE MISE EN FORME

### **II.1.** Mélange des formulations par extrusion

L'extrusion est la technique la plus répandue en industrie pour effectuer le mélange de formulations composites à matrices polymères. Il s'agit d'une méthode continue utilisant une (ou deux) vis sans fin chauffée dans un fourreau thermo-régulé. La matière (mélange de granulés polymères et charges

végétales) est ajoutée par une trémie pour être acheminée par la vis vers une filière jonc. En sortie ce jonc est refroidi à l'air libre sur un banc de tirage avant d'être granulé. Une extrudeuse monovis Fairex a été utilisée pour la première campagne d'essais et, dans un souci de reproductibilité, pour toute la suite du projet.

Les farines et granulés de matrices sont étuvés au préalable avant la pesée des mélanges. Les formulations sont réalisées en fraction massique pour chaque constituant.

Les farines végétales ayant une masse volumique vrac très faible, leur volume est assez important dans les formulations. Un exemple est présenté en Figure 100 pour un mélange à 50 % massique en farine végétale.

*Figure 100 Mélange PBS / Farine de roseau 50 % massique*

Les paramètres du procédé d'extrusion (température et vitesse de vis) dépendent de la matrice et sont fournies dans le Tableau 16. Une fois les joncs granulés la deuxième étape consiste à injecter les composites sous forme d'éprouvette de traction normalisée.

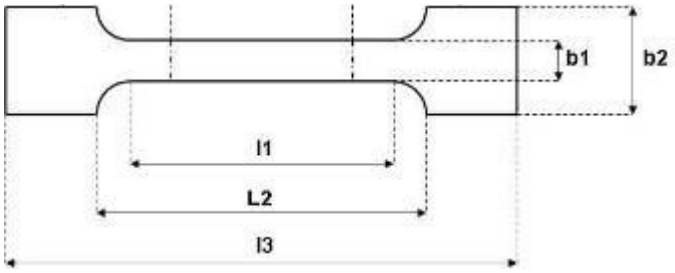
| Matrice | T °C extrudeuse | Vitesse de la vis |
|---|---|---|
| Polypropylène | 190°C | 22 - 26 tours/min |
| Polybutylène succinate | 140°C | 22 - 26 tours/min |

*Tableau 16 Conditions d'extrusion selon la matrice polymère*

### II.2. Injection d'éprouvettes

L'injection est une technique de mise en forme discontinue. Les presses à injecter sont composées de deux éléments principaux : une première zone de mélange avec une extrudeuse dont le principe est expliqué ci-dessus et une seconde zone constituée d'un moule permettant de fabriquer une éprouvette normalisée selon le Norme ISO 3167 (Figure 101). Ces éprouvettes seront utilisées pour les essais de traction détaillés dans le partie III.1.a, les essais de flexion dans la partie III.1.b et découpées sous forme de barreaux pour les essais de choc Charpy détaillés dans la partie III.1.c.

La matière (granulés de composite) est mise en fusion dans la vis puis injectée sous haute pression dans le moule fermé et refroidi.




b1 = 10 ± 0,2 mm b2 = 20 ± 0,2 mm L1 = 90 ± 2 mm L2 = 110 mm L3 = 178 mm Epaisseur = 4 ± 0,2 mm

*Figure 101 Schéma et dimensions d'une éprouvette normalisée ISO 3167*

Nous avons utilisé une presse Battenfeld de 80 tonnes. Selon la nature de la matrice mais également le taux de charges, certains paramètres peuvent être modifiés ; les conditions d'injection sont présentées dans le Tableau 17. Les composites chargés à 50 % demandent le plus de modifications. En effet, l'augmentation de viscosité due au taux de charges nécessite une augmentation de la température des différentes zones pour rendre la matière plus fluide ; de même pour les pressions de maintien qui ont dû être augmentées.

| | **Polypropylène** | **Polybutylène succinate** |
|---|---|---|
| T °C zones extrusion et buse d'injection (1-2-3-4) | Toutes à 190 °C | Toutes à 140 °C (20-30-40 %)<br>175-175-175-170 (50 %) |
| Débit injection | 50 $cm^3/s$ | 50 $cm^3/s$ |
| Volume injection | 0 - 21 $cm^3$ | 0 - 23 $cm^3$ |
| Pression injection | 2042 bars | 2042 bars |
| Vitesse dosage | 300 mm/s | 300 mm/s |
| Volume dosage | 0 – 21 $cm^3$ | 0 – 28 $cm^3$ |
| Pression dosage | 20 bars | 20 bars |
| Pression de maintien 1 | 0 bar pendant 10,5s | 0 bar pendant 9,5s |
| Pression de maintien 2 | 1350 bars pendant 10s | 600 bars pendant 9s<br>1600 bars pour les 50 % |
| Pression de maintien 3 | - | 800 bars pendant 8s<br>1400 bars pour les 50 % |
| Démarrage fonction pression injection | 1500 bars | 1400 bars (0, 10 et 20%) et 2000 bars (30, 40 et 50%) |
| Température du moule | 20 °C | 20-30°C<br>60 °C (50 %) |
| Temps de refroidissement | 15 s | 10 s |

*Tableau 17 Paramètres du procédé d'injection des éprouvettes normalisées en fonction de la matrice utilisé et du taux de charges*

Une fois injectées, les éprouvettes sont caractérisées mécaniquement (traction, flexion et choc Charpy) mais également d'un point de vue physico-chimique. L'ensemble des résultats est présenté dans la Partie 3 Étude expérimentale : résultats.

## III. TECHNIQUES DE CARACTÉRISATION

### III.1. Caractérisations mécaniques

Les propriétés des composites ont été caractérisées en traction et en flexion afin d'obtenir le module d'élasticité et la contrainte maximale pour les deux types d'essais. Des essais de choc Charpy ont permis d'évaluer la résilience des différentes formulations. Ces données vont permettre de caractériser et comparer l'évolution des propriétés mécaniques des différents composites et donc d'évaluer l'éligibilité du roseau phragmites. Cette grande partie décrit les protocoles et normes employés pour chacun des essais.

#### *III.1.a. Essai de traction*

Les essais de traction sont réalisés sur un appareil MTS Synergie 1000RT équipé d'une cellule de 10 kN et d'un extensomètre (Figure 102). La procédure de la Norme ISO 527-1 a été suivie dans un laboratoire à 23°C et 50 % d'humidité relative. Pour chaque formulation, cinq éprouvettes sont caractérisées. La vitesse est fixée à 1 mm/min pour la totalité des essais.

*Figure 102 Mise en place de l'éprouvette et de l'extensomètre pour un essai de traction*

Les essais de traction permettent de déterminer le module d'élasticité des composites. D'après la Norme ISO 3167, il s'agit de la pente de la courbe pour une déformation comprise entre 0,05 et 0,25 %. La contrainte maximale, qui correspond à la contrainte à la rupture dans le cas de ces composites, est également déterminée (Figure 103).

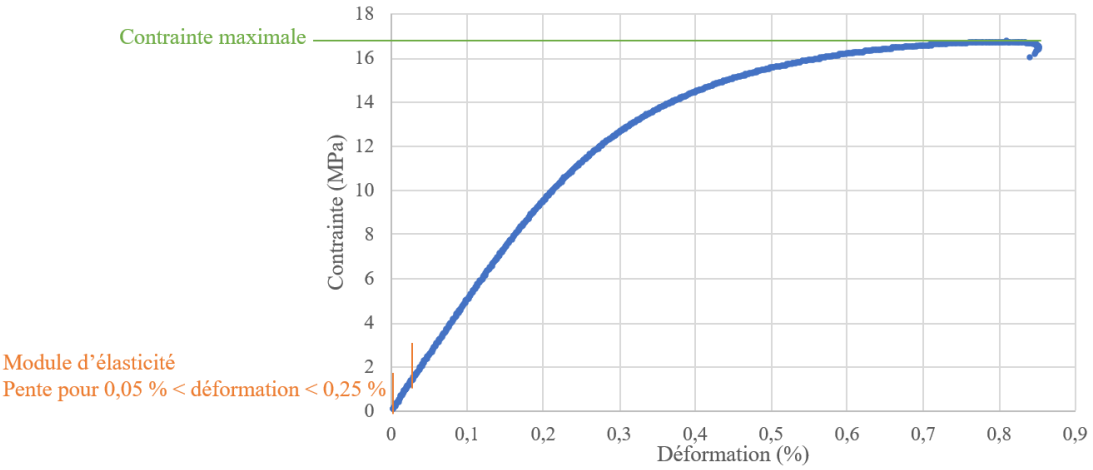



*Figure 103 Détermination du module d'élasticité et de la contrainte maximale sur une courbe de traction*

### *III.1.b. Essai de flexion 3 points*

L'étude en flexion du matériau donnera des informations complémentaires à celles des essais de traction et pour certaines utilisations du composite cette caractérisation est plus pertinente. En effet, lors de l'utilisation d'un gobelet réutilisable par exemple, le matériau est plus facilement sollicité en flexion qu'en traction.

Les essais sont réalisés sur cinq éprouvettes barreaux de dimensions 80x10x4 $mm^3$ suivant la norme ISO 178 avec une vitesse de 2 mm/min. Le module d'élasticité en flexion est calculé pour une déformation comprise entre 0,05 et 0,25 %. La contrainte en flexion ($\sigma_f$) et la déformation en flexion ($\varepsilon_f$) de l'éprouvette sont calculées selon les équations suivantes :

$$\sigma_f\ (MPa) = \frac{3.F.L}{2.b.h^2} \quad et \quad \varepsilon_f\ (\%) = \frac{600.s.h}{L^2}$$ *Équation 26*

Avec

$$F : charge\ appliquée\ (N)$$
$$L : portée\ (mm)$$
$$s : flèche\ (mm)$$
$$b : largeur\ de\ l'éprouvette (mm)$$
$$h : épaisseur\ de\ l'éprouvette (mm)$$

### *III.1.c. Essai de choc Charpy*

L'essai de choc Charpy est utilisé pour mesurer l'énergie nécessaire pour rompre en une seule fois une éprouvette (entaillée ou non). Cette méthode utilise un mouton-pendule muni d'un couteau permettant de développer une énergie donnée au moment du choc. L'énergie absorbée est obtenue en comparant la différence d'énergie potentielle entre le départ du pendule et la fin de l'essai. L'énergie obtenue est calculée avec l'équation suivante:

$$Résilience\ (kJ.m^{-2}) = m.g.(h - h') \qquad \textit{Équation 27}$$

Avec

$$m : masse\ du\ pendule\ (kg)$$
$$g : accélération\ terrestre\ (m.s^{-2})$$
$$h : hauteur\ du\ pendule\ au\ départ\ (m)$$
$$h' : hauteur\ du\ pendule\ \text{à}\ l'arrivée\ (m)$$

Pour réaliser ces essais, l'appareil Tinius Olsen Model Impact 503 est utilisé et la norme ISO 179-1 sur des éprouvettes de dimensions 80x10x4 $mm^3$ non entaillées est appliquée (Figure 104). La résistance à l'impact sera donc évaluée en fonction du taux de charges ainsi que de la compatibilisation des composites à matrice PP. De plus, des tests de choc à froid (-18°C) sont également réalisés, dans l'optique d'une application de ce type de composites à basse température.

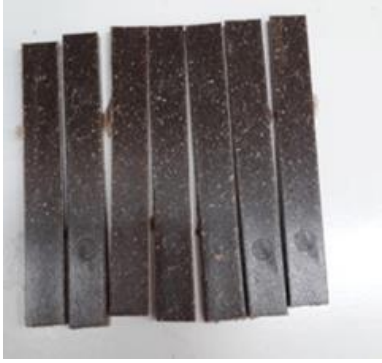


*Figure 104 Éprouvettes pour les essais de choc Charpy*

## III.2. Propriétés physico-chimiques

### *III.2.a. Absorption d'eau*

L'absorption d'eau des composites est évaluée pour comprendre les phénomènes de dégradation entrainant une détérioration des propriétés du matériau. Ainsi, l'absorption d'eau sera corrélée aux taux de charges des composites et l'effet de l'agent compatibilisant sera également étudié.

Les essais sont réalisés sur des talons d'éprouvettes découpés de dimensions 20x20x4 $mm^3$. Ces échantillons sont tout d'abord séchés à 60°C jusqu'à masse constante puis immergés dans de l'eau courante à 60°C dans une contenant fermé. Nous avons choisi d'immerger les composites à cette température pour accélérer le processus d'absorption ce qui ne modifie pas la quantité absorbée finale [75]. Le relevé de la masse se fait après avoir retiré l'eau du contenant et essuyé les échantillons avec un papier absorbant afin d'enlever l'eau résiduelle en surface (eau non absorbée). L'échantillon est ensuite pesé avec une balance de précision ($10^{-4}$ g) pour en déduire la quantité d'eau absorbée notée $w_t$ d'après l'Équation 28.

$$w_t\ (\%) = \frac{m_t \times m_0}{m_0} \times 100$$ *Équation 28*

Avec

$m_t$: *masse de l'échantillon après le temps d'immersion t*

$m_0$ : *masse de l'échantillon étuvé*

### *III.2.b. Analyses morphologiques*

Les analyses morphologiques sont réalisées sur les composites pour étudier la cohésion des charges et de la matrice polymère. Elle est observée directement sur les profils de rupture en traction des éprouvettes. L'observation se fait au MEB après métallisation à l'or.

# PARTIE 3 ÉTUDE EXPÉRIMENTALE : RÉSULTATS

## I. PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES

### I.1. Essais de traction

*Module d'élasticité*

L'évolution du module d'élasticité en traction en fonction du taux de charges est présentée en Figure 105 pour la matrice PP et en Figure 106 pour la matrice PBS.

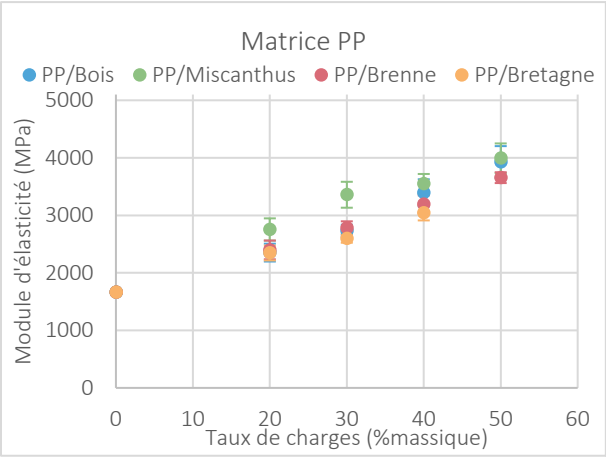



*Figure 105 Évolution du module d'élasticité en traction selon la teneur massique en charges pour la matrice PP*

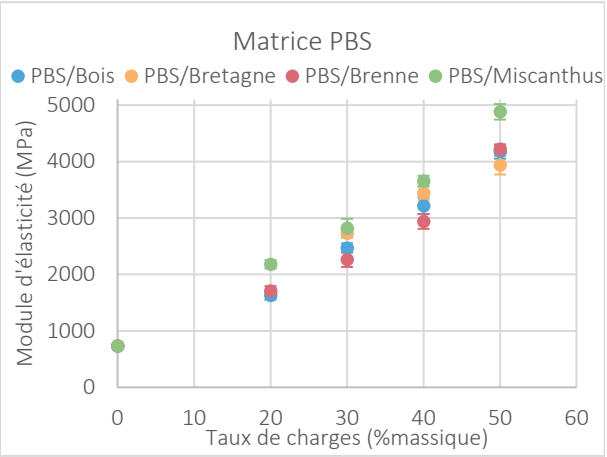



*Figure 106 Évolution du module d'élasticité selon la teneur massique en charges pour la matrice PBS*

Les valeurs de module d'élasticité pour 20 % de charges végétales sont comprises entre 2,3 et 2,7 GPa pour la matrice PP. Plus le taux de charges augmente et plus le module d'élasticité augmente pour atteindre une valeur proche de 4 GPa pour les composites chargés à 50 % en masse de farine végétale. Les composites chargés en miscanthus se démarquent des autres formulations avec un module d'élasticité plus important pour un même taux de charges.

Les travaux de Girones et al. [113] sur des formulations farine de miscanthus et PP montrent des valeurs similaires pour le module d'élasticité avec une valeur à 3,2 GPa pour des composites chargés à 30 %.

Dans les travaux de Yuan et al. [109] sur des composites à base de farine de bois utilisant différentes matrices polymères telles que du PE ou du PP, les modules d'élasticité et les contraintes maximales atteignent des niveaux élevés. Ainsi, pour des ajouts à hauteur de 50 %, les modules obtenus avec les matrices PP sont compris entre 4,9 et 5,6 GPa.

Avec la matrice PBS, on observe également une augmentation très marquée du module d'élasticité avec le taux de charges : on passe de 730 MPa pour la matrice PBS pure à une valeur proche de 4 GPa pour les composites chargés à 50 % en masse de bois ou phragmites. Ce module atteint presque 5 GPa pour le miscanthus à 50 %.

Le module est triplé dès l'ajout de 20 % de charges. Dans la littérature scientifique cette augmentation n'est pas aussi marquée pour des composite PBS chargés à 20 % en fibres courtes de kenaf dont le module passe de 434 MPa (PBS pur) à 578 MPa, soit 33 % d'augmentation seulement [114].

Le Tableau 18 présente les rapports de modules d'élasticité de la matrice pure (PP ou PBS) et des composites chargés à 50 % massique pour le roseau de Brenne, le bois et le miscanthus. Le module est doublé lorsque l'on ajoute 50 % de charges végétales dans du PP tandis qu'il est multiplié par cinq lorsque l'ajout est effectué dans la matrice PBS. Ces résultats pourraient s'expliquer, soit par une forte cohésion des charges à la matrice biosourcée et donc une meilleure qualité d'interface, soit par une meilleure répartition des charges au sein du composite. Le module étant une caractéristique déterminée à faible déformation, il n'est en principe pas impacté par la cohésion entre les particules et la matrice [108][115]. La nette amélioration du module d'élasticité dans la matrice PBS pourrait donc probablement se justifier par une meilleure homogénéité dans la dispersion des charges, liée à la plus grande fluidité de la matrice PBS lors de la mise en œuvre. Cette hypothèse devra être vérifiée en étudiant la rhéologie des différentes formulations, ce que nous n'avons pas pu réaliser par manque de matière.

| | PP | | | PBS | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| Rapport des modules d'élasticité Matrice pure / Composites 50 % | Brenne | Bois | Miscanthus | Brenne | Bois | Miscanthus |
| | 2,20 | 2,37 | 2,40 | 5,75 | 5,69 | 6,65 |

*Tableau 18 Rapports du module d'élasticité de la matrice pure et des composites chargés à 50 % en farine végétale*

L'ajout d'un agent compatibilisant dans la matrice PP a été réalisé pour les formulations avec des farines de bois, de miscanthus et de roseau de Brenne, qui ont également été testées en traction. L'évolution du module d'élasticité en fonction du taux d'agent compatibilisant est présentée en Figure 107.

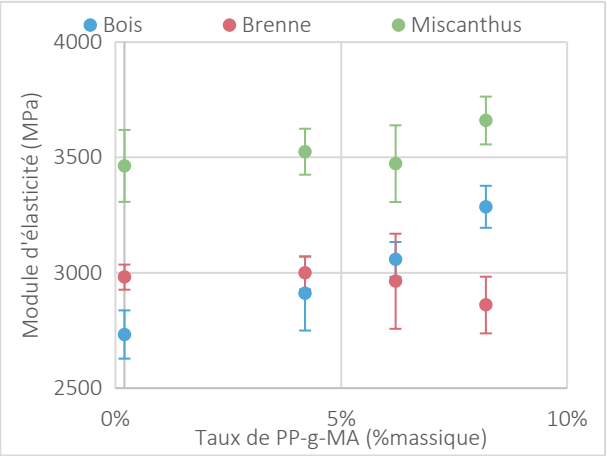



*Figure 107 Évolution du module d'élasticité en traction selon le taux d'agent compatibilisant*

On observe que le module d'élasticité varie peu avec le taux d'agent compatibilisant pour les composites chargés en miscanthus et phragmites. Par contre, il augmente proportionnellement à la teneur en PP-g-MA pour les composites à base de bois.

Comme évoqué précédemment, le module étant une caractéristique mécanique des faibles déformations, celui-ci n'est normalement pas affecté par une mauvaise cohésion des charges à la matrice polymère [108][115]. C'est bien ce que nous observons avec les roseaux.

Toutefois nous n'avons pas trouvé d'étude scientifique sur des matériaux PP/bois où l'agent compatibilisant améliorait le module d'élasticité proportionnellement au taux d'ajout.

Nous nous sommes également intéressés à l'effet de la taille des particules de farine sur les propriétés mécaniques et à son rôle dans le renforcement des composites ; trois fractions de roseau phragmites de la Brenne ont été obtenues en tamisant la farine 0 - 500 µm. Trois formulations à matrice PP chargées chacune à 20 % d'une de ces trois fractions (0 - 160, 160 - 315 et 315 - 500 µm) sont préparées par extrusion et injection.

Ces formulations ont également été testées en traction et les résultats sont présentés en Figure 108 pour le module d'élasticité.

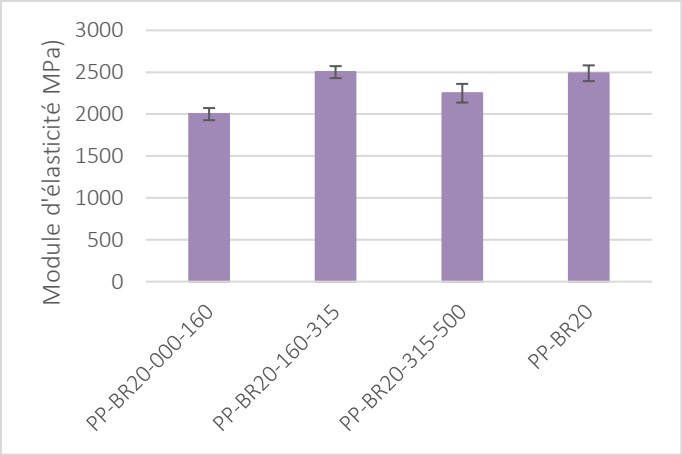



*Figure 108 Module d'élasticité des composites PP chargés à 20 % avec différentes fractions de roseau de Brenne*

Il ne semble pas y avoir de corrélation évidente entre la taille des particules et l'évolution du module d'élasticité. En effet, nous remarquons que c'est la taille intermédiaire (160 - 315 µm) qui possède le module d'élasticité le plus élevé. Celui de la formulation 160 - 315 µm est identique à celui du PP-BR20, ce qui démontre que c'est probablement cette taille de particules qui détermine le module d'élasticité du composite chargé en farine 0 - 500 µm. En effet, comme le montre la Figure 109, la fraction 160 - 315 µm compose à plus de 60 % la farine de Brenne 0-500 µm.

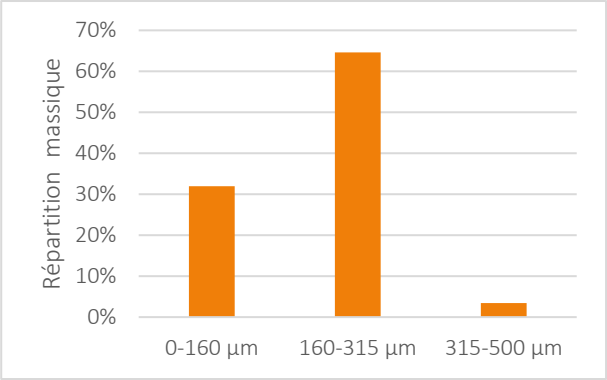



*Figure 109 Répartition massique de la farine de Brenne 0-500 µm*

*Contrainte maximale*

L'évolution de la contrainte maximale selon le taux de charges est présentée en Figure 110 pour la matrice PP et en Figure 111 pour la matrice PBS.

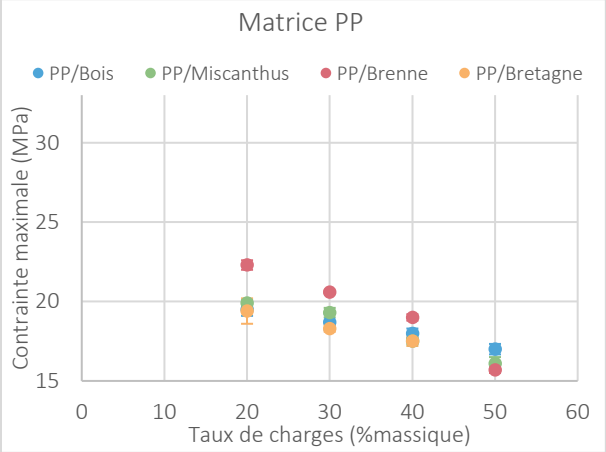



*Figure 110 Évolution de la contrainte maximale en traction selon la teneur massique en charges pour la matrice PP*

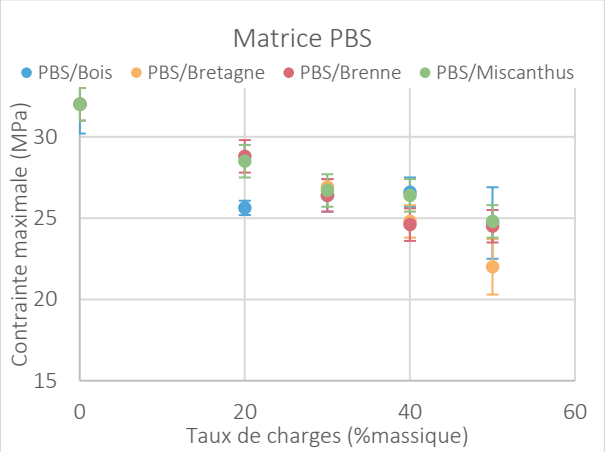



*Figure 111 Évolution de la contrainte maximale selon la teneur massique en charges pour la matrice PBS*

L'évolution obtenue pour la contrainte maximale est inverse de celle observée pour le module d'élasticité : plus le taux de charges augmente et plus la contrainte maximale (qui est également la contrainte à la rupture pour ces composites) diminue.

Nous n'avons pas la contrainte maximale pour la matrice PP vierge car les limites de déplacement de la traverse sur la machine de traction ne nous ont pas permis d'aller jusqu'à rupture des éprouvettes.

La contrainte maximale pour les composites PP chargés à 20 % est comprise entre 19,4 et 22,3 MPa tandis qu'elle est comprise entre 15,7 et 17 MPa pour ceux chargés à 50 %.

Elle est assez différente dans l'étude de Girones et al. [113] qui donne une valeur de 37,4 MPa tandis que nous obtenons 19,3 MPa pour du PP/30 % miscanthus. Ces différences peuvent provenir de la matrice PP de base. L'étude ne spécifie pas s'il s'agit d'un homopolymère ou d'un copolymère. De plus la taille de particules de la farine végétale dans l'étude est comprise entre 261 et 576 µm pour la longueur et 87 et 127 µm pour le diamètre.

Dans les travaux de Yuan et al. [109] sur des composites PP chargés à 50 % en farine de bois, les contraintes à rupture sont assez élevées avec des valeurs comprises entre 20,4 et 24 MPa tandis que nous obtenons des valeurs inférieures à 18 MPa dans notre étude. Ces différences peuvent là aussi provenir des caractéristiques de la matrice et /ou des farines utilisées.

Pour les composites à matrice PBS, la contrainte maximale diminue et passe de 32 MPa pour la matrice vierge à des valeurs comprises entre 22 et 24,8 MPa pour les formulations chargées à 50 % en farine végétale.

L'influence de la quantité d'agent compatibilisant sur la contrainte maximale dans les composites à matrice PP est présenté en Figure 112

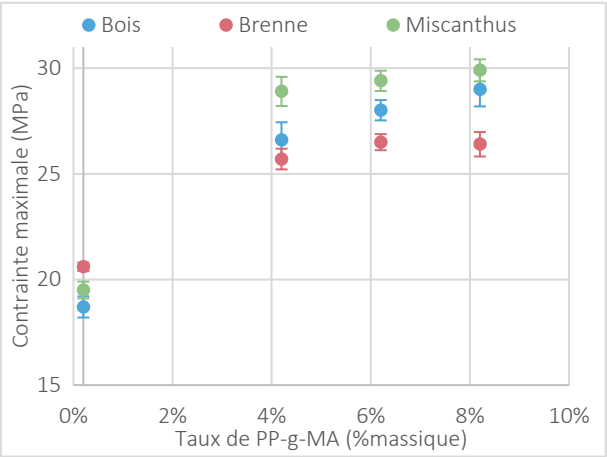



*Figure 112 Évolution de la contrainte maximale en traction selon le taux d'agent compatibilisant*

Si le module d'élasticité n'est pas modifié par l'ajout de l'agent compatibilisant, on observe en revanche une augmentation très nette de la contrainte maximale avec 4 % d'agent compatibilisant, passant d'environ 20 MPa à 26-28 MPa, et ce pour les trois farines étudiées. Cette augmentation est due à une meilleure cohésion entre les charges et la matrice entrainant un meilleur transfert de la contrainte. L'amélioration de la surface de contact entre les particules végétales et la matrice conduit également à une diminution du nombre de fissures microscopiques pouvant se former, retardant ainsi la rupture de l'éprouvette [108].

Pour des ajouts supplémentaires de 6 et 8 %, les variations sont peu significatives, ce qui semble démontrer qu'une valeur seuil est déjà atteinte avec 4 % de compatibilisant. Tisserat et al. [108] ont déterminé une valeur de PP-g-MA optimale entre 3 et 5 % sur des formulations PP/bois.

L'influence de la taille des particules sur la contrainte à la rupture pour les composites PP est présentée en Figure 113.

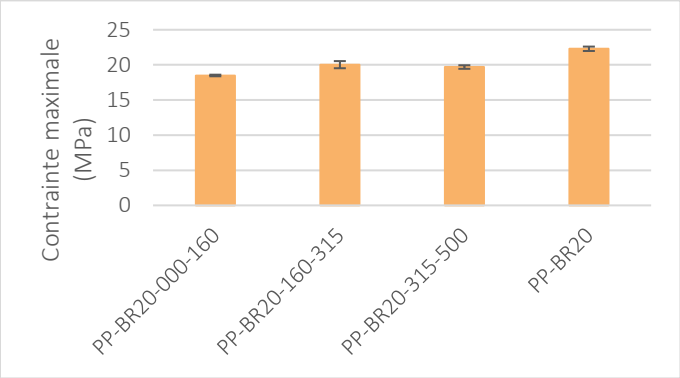



*Figure 113 Contrainte maximale des composites PP chargés à 20 % avec différentes fractions de roseau de Brenne*

La contrainte maximale se situe aux alentours de 20 MPa pour les trois tailles de particules, alors que l'échantillon standard PP-BR20 donne une valeur de contrainte de 22,3 MPa. La taille de particules n'a pas d'influence sur la contrainte maximale.

*Déformation à rupture*

L'évolution de la déformation à la rupture en traction selon le taux de charges est présentée en Figure 114 pour la matrice PP et en Figure 115 pour la matrice PBS.

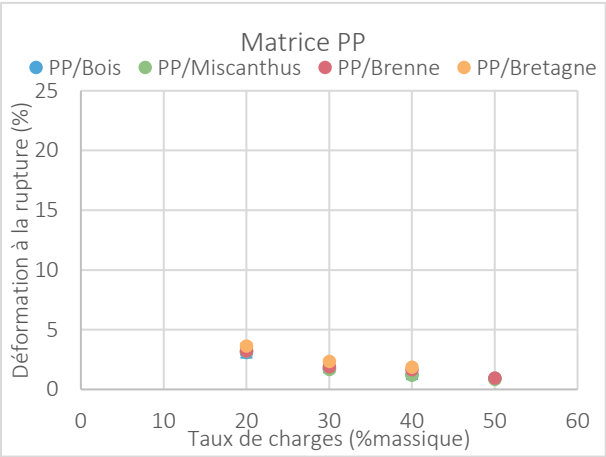



*Figure 114 Évolution de la déformation à rupture en traction selon la teneur massique en charges pour la matrice PP*

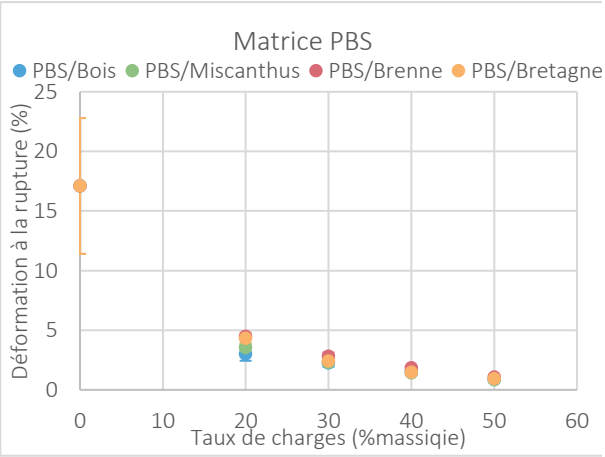



*Figure 115 Évolution de la déformation à rupture en traction selon la teneur massique en charges pour la matrice PBS*

La déformation à la rupture est assez faible dès l'ajout de 20 % de charges avec des valeurs comprises entre 3 et 4 % pour la matrice PP et 3 et 5 % pour la matrice PBS. Les valeurs diminuent lorsque le taux de charges augmente et semblent atteindre progressivement un palier à 1 % quelle que soit la matrice utilisée.

De la même manière, la valeur de déformation à la rupture n'apparait pas pour la matrice PP vierge sur le graphique en raison des limites de déplacement de traverse sur la machine.

Dans l'étude de Girones et al. [113] sur de la farine de miscanthus à 30 % dans du PP, la déformation à rupture est légèrement différente à 2,7 % tandis qu'elle est de 1,7 % dans notre cas.

On observe dans l'étude de Liang et al. [114] pour des composites PBS/Kenaf une grande différence de valeur pour la matrice pure avec une déformation de 213 % et seulement 17 % dans notre cas. Cependant, on obtient des valeurs similaires lorsque le matrice est chargée à 30 % en fibres courtes de kenaf avec une déformation à la rupture de 5 %.

La nature de la farine utilisée n'a pas d'influence très nette sur les caractéristiques obtenues, qui restent du même ordre de grandeur quelle que soit la charge utilisée.

L'influence de la quantité d'agent compatibilisant dans les composites à matrice PP sur la déformation à rupture est présentée en Figure 116.

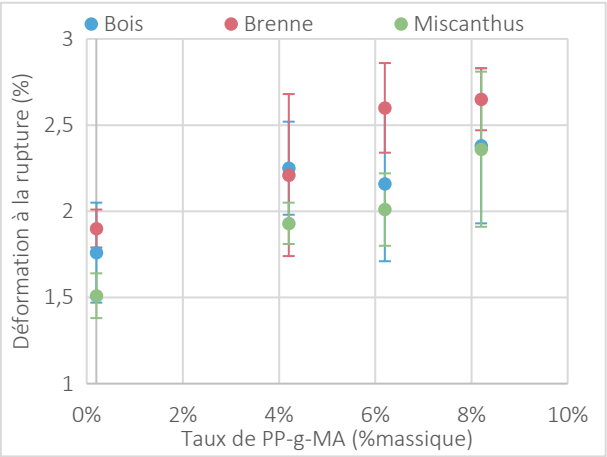



*Figure 116 Évolution de la déformation à rupture en traction selon le taux d'agent compatibilisant*

Celle-ci augmente de façon linéaire par rapport au taux de PP-g-MA ajouté, malgré des écarts type importants. On passe d'une déformation de 1,9 % pour le composite chargé en roseau de Brenne à une valeur de 2,6 % avec 8 % de compatibilisant. Ceci semble démontrer l'efficacité du PP-g-MA sur la compatibilisation charges-matrice.

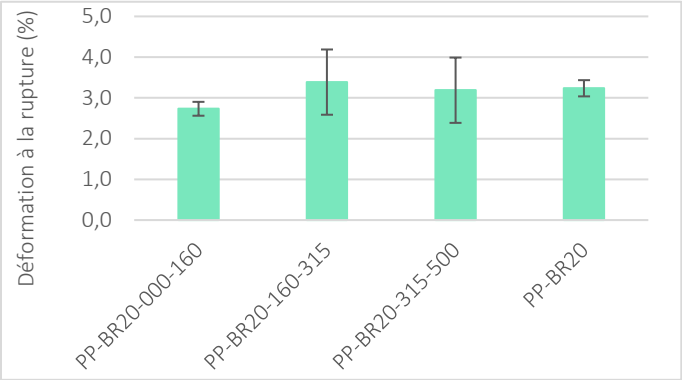



*Figure 117 Déformation à la rupture des composites chargés avec différentes fractions de roseau de Brenne*

Sur la Figure 117 qui nous donne la déformation à la rupture en fonction de la taille des particules pour les composites PP, nous pouvons constater qu'on obtient des valeurs moyennes aux alentours de 3 % quelle que soit la granulométrie des farines.

Pour obtenir des résultats plus significatifs, il serait intéressant de caractériser des composites avec une dispersion en taille de particules plus importante, ce que nous n'avons pas pu réaliser dans cette étude.

### **I.2.** Essais de flexion

Des essais de flexion 3 points ont été réalisés sur les composites à matrice PP, des échantillons formulés avec les farines de bois, miscanthus et roseau de Brenne à 30, 40 et 50 %, en s'intéressant à l'influence du taux de farine végétale et d'agent compatibilisant

*Module d'élasticité*

L'évolution du module d'élasticité est présentée en Figure 118 selon de la teneur en charges végétales et en Figure 119 selon le taux d'agent compatibilisant dans les formulations chargées à 30 %.

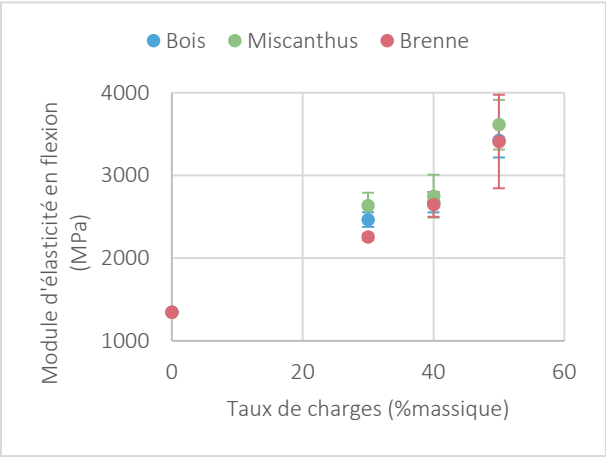



*Figure 118 Évolution du module d'élasticité en flexion selon la teneur massique en charges dans la matrice PP*

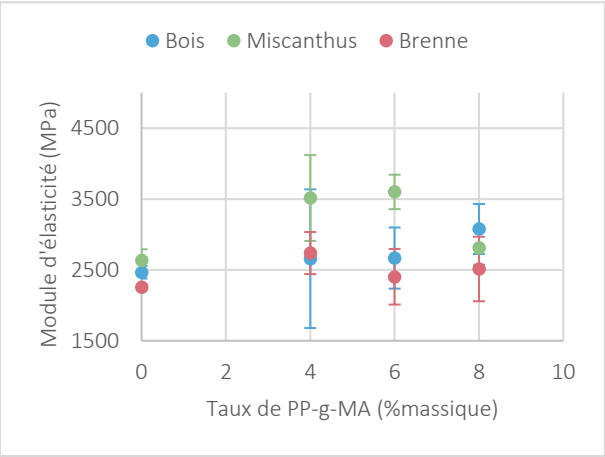



*Figure 119 Évolution du module d'élasticité en flexion selon le taux d'agent compatibilisant dans les composites PP/30 %*

Nous observons des résultats très similaires à ceux obtenus en traction : le module d'élasticité augmente proportionnellement au taux de charges végétales et est sensiblement identique pour les trois farines.

De plus, l'agent compatibilisant ne semble pas avoir d'effet notable sur le module d'élasticité en flexion.

*Contrainte maximale*

Les résultats pour la contrainte maximale sont présentés en Figure 120 pour l'influence du taux de farine végétale et en Figure 121 selon le taux de PP-g-MA.

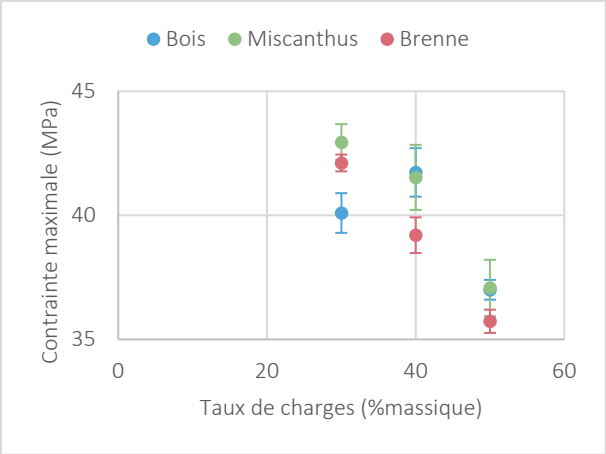



*Figure 120 Évolution de la contrainte maximale en flexion selon la teneur massique en charges dans la matrice PP*

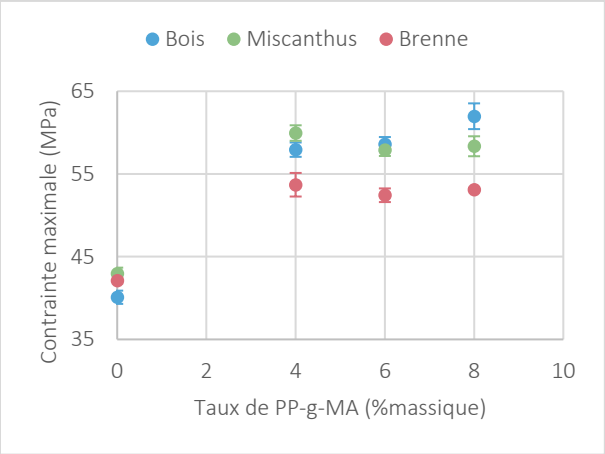



*Figure 121 Évolution de la contrainte maximale en flexion selon le taux d'agent compatibilisant dans les composites PP/30 %*

La contrainte maximale diminue avec l'augmentation de la teneur en charges mais reste supérieure à 35 MPa pour l'ensemble des farines végétales étudiées.

L'agent de couplage augmente la contrainte maximale d'environ 30% lorsqu'il est ajouté à hauteur de 4 % dans les formulations, et ce quelle que soit la charge utilisée. Par exemple, la contrainte passe de 42 à 53 MPa pour le composite chargé en phragmites de Brenne.

Au-delà de 4 % d'ajout, l'effet du compatibilisant est peu visible. En effet, la contrainte maximale atteint, de la même manière qu'en traction, une valeur constante à environ 55 MPa. Les formulations à base de roseau de Brenne semblent présenter une contrainte maximale (53 MPa) sensiblement plus faible, comparée à celle obtenue sur les composites bois et miscanthus (58 MPa).

*Déformation à rupture*

La Figure 122 décrit l'évolution de la déformation à rupture en fonction du taux de charges et la Figure 123 l'influence de la teneur agent compatibilisant sur celle-ci.

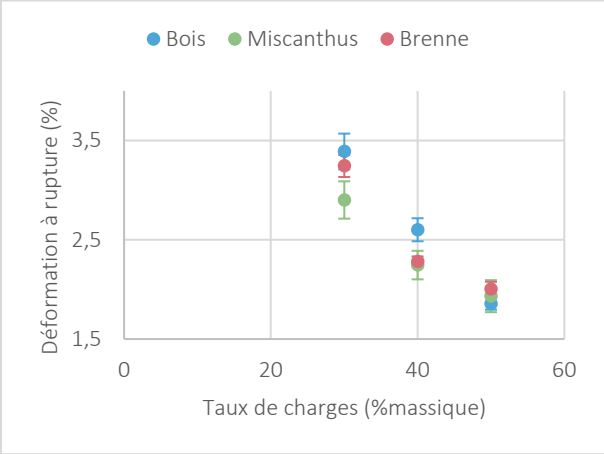



*Figure 122 Évolution de la déformation à rupture en flexion selon la teneur massique en charges dans la matrice PP*

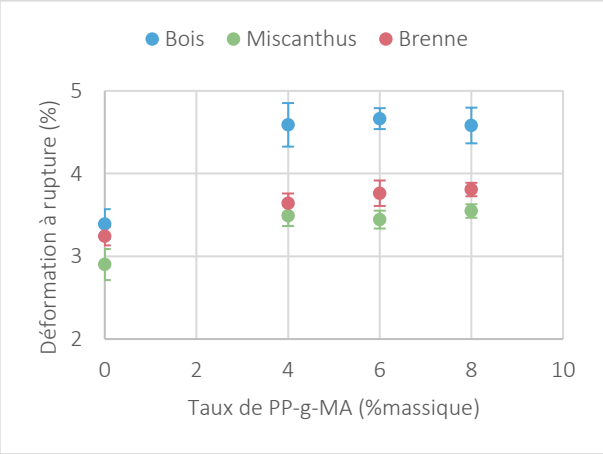



*Figure 123 Évolution de la déformation à rupture en flexion selon le taux d'agent compatibilisant*

La déformation à la rupture est fortement réduite avec l'ajout de 30 % de charges en chutant en dessous de 3,5 % pour atteindre 2 % pour les formulations à 50 %.

La déformation à la rupture augmente avec l'ajout de PP-g-MA et atteint 4,5 % pour les formulations à base de bois et 3,5 % pour celles à base de phragmites et miscanthus, contre 3 % lorsque le mélange n'est pas compatibilisé.

4 % semble être une valeur palier car nous n'observons plus d'augmentation pour des taux de compatibilisant croissants.

De la même manière que pour la traction, les résultats obtenus en flexion ne semblent pas discriminer telle charge par rapport à telle autre avec des caractéristiques peu différentes d'une farine à l'autre. Il apparait donc que le roseau phragmites en ajout de PP permet d'obtenir des caractéristiques mécaniques en traction et flexion proches de celles des composites à base de farines de miscanthus ou de bois.

### **I.3.** Résistance aux chocs

*À température ambiante et à froid pour les composites à matrice PP*

L'évolution de la résilience à température ambiante en fonction de la teneur en charges est présentée en Figure 124. Celle de la résilience à froid des formulations chargées de 30 à 50 % en bois, miscanthus et roseau de Brenne est présentée en Figure 125. Nous n'avons pas de valeurs pour les composites chargés à 20 % par manque d'éprouvettes.

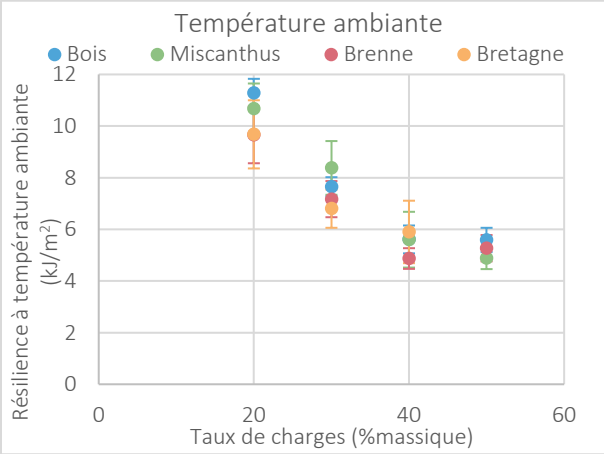



*Figure 124 Résilience des composites à température ambiante selon la teneur en charges dans la matrice PP*

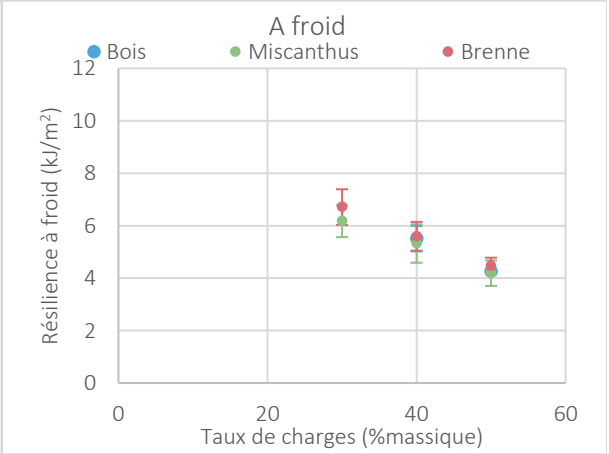



*Figure 125 Résilience des composites à froid selon la teneur en charges dans la matrice PP*

L'évolution de la résilience à température ambiante est linéaire jusqu'à 40 % de charges et semble atteindre une valeur palier à 5 kJ/m$^2$ pour 50% de charges. La résilience de la matrice PP vierge a également été mesurée et sa valeur est de 78,2 ± 1,0 kJ/m$^2$. La résistance au choc des composites, quelle que soit la charge, peut sembler très faible puisqu'elle est réduite de plus d'un facteur 10 par rapport au PP pur, mais on peut estimer que les valeurs demeurent satisfaisantes pour une application de type contenant réutilisable non alimentaire. En effet, on retrouve des valeurs similaires pour du PP recyclé (6,67 kJ/m$^2$) et utilisé pour cette même application [116].

Les résultats obtenus pour la résilience à froid sont peu différents de ceux obtenus à température ambiante, excepté pour 50 % en charges où les valeurs chutent à 4 kJ/m$^2$. La résilience du PP vierge est de 75,9 ± 27,1 kJ/m$^2$ à froid.

Les valeurs de l'étude de Girones et al. [113] pour un composite PP chargé à 30 % en miscanthus sont encore inférieures aux valeurs mesurées dans notre étude avec une résilience à température ambiante de 3,2 kJ/m$^2$. Des valeurs similaires sont mesurées dans l'étude de Basalp et al. [111] sur la valorisation de déchets ménagers de plastiques (PP) et de sciure de bois où la résilience à température ambiante chute dès l'incorporation de 20 % de charges et atteint un palier à 4 kJ/m$^2$.

Si l'on s'intéresse à l'évolution de la résilience à température ambiante en fonction du taux de PP-g-MA (cf. Figure 126), on peut observer une augmentation de près de 50 % des valeurs avec l'ajout de 4 % de PP-g-MA pour les 3 types de charges : on passe par exemple de 7 à 11 kJ/m2 avec le roseau de Brenne. Il semble qu'on ait atteint une valeur palier car nous n'observons pas d'augmentation significative des valeurs pour 6 et 8%.

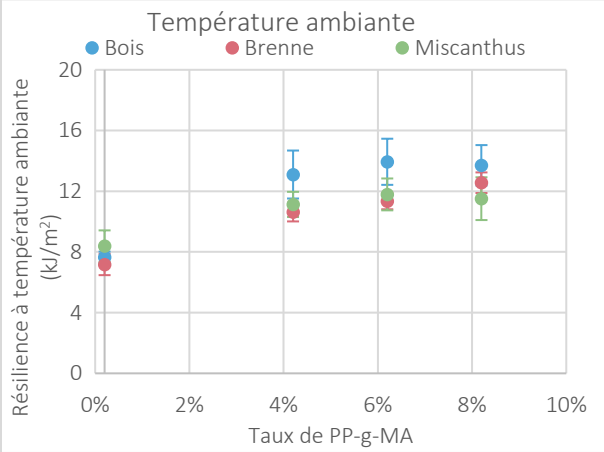



*Figure 126 Évolution de la résilience des composites selon le taux d'agent compatibilisant*

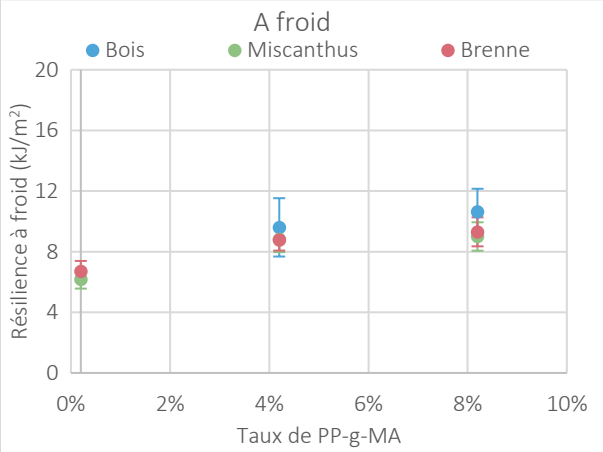



*Figure 127 Évolution de la résilience à froid des composites selon le taux d'agent compatibilisant*

Pour la résilience à froid dont l'évolution est présentée en Figure 127 pour les composites bois, miscanthus et Benne avec 4 et 8 % d'agent compatibilisant, on observe également une augmentation des valeurs avec l'agent compatibilisant, même si les valeurs restent toutefois plus faibles qu'à température ambiante. Un palier semble atteint à 10 kJ/m$^2$ et 4 % de PP-g-MA.

*À température ambiante pour la matrice PBS*

L'évolution de la résilience en fonction de la teneur en charges est présentée en Figure 128 pour les quatre farines. La résilience de la matrice pure est de 53,2 ± 1,0 kJ/m$^2$.

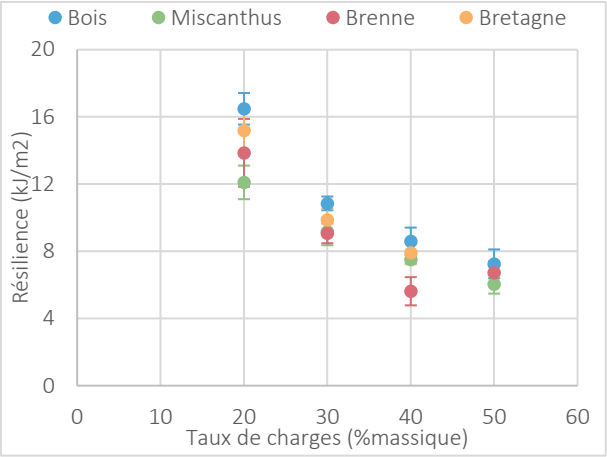



*Figure 128 Résilience des composites selon la teneur massique en charges*

On observe une très nette diminution de la résilience avec l'augmentation du taux de charges, sans évolution linéaire toutefois ; le composite bois présente une meilleure résistance au choc que le composite miscanthus pour 20% de charges (17 contre 12 kJ/m$^2$), le phragmites et le bois ayant des valeurs intermédiaires ; mais cet écart tend à diminuer quand le taux de charges augmente pour atteindre une valeur seuil à 5 kJ/m$^2$. Étonnamment, il s'agit de la même valeur que pour les composites à matrice PP.

*Corrélation résistance au choc et propriétés mécaniques en traction*

La Figure 129 présente l'évolution de la résistance au choc à température ambiante des composites en fonction de leur module d'élasticité en traction.

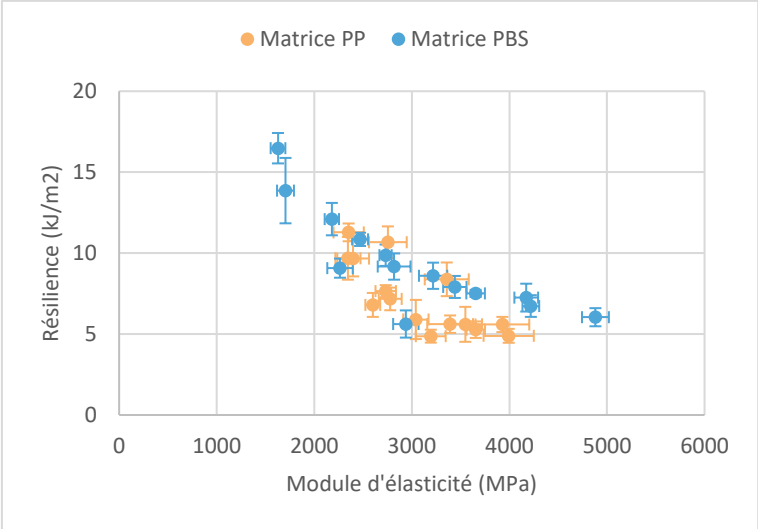



*Figure 129 Relation entre la résilience des composites et leur module d'élasticité en traction*

L'évolution de la résilience des composites, à matrice PP comme à matrice PBS, est inversement proportionnelle à celle de leur module d'élasticité. Cependant la résistance au choc semble atteindre un palier à 5 kJ/m$^2$ quelle que soit la matrice utilisée alors que le module continue d'augmenter.

La même allure de courbe est observée dans les travaux de Keledi et al. [117] sur des composites PP/bois avec ajout d'un élastomère à la formulation. La résistance au choc atteint une valeur seuil à 5 kJ/m$^2$ pour des modules d'élasticité allant jusqu'à 4 GPa.

La Figure 130 présente la résilience à température ambiante pour l'ensemble des composites en fonction de leur déformation à rupture mesurée en traction.

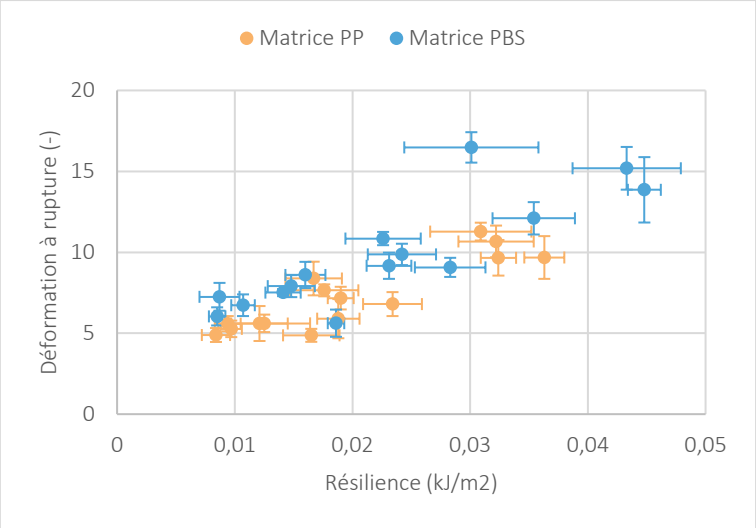



*Figure 130 Relation entre la résilience des composites et leur déformation à rupture en traction*

La résilience est proportionnelle à la déformation à rupture quelle que soit la matrice ; plus la déformation à rupture est élevée et plus la résilience le sera. En effet, la résistance à l'impact est dominée par le taux de farine végétale, le décollement ou la rupture des charges. La rupture de l'éprouvette s'accompagne donc d'une très faible consommation d'énergie [117].

On remarque également que les composites à matrice PBS présentent une déformation plus grande ainsi qu'une résilience plus importante ce qui traduit une meilleure cohésion entre les particules végétales et la matrice.

## II. PROPRIÉTÉS PHYSICO-CHIMIQUES

### II.1. Absorption d'eau

L'absorption d'eau des composites a été étudiée pour les deux matrices, PP et PBS ainsi que sur les composites PP chargés à 30 % en farine végétale et différents taux de PP-g-MA et ceux chargés à 20 % en différentes fractions de roseau de Brenne.

Pour une meilleure visibilité sur le graphique, seules les courbes d'absorption des composites chargés à 30 et 50 % sont présentées en Figure 131 pour la matrice PP et en Figure 132 pour la matrice PBS.

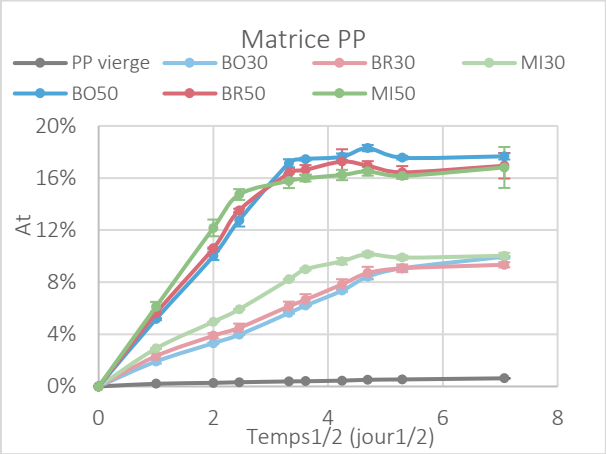



*Figure 131 Courbes d'absorption des composites à matrice PP chargés à 30 et 50 % en charges végétales*

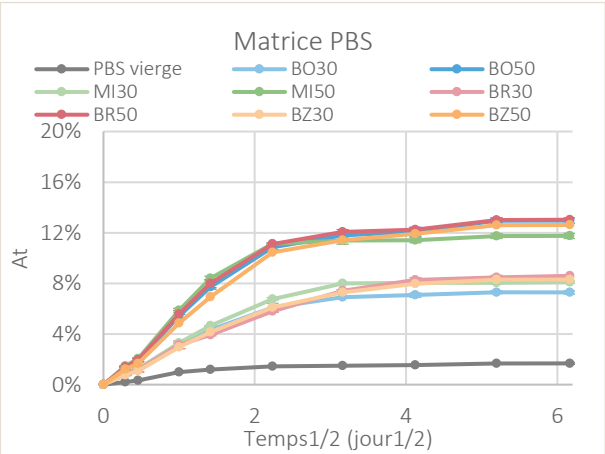



*Figure 132 Courbes d'absorption des composites à matrice PBS chargés à 30 et 50 % en charges végétales*

Nous observons que les composites chargés à 50 % absorbent plus d'eau que ceux chargés à 30 % avec des valeurs atteignant 10 % pour les composites PP/30 % et 17 % pour les composites PP/50 %. De même pour les formulations avec la matrice biosourcée, les composites PBS/30 % absorbent 8 % contre 12 % pour les composites PBS/50 %.

L'absorption finale des composites en fonction du taux de charges végétales est présentée en Figure 133 pour la matrice PP et Figure 134 pour la matrice PBS.

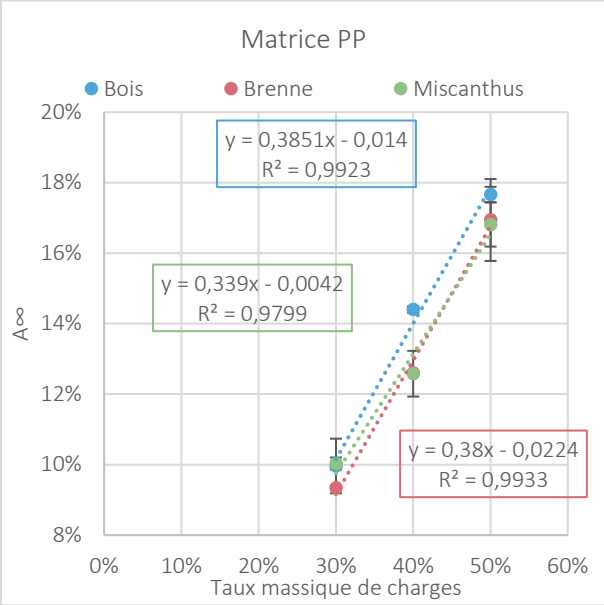



*Figure 133 Absorption à saturation des composites à matrice PP en fonction du taux de charges végétales*

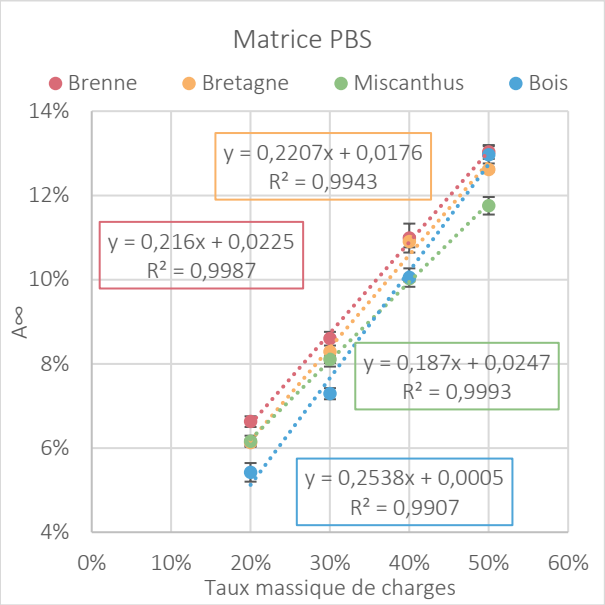



*Figure 134 Absorption à saturation des composites à matrice PBS en fonction du taux de charges végétales*

Comme attendu, l'absorption d'eau apparait proportionnelle à la quantité de charges végétales quelle que soit la matrice ; plus le taux de charges est élevé, plus l'absorption d'eau sera importante.

Nous pouvons observer que la courbe d'absorption du PP vierge en Figure 131 atteint une valeur de 0,63 % ce qui est négligeable devant les valeurs obtenues dès 30 % d'ajout de charges.

De même pour le PBS vierge qui atteint 2 % ce qui est toutefois moins négligeable. Néanmoins, les composites à matrice PBS atteignent des valeurs d'absorption plus faibles que ceux à matrice PP ce qui témoigne d'une meilleure cohésion à l'interface charges/matrice biosourcée.

On peut observer que les composites PP chargés à 50 % en miscanthus et phragmites absorbent légèrement moins d'eau que ceux chargés à 50 % en bois avec des valeurs atteignant 16,8 % pour les roseaux contre 17,7 % pour le composite bois. Cette différence reste néanmoins peu significative.

Des valeurs similaires se retrouvent dans la littérature avec des valeurs proches de 15 % d'absorption pour des composites PP/Bois chargés à 50 % après 30 jours d'immersion [118]. De même pour un composite PP chargés à 40 % en sciure de bois dont l'absorption atteint 16 % au bout de 25 jours d'immersion [119].

De la même manière, pour la matrice biosourcée, c'est la formulation PBS/miscanthus qui se démarque en absorbant moins d'eau. La pente des droites est identique pour les deux roseaux phragmites (0,0022), celle du miscanthus est légèrement inférieure (0,0019) et celle du bois légèrement supérieure (0,0025). Les formulations étant réalisées en teneur massique, cela signifie que l'absorption des composites chargés en bois augmente plus rapidement avec l'augmentation de la teneur massique. De la même manière, l'absorption des composites chargés en miscanthus augmente

moins rapidement avec l'augmentation du taux de charges en comparaison avec les formulations à base de phragmites. Cette différence de comportement peut être expliquée par la taille et le nombre de pores au sein des particules. Une explication sera donnée dans la suite de cette partie.

Ce sont donc principalement les charges végétales, et donc leurs porosités internes et à l'interface avec la matrice, qui accueillent l'eau. En effet, lorsque l'on augmente la teneur en charges végétales, le nombre de groupes OH libres de la cellulose augmente. Ces groupes OH libres entrent en contact avec l'eau et forment des liaisons hydrogène entrainant un gain de masse dans les composites [120].

L'intérêt d'utiliser un agent compatibilisant est donc d'augmenter le nombre de ces liaisons pour rendre plus cohésive l'interface particules/PP. Les courbes représentant l'évolution de l'absorption d'eau en fonction du temps pour les composites compatibilisés et non compatibilisés sont données en Figure 135.

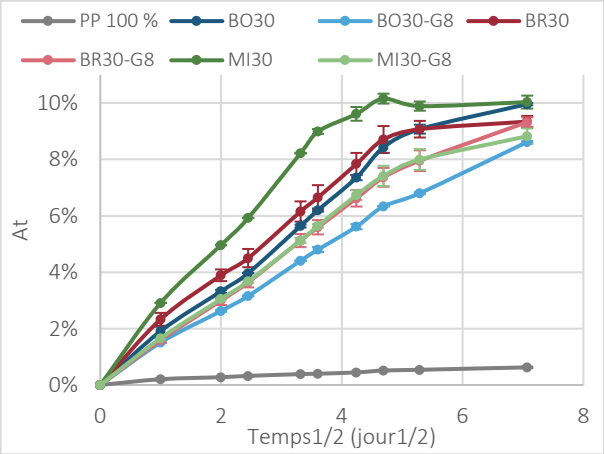



*Figure 135 Courbes d'absorption des composites chargés à 30 % en charges végétales sans et avec 8% de compatibilisant*

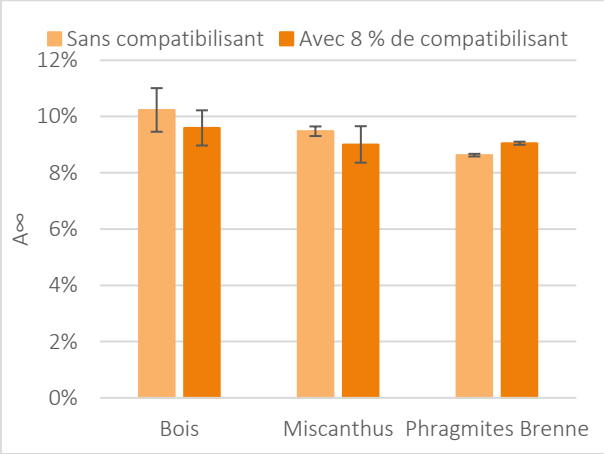



*Figure 136 Comparaison des absorptions des composites non compatibilisés et compatibilisés à 8 % après 411 jours d'immersion*

Nous observons que, pour un même temps d'immersion, les composites non compatibilisés absorbent plus d'eau que les composites compatibilisés. Par exemple, après six jours d'immersion (2,45 jours$^2$), le composite non compatibilisé chargé en roseau de Brenne a absorbé 4,5 % d'eau tandis que le compatibilisé n'en a absorbé que 3 %.

Les composites miscanthus et phragmites compatibilisés ont la même cinétique d'absorption (courbes superposées). Par contre, la courbe d'absorption de l'échantillon PP-BO30-G8 est légèrement en-dessous des deux autres, semblant indiquer une absorption moins importante du bois pour une même durée d'immersion. Cependant, les valeurs d'absorption des échantillons compatibilisés tendent à rejoindre celles des composites non compatibilisés sur des temps longs (10 % d'absorption) nous indiquant que l'effet de l'agent compatibilisant n'est finalement que temporaire.

Les composites ont été immergés pendant plus d'un an pour évaluer l'influence de l'agent compatibilisant sur le long terme. La Figure 136 présente l'absorption à 411 jours d'immersion des composites chargés à 30 % sans et avec 8 % de compatibilisant.

La cinétique d'absorption des échantillons est alors tracée en faisant le rapport de la quantité d'eau absorbée à l'instant t sur la quantité absorbée à saturation, c'est-à-dire après 411 jours d'immersion. Les courbes sont présentées en Figure 137.

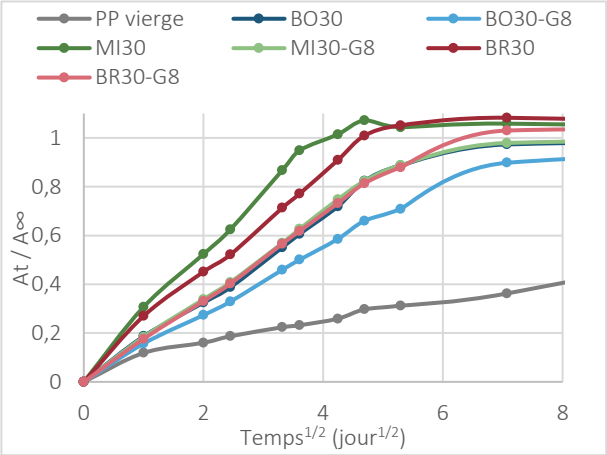



*Figure 137 Cinétique d'absorption des composites chargés à 30 % en charges végétales sans et avec compatibilisant*

Nous avons confirmation que les composites chargés en farine de bois absorbent l'eau moins vite que ceux chargés en miscanthus ou phragmites.

De plus, il apparait que la cinétique est ralentie avec l'ajout de l'agent de couplage ; les pentes des courbes correspondant aux composites compatibilisés sont plus faibles que celles correspondant aux composites non compatibilisés ; c'est l'échantillon PP-BO30-G8 qui possède la plus faible pente et donc la cinétique la plus ralentie.

Pour conclure, l'agent compatibilisant PP-g-MA a bien une influence sur le comportement en milieu aqueux des composites. Cela peut s'expliquer par une meilleure cohésion entre les charges et la matrice empêchant l'eau de s'infiltrer dans les pores des farines. En effet, nous avons vu dans la partie précédente que l'absorption d'eau était liée à la formation de liaisons entre les groupements OH libres de la cellulose et l'eau. L'ajout d'un agent de couplage peut améliorer les liaisons entre les charges et la matrice ce qui permet au polymère de couvrir une plus grande surface de charges végétales lors du mélange. L'agent de couplage augmente la quantité de liaisons ester entre les groupes hydrophiles des charges et la partie anhydride du PP-g-MA [121]. Par conséquent, la quantité de OH libres dans la cellulose diminue ce qui réduit l'augmentation de l'absorption d'eau.

Cependant, cette action ne semble que temporaire au vu de la Figure 136 sur laquelle on peut observer que l'absorption des composites compatibilisés est quasiment identique à celle des échantillons sans agent de couplage.

Nous avons utilisé la même méthode que précédemment pour les mesures d'absorption d'eau sur les composites chargés en différentes fractions de Brenne (les échantillons sont immergés à 60°C et leur masse est relevée à différentes échéances afin de tracer la courbe d'absorption en fonction du temps). Les courbes sont représentées en Figure 138.

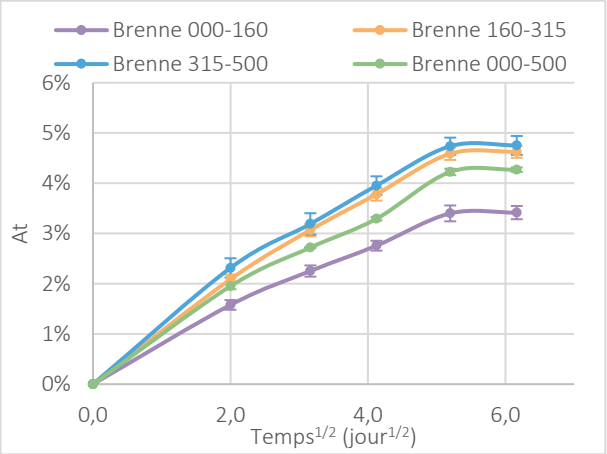



*Figure 138 Absorption des composites chargés avec différentes fractions de roseau de Brenne*

Les courbes d'absorption des composites chargés avec les fractions 160 - 315 µm et 315 - 500 µm sont quasiment superposées avec une légère différence pour la fraction 160 - 315 qui absorbe un peu moins d'eau. Mais la courbe correspondant au composite chargé avec la fraction 0 - 160 µm se détache des autres courbes : le composite absorbe moins d'eau qu'avec les autres fractions pour une valeur d'un peu plus de 3 % d'absorption contre presque 5 % pour les deux autres fractions après un mois d'immersion.

Nous avons vu précédemment que l'absorption des composites est proportionnelle au taux de charges, c'est-à-dire que ce sont les charges et donc les porosités qui accueillent l'eau. Les résultats de l'absorption des formulations chargées avec différentes fractions de roseau de Brenne nous indiquent que ce sont les particules les plus grosses qui absorbent le plus. En effet, les plus petites particules ont moins de porosités et donc moins de sites d'accueil de l'eau.

Pour compléter ces observations, une analyse des constituants selon la méthode de Van Soest décrite dans le Chapitre 2 a été effectuée sur les trois fractions par le Laboratoire Départemental d'Analyses du Morbihan. Pour une meilleure compréhension, les résultats sont exprimés en quantités de solubles, hémicellulose, cellulose et lignine et présentés en Figure 139.

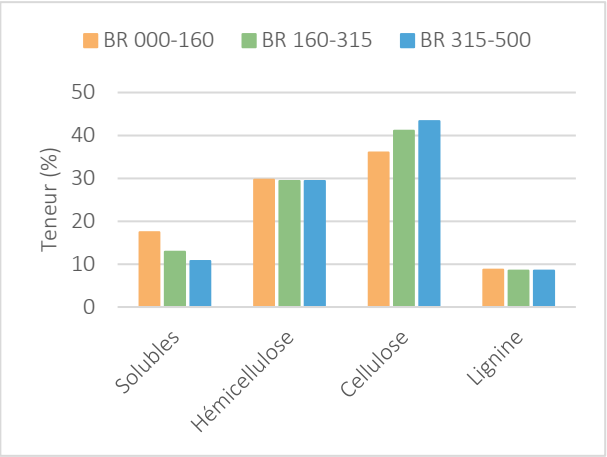



*Figure 139 Composition chimiques des différentes fractions de roseau*

La plus petite fraction (0 - 160 µm) contient plus de solubles et moins de cellulose tandis que l'inverse est observé pour la plus grosse (315 - 500 µm), moins de solubles et plus de cellulose. Les quantités d'hémicellulose et lignine sont identiques pour les trois fractions.

Deux hypothèses ressortent de ces résultats :

- Les solubles sont responsables de la baisse d'absorption. Certaines molécules sont hydrophobes et empêchent l'eau de rentrer dans les pores des particules
- La cellulose, en tant que polymère, forme de nombreux pores à l'intérieur d'une particule permettant ainsi à l'eau de s'y infiltrer. La plus grosse fraction contient plus de cellulose donc absorbe plus d'eau.

Il est difficile de conclure sur l'explication de cette différence d'absorption. Cela peut également venir de la nature des particules. En effet, les fractions ont été divisées par tamisage; il ne s'agit pas de farines de roseau délibérément broyées à 160 ou 315 µm. Selon la nature de la particule, celle-ci peut plus ou moins facilement être broyée. Par exemple, les nœuds de la tige du roseau phragmites sont plus résistants que les entre-nœuds ce qui les rend plus difficiles à broyer ; cette partie se retrouvera donc dans la plus grosse fraction. Cette explication est en accord avec la Figure 6 dans le Chapitre 1 (page 33), les nœuds contiennent plus de cellulose.

### II.2. Morphologies

Des images au MEB ont été réalisées sur des coupes longitudinale et transversale de bois, miscanthus et phragmites afin d'observer les pores. Pour bien visualiser la taille et le nombre de pores, les observations sont réalisées sur les granulats entiers et non sur les particules. Les images sont présentées dans le Tableau 19.

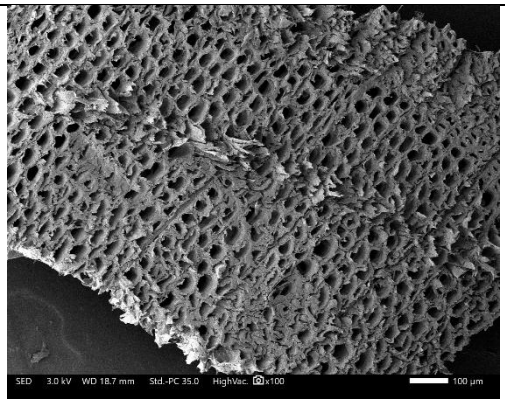
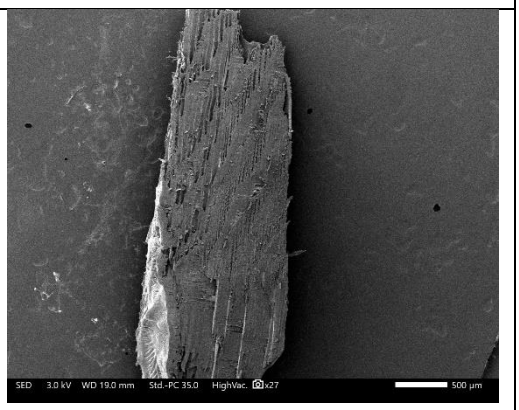
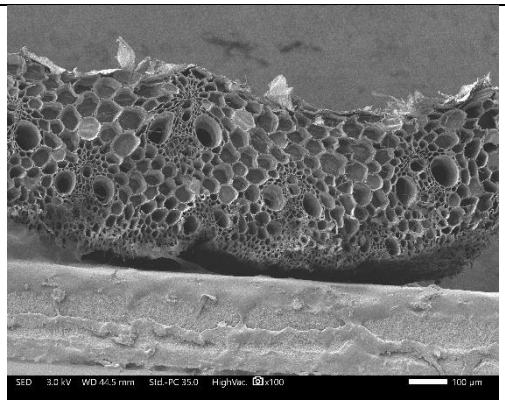
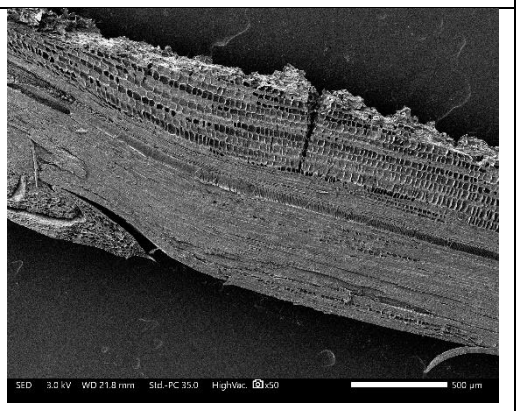
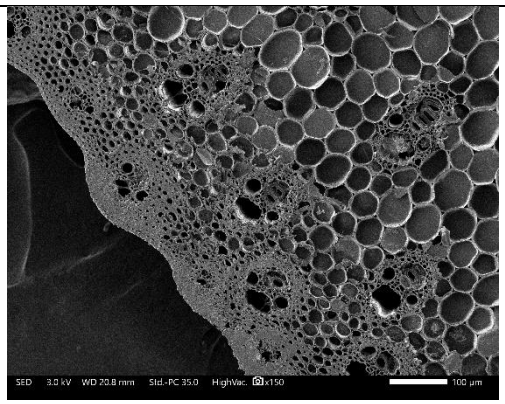
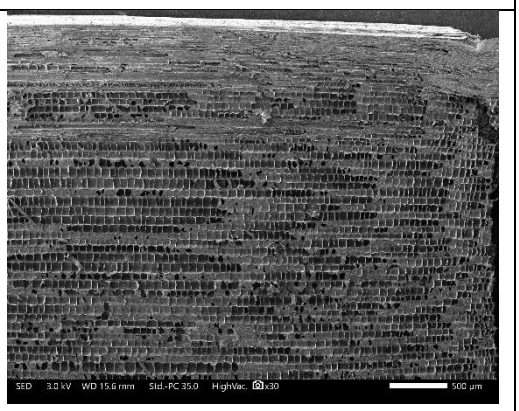
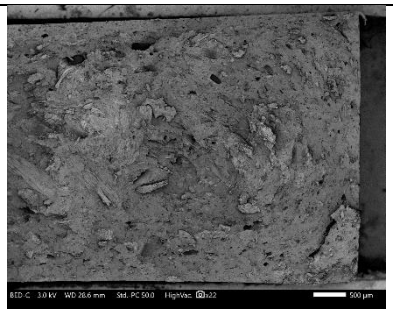
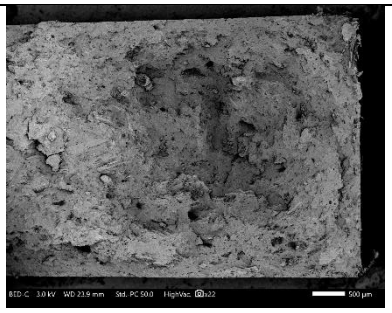
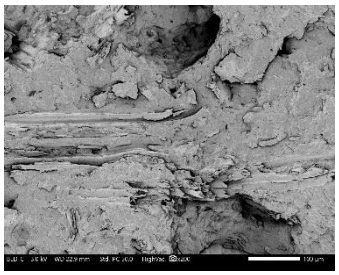
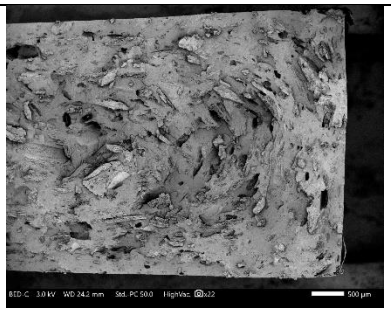
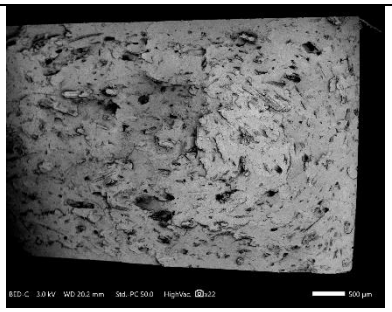
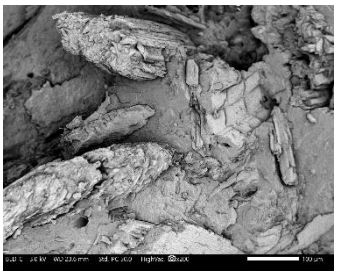
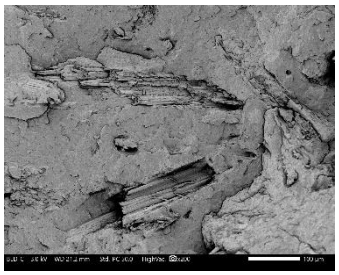
| Échantillon | Coupe transversale | Coupe longitudinale |
|---|---|---|
| Bois |  |  |
| Phragmites |  |  |
| Miscanthus |  |  |

*Tableau 19 Images au MEB des coupes transversale et longitudinale du bois, du phragmites et du miscanthus.*

En coupe transversale, les pores du bois semblent de taille homogène et plus petits comparés à ceux des deux roseaux, miscanthus et phragmites. Même si la coupe n'est pas parfaitement longitudinale pour le bois nous remarquons des pores beaucoup plus longs tandis que les pores du phragmites et du miscanthus sont assez petits. La différence d'absorption est donc peut-être due à cette taille de pores. En effet, le bois possède de plus longs pores et peut accueillir plus d'eau. Au broyage, les longues porosités fermées peuvent, une fois ouvertes, recevoir plus d'eau alors que les petites porosités fermées une fois ouvertes au broyage ne permettent pas l'accueil d'un même volume d'eau. L'hydrophobie du roseau pourrait donc également être due à la taille de ses porosités, très petites, ne permettant pas d'accepter la même quantité d'eau que le bois par exemple.

L'adhésion charges/matrice est caractérisée au MEB après fracture des éprouvettes des formulations PP avec et sans compatibilisant à l'azote liquide. Les images sont regroupées dans le Tableau 20.

| | 30 % | 30 % et 8 % PP-g-MA |
|---|---|---|
| Bois<br><br>Grossissement x22 |  |  |
| Grossissement x200 | |  |
| Phragmites<br><br>Grossissement x22 |  |  |
| Grossissement x200 |  |  |

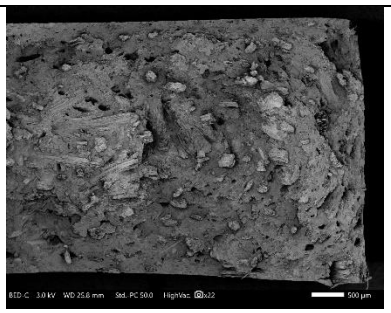
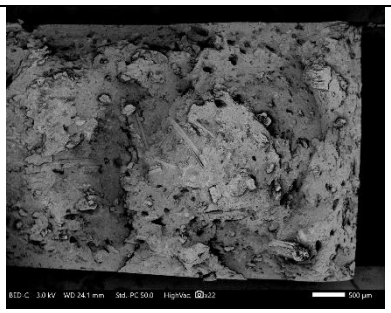
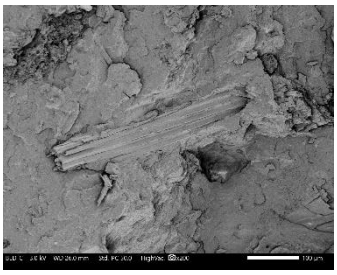
| | | |
|---|---|---|
| Miscanthus<br><br>Grossissement x22<br><br>Grossissement x200 |  <br> |  <br>  |

*Tableau 20 Influence de la compatibilisation sur l'adhésion charge/matrice - Observations MEB*

Les surfaces des échantillons compatibilisés semblent moins rugueuses avec moins de déchaussement de charges en grossissement x22.

Les images au grossissement x200 permettent d'observer de plus près l'adhésion. La surface des échantillons compatibilisés semble plus homogène et les charges sont mieux incorporées dans la matrice; cependant ces observations restent qualitatives.

Nous pouvons néanmoins affirmer une meilleure cohésion des charges à la matrice avec une amélioration de la déformation à la rupture en traction (cf. Figure 116).

L'adhésion des charges à la matrice PBS a été évaluée au MEB également en observant les profils de rupture en traction. Des observations avec trois grossissements (x23, x100 et x300) sont présentées dans le Tableau 21 pour les trois charges, le bois, le miscanthus et le phragmites de Brenne.

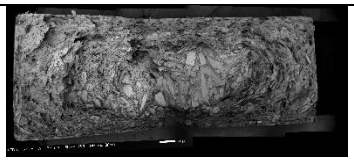
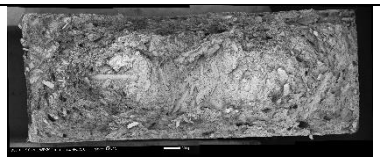
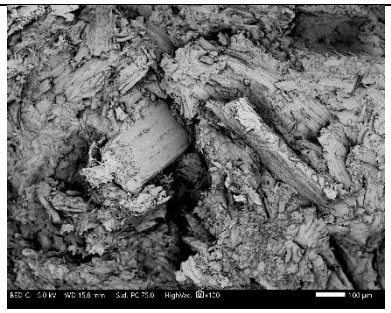
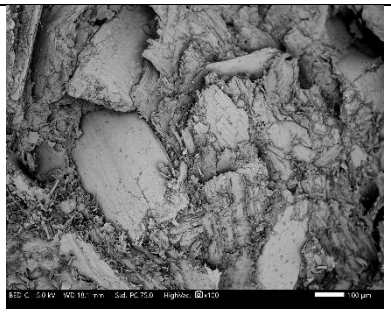
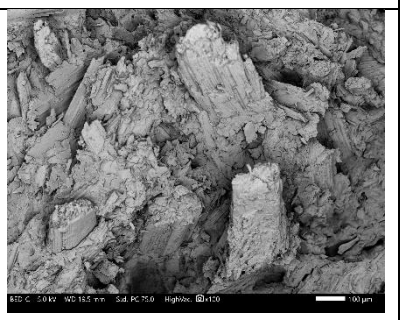
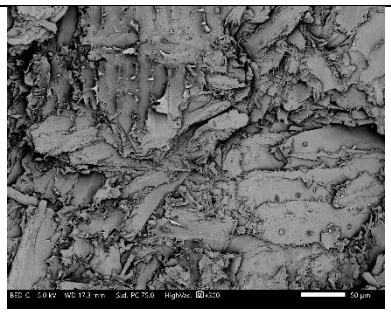
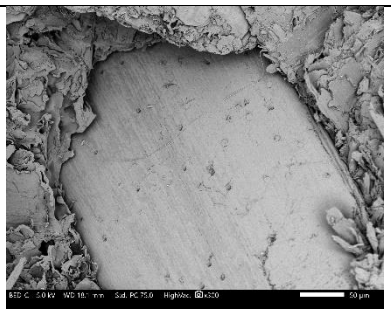
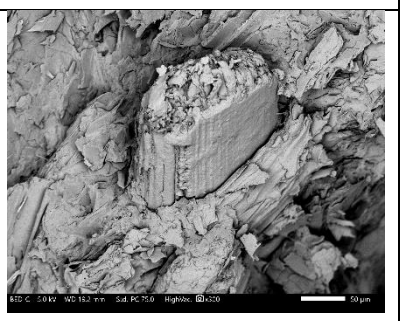
| Grossissement | PBS-BO50 | PBS-BR50 | PBS-MI50 |
|---|---|---|---|
| X23 | |  |  |
| X 100 |  |  |  |
| X 300 |  |  |  |

*Tableau 21 Images MEB des composites PBS chargés à 50 % en farines végétales*

De manière générale, on observe quelques déchaussements de charges pour les trois échantillons. La matrice PBS possédant des groupements ester, des liaisons hydrogène peuvent se former avec les groupements OH de la matière lignocellulosique permettant ainsi une meilleure adhésion des charges. Les plus grands grossissements mettent en évidence cette cohésion.

## CONCLUSION

Dans ce chapitre nous nous sommes intéressés à l'éligibilité du roseau *Phragmites australis* pour des applications dans le domaine de la plasturgie et plus précisément à l'incorporation de farine végétale de cette espèce dans des composites à matrices polymères pétro-sourcée et biosourcée. L'étude s'appuie sur deux références : le bois choisi pour sa large utilisation dans l'industrie du composite et son référencement scientifique et le miscanthus giganteus également très étudié dans la littérature scientifique et dont les propriétés se rapprochent de celles du phragmites

Cette partie est articulée suivant deux axes. Le premier s'intéresse à l'éligibilité du phragmites dans une matrice communément utilisée, le polypropylène. L'effet d'un agent compatibilisant ajouté à différentes teneurs est étudié afin de trouver une formulation potentiellement utilisable dans l'industrie du composite. Plusieurs paramètres sont considérés comme le taux de charges (de 20 à 50 % massique) et le taux d'agent compatibilisant PP-g-MA (4, 6 et 8 %) mais également la taille des charges dans le renforcement du composite. Les caractérisations mécaniques (traction, flexion et choc Charpy) et physico-chimiques (absorption d'eau et morphologies) sont réalisées sur l'ensemble des échantillons.

En traction comme en flexion, le module d'élasticité augmente proportionnellement au taux de charges tandis que la contrainte maximale diminue proportionnellement aussi. La déformation à la rupture diminue et semble atteindre un palier assez bas. Les charges végétales diminuent la ductilité du matériau et donc la valeur de déformation à la rupture. L'absorption d'eau des composites augmente avec le taux de charges. En effet, l'eau est essentiellement recueillie par les pores des particules végétales.

L'agent de compatibilisation améliore les propriétés mécaniques dès 4 % d'ajout à la formulation avec une augmentation de la contrainte maximale; au-delà les propriétés mécaniques n'évoluent plus. L'immersion des composites dans l'eau a permis d'établir la cinétique d'absorption des formulations non compatibilisées et compatibilisées à 8 %. L'agent de couplage agit comme un retardateur sur l'absorption d'eau en ralentissant la cinétique.

Les formulations de composites utilisant les trois fractions de farines ne voient pas leurs propriétés évoluer selon la taille des particules. En effet, nous pensons que la variation de taille des particules est trop faible pour avoir un effet sur les propriétés mécaniques. Cependant, ces résultats nous permettent de démontrer que ce sont les plus grandes particules qui absorbent le plus d'eau compte-tenu d'un plus grand nombre de pores mais également une quantité plus faible en solubles et plus importante en cellulose.

Le second axe de cette partie valorisation s'intéresse à l'utilisation d'une matrice biosourcée et biodégradable dont la compatibilité avec les charges est plus importante qu'avec le polypropylène. De la même manière, des formulations chargées de 20 à 50 % en bois, miscanthus et *Phragmites australis* sont réalisées par extrusion-injection pour la caractérisation mécanique.

Les mêmes conclusions que pour la matrice PP peuvent être exprimées à savoir que le module d'élasticité augmente proportionnellement à la teneur en charges végétales et inversement pour la contrainte maximale qui diminue avec le taux de farine. De même que la déformation à la rupture et la résilience diminuent.

L'absorption d'eau est également proportionnelle à la teneur en charges avec une valeur à saturation plus faible que pour les composites PP ce qui témoigne d'une meilleure cohésion entre les charges et la matrice biosourcée. L'adhésion charges/PBS apparait également comme meilleure sur les clichés MEB.

L'ensemble de cette étude nous permet de confirmer le potentiel du roseau phragmites en tant que charges dans des matrices apolaires comme polaires. En effet, les résultats sont très comparables à ceux obtenus avec les composites chargés en bois et en miscanthus avec un plus pour le roseau phragmites dont les propriétés en vieillissement pourraient être un avantage dans certains domaines comme l'utilisation en extérieur des composites (lames de terrasse, clôture...)

# CHAPITRE 4 : ÉTUDE DE LA VALORISATION DU ROSEAU *PHRAGMITES AUSTRALIS* EN ÉCO-CONSTRUCTION

# INTRODUCTION

Les matériaux bio-sourcés dans la construction existent depuis le Paléolithique, c'est-à-dire 400 000 ans avant Jésus-Christ, avec l'utilisation du bois (branches), de la paille ainsi que des peaux animales. La réalisation de torchis employant de la terre et des fibres animales et végétales ne s'est faite que lors de la sédentarisation des peuples au Néolithique [122].

Peu à peu, les matériaux à base de fibres végétales ont laissé place aux matériaux tels que la pierre, la brique et l'argile permettant des constructions plus grandes, à la Renaissance par exemple. Lors de la première Révolution industrielle et la première guerre mondiale, l'apparition des cités ouvrières a induit une forte croissance de la production de parpaings de béton en ciment Portland [123].

Ce n'est que lors du premier choc pétrolier de 1973 que les enjeux environnementaux ont été plus marqués ; le terme de développement durable fait alors son apparition et le monde entier commence à s'intéresser aux questions portant sur la protection de l'environnement [124]. Le protocole de Kyoto (1997) marque cette prise de conscience de tous les États signataires.

Les matériaux naturels anciennement utilisés sont de nouveau développés et étudiés dans le monde de la Recherche afin d'apporter des innovations dans le domaine du bâtiment. L'utilisation du végétal dans la construction est ainsi en forte augmentation ces dernières années.

Le végétal peut être employé de deux manières différentes, en première transformation, c'est-à-dire sous forme de paille ou fibre en tant qu'isolant et en seconde transformation, sous forme de béton ou de terre allégée utilisés en tant que matériau de remplissage dans des parties d'ouvrage.

C'est pourquoi nous étudions dans ce chapitre la valorisation du roseau *Phragmites australis* en éco-construction pour le bâtiment sous forme de bétons de remplissage. Il est divisé en quatre grandes parties.

La première est une revue de la littérature scientifique sur l'utilisation des matériaux bio-sourcés sous forme d'isolants vrac ou composites, les granulats ainsi que les liants et les formulations communément étudiées. Cette partie présente également les propriétés attendues selon des règles spécifiques aux matériaux bio-sourcés.

La seconde partie présente les matériaux utilisés dans la thèse ainsi que les formulations et la mise en œuvre de celles-ci. Pour cela, trois liants différents ont été étudiés : le Bâtichanvre de Saint-Astier® ; un mélange développé par les Plâtres Vieujot®, contenant de la chaux aérienne, du plâtre, de la terre et de la brique pilée ; et enfin un matériau terre crue. De la même manière, nous avons fait varier les

tailles de granulats incorporés ainsi que l'origine de ceux-ci ce qui permet d'avoir un panel assez complet d'échantillons variant suivant leur lieu de récolte, la période de fauchage et de récolte et leur broyage.

La troisième partie présente tous les protocoles de caractérisation des propriétés mécaniques en compression avec les différentes voies de mesure et calcul du module d'élasticité des bétons fabriqués. Cette partie décrit également le protocole de caractérisation utilisé pour les mesures de conductivité thermique.

La quatrième et dernière partie synthétise l'ensemble des résultats de ce chapitre. Nous avons étudié l'influence d'un changement de granulat sur les propriétés finales du mélange, en prenant la chènevotte de chanvre comme granulat de référence. L'influence de la taille des granulats est également évaluée ainsi que l'année et le lieu de récolte du roseau. Chaque formulation est évaluée par rapport aux règles professionnelles d'exécution d'ouvrages en béton de chanvre ce qui nous permet de conclure sur le potentiel du roseau au sein de matériaux de remplissage pour l'éco-construction.

# PARTIE 1 CONTEXTE DE L'ÉTUDE

## I. CHIFFRES CLEFS

En France, le bâtiment est le secteur le plus énergivore avec près de 45 % de l'énergie totale consommée (électricité comprise). C'est un secteur à fort impact environnemental qui représente 19 % des émissions de gaz à effet de serre (données 2015) [125].

Le premier objectif est de réduire la consommation énergétique de 28 % pour 2030. Dans cette consommation, environ 75 % sont utilisés pour les besoins énergétiques d'usage (chauffage, ECS, ventilation, éclairage) [126]. Il s'agit du levier le plus important dans la lutte contre les émissions de gaz à effet de serre et donc dans le réchauffement climatique. Le principal axe d'amélioration concerne l'optimisation de l'isolation pour une maîtrise de l'énergie de chauffage du bâtiment.

Comme évoqué en introduction, le choc pétrolier de 1973 marque un tournant dans la réglementation du secteur du bâtiment avec la création d'une règlementation thermique (RT). La RT2012 est la règlementation actuellement en vigueur. Elle impose une limite de consommation conventionnelle d'énergie primaire de l'ordre de 50 kWhEP.m$^{-2}$.an$^{-1}$. La prochaine règlementation (RE2020) doit tendre vers des constructions à énergie positive (BEPOS), et à neutralité carbone, dans les prochaines années.

C'est dans cette démarche de réduction de l'énergie d'usage, étroitement liée à l'optimisation de l'isolation du bâti, mais également dans la diminution de l'énergie « grise » et du bilan carbone de la construction, que l'étude des matériaux biosourcés s'est développée. La Figure 140 présente les différentes solutions isolantes et leur impact « réchauffement climatique » pour 1 m$^2$ et une épaisseur permettant une résistance thermique de 5 m$^2$.K/W.

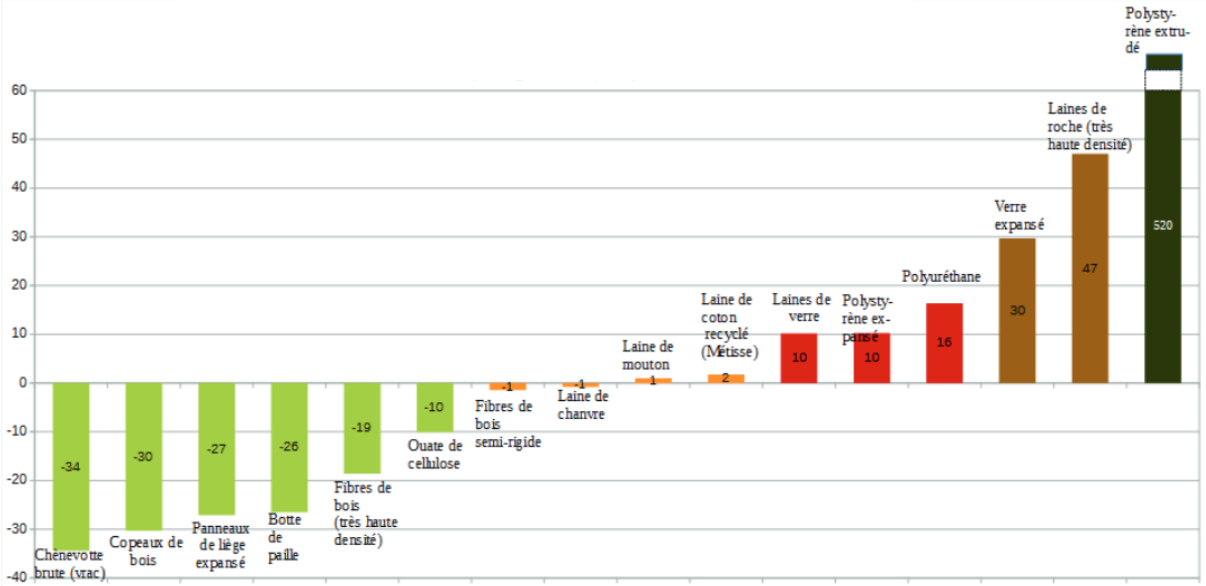



*Figure 140 Bilan Carbone de 1m$^2$ de divers isolants pour une épaisseur correspondant à une résistance thermique de 5m$^2$.K/W (en kg CO2 eq/UF)* [160]

Les matériaux biosourcés possèdent un bilan carbone nul ou négatif (en vert et orange) et sont considérés comme des puits de carbone. En effet, ces matériaux captent le $CO_2$ de la basse atmosphère lors de leur croissance via la photosynthèse et stockent ce carbone atmosphérique pendant toute la durée de leur utilisation en construction [127].

La Figure 141 présente l'énergie grise, c'est-à-dire l'énergie nécessaire à la production, de 1 $m^2$ et d'une épaisseur permettant une résistance thermique de 5 $m^2$.K/W. On remarque que les matériaux biosourcés en vrac, les moins transformés, présentent une énergie grise assez faible (botte de paille, chènevotte vrac, copeaux de bois…). Les fibres de bois possèdent une énergie grise élevée, comparable au polyuréthane, du fait des additifs pétro-sourcés qu'elles contiennent, et d'une énergie de fabrication conséquente. On retrouve les matériaux synthétiques : verre expansé, laine de roche et mousses polymères dans les matériaux à fortes énergies grises et dans les bilans carbones élevés.

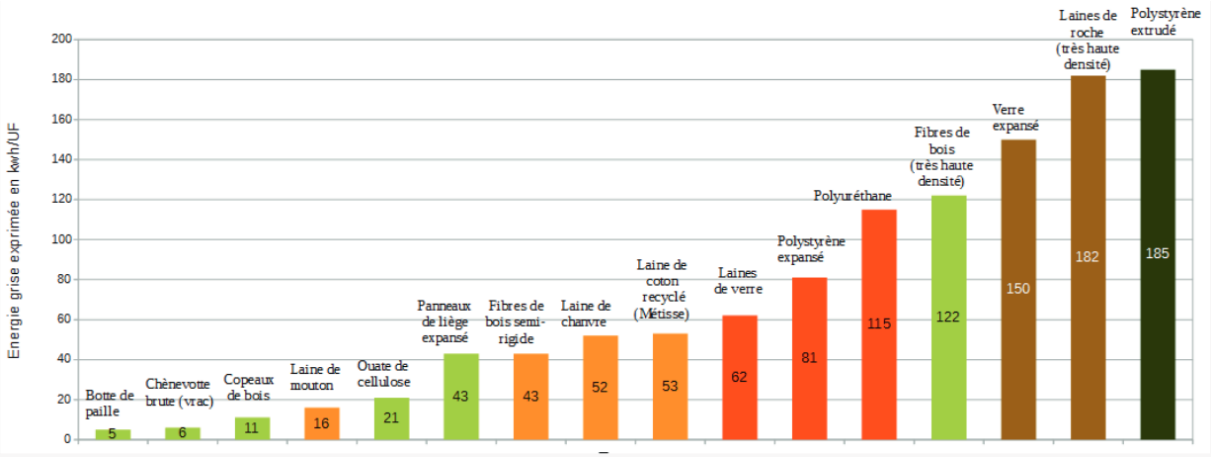



*Figure 141 Energie grise de 1 m² de divers isolants pour une épaisseur correspondant à une résistance thermique de 5 m².K/W (enkWh/UF)*

Il existe très peu de données sur le roseau *Phragmites australis* mais nous pouvons l'apparenter à la paille de blé. Sa croissance ayant débuté au printemps, le roseau commun récolté au début de l'hiver est un vrai puits de carbone. De plus, cette espèce végétale n'a aucun besoin en engrais ou fertilisant ce qui rend son énergie grise très peu élevée. Nous pouvons donc en déduire, sans données numériques, que l'utilisation du *Phragmites australis* en construction est pertinente d'un point de vue écologique

# II. UTILISATION DU VÉGÉTAL DANS LE DOMAINE DU GÉNIE CIVIL

## II.1. Utilisation du matériau vrac

Le matériau brut, qu'il soit sous forme de laine ou granulats, est utilisé le plus souvent en tant qu'isolant [128]. En vrac ou compacté, le matériau doit posséder de multiples propriétés afin de pouvoir concurrencer les matériaux actuellement utilisés [129].

Dans le domaine de la construction, le végétal doit répondre à un certain nombre de règles suivant son utilisation. Pour l'isolation de bâtiments, la conductivité thermique, la chaleur spécifique et la diffusivité thermique sont étudiées pour comparer les matériaux biosourcés aux matériaux tels que la laine de verre, la laine de roche ou bien le polystyrène expansé.

Pour l'isolation en vrac, la masse volumique apparente est un point clé dans la détermination des caractéristiques d'un matériau. Les propriétés des granulats peuvent également varier selon leur granulométrie et leur taux de porosités. Plusieurs méthodes existent à ce jour pour évaluer ces caractéristiques [130], [131].

## II.2. Bio-composites pour le bâtiment

### *II.2.a. Granulats*

Différents types de granulats peuvent être utilisés dans la fabrication de bétons végétaux. Certaines études ont été réalisées avec des co-produits agro-sourcés comme les pailles de blé et de riz, la fibre de coco, les coquilles de noisettes ou même les écorces d'arbres [132]. D'autres études se focalisent sur la chènevotte issue du chanvre et le miscanthus, les tailles de granulats allant de 2 à 5 mm en largeur et de 2 mm à 3 cm en longueur [133], [134]. La granulométrie est aussi un point clé pour la caractérisation d'un béton. Le taux de porosité entre également dans les paramètres car il représente la capacité des granulats à absorber l'eau ce qui modifie la formulation ainsi que le séchage et donc la prise du béton. Le taux d'extractibles, c'est-à-dire les sucres principalement, est très important. En effet, les sucres ralentissent la prise du liant minéral (chaux ou ciment) et font également diminuer la résistance en compression de l'élément fabriqué [135]. L'influence de ces extractibles qui sont solubles dans l'eau peut généralement être atténuée en ajoutant de la pouzzolane [136].

### *II.2.b. Liant*

Dans la fabrication de béton isolant, quatre types de liant peuvent être utilisés : la chaux aérienne, produite à partir de calcaire pur, la chaux hydraulique obtenue à partir de calcaire argileux et de marnes, le ciment naturel prompt (PNC) issu du calcaire argileux et la terre crue. Le choix du liant peut se faire selon l'utilisation du béton, sur un mur, un sol, une toiture ou en enduit et donc suivant l'application c'est-à-dire par déversement puis étalement sur la surface à couvrir, par projection mécanique ou application manuelle ou par banchage [137].

Beaucoup d'études portent sur les mélanges chaux-chanvre [51], [138], [139] et les propriétés mécaniques et isolantes selon le dosage en granulats (chènevotte) et la masse volumique (compactage). Dans le cas d'utilisation en tant qu'isolant, le chaux-chanvre n'a pas l'obligation d'être porteur mais simplement de supporter son propre poids.

### *II.2.c. Formulations*

Selon l'application, la formulation est déterminante. Le béton de chanvre peut être utilisé pour l'isolation de toiture, plancher mais également de murs (Figure 142).

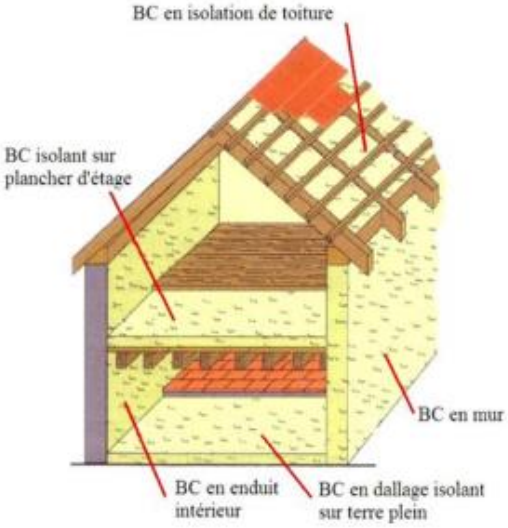



*Figure 142 Utilisation du béton de chanvre dans la construction d'une habitation* [51]

Des règles professionnelles d'exécution d'ouvrages en chanvre, validées en 2008, constituent une référence pour la réalisation de béton de chanvre et peuvent s'appliquer à n'importe quel granulat végétal à condition de prendre en compte les variations liées au changement de plante et donc de propriétés d'absorption d'eau ou de quantité d'extractibles [139]. Ainsi, les quantités peuvent varier de 50 à 90 % massique en liant par rapport au poids total sec et de 10 à 50 % de chènevotte. Pour la formulation du béton servant comme enduit, les quantités peuvent atteindre 55 % massique en liant,

37 % en eau et 8 % en chènevotte. Pour une dalle, la chènevotte sera ajoutée à hauteur de 14 %, le liant 35 % et l'eau 51 %. Pour une application mur, la formulation sera comparable avec 16 % de chènevotte, 34 % de liant et 50 % d'eau. La formulation en toiture est plus légère, avec une augmentation du taux massique de granulats (25 %) et une diminution du liant (25%), pour 50 % d'eau [139].

Pour ce qui est de l'utilisation de terre crue, la formulation comprend généralement 20 % massiques de chènevotte pour 80 % de barbotine (mélange eau-terre) [95].

La composition modifie les propriétés du composite fabriqué. Des tests physiques, mécaniques et hygrothermiques sont donc réalisés afin d'évaluer les caractéristiques des différentes formulations.

## III. UTILISATION DU ROSEAU COMMUN DANS LE GÉNIE CIVIL

Actuellement, le roseau commun est utilisé dans le bâtiment sous diverses formes. Comme l'explique L. Debout dans ses travaux de fin d'études réalisés au Parc des Vosges du Nord [140], le phragmites peut être utilisé sous forme de tiges ou broyats principalement. Les tiges sont employées en claustra, nattes et même panneaux préfabriqués pour la réalisation de façades. De plus, les nattes de roseau peuvent être utilisées comme support d'enduit. Les broyats, ou granulats, peuvent être utilisés en isolant vrac directement dans les murs ou bien sous forme de composites avec différents liants (terre, chaux, plâtre…). C'est cette dernière application qui sera étudiée dans le cadre de cette thèse.

Les travaux de L. Debout ont également permis de recenser les acteurs de la filière roseau en France, avec entre autres les récoltants mais également les entreprises utilisant le roseau sous diverses formes. Par exemple, l'entreprise RizHome, partenaire de la thèse, emploie le roseau en vrac pour l'isolation mais également en toiture et façade en orientant verticalement les tiges. L'entreprise Bâtilibre utilise les nattes de roseau comme ossature avant la pose de béton isolant ou bien d'enduit de finition. Le Parc Naturel des marais du Bessin et du Cotentin développe actuellement des panneaux préfabriqués ainsi que des briques à base de terre et broyats de phragmites. De la même manière, le projet Européen CobBauge visant à développer une nouvelle génération de matériaux en bauge utilisant des fibres agricoles ou coproduits industriels étudie actuellement la possibilité d'incorporer de la paille de roseau [141].

## IV. ÉVALUATION DES PROPRIÉTÉS

Les propriétés mécaniques et thermiques sont les caractéristiques le plus importantes dans le bâtiment et sont à évaluer par des tests de compression et de cisaillement mais aussi d'absorption de vapeur d'eau ou bien de conductivité thermique [142].

## IV.1. Propriétés mécaniques en compression

### *IV.1.a. Littérature scientifique*

Les essais de compression donnent le module d'élasticité, la résistance en compression et la contrainte à la rupture. Ces essais de compression peuvent être réalisés après stockage des échantillons à différentes Humidités Relatives (HR) comme à différentes températures. Les essais de compression de ce chapitre seront réalisés après un stockage des échantillons dans les conditions standards suggérées par les règles professionnelles « construire en chanvre » [139] : 23°C et 50 % d'humidité relative. L'étude de la variation des propriétés selon le stockage ne sera pas évaluée pour les échantillons étudiés pendant cette thèse.

Différentes allures de courbes sont observées selon le dosage en chanvre (Figure 143) mais également en fonction de l'âge du mélange au moment de l'essai (Figure 144).

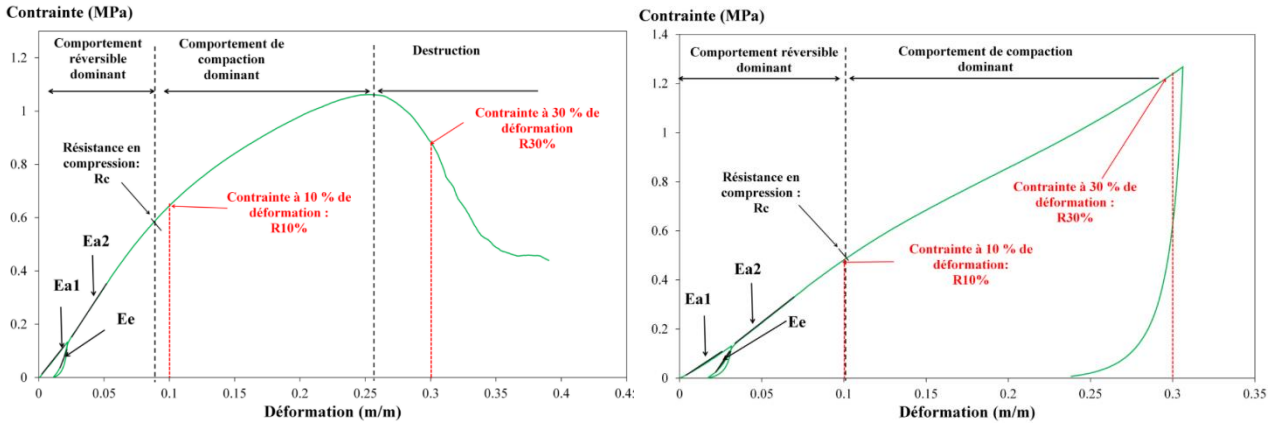



*Figure 143 Courbes de compression d'un mélange chaux-chanvre selon le dosage en chanvre (fort dosage à gauche et faible à droite) [161]*

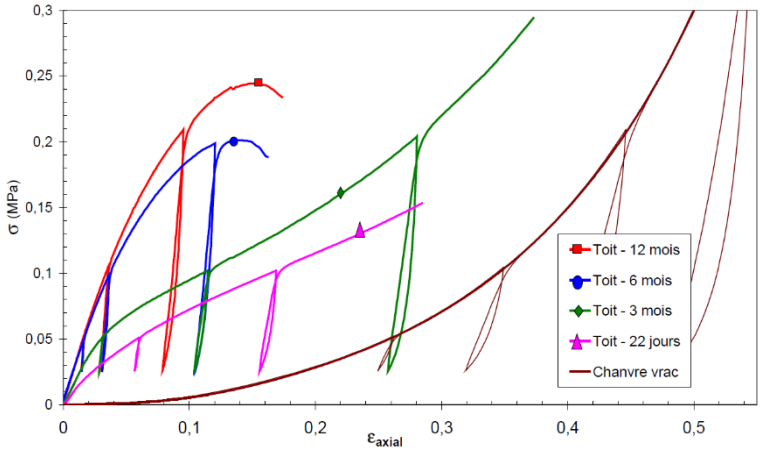



*Figure 144 Allures des courbes de compression de mélanges chaux-chanvre à faible dosage en liant en fonction du temps*

Lorsque la formulation est très chargée en granulats la courbe de compression peut être divisée en plusieurs parties (Figure 145). La phase I présente un domaine visco-élastique (déformation réversible, non linéaire) ; la phase II marque un début de plasticité et correspond à la rupture du liant au sein de l'empilement. La phase III correspond à un réarrangement granulaire dans un premier temps (déformation forte pour une élévation de la contrainte relativement faible) puis à une densification de l'empilement et des particules (augmentation forte de la contrainte). La quatrième et dernière phase correspond à la rupture de l'éprouvette et n'a pas toujours lieu.

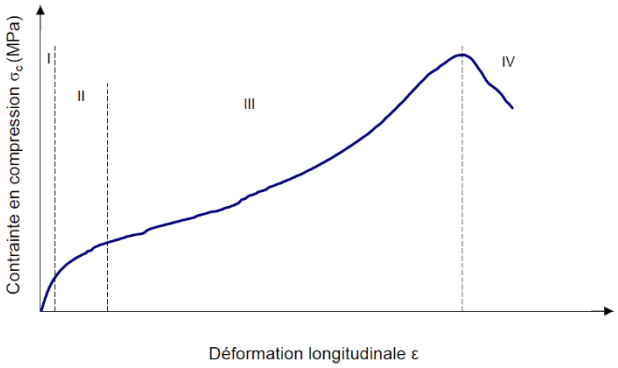



*Figure 145 Les différentes phases de la courbe de compression d'un béton de chanvre* [162]

La phase de réarrangement peut également être représentée par un plateau sur la courbe de compression comme le montre le graphique de gauche sur la Figure 146.

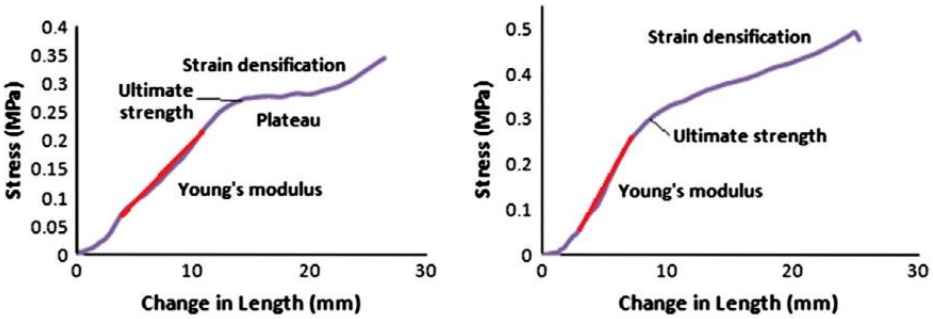



*Figure 146 Deux graphiques représentatifs du comportement du chaux-chanvre* [163]

Il est difficile au vu de la diversité des allures de courbes d'identifier les résistances en compression mais également la limite d'élasticité de ces matériaux dans le cas d'un comportement compactant (Figure 146).

Selon la Norme NF EN 826 [143] sur la détermination du comportement en compression d'isolants thermiques pour l'application en bâtiment, la contrainte en compression correspond au point d'inflexion de la courbe lorsque celui-ci apparait avant 10 % de déformation.

Plusieurs modules d'élasticité peuvent également être déterminés (Figure 147). Le module apparent est la réponse à un chargement du matériau initial tandis que les cycles de décharge puis charge correspondent au module d'élasticité lorsque celui-ci est soumis à des sollicitations temporaires. Le module tangent est la pente maximale au cours d'un cycle.

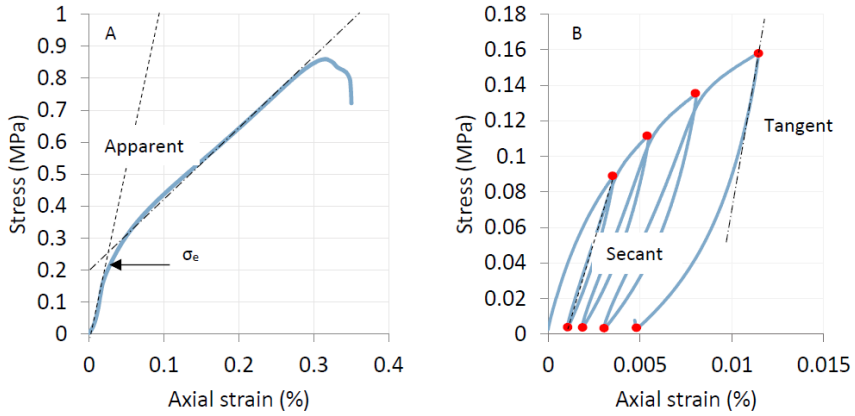



*Figure 147 Détermination des modules d'élasticité* [52]

### *IV.1.b. Règles professionnelles d'exécution d'ouvrages en chanvre*

Les règles professionnelles d'exécution d'ouvrages en chanvre préconisent une résistance en compression et des modules d'élasticité différents selon l'application [144]–[146]. Le Tableau 22 reprend les valeurs seuils recommandées. L'application en isolation de toiture demande des caractéristiques plus faibles que l'application en enduit.

| Valeur seuil (minimum) En conditions standards | Module d'élasticité (MPa) | Résistance à la compression (MPa) |
|---|---|---|
| Enduit | > 20 | > 0,3 |
| Mur | > 15 | > 0,2 |
| Toit | > 3 | > 0,05 |

*Tableau 22 Recommandations sur les performances mécaniques des formulations chaux/chènevotte selon les applications*

Les propriétés mécaniques des bétons sont liées directement à leur masse volumique. Plus le béton végétal a une masse volumique grande et plus sa résistance en compression sera élevée. La microstructure du matériau peut également être étudiée par observations microscopiques donnant des informations concernant les porosités des particules mais également les interfaces granulats/liant et les décohésions potentielles [134].

#### *IV.1.c. Forme des échantillons*

Nous avons choisi de réaliser des cylindres et des cubes pour comparer le comportement de chacun suivant leur élancement (2 pour le cylindre et 1 pour le cube) en évaluant les différences mesurées sur les modules pour les deux types d'éprouvettes. En effet, on retrouve dans la littérature une influence de l'élancement de l'éprouvette ainsi que de sa forme sur le comportement mécanique en compression [51], [52], [76].

### **IV.2.** Propriétés thermiques

La caractérisation thermique se fait principalement sur la mesure de la conductivité thermique pour différentes teneurs en eau, correspondant à différentes conditions de stockage du matériau avant essai.

La conductivité thermique en $W.m^{-1}.K^{-1}$, notée λ, correspond au flux de chaleur par mètre carré traversant un matériau d'un mètre d'épaisseur pour une différence de température d'un degré [139].

La Figure 148 présente les épaisseurs équivalentes pour une résistance égale à 5 $m^2.K.W^{-1}$ selon le matériau. Les isolants les plus performants du point de vue de la conductivité thermique sont le polyuréthane, le polystyrène et la laine minérale. Ce sont aussi les matériaux présentant une forte énergie grise et un bilan carbone élevé. Les laines isolantes à base de matériaux biosourcés (laine de bois, laine de chanvre ou de lin, coton…) présentent de performances très proches des isolants synthétiques. En revanche, du fait de leur mélange avec une matrice minérale, les mélanges chaux/chanvre ou les terres allégées sont plus conducteurs. Ils demandent donc une plus grande épaisseur pour une même résistance thermique théorique.

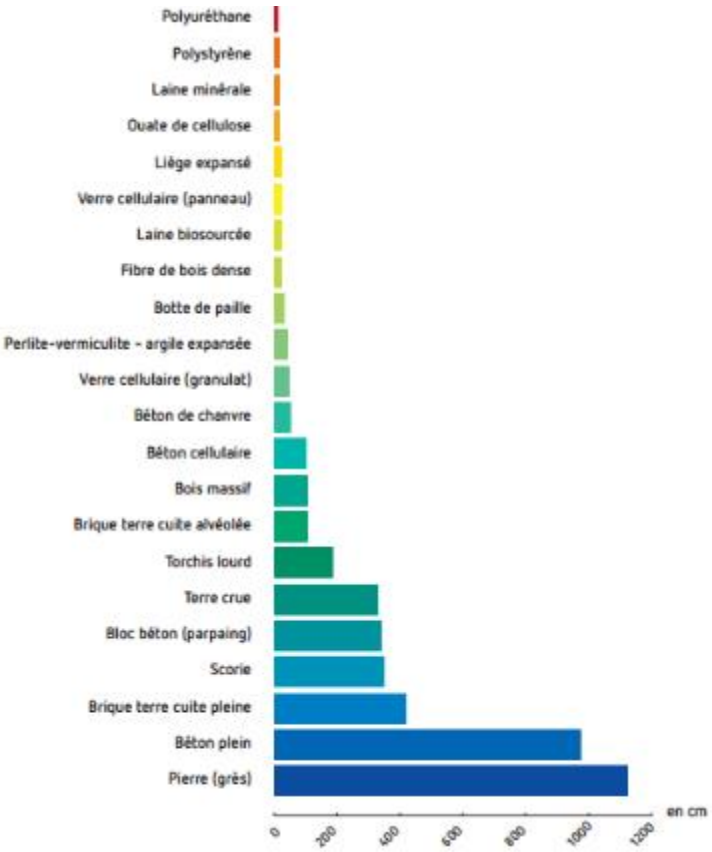



*Figure 148 Épaisseur équivalente moyenne pour une résistance thermique R = 5 m².K.W⁻¹*

Différentes méthodes sont utilisées pour mesurer la conductivité thermique, les deux principales étant la méthode du fil chaud et la méthode de la plaque chaude gardée.

Dans le cadre de la thèse, la seconde méthode sera utilisée avec un appareillage présent au sein du laboratoire. Celle-ci sera détaillée dans la Partie 3.

Nous avons comme valeurs de référence les recommandations des règles professionnelles d'exécution d'ouvrages en béton de chanvre présentées dans le Tableau 23.

| En conditions standards | Conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$) |
|---|---|
| Enduit | 0,17 |
| Mur | 0,1 |
| Toit | 0,06 |

*Tableau 23 Recommandations sur les performances thermiques des formulations chaux/chènevotte selon les applications*

# PARTIE 2 ÉTUDE EXPÉRIMENTALE : MATÉRIAUX ET MISE EN ŒUVRE

## I. CHOIX DES FORMULATIONS

### I.1. Les liants

Différents liants ont été étudiés dans ce volet de valorisation. Le principal est le Bâtichanvre, un mélange de chaux aérienne (70 %) et de liants hydrauliques et pouzzolaniques (30 %) développé par Saint Astier®. Il s'agit d'un liant spécialement conçu pour les bétons de chanvre et validé par l'association « Construire en Chanvre ». Le second liant testé est une terre de référence utilisée lors de la thèse de Théo Vinceslas [52] à l'IRDL. Le troisième et dernier liant utilisé est un mélange de plâtre (40 %), de chaux aérienne CL 90 (40 %), de terre (10 %) et de brique pilée (10%) formulé par l'entreprise Vieujot, le PCC 24bis. Ce liant est utilisé par l'entreprise Bâtilibre, située à Haguenau (67), dans ses chantiers de rénovation, et déjà mélangé à des granulats de roseau phragmites.

### I.2. Les granulats végétaux

Comme évoqué précédemment, différents granulats de roseau phragmites ont été utilisés pour ce volet. Ces échantillons diffèrent par leur lieu de récolte, leur période et leur répartition granulométrique. L'étude approfondie des caractéristiques intrinsèques est développée dans le Chapitre 2. Pour rappel, le Tableau 24 présente les données de récolte et broyage de tous les échantillons de roseau commun utilisé dans ce volet de valorisation.

| Nom de l'échantillon | Bretagne | Camargue | Brenne | Velving | Velving | Waldhouse | Waldhouse |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Abréviation | ADEV | CAM | BREN<br>BREN50 | VEL-S6<br>VEL-S12 | VEL-V12 | WAL19-S6<br>WAL-S12 | WAL20-S6 |
| Origine | Roselière Finistère (29) | Parc Naturel Régional de Camargue (13) | Parc de la Brenne | Réserve naturelle de Velving (57) | | Waldhouse, (57) | |
| Période de coupe | Hiver 2015-2016 | Mars 2019 | Hiver 2016-2017 | 11/02/2020 | 18/09/2019 | Mars 2019 | Mars 2020 |
| Récolte | Lors de la coupe | | | 11/02/2020 | 11/02/2020 | Lors de la coupe | |
| Récoltant | NC | | ADEV | Conservatoire d'espaces naturels - Lorraine | | Parc Naturel Régional des Vosges du Nord (PNRVN) | |
| Lieu de broyage | ADEV | | | Tuilerie Briqueterie Lanter (67) | | | |
| Taille | 10-30 mm | | 10-30 mm | 6 mm | 12 mm | 12 mm | 6 mm |
| | | | 30-50 mm | 12 mm | | 6 mm | |

*Tableau 24 Données sur les échantillons de roseau utilisés pour le volet Écoconstruction*

## **I.3.** Formulations et nomenclature

### ***I.3.a.*** *1ère campagne : formulations Saint-Astier*

Une première campagne de formulations a été réalisée après discussion avec notre partenaire de thèse ADEV Environnement. Les mélanges ont été formulés avec du Bâtichanvre et le roseau de Bretagne. Trois formulations sont réalisées avec du phragmites (Ces formulations sont nommées « ADEV ») et une avec de la chènevotte notée « REF » (Cf. Tableau 25). Les quantités pour le béton ADEV1 ont été choisies d'après la formulation conseillée par Saint-Astier pour les chapes de sol ou les mortiers pour colombages utilisant un béton de chanvre (Annexe 4). Seule la quantité d'eau varie car comme nous l'avons vu au Chapitre 2, le roseau phragmites absorbe moins d'eau que la chènevotte. ADEV2 correspond à la même formulation avec moins de liant Bâtichanvre. Ces deux formulations sont réalisées en accord avec ADEV Environnement à 1080 kg/m$^3$ et 924 kg/m$^3$ à l'état frais pour ADEV1 et ADEV2 respectivement.

ADEV3 correspond à la formulation ADEV1 avec deux fois plus de roseau pour alléger le mélange et le rendre plus isolant thermiquement. Il s'agit d'un mélange conseillé par Saint-Astier pour la réalisation de mortiers pour sous-toiture. Le mélange REF3 correspond à la même formulation qu'ADEV3 avec de la chènevotte à la place du roseau et un ajout d'eau correspondant à l'absorption des granulats de chanvre d'après les résultats du Chapitre 2.

| Échantillon | Granulat (Roseau/chènevotte) (kg) | Bâtichanvre (kg) | Eau (L) | Granulats/liant | Eau/granulats |
|---|---|---|---|---|---|
| ADEV1 | 70 | 250 | 207 | 0,28 | 2,96 |
| ADEV2 | 70 | 187,5 | 210 | 0,37 | 3,00 |
| ADEV3 | 140 | 187,5 | 210 | 0,75 | 1,50 |
| REF3 | 140 | 187,5 | 270 | 0,75 | 1,93 |

*Tableau 25 Formulations de la première campagne de bétons végétaux*

### ***I.3.b.*** *2ème campagne : variation de la quantité d'eau*

La deuxième campagne de formulations a été réalisée dans le but d'identifier la formulation optimale en termes de quantité d'eau avec le Bâtichanvre. Pour cela, quatre formulations sont réalisées avec le roseau breton (ADEV) et quatre quantités d'eau présentées dans la nomenclature en Figure 149. Ces échantillons seront nommés ADEV-F1, ADEV-F2 et ADEV-F3 dans la suite de ce manuscrit. De la même manière, quatre formulations ont été réalisées avec la chènevotte, REF-F1,

REF-F2 et REF-F3, dans un but de comparaison roseau/chènevotte. Un rapport granulats/liant est fixé à 0,6 ainsi qu'une masse volumique à l'état sec d'environ 300 kg.m$^{-3}$ c'est-à-dire en comptant les granulats et le liant mais non l'eau liée. Les masses volumiques réelles des échantillons sont mesurées avant les essais mécaniques.

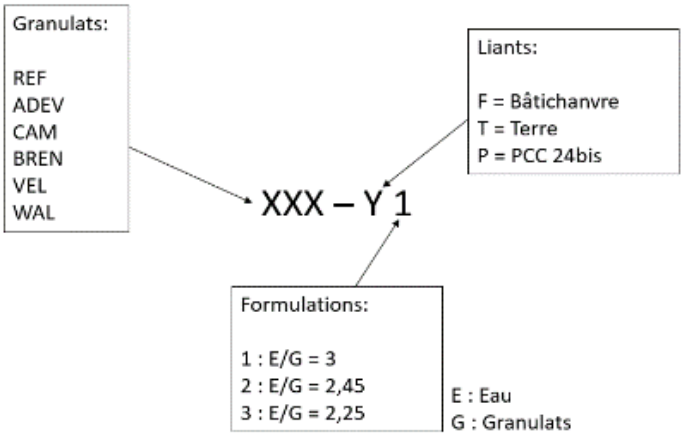



*Figure 149 Nomenclature des échantillons de bétons végétaux*

### *I.3.c. 3ème campagne : variation de la masse volumique*

La troisième campagne concerne la variation de masse volumique des échantillons fabriqués. Pour cela, trois formulations sont réalisées avec le roseau de Brenne (BREN) et du Bâtichanvre de type BREN-F2 à 300, 350 et 400 kg/m$^3$ à l'état sec. Les échantillons seront notés BREN-F2-300, BREN-F2-350 et BREN-F2-400 dans la suite.

De la même manière, une formulation ADEV-F1bis a été réalisée avec une masse volumique de 380 kg/m$^3$.

### *I.3.d. 4ème campagne : variation du liant*

Pour évaluer l'influence du liant sur la prise du béton mais également sur les propriétés mécaniques, des formulations sont réalisées avec de la terre et du PCC 24bis.

Une formulation avec le PCC 24bis et du roseau de Bretagne à 300 kg/m$^3$ (ADEV-P1) sera comparée à l'échantillon ADEV-F1 dont seul le liant varie.

Pour les formulations à la terre, un mélange est réalisé avec un rapport granulats/terre égal à 0,8 et une masse volumique à 300 kg/m$^3$. Les échantillons sont réalisés avec du roseau de Bretagne (ADEV-T) et de la chènevotte (REF-T).

### *I.3.e. 5ème campagne : variabilité du granulat*

La dernière campagne concerne la variabilité du granulat de phragmites. Pour cela, les différents échantillons de roseau sont utilisés pour des formulations F2 avec du Bâtichanvre, un rapport granulat/liant égal à 0,6 et une masse volumique à 350 kg/m$^3$.

L'influence de l'origine des granulats est étudiée avec les échantillons VEL-S6-F2, WAL19-S6-F2 et WAL20-S6-F2 indépendamment de la taille de particules car nous avons observé une répartition quasiment identique pour ces trois granulats dans le Chapitre 2. De la même manière, ADEV-F2-350 (formulation différente de ADEV-F2 qui a une masse volumique de 300 kg/m$^3$ dans la partie I.3.b.), BREN-F2-350 (réalisé pour la partie I.3.c), VEL-S12-F2 et WAL19-S12-F2 sont comparées indépendamment de la taille de particules. L'influence de l'origine du roseau peut également être évaluée avec BREN50-F2-350 et CAM-F2 qui ont la même granulométrie.

L'influence de la répartition granulométrique est évaluée avec les formulations VEL-S6-F2/VEL-S12-F2, WAL19-S6-F2/WAL19-S12-F2 et BREN-F2-350/BREN50-F2-350.

La différence entre un roseau coupé sec et un roseau coupé vert et roui est étudiée avec les échantillons VEL-S12-F2 et VEL-V12-F2.

L'influence de l'année de récolte est étudiée avec les échantillons WAL19-S6-F2 et WAL20-S6-F2.

## **I.4.** Méthodes de mise en œuvre des éprouvettes

### *I.4.a. Mélange des constituants*

Il existe plusieurs méthodes permettant le mélange des constituants. Les règles de Construire en Chanvre utilisent une bétonnière ou un malaxeur pour effectuer les mélanges de bétons végétaux de chènevotte. La taille du malaxeur dépend de la quantité d'échantillons à réaliser.

Du fait du manque de matières premières pour certains types de roseau nous n'avons pas pu fabriquer des cylindres pour toutes les formulations.

Afin d'optimiser le malaxage (éviter la formation d'agrégats de particules ou de liants), les mélanges ont été réalisés avec un malaxeur planétaire Skako de 80 L pour les grands échantillonnages (à la fois des cylindres 16x32 cm et des cubes 10x10 cm) et avec un robot mélangeur Hobart de 5 L lorsque les formulations étaient réalisées pour fabriquer uniquement des cubes.

### *I.4.b. Compactage*

Lors de la mise en œuvre de bétons végétaux par banchage, le mélange est versé dans la banche puis tassé, soit juste après le déversement, soit après avoir atteint une certaine hauteur. Lorsque la

première banche est remplie, une seconde est mise en place. Le même processus est alors répété. Selon le type de béton, le décoffrage peut se faire le lendemain et jusqu'à six jours après mise en œuvre [147].

Le compactage des formulations dans les moules cylindriques 16x32 cm a été effectué manuellement à l'aide d'un disque de 16 cm de diamètre. La masse à introduire dans un cylindre est préalablement pesée et le remplissage du moule est effectué en 5 couches de hauteur identiques, avec tassement manuelle entre chaque couche.

Les éprouvettes cubiques de 10 cm de côté sont réalisées avec un moule de six cubes fabriqué au laboratoire. Le compactage est également manuel en utilisant une plaque carrée. De la même manière, la masse à introduire dans chaque moule est pesée au préalable. Le tassement des cubes est réalisé en 4 couches.

# PARTIE 3 ÉTUDE EXPÉRIMENTALE : PROTOCOLES ET MÉTHODES D'ANALYSE

## I. ESSAIS DE COMPRESSION

Les propriétés des différents échantillons ont été évaluées mécaniquement en compression. Les protocoles sont détaillés dans la suite de cette partie.

Un récapitulatif des échantillons testés en compression est présenté dans le Tableau 26.

| Échantillon | Cylindres | Cubes |
|---|---|---|
| 1ère campagne | ADEV1<br>ADEV2<br>ADEV3/REF3 | |
| 2ème campagne | ADEV-F1/REF-F1 | |
| | | ADEV-F2/REF-F2<br>ADEV-F3/REF-F3<br>ADEV-F4/REF-F4 |
| 3ème campagne | | BREN-F2-300<br>BREN-F2-350<br>BREN-F2-400<br>ADEV-F1bis |
| 4ème campagne | | ADEV-P1 |
| | ADEV-T/REF-T | |
| 5ème campagne | | ADEV-F2-350<br>BREN50-F2-350<br>CAM-F2<br>WAL19-S12-F2<br>WAL19-S6-F2<br>WAL20-S6-F2<br>VEL-S12-F2<br>VEL-V12-F2<br>VEL-S6-F2 |

*Tableau 26 Récapitulatif des échantillons testés en compression*

Tous les essais de compression ont été réalisés après un stockage des échantillons en conditions standards, c'est-à-dire 20°C et 50 % d'humidité relative.

## **I.1.** Cylindre

### ***I.1.a.*** *Dispositif*

La première campagne de formulations composée uniquement de cylindres a été réalisée avec une machine Zwick munie d'un capteur de force de 250 kN. Le plateau inférieur est rotulé afin de maximiser le contact avec la surface non parfaitement parallèle des échantillons.

Les cylindres ADEV-F1, REF-F1 et les formulations terre ont été testées sur une machine Instron 5969 munie d'une cellule de force de 50 kN.

L'instrumentation des montages permet de suivre les déplacements de deux manières différentes (Figure 150): la mesure de la position de la traverse, qui prend en compte la hauteur totale de l'éprouvette (évolution de la position relative des deux plateaux de la presse) ; la mesure de la déformée du tiers central de l'éprouvette, via un extensomètre ancré dans le cylindre à l'aide de pointes et trois LVDT mesurant l'évolution de la distance moyenne entre les deux plateaux de cet extensomètre au cours de l'essai.

*Figure 150 Éprouvette ADEV1 avec dispositif d'acquisition de déformation extensomètre sur machine Zwick*

#### *I.1.b. Méthode machine*

Une première méthode consiste à effectuer trois cycles de charge/décharge, à faible déformation (< 6 %), réalisés et pilotés en force afin d'estimer la rigidité du matériau dans la zone pseudo-élastique (zone I). La vitesse de traverse est fixée à 3 mm/min (i.e. une déformation de 0,013 $min^{-1}$) pour l'ensemble de l'essai.

Les éprouvettes pouvant aller vers de très grandes déformations (jusqu'à 50%), l'ensemble de l'extensomètre est retiré à la fin de ces cycles.

Un nouveau chargement est réalisé jusqu'à rupture de l'éprouvette ou jusqu'à la limite de déplacement de la traverse.

Un exemple d'essai de compression à grande déformation est présenté en Figure 151.

*Figure 151 Exemple d'essai de compression à grande déformation sur cylindre ADEV3*

### **I.2.** Cube

#### *I.2.a. Dispositif*

Tous les essais de compression sur les cubes ont été réalisés sur la machine Instron 5969 équipée d'une cellule de force de 50 kN.

De même que pour les cylindres, deux moyens de mesure sont utilisés : le déplacement de la traverse donnant la déformation longitudinale sur la hauteur totale de l'éprouvette et un système d'acquisition d'images en 2D (Figure 152) avec le logiciel Aramis (acquisition directe d'images au moyen de capteurs permettant la mesure de déformation suivant des points placés sur l'échantillon). Pour l'acquisition des images, un mouchetis noir est réalisé sur une des faces du cube.

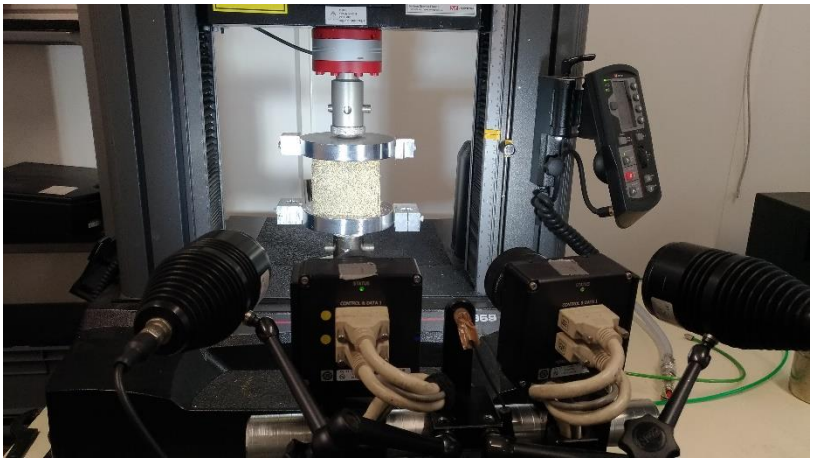


*Figure 152 Éprouvette cubique avec dispositif d'acquisition d'images sur machine Instron 5969*

Les images sont par la suite traitées avec le logiciel Aramis et trois extensomètres virtuels sont créés dans un carré au centre de l'éprouvette de côté environ égal à 50 mm (la moitié du côté de l'éprouvette cubique). Un exemple est présenté en Figure 153.

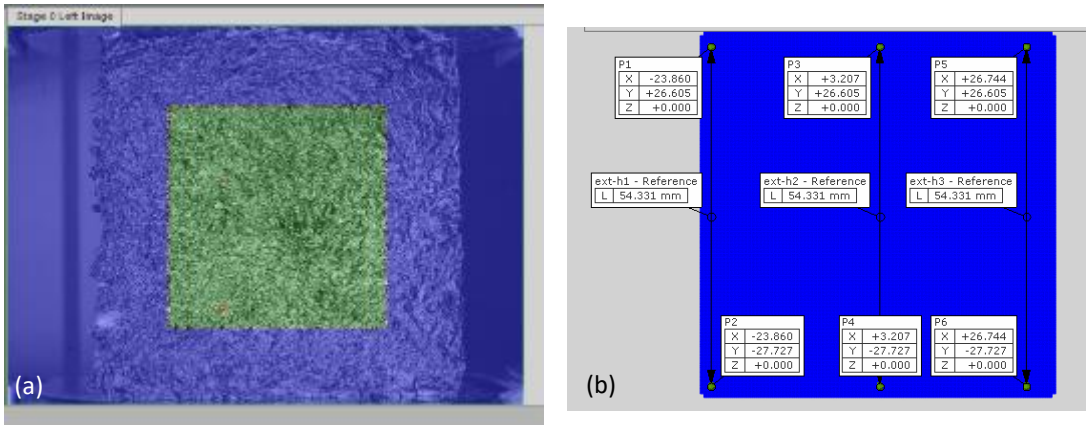



*Figure 153 Traitement des images sur le logiciel Aramis : (a) Image caméra de la surface de l'échantillon, (b) Extensomètres virtuels placés sur la surface de l'éprouvette*

### *I.2.b. Méthode machine*

De la même manière, des cycles sont effectués pour l'estimation de la rigidité. L'essai se fait en une seule fois contrairement aux essais de compression sur cylindre.

## **I.3.** Types de courbes

Le courbes de compression sont réalisées en traçant la contrainte vraie en fonction de la déformation vraie calculées avec les Équation 29 et Équation 30. La faible variation de section au cours de l'essai nous a conduit à prendre la section initiale pour le traitement de données tout au long de l'essai de compression (S=S0).

$$Déformation\ vraie : \ \varepsilon = \ln(1 + \Delta H / H_0)$$ *Équation 29*

$$Contrainte : \ \sigma \ = N/S$$ *Équation 30*

Avec

$H_0$ : *hauteur initiale de l'échantillon*

$\Delta H$: *déplacement sous un effort normal N*

*S : section de l'échantillon au cours de l'essai*

Deux types de courbes ont été observés lors de la caractérisation en compression des cylindres et des cubes. La Figure 154 est l'exemple de courbes de compression des échantillons à base de roseau avec des cycles de charge/décharge dans la zone 1 (Figure 155) et sans rupture d'éprouvette. On observe une déformation de l'éprouvette élevée sous une faible contrainte (zone 2). Ceci correspond à une phase élasto-plastique où les granulats se réarrangent fortement puis sont comprimés. La zone 3 marque une phase de densification où ce n'est plus la porosité inter-particulaire qui pilote le comportement de l'empilement, mais la compression des particules (porosité intra-particulaire) d'où une forte élévation de la contrainte pour une faible déformation supplémentaire.

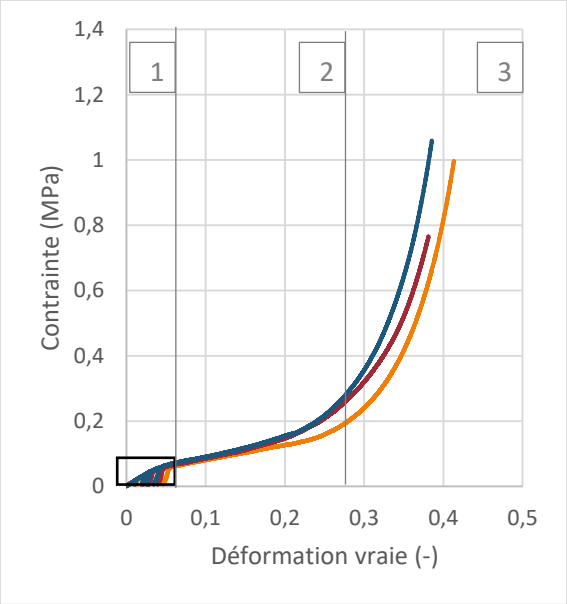



*Figure 154 Courbe de compression type des bétons chaux/roseau*

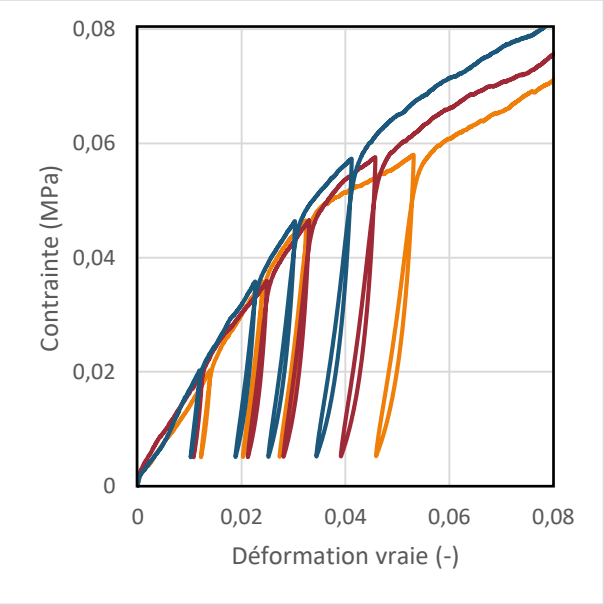



*Figure 155 Zoom sur les cycles de la courbe de compression*

Le deuxième type de courbe est obtenu avec les formulations chaux/chènevotte (Figure 156). La zone 1 correspond aux cycles effectués pour le calcul du module d'élasticité et donc au zoom présenté en Figure 157. La zone 2 est une phase pseudo-élastique où le liant s'endommage, ce sont donc les granulats qui reprennent les charges dans les zones 2 et 3, avant une rupture de l'éprouvette [52].

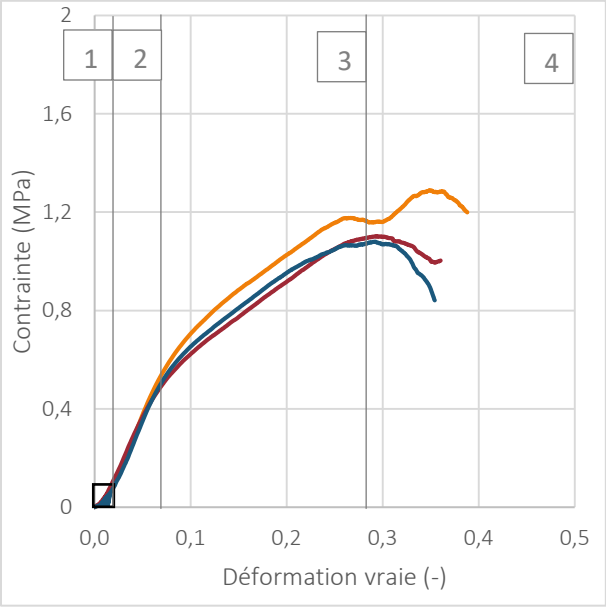



*Figure 156 Courbe de compression type des bétons chaux/chènevotte*

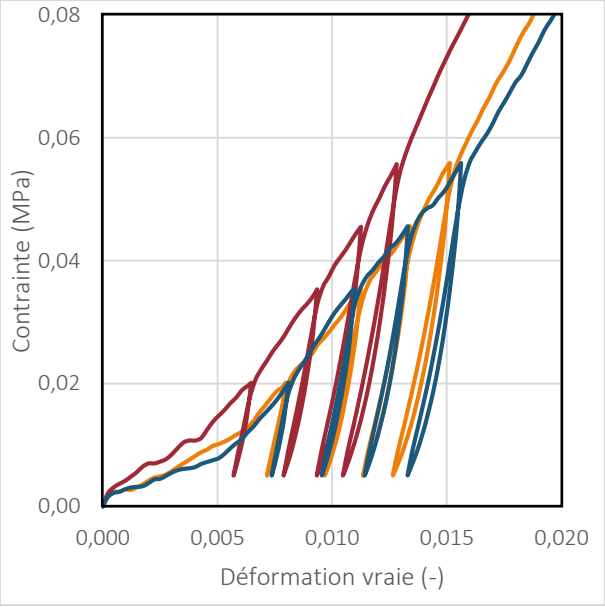



*Figure 157 Zoom sur les cycles de la courbe de compression*

### **I.4.** Évaluation de la rigidité : modules d'élasticité

Nous avons choisi d'évaluer le module d'élasticité sécant, c'est-à-dire celui correspondant à des sollicitations fréquentes et temporaires. En effet, il s'agit du module le plus proche de la réalité de terrain. Les cycles sont de plus placés suffisamment loin du chargement initial pour s'affranchir du pied de courbe lié aux défauts de surface des échantillons, ce qui n'est pas toujours le cas du module apparent (cf. Figure 157)

Les modules d'élasticité sont calculés de la même manière pour les quatre différents appareillages de mesures (traverse cylindre, extensomètre cylindre, traverse cube et extensomètre virtuel cube).

Le module d'élasticité calculé dans le cadre de la thèse correspond à la pente à la recharge de chaque cycle correspondant aux droites en pointillés sur la Figure 158. Ce module est appelé module sécant. Chaque pente est calculée sur Excel en utilisant la fonction DROITEREG. Cette fonction nous permet également de vérifier la linéarité de la courbe dans la zone choisie.

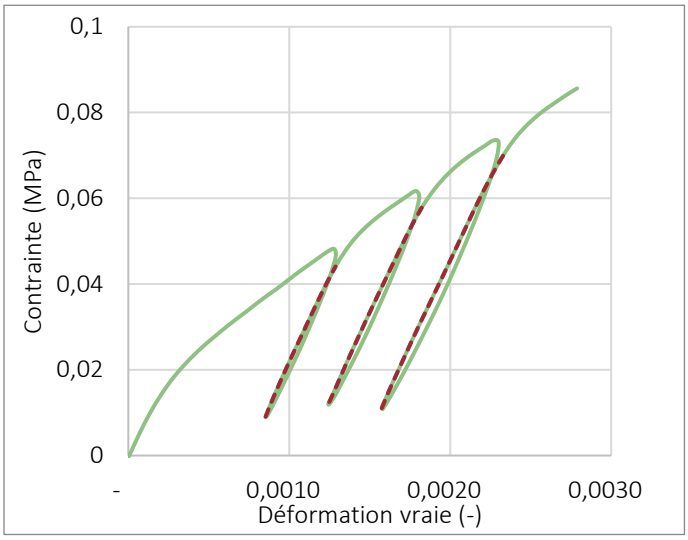



*Figure 158 Calcul des modules d'après les courbes de compression*

## **I.5.** Évaluation de la limite d'élasticité

Nous avons vu dans la Partie 1 différentes méthodes pour évaluer le module d'élasticité et au vu des allures de courbes présentées en I.3, nous avons choisi d'estimer la limité d'élasticité en prenant la contrainte au changement de pente entre les deux parties linéaires des zones 1 et 2. Un exemple est présenté en Figure 159.

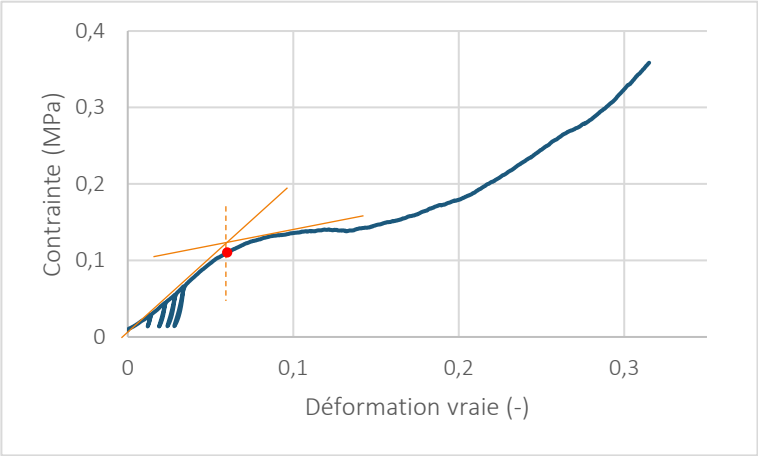



*Figure 159 Détermination de la limite d'élasticité*

## II. CONDUCTIVITÉ THERMIQUE

### II.1. Principe de l'appareil

Comme évoqué précédemment, la conductivité thermique des échantillons sera déterminée par la méthode de la plaque chaude gardée grâce à un dispositif développé au laboratoire [148] (Figure 160).

L'appareil est muni d'une plaque chaude (G) et d'une plaque froide (F) dont la température est régulée grâce à deux bains thermostatés à 30°C et 20°C respectivement. La plaque chauffante délivre une puissance de chauffe notée $\phi_0$ constante uniforme par effet joule (tension et intensité constantes). Ce flux est transmis vers la plaque froide à travers l'échantillon (Éprouvette sur le schéma) de façon unidirectionnelle grâce à la garde (isolant laine de roche) placée autour de celui-ci. Ainsi, nous faisons l'hypothèse, non aberrante, que la totalité du flux $\phi_0$ traverse l'éprouvette. Des thermocouples sont placés de part et d'autre de l'échantillon pour mesurer les écarts de température.

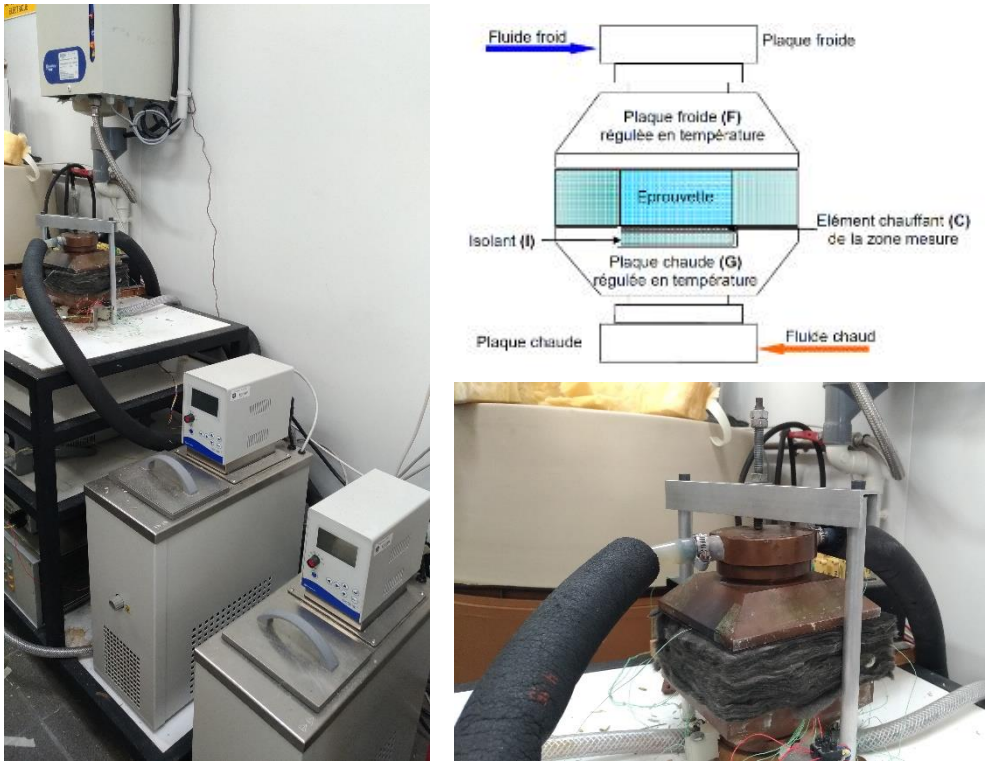



*Figure 160 Dispositif de mesure de la conductivité thermique suivant la méthode de la plaque chaude gardée*

Lorsque le régime stationnaire est établi, l'appareil effectue 25 cycles de mesures (Tension, intensité, températures froides (2 zones de mesures) et températures chaudes (3 zones de mesures)).

La conductivité thermique pour chaque cycle est calculée d'après l'Équation 31 puis une moyenne est effectuée.

$$\lambda = \frac{U.I.e}{S.(T_c - T_f)}$$ *Équation 31*

Avec

$U$: $tension\ (V)$

$I$: $intensité$ (A)

$e$: $épaisseur\ de\ l'échantillon\ (m)$

$S$: $section\ de\ l'échantillon\ (m^2)$

$T_c$: $moyenne\ des\ températures\ chaudes\ (°C)$

$T_f$: $moyenne\ des\ températures\ froides\ (°C)$

### II.2. Mesures thermiques durant la thèse

Les échantillons analysés sont les cubes 10x10x10 $cm^3$ coupés en deux avec une scie circulaire. Les dimensions des éprouvettes pour les mesures de la conductivité thermique varient de 9 à 10 cm pour les côtés du cube et 4,5 à 5 cm pour l'épaisseur. Chaque échantillon est mesuré et pesé avant essai.

Pour chaque formulation, trois mesures de conductivité thermique sont réalisées après un stockage dans les conditions standards et après séchage 7 jours dans une étuve à 70°C.

# PARTIE 4 ÉTUDE EXPÉRIMENTALE : RÉSULTATS

## I. PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES EN COMPRESSION

### I.1. Liant Bâtichanvre : formulations Saint-Astier ADEV1 et ADEV2

Les formulations ADEV1 et ADEV2 sont assez chargées en liant Bâtichanvre (rappel des formulations dans le Tableau 27).

| Échantillon | Granulats/liant | Eau/granulats |
|---|---|---|
| ADEV1 | 0,28 | 2,96 |
| ADEV2 | 0,37 | 3,00 |

*Tableau 27 Rappel de formulations ADEV1 et ADEV2*

Les propriétés de ces formulations ont été évaluées en compression (cylindres) et thermiquement. Cette campagne nous a permis de comparer les valeurs de conductivité thermique suivant l'orientation

des granulats. Les cubes ont été découpés parallèlement (échantillon noté « longitudinal ») et perpendiculairement (échantillon noté « transversal ») au sens de remplissage. Le sens longitudinal correspond à un flux pour un béton projeté sur un mur et le sens transversal pour un béton banché (cas de la thèse). En effet, selon la mise en œuvre, il y a une orientation préférentielle des granulats végétaux [149].

Les modules d'élasticité en compression ainsi que les limites d'élasticité sont donnés dans le Tableau 28 et le Tableau 29 respectivement. Nous remarquons tout d'abord une différence assez significative des modules d'élasticité estimés selon le déplacement de la traverse (toute la hauteur de l'éprouvette) et avec l'extensomètre (tiers central du cylindre). En effet, les modules estimés selon ce dernier sont plus élevés en raison d'une mesure de module plus localisée. Le module d'élasticité de la formulation ADEV1 atteint 63,7 MPa avec le déplacement traverse et 74,2 MPa avec la mesure de l'extensomètre soit 1,16 de rapport entre ces deux mesures. Cette différence est plus marquée pour la formulation ADEV2 avec un rapport de modules égal à 1,72 : 60,1 MPa pour le module selon le déplacement traverse et 103,2 MPa selon la mesure de l'extensomètre. Ces différences entre les deux moyens de mesures s'expliquent par l'hétérogénéité des matériaux au sein même des éprouvettes : remplissage en plusieurs couches, avec une influence des frottements à la paroi du moule. Ces frottements induisent une hétérogénéité de densité et de comportement, avec des zones moins rigides sur la hauteur de l'échantillon. Cette influence des frottements sur l'échantillon produit a déjà été démontré dans la thèse de Pierre Tronet [138]. Lorsque le cylindre est considéré sur toute la hauteur, le comportement de la zone la moins rigide de l'échantillon va limiter la rigidité mesurée sur l'ensemble de l'échantillon. L'extensomètre quant à lui focalise la mesure sur le tiers central de l'échantillon. Cette mesure est centrée sur un comportement moyen du matériau, et s'affranchit à la fois des biais liés aux contacts avec les plateaux et aux zones les plus faibles de l'échantillon.

Quel que soit le moyen de mesure, les résultats sont bien supérieurs aux valeurs recommandées par les règles professionnelles de construction en chanvre c'est-à-dire > 3 MPa pour l'application en isolant de toiture et > 15 MPa pour l'application en mur.

| | Module d'élasticité selon la traverse | | | Module d'élasticité selon l'extensomètre | | | Rapport modules |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | |
| ADEV1 | 63,7 | 1,18 | 1,9% | 74,2 | 3,34 | 4,5% | 1,16 |
| ADEV2 | 60,1 | 14,96 | 24,9% | 103,22 | 29,34 | 28,4% | 1,72 |

*Tableau 28 Modules d'élasticité des cylindres ADEV1 et ADEV2*

La limite d'élasticité des formulations est de 0,09 MPa pour ADEV1 et 0,06 MPa pour ADEV2 ce qui est satisfaisant pour l'application en isolation de toiture (> 0,05 MPa) mais pas pour l'application en isolant de mur (> 0,2 MPa) selon les règles professionnelles de construction en chanvre (Tableau 22).

| | Limite d'élasticité | Résistance maximale |
|---|---|---|
| | Moyenne (MPa) | Moyenne (MPa) |
| ADEV1 | 0,09 | 0,5 |
| ADEV2 | 0,06 | 0,5 |

*Tableau 29 Limite d'élasticité et résistance maximale en compression des cylindres ADEV1 et ADEV2*

Les propriétés thermiques de ces formulations seront détaillées dans une partie dédiée dans la suite de ce chapitre.

## **I.2.** ADEV3/REF3 et ADEV-F1/REF-F1 : comparaison cylindres/cubes

### ***I.2.a.*** *Compression des cylindres*

Le phragmites et la chènevotte de chanvre peuvent être comparés avec les deux formulations 3 et F1 dont un rappel est présenté dans le Tableau 30. Nous avons tenu compte de l'absorption d'eau plus importante de la chènevotte pour la formulation 3 tandis que seul le granulat varie pour la formulation F1.

| Échantillon | Granulats/liant | Eau/granulats |
|---|---|---|
| ADEV3 | 0,75 | 1,50 |
| REF3 | 0,75 | 1,93 |
| ADEV-F1 | 0,6 | 3 |
| REF-F1 | 0,6 | 3 |

*Tableau 30 Rappel de formulations ADEV3, REF3, ADEV-F1 et REF-F1*

Les résultats des essais en compression sur les cylindres sont présentés dans le Tableau 31 pour les modules d'élasticité selon le traverse et l'extensomètre et dans le Tableau 32 pour les limites d'élasticité.

| | Module d'élasticité selon la traverse | | | Module d'élasticité selon l'extensomètre | | | Rapport modules |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | |
| ADEV3 | 5,63 | 0,03 | 0,6 % | Essais sans extensomètre | | | |
| REF3 | 46,42 | 7,69 | 16,6 % | 107,58 | 3,59 | 3,3 % | 2,32 |
| ADEV-F1 | 5,45 | 0,47 | 8,6 % | Essais sans extensomètre | | | |
| REF-F1 | 23,79 | 0,34 | 1,4 % | 51,1 | 14,72 | 28,8 % | 2,15 |

*Tableau 31 Modules d'élasticité mesurés sur les cylindres ADEV3, REF3, ADEV-F1 et REF-F1*

Un nette différence est observée entre les mélanges chaux/phragmites et chaux/chènevotte avec un rapport de 9 sur les modules d'élasticité pour la formulation 3. De même pour la formulation F1 dont le module d'élasticité est de 5,5 MPa pour le phragmites et 23,8 MPa pour la chènevotte, ce qui fait un rapport supérieur à 4.

Nous n'avons pas pu mesurer le module à l'aide de l'extensomètre pour les formulations à base de roseau car la mise en place du système aurait fortement endommagé l'éprouvette et donc faussé les résultats. Néanmoins, nous pouvons comparer les valeurs selon le déplacement de la traverse et selon l'extensomètre avec les échantillons REF3 et REF-F1. On observe un rapport supérieur à 2 entre les modules mesurés avec le déplacement traverse (46,4 MPa pour REF3 et 23,8 MPa pour REF-F1) et les modules mesurés en local avec l'extensomètre (107,58 MPa pour REF3 et 51,1 MPa pour REF-F1). Ces résultats sont les témoins d'une hétérogénéité de l'éprouvette probablement due aux couches de tassement de la formulation dans les moules lors de la mise en œuvre mais également au non-parallélisme des surfaces en contact avec les plateaux de la machine de compression.

Les cylindres fabriqués avec la référence présentent une limite d'élasticité plus élevée avec 0,1 MPa pour REF3 et 0,12 MPa pour REF-F1 contre 0,05 MPa pour ADEV-F1. Les courbes de compression des cylindres de la formulation ADEV3 ne présentent pas de point d'inflexion signe d'une mauvaise prise de la chaux. Il n'y a pas de résistance maximale observable pour les formulations à base de roseau, nous ne pouvons donc pas comparer celles-ci aux valeurs obtenues avec la chènevotte.

Nous avons observé une mauvaise prise des échantillons fabriqués avec le roseau de Bretagne. En effet, la prise semble effective en périphérie de l'échantillon, mais le cœur du cylindre est non cohésif et très friable. Ceci explique l'endommagement rédhibitoire des cylindres par les griffes de l'extensomètre. Ces essais révèlent une probable non compatibilité entre la chaux de St Astier et le roseau avec cette proportion massique de roseau. Les extractibles du roseau, présentés au Chapitre 2, sont très probablement responsables du retard, voire de l'empêchement de la prise du liant. Ceci n'était pas visible dans les cas de la formulation ADEV1, moins riche en granulats, et donc moins concentrée en extractibles.

| | Limite d'élasticité |
|---|---|
| | Moyenne (MPa) |
| ADEV3 | Pas de point d'inflexion |
| REF3 | 0,10 |
| ADEV-F1 | 0,05 |
| REF-F1 | 0,12 |

*Tableau 32 Limite d'élasticité en compression des cylindres ADEV3, REF3, ADEV-F1 et REF-F1*

### *I.2.b. Compression des cubes*

Des cubes de formulation ADEV-F1 et REF-F1 ont été fabriqués dans le but de comparer les résultats en compression avec ceux des cylindres. Le Tableau 33 récapitule les modules obtenus avec les quatre méthodes, à savoir pour les cylindres le déplacement traverse et l'extensomètre et pour les cubes également le déplacement selon la traverse et la mesure selon les extensomètres virtuels avec le logiciel Aramis.

| | | ADEV-F1 | | | REF-F1 | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV |
| Cylindres | Module d'élasticité selon la traverse | 5,45 | 0,47 | 8,6 % | 23,79 | 0,34 | 1,4 % |
| | Module d'élasticité selon l'extensomètre | Essais sans extensomètre | | | 51,1 | 14,72 | 28,8 % |
| Cubes | Module d'élasticité selon la traverse | 6,91 | 0,72 | 10,4 % | 12,53 | 3,32 | 26,5 % |
| | Module d'élasticité selon les extensomètres virtuels sur Aramis | 13,07 | 4,41 | 33,7 % | 29,11 | 0,9 | 3,12 % |

*Tableau 33 Modules d'élasticité des cylindres ADEV3, REF3, ADEV-F1 et REF-F1*

Pour mieux visualiser les différences observées selon le granulat utilisé et selon la méthode de mesure du module, un diagramme est présenté en Figure 161.

Le module d'élasticité calculé avec le déplacement de la traverse est plus élevé pour les cylindres REF -F1 (23,79 MPa) que pour les cubes (12,53 MPa). Ceci peut être expliqué par l'élancement des cubes égal à 1 pouvant accentuer l'hétérogénéité de l'échantillon dû à la taille des granulats. L'inverse est observé pour la formulation avec le roseau ADEV-F1 avec une valeur pour les cubes plus élevée (6,91 MPa) que pour les cylindres (4,45). Cette observation confirme la mauvaise prise de la formulation ADEV-F1. En effet, la géométrie de l'éprouvette semble avoir une influence sur la prise de la chaux.

Un rapport de 2 est observé sur les modules d'élasticité calculés avec le déplacement de la traverse et les extensomètres (LVDT comme virtuels) avec des valeurs plus importantes pour les modules avec les extensomètres, 13,1 MPa pour ADEV-F1 et 29,1 MPa pour REF-F1 contre 6,9 MPa pour ADEV-F1 et 12,5 MPa pour REF-F1 avec le déplacement traverse. En effet, comme expliqué précédemment, cette mesure permet d'obtenir un module localisé et donc plus représentatif de la réalité car elle s'affranchit des effets liés à l'hétérogénéité de l'éprouvette due au tassement par couches. Une comparaison plus approfondie des modules d'élasticité mesurés par le déplacement traverse et par les extensomètres virtuels du logiciel Aramis est réalisée dans la partie suivante.

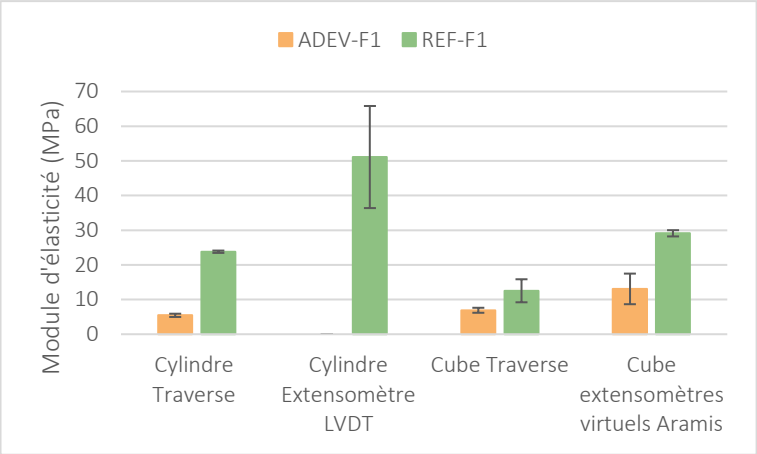



*Figure 161 Comparaison de méthodes de mesures du module d'élasticité des échantillons ADEV-F1 et REF-*

### **I.3.** Compression des cubes : comparaison des modules Traverse et Aramis

Comme nous avons pu le voir précédemment, une différence assez marquée a été observée entre les valeurs de modules données par le déplacement de la traverse et les valeurs calculées avec les extensomètres virtuels à l'aide du logiciel Aramis. Toutes les formulations réalisées sous forme de cube ont été testées en compression et leurs modules ont été calculés suivant ces deux méthodes. La Figure 162 récapitule l'ensemble des valeurs de modules selon les deux méthodes de mesure pour les formulations Bâtichanvre/Roseau.

Nous remarquons tout d'abord des valeurs de modules selon la méthode Aramis plus élevées qu'avec le déplacement traverse. Les rapports de modules selon les deux méthodes atteignent des valeurs jusqu'à 2,5 mais sont cependant plus proches de 2 (droite avec pointillés serrés) et 1,5 (droite avec pointillés espacés).

Les modules Aramis sont plus élevés du fait de leur mesure plus localisée. En effet, les extensomètres virtuels sont placés au centre de l'éprouvette cubique, la mesure s'affranchit donc de l'hétérogénéité de l'échantillon liée au tassement par couches des cubes. De plus, si les faces du cube

en contact avec les plateaux ne sont pas parfaitement parallèles entre elles, le déplacement traverse prendra en compte ce non-parallélisme tandis que les extensomètres virtuels ne mesureront pas cet effet.

Le remplissage par banchage se faisant en plusieurs couches, étudier le module selon les valeurs Aramis nous semble plus représentatif de la réalité car plus localisé et s'affranchissant de la dernière couche moins tassée.

Lorsque l'on réalise des échantillons avec une masse volumique donnée, la masse de l'échantillon à l'état frais est fixée pour un volume donné (ici un cube de 10 cm de côté). Comme évoqué précédemment, les cubes ont été remplis en quatre couches. Lorsque la deuxième couche est tassée, la première subit également une pression et ainsi de suite. Finalement, la dernière couche n'a subi qu'une fois la pression de tassement tandis que la première (celle du dessous) l'a subie quatre fois avec une force décroissante. Mesurer le module d'élasticité localement nous permet *a priori* d'avoir une valeur plus proche de la réalité du terrain.

Dans la suite de ce chapitre, les valeurs selon les deux méthodes seront présentées mais ce sont les mesures de module d'élasticité selon les extensomètres virtuels que nous avons choisi pour valider ou non les formulations selon les règles professionnelles de construction en chanvre.

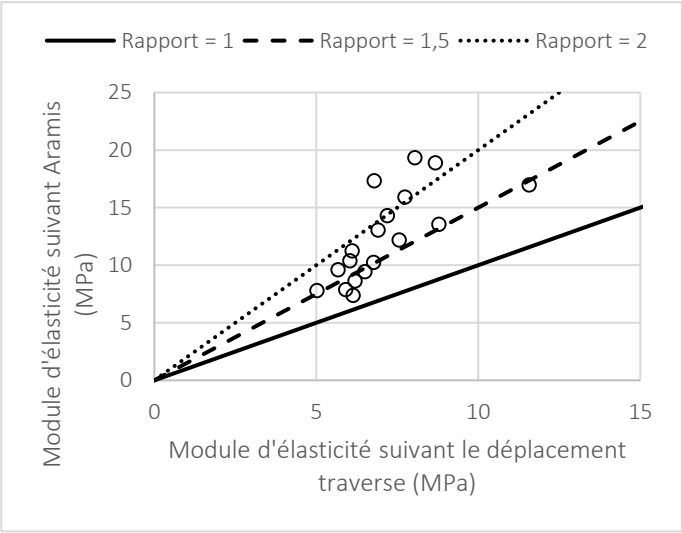



*Figure 162 Comparaison des méthodes de mesure du module d'élasticité sur les cubes*

### **I.4.** ADEV-F1.2.3 et REF-F1.2.3 : Influence de la quantité d'eau

Les formulations F1, précédemment étudiées avec comme granulats le roseau commun, ont présenté une mauvaise prise et donc de plus faibles propriétés en compression comparées aux mêmes échantillons formulés avec de la chènevotte. Deux autres formulations ont été fabriquées en gardant

un rapport granulats/liant de 0,6 et en faisant varier la quantité d'eau ajoutée au mélange. Le Tableau 34 rappelle ces formulations. Le Bâtichanvre étant principalement formulé avec de la chaux aérienne, diminuer la quantité d'eau du mélange peut permettre à l'air d'être incorporé en plus grande quantité dans les porosités intra-particulaires et donc de permettre à la chaux de carbonater plus rapidement.

| Échantillon | Granulats/liant | Eau/granulats |
|---|---|---|
| F1 | 0,6 | 3,00 |
| F2 | | 2,47 |
| F3 | | 2,23 |

*Tableau 34 Rappel de formulations F1, F2 et F3*

Ces trois formulations ont été réalisées avec la chènevotte de référence et le roseau de Bretagne (ADEV). Le Tableau 35 présente les masses volumiques des échantillons après 90 jours de prise. La masse volumique à l'état frais a été fixée à 645 kg/m$^3$ pour F1, 581 kg/m$^3$ pour F2 et 555 kg/m$^3$ pour F3 afin d'obtenir une masse volumique à l'état durci (sans tenir compte de l'eau liée) de l'ordre de300 kg/m$^3$. Cette valeur fixée nous permet de comparer la quantité d'eau absorbée par les granulats lors du mélange mais également celle liée lors de la prise de la partie hydraulique du Bâtichanvre. On remarque ainsi une masse volumique plus importante pour les formulations à base de roseau (356 kg/m$^3$ pour F1, 355 kg/m$^3$ pour F2 et 351 kg/m$^3$ pour F3) que pour celles réalisées avec la référence (350 kg/m$^3$ pour F1, 349 kg/m$^3$ pour F2 et 347 kg/m$^3$ pour F3).

| | ADEV-F1 | ADEV-F2 | ADEV-F3 | REF-F1 | REF-F2 | REF-F3 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| Masse volumique (kg/m$^3$) | 355,5 | 354,9 | 350,8 | 350,4 | 349,1 | 347,0 |
| Écart type | 4,0 | 6,7 | 4,9 | 3,5 | 1,9 | 1,7 |

*Tableau 35 Masses volumiques des échantillons cubes après 90 jours de prise*

Les résultats sont présentés dans le Tableau 36 pour les modules d'élasticité mesurés selon les deux méthodes précédemment décrites).

| | Module d'élasticité selon la traverse | | | Module d'élasticité selon les extensomètres virtuels sur Aramis | | | Rapport Aramis/Traverse |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | |
| ADEV-F1 | 6,91 | 0,72 | 10,4 % | 13,07 | 4,41 | 33,7 % | 1,89 |
| ADEV-F2 | 6,04 | 0,37 | 6,2 % | 10,39 | 2,29 | 22,1 % | 1,72 |
| ADEV-F3 | 5,67 | 0,20 | 3,5 % | 9,62 | 1,36 | 14,2 % | 1,70 |
| REF-F1 | 12,53 | 3,32 | 26,5 % | 29,11 | 0,90 | 3,12 % | 2,32 |
| REF-F2 | 16,80 | 1,23 | 7,3 % | 53,16 | 10,54 | 19,8 % | 3,16 |
| REF-F3 | 14,84 | 2,30 | 15,5 % | 36,35 | 3,89 | 10,7 % | 2,45 |

*Tableau 36 Modules d'élasticité des cubes ADEV-F1, ADEV-F2, ADEV-F3, REF-F1, REF-F2 et REF-F3*

Les modules mesurés pour les formulations avec le roseau sont inférieurs à ceux des formulations à base de chènevotte, quelle que soit la méthode de mesure. En effet, les modules d'élasticité des formulations ADEV sont aux alentours de 6 MPa (traverse) et 11 MPa (Aramis) tandis que les références sont aux alentours de 14 MPa (traverse) et 40 MPa (Aramis) soit un rapport 2 pour les mesures selon le déplacement traverse et 4 pour les valeurs de modules localisés entre le roseau et la chènevotte. Ces résultats sont trop faibles pour valider les formulations à base de phragmites pour l'application en béton isolant selon les règles professionnelles de construction en chanvre.

Les mêmes remarques ressortent sur les rapports de modules selon la méthode d'analyse avec des valeurs néanmoins plus importantes pour la référence (supérieures à 2) que pour le roseau (inférieures à 2).

Les modules d'élasticité des formulations ADEV semblent suivre une tendance proportionnelle selon la quantité d'eau dans la formulation tandis que les formulations REF présentent une valeur maximale pour une certaine quantité d'eau. En effet, comme le montre la Figure 163, le module d'élasticité mesuré selon le déplacement de la traverse atteint un maximum (16,8 MPa) pour la formulation REF-F2 tandis que les valeurs des formulations à base de roseau ne cessent d'augmenter et atteignent quasiment 7 MPa pour ADEV-F3. Nous observons les mêmes allures de courbes lorsque les mesures sont réalisées avec les extensomètres virtuels (Figure 164) avec une valeur maximale de module atteignant 53 MPa pour REF-F2 et une valeur maximale pour ADEV-F3 avec 13 MPa.

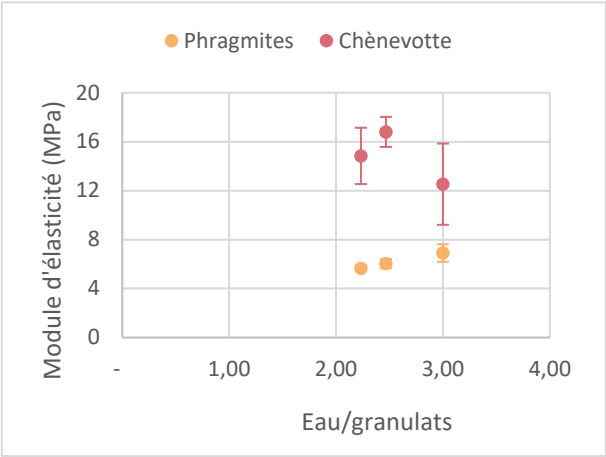



*Figure 163 Évolution du module d'élasticité mesuré d'après le déplacement traverse selon la quantité d'eau dans la formulation des bétons*

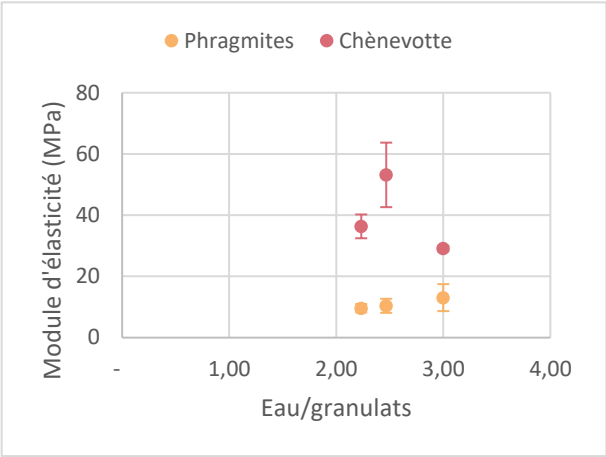



*Figure 164 Évolution du module d'élasticité mesuré d'après les extensomètres virtuels sur Aramis selon la quantité d'eau dans la formulation des bétons*

Le Tableau 37 récapitule les limites d'élasticité des formulation F1 à F4 avec le roseau et la chènevotte.

Les limites d'élasticité des formulations avec du phragmites sont assez faibles avec 0,06 MPa. En effet, comme nous avons pu le voir sur les courbes de compression (Figure 154) le point d'inflexion se situe juste après les cycles de charge/décharge. Les limites d'élasticité des formulations à base de chènevotte sont 4 à 10 fois plus élevées avec une valeur atteignant 0,5 MPa pour REF-F3.

| | Limite d'élasticité (MPa) |
|---|---|
| ADEV-F1 | 0,06 |
| ADEV-F2 | 0,06 |
| ADEV-F3 | 0,05 |
| REF-F1 | 0,2 |
| REF-F2 | 0,4 |
| REF-F3 | 0,5 |

*Tableau 37 Limite d'élasticité des cubes ADEV-F1, ADEV-F2, ADEV-F3, REF-F1, REF-F2 et REF-F3*

### **I.5.** BREN-F2-300.350.400 et ADEV-F1bis : Influence de la masse volumique

L'influence de la masse volumique sur les propriétés mécaniques en compression a été évaluée sur des cubes avec les formulations BREN-F2 et ADEV-F1 où les échantillons ont été plus ou moins tassés. Trois masses volumiques ont été obtenues avec le roseau de Brenne et la formulation F2 et deux avec

le roseau de Bretagne (ADEV) et la formulation F1. Ainsi, nous pouvons étudier les différences obtenues pour des masses volumiques allant de 343 à 430 kg/m$^3$ pour BREN-F2 et 355 à 417 kg/m$^3$ pour ADEV-F1 (Tableau 38).

| | ADEV-F1 | ADEV-F1bis | BREN-F2-300 | BREN-F2-350 | BREN-F2-400 |
|---|---|---|---|---|---|
| Masse volumique (kg/m$^3$) | 355,5 | 417,7 | 343,4 | 380,6 | 430,1 |
| Écart type | 4,0 | 3,9 | 5,3 | 8,4 | 2,5 |

*Tableau 38 Masses volumiques des échantillons cubes après 90 jours de prise*

Les résultats des essais de compression sont présentés dans le Tableau 39 avec les valeurs de modules selon le déplacement de la traverse et selon les extensomètres virtuels du logiciel Aramis.

| | Module d'élasticité selon la traverse | | | Module d'élasticité selon les extensomètres virtuels sur Aramis | | | Rapport Aramis/Traverse |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | |
| ADEV-F1 | 6,91 | 0,72 | 10,4 % | 13,07 | 4,41 | 33,7 % | 1,89 |
| ADEV-F1bis | 8,78 | 1,00 | 11,4 % | 13,56 | 3,87 | 28,6 % | 1,54 |
| BREN-F2-300 | 6,19 | 0,52 | 8,3 % | 8,64 | 2,18 | 25,3 % | 1,40 |
| BREN-F2-350 | 5,91 | 0,34 | 5,8 % | 7,90 | 1,49 | 18,9 % | 1,34 |
| BREN-F2-400 | 7,19 | 0,27 | 3,7 % | 14,33 | 1,18 | 8,2 % | 1,99 |

*Tableau 39 Modules d'élasticité des cubes ADEV-F1, ADEV-F1bis, BREN-F2-300, BREN-F2-350 et BREN-F2-400*

Nous observons globalement une augmentation du module d'élasticité lorsque la masse volumique de l'échantillon augmente. Cette augmentation n'est pas significative pour les échantillons BREN-F2-300 et BREN-F2-350 avec un module de 8,6 MPa et 7,9 MPa respectivement (mesures ARAMIS). L'effet devient plus important lorsque la masse volumique atteint 430 kg/m$^3$ avec l'échantillon BREN-F2-400 dont le module d'élasticité atteint 14,3 MPa en module localisé.

De la même manière, la formulation ADEV-F1bis à 418 kg/m$^3$ présente une valeur de module supérieure à celle obtenue avec la formulation ADEV-F1 mais non significative. En effet, on atteint 13,6 MPa pour ADEV-F1bis contre 13,1 MPa pour ADEV-F1.

Les limites d'élasticité des formulations sont présentées dans le Tableau 40. L'augmentation de la masse volumique permet d'augmenter la limite d'élasticité des échantillons et donc la résistance en compression. En effet, la formulation BREN-F2-400 atteint 0,1 MPa tandis que BREN-F2-300 et BREN-F2-350 ont une limite d'élasticité à 0,07 MPa. De même pour les formulations avec le roseau de Bretagne dont la limite est de 0,05 MPa pour ADEV-F1 et 0,08 MPa pour ADEV-F1bis.

Néanmoins, ces résultats ne sont pas suffisants pour une application en béton isolant de mur (< 0,2 MPa) mais le sont pour une application en isolation de toiture (> 0,05 MPa) selon les règles professionnelles de construction en chanvre.

| | Limite d'élasticité (MPa) |
|---|---|
| ADEV-F1 | 0,05 |
| ADEV-F1bis | 0,08 |
| BREN-F2-300 | 0,07 |
| BREN-F2-350 | 0,07 |
| BREN-F2-400 | 0,1 |

*Tableau 40 Limite d'élasticité des cubes ADEV-F1, ADEV-F1bis, BREN-F2300, BREN-F2-350 et BREN-F2-400*

### **I.6.** Influence de la taille de granulats

L'influence de la taille et du type de particules a été évaluée avec les formulations BREN-F2-350/BREN50-F2-350, WAL19-S6-F2/WAL19-S12-F2 et VEL-S6-F2/ VEL-S12-F2. Les valeurs des masses volumiques des échantillons après 90 jours de prise sont présentées dans le Tableau 41. On remarque que les formulations utilisant la plus grande taille de granulats sont plus denses que celles utilisant les petites tailles pour les roseaux de Brenne, avec 380 kg/m$^3$ pour BREN et 398 kg/m$^3$ pour BREN50, et Waldhouse, avec 403 kg/m$^3$ pour le 6 mm et 425 kg/m$^3$ pour le 12 mm. L'inverse est observé pour les formulations à base de roseau de Velving où VEL-S6-F2 est plus dense avec 383,9 kg/m$^3$ contre 373,7 kg/m$^3$ pour la formulation utilisant le 12 mm. Cette différence peut être liée au taux de porosités des granulats.

| | BREN-F2-350 | BREN50-F2-350 | WAL19-S6-F2 | WAL19-S12-F2 | VEL-S6-F2 | VEL-S12-F2 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| Masse volumique (kg/m$^3$) | 380,6 | 398,3 | 403,4 | 425,3 | 383,9 | 373,7 |
| Écart type | 8,4 | 2,2 | 3,5 | 13,4 | 7,9 | 1,7 |

*Tableau 41 Masses volumiques des échantillons cubes après 90 jours de prise*

Ces formulations réalisées sous forme de cubes, ont également été testées en compression. Les résultats des modules d'élasticité selon les deux méthodes et les limites d'élasticité sont présentés dans le Tableau 42.

Un rapport de modules de 2,4 est obtenu pour la formulation WAL19-S12-F2 avec 8 MPA en module traverse et 19 MPa en module Aramis.

Si l'on compare deux à deux les échantillons suivant la taille des granulats, les formulations à base de roseaux de Brenne (BREN) et Waldhouse (WAL19) présentent un plus grand module d'élasticité pour la plus grande taille avec 11,3 MPa pour BREN50 et 19,3 MPa pour WAL19-S12. L'inverse est observé pour le roseau de Velving où la formulation avec la plus petite taille (VEL-S6) obtient un plus grand module (15,9 MPa). Il faut également remarquer que les écarts types sont importants, par exemple pour les résultats de la formulation WAL19-S12-F2 dont le module d'élasticité est donné à plus ou moins 5,8 MPa.

Si l'on se réfère aux règles professionnelles pour l'application en isolant de mur, les formulations WAL19-S6-F2, WAL19-S12-F2 et VEL-S6-F2 sont validées avec un module supérieur à 15 MPa. Les reste des formulations peut être utilisé pour une application en isolation de toiture car leur module d'élasticité est compris entre 3 et 15 MPa.

| | Module d'élasticité selon la traverse | | | Module d'élasticité selon les extensomètres virtuels sur Aramis | | | Rapport Aramis/Traverse | Limite d'élasticité |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | | MPa |
| BREN-F2-350 | 5,91 | 0,34 | 5,8 % | 7,90 | 1,49 | 18,9 % | 1,34 | 0,07 |
| BREN50-F2-350 | 6,11 | 1,05 | 17,2 % | 11,26 | 1,92 | 17,0 % | 1,84 | Pas de point d'inflexion |
| WAL19-S6-F2 | 11,57 | 1,28 | 11,0 % | 16,99 | 2,5 | 14,7 % | 1,47 | 0,22 |
| WAL19-S12-F2 | 8,04 | 0,88 | 11,0 % | 19,34 | 5,75 | 29,7 % | 2,41 | Pas de point d'inflexion |
| VEL-S6-F2 | 7,74 | 0,90 | 11,6 % | 15,93 | 2,77 | 17,4 % | 2,06 | 0,12 |
| VEL-S12-F2 | 5,02 | 0,23 | 4,6 % | 7,80 | 0,71 | 9,1 % | 1,55 | Pas de point d'inflexion |

*Tableau 42 Comparaison des modules et limites d'élasticité des échantillons cubes selon la taille des granulats*

En ce qui concerne la limite d'élasticité, deux cas de figure se présentent. Nous n'observons pas de point d'inflexion pour les courbes de compression des formulations avec les plus grands granulats contrairement à celles fabriquées avec les petits granulats pour une même origine de roseau. L'exemple pour les formulations à base de roseau de Velving est donné en Figure 165.

D'après les règles professionnelles, seule la formulation WAL19-S6-F2 est valide pour l'application en isolant de mur (> 0,2 MPa) avec une résistance à la compression de 0,22 MPa. BREN-F2-350 et VEL-S6-F2 peuvent être utilisées en isolant de toit car leur résistance à la compression est comprise entre 0,05 et 0,2 MPa.

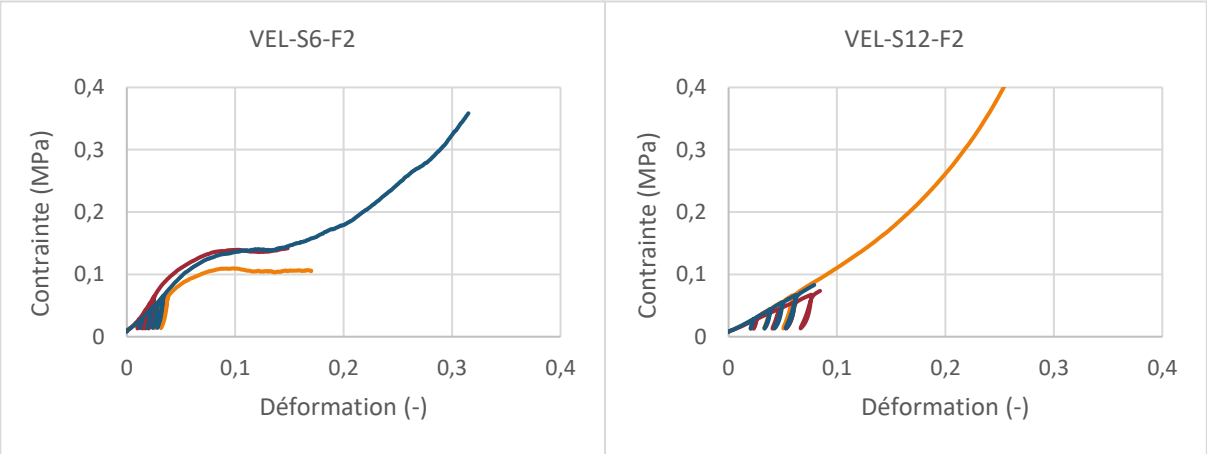



*Figure 165 Comparaison des courbes de compression des formulations fabriquées avec le roseau de Velving 6 et 12 mm*

Si l'on regarde les deux critères, module d'élasticité et résistance à la compression, seule la formulation WAL19-S6-F2 est validée pour l'application en béton isolant de mur.

## **I.7.** Influence de l'origine du roseau

Si l'on souhaite comparer uniquement le type de roseau indépendamment de la taille des granulats, nous pouvons former plusieurs familles d'échantillons à l'aide de la répartition granulométrique effectuée dans le Chapitre 2. Ainsi, nous pouvons comparer WAL19-S6-F2 et WAL20-S6-F2 avec comme point de comparaison l'année de récolte. Nous pouvons également étudier les différences pour WAL19-S12-F2, BREN-F2-350 et ADEV-F2-350 afin d'évaluer l'influence du lieu de récolte (Waldhouse, Brenne et Bretagne) mais également VEL-S12-F2, VEL-V12-F2 pour l'effet du rouissage du roseau vert sur les propriétés mécaniques. Une troisième catégorie comprend les échantillons BREN50-F2-350 et CAM-F2-350 que nous pourrons comparer selon le lieu de récolte également (Brenne et Camargue) avec un paramètre supplémentaire qui est que le roseau de Camargue a poussé en eau salée.

### ***I.7.a.*** *Influence de l'année de récolte*

L'influence de l'année de récolte est étudiée avec les formulations à base de roseau du parc de Waldhouse récolté en 2019 et en 2020. Les résultats sont présentés dans le Tableau 43.

Les masses volumiques sont comparables pour les deux formulations avec 403 kg/m$^3$ pour le roseau de 2019 et 410 kg/m$^3$ pour celui de 2020. De la même manière, les modules sont comparables, avec le déplacement de la traverse comme avec les mesures Aramis. Les valeurs de modules atteignent 17 MPa pour la formulation WAL19-S6-F2 et 19 MPa pour WAL20-S6-F2 ce qui valide les échantillons selon les règles professionnelles. Cependant, nous n'observons pas d'inflexion sur les courbes de compression, signe là aussi d'une mauvaise prise du liant.

| | Masse volumique | | Module d'élasticité selon la traverse | | | Module d'élasticité selon les extensomètres virtuels sur Aramis | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Moyenne (kg/m$^3$) | Écart type (kg/m$^3$) | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV |
| WAL19-S6-F2 | 403,4 | 3,6 | 11,57 | 1,28 | 11,0 % | 16,99 | 2,5 | 14,7 % |
| WAL20-S6-F2 | 410,4 | 8,8 | 8,67 | 0,64 | 7,4 % | 18,9 | 3,00 | 15,9 % |

*Tableau 43 Masses volumiques, modules d'élasticité et limite d'élasticité des formulations fabriquées avec le roseau de Waldhouse*

### *I.7.b. Influence du lieu de récolte*

L'influence du lieu de récolte est étudiée avec les formulations utilisant les roseaux de Brenne, Bretagne, et Waldhouse. Les résultats sont présentés dans le Tableau 44.

Les masses volumiques sont comparables pour BREN et ADEV avec respectivement 381 et 379 kg/m$^3$. La masse volumique de la formulation WAL19 est plus importante avec 425 kg/m$^3$. Cette différence peut être due à une absorption plus importante d'eau du roseau de Waldhouse ou bien un plus grand nombre de liaisons créées avec la partie hydraulique du liant.

Les valeurs de modules sont également plus importantes pour la formulation WAL19 avec 19 MPa (Aramis) tandis que les formulations BREN et ADEV obtiennent des modules de 8 et 10 MPa respectivement. Cependant nous n'observons pas de point d'inflexion à la fin des cycles de charge/décharge pour la formulation WAL19 témoin d'une mauvaise prise même si celle-ci ne se voit pas dans les valeurs du module d'élasticité qui est uniquement caractéristique de la partie pseudo-élastique du matériau.

D'après les règles professionnelles de construction en chanvre, la formulation WAL19-S12-F2 est validée pour l'application en isolant de mur d'après son module d'élasticité mais sa résistance en compression est trop faible (pas de point d'inflexion) pour être utilisée. Les deux autres formulations peuvent être utilisées en isolation de toiture car leur module est compris entre 3 et 15 MPa et leur résistance est comprise entre 0,05 et 0,2 MPa.

Ces échantillons se différencient par l'utilisation de roseaux de différents lieux de récolte en France, cependant la masse volumique des cubes est également un paramètre dans la comparaison des résultats en compression. En effet, les échantillons WAL19-S12-F2 obtiennent un plus grand module d'élasticité, signe d'un béton plus rigide, mais en ayant une masse volumique plus importante.

| | Masse volumique | | Module d'élasticité selon la traverse | | | Module d'élasticité selon les extensomètres virtuels sur Aramis | | | Limite d'élasticité |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Moyenne (kg/m$^3$) | Écart type (kg/m$^3$) | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | MPa |
| BREN-F2-350 | 380,6 | 8,4 | 5,91 | 0,34 | 5,8 % | 7,90 | 1,49 | 18,9 % | 0,07 |
| WAL19-S12-F2 | 425,3 | 13,4 | 8,04 | 0,88 | 11,0 % | 19,34 | 5,75 | 29,7 % | Pas d'inflexion |
| ADEV-F2-350 | 378,7 | 1,7 | 6,77 | 0,29 | 4,3 % | 10,25 | 1,81 | 17,6 % | 0,07 |

*Tableau 44 Masses volumiques, modules d'élasticité et limite d'élasticité des formulations fabriquées avec les roseaux de Brenne, Waldhouse et Bretagne*

### *I.7.c. Influence du rouissage*

L'influence du rouissage du roseau a été évaluée avec le roseau de Velving. L'échantillon VEL-V a été fauché en septembre et récolté seulement en février alors que le roseau VEL-S a été coupé et récolté en février, il s'agit donc d'un roseau séché sur pied. Le roseau VEL-V a subi un rouissage, il s'agit d'une technique utilisée sur les plantes textiles comme le lin ou le chanvre afin de séparer les fibres (écorce filamenteuse) de la tige. Nous avons remarqué dans le Chapitre 2 que le roseau vert contenait moins de solubles par rapport au roseau d'hiver en raison de son rouissage.

Les masses volumiques des formulations ainsi que les modules d'élasticité selon le déplacement traverse et Aramis sont donnés dans le Tableau 45. Pour un même dosage en granulats, la formulation VEL-V12 atteint une plus grande masse volumique avec 393 kg/m$^3$ tandis que la formulation VEL-S12 atteint une masse volumique de 373,7 kg/m$^3$.

Les valeurs de modules d'élasticité sont corrélées aux masses volumiques avec un module plus important pour VEL-V12-F2 (12,2 MPa) que pour VEL-S12-F2 (7,8 MPa).

La courbe de compression de la formulation VEL-V12-F2 présente une inflexion donnant une limite d'élasticité à 0,09 MPa ce qui ne suffit pas pour l'application en parois verticales, mais est valide en isolation de toiture.

| | Masse volumique | | Module d'élasticité selon la traverse | | | Module d'élasticité selon les extensomètres virtuels sur Aramis | | | Limite d'élasticité |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Moyenne (kg/m$^3$) | Écart type (kg/m$^3$) | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | MPa |
| VEL-S12-F2 | 373,7 | 1,7 | 5,02 | 0,23 | 4,6 % | 7,80 | 0,71 | 9,1 % | Pas d'inflexion |
| VEL-V12-F2 | 393,1 | 4,6 | 7,56 | 0,43 | 5,7 % | 12,19 | 1,97 | 16,2 % | 0,09 |

*Tableau 45 Masses volumiques, modules d'élasticité et limite d'élasticité des formulations fabriquées avec du roseau sec et du roseau vert roui de Velving*

Il est intéressant de noter ici que le roseau vert, roui, présente une prise du liant, contrairement au roseau sec. Ceci est lié à la consommation des solubles lors du rouissage (cf. Chapitre 2). D'un point de vu développement de filière, ce résultat est intéressant car les parcs naturels procèdent en général plutôt à la récolte de roseaux verts afin de limiter leur prolifération et la disparition à terme des zones humides.

### *I.7.d. Influence de la salinité du roseau*

Nous avons pu étudier l'influence d'un roseau s'étant développé dans des eaux salines dans une formulation de béton isolant. Pour cela, nous comparons les résultats obtenus en compression pour la formulation à base de roseau de Brenne (BREN50) et une autre incorporant celui de Camargue (CAM).

Ces deux roseaux ont une taille de granulats similaires permettant de négliger l'influence de la granulométrie dans les propriétés mécaniques. Les résultats sont présentés dans le Tableau 46. Les masses volumiques des échantillons sont comparables ; cependant le module d'élasticité est plus important pour la formulation avec le roseau camarguais (17,3MPa) que pour celle avec le roseau de Brenne (11,3 MPa). Même en prenant en compte l'écart type, les valeurs ont une différence significative. Les meilleures propriétés du roseau de Camargue peuvent être expliquées par sa salinité mais cela ne reste qu'une hypothèse. Une étude plus approfondie devra être réalisée pour le confirmer.

| | Masse volumique | | Module d'élasticité selon la traverse | | | Module d'élasticité selon les extensomètres virtuels sur Aramis | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Moyenne (kg/m$^3$) | Écart type (kg/m$^3$) | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV |
| BREN50-F2-350 | 398,3 | 2,2 | 6,11 | 1,05 | 17,2 % | 11,26 | 1,92 | 17,0 % |
| CAM-F2-350 | 406,3 | 1,4 | 6,79 | 1,08 | 15,9 % | 17,34 | 1,12 | 6,4 % |

*Tableau 46 Masses volumiques, modules d'élasticité et limite d'élasticité des formulations fabriquées avec du roseau de Brenne et de Camargue*

### *I.7.e. Lien entre la masse volumique et le module d'élasticité*

Pour l'ensemble des formulations réalisées avec le liant Bâtichanvre et les différents roseaux, nous pouvons étudier l'impact de la masse volumique sur le module d'élasticité du béton. La Figure 166 présente l'évolution du module d'élasticité Aramis en fonction de la masse volumique. Nous remarquons que le module d'élasticité augmente lorsque la masse volumique augmente. En effet, un échantillon à 340 kg/m$^3$ possède un module de l'ordre de 7 MPa tandis qu'un autre d'une masse volumique de 425 kg/m$^3$ présente un module de 19 MPa.

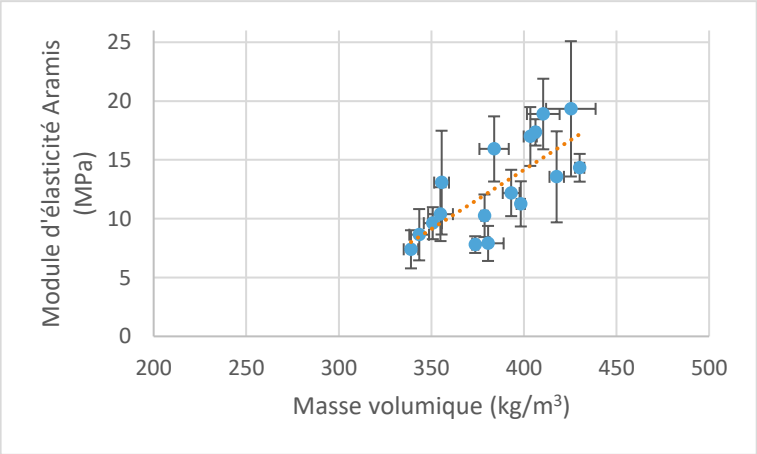



*Figure 166 Lien entre la masse volumique des échantillons et leur module d'élasticité selon les mesures Aramis*

Ce type de résultat est assez habituel, quel que soit le matériau étudié, et a été démontré sur les mélanges chaux/chanvre dans la thèse de Pierre Tronet [138], et sur les bottes de paille de blé dans [150]

### *I.7.f. Explications de la mauvaise prise des bétons chaux/roseau*

Nous avons différentes hypothèses pour expliquer dans certains cas la mauvaise prise des bétons utilisant comme liant le Bâtichanvre. En effet, V. Nozahic [76] évoque la zone de transition interfaciale (ZTI) dans ses travaux de thèse. Cette zone correspond à la surface externe des granulats lignocellulosiques constituant des points de faiblesse dans la compatibilité entre le liant minéral et le granulat végétal. Cette zone engendre une microstructure différente sur des épaisseurs allant de 50 à 100 µm avec des porosités plus importantes.

Le défaut de prise du liant hydraulique peut venir d'interactions chimiques entre les solubles présents dans les granulats et le liant. Ce défaut peut être dû à l'extraction des molécules libres du roseau impactant l'hydratation de la partie hydraulique du Bâtichanvre en l'occurrence [151].

Le défaut de prise peut également être expliqué par l'augmentation de la surface spécifique des granulats. En effet, nous avons observé précédemment que la taille des particules végétales avait une influence sur les propriétés mécaniques. Lorsque la taille des particules est faible, pour une même masse ajoutée il y aura une plus grande surface de contact avec le liant augmentant la probabilité de formation de la zone de transition interfaciale.

Il est donc intéressant de travailler avec un liant beaucoup plus neutre chimiquement que la chaux : le matériau terre

## **I.8.** Liant terre : ADEV-T et REF-T

La terre utilisée ici est la terre de référence utilisée dans le cadre de la thèse de Théo Vinceslas à l'IRDL [52]. Une unique formulation a été réalisée avec comme variation le granulat (roseau ou chènevotte). Des cylindres ainsi que des cubes ont été réalisés pour comparer les modules selon la forme de l'éprouvette et la méthode de mesure. Les masses volumiques des échantillons cubes à l'état sec sont données dans le Tableau 47. Les valeurs sont comparables quel que soit le granulat utilisé. En effet, même si la chènevotte absorbe plus d'eau que le roseau, la masse volumique de l'échantillon à l'état sec est identique car l'eau n'intervient pas dans le processus de prise de la terre. La cohésion se fait par séchage uniquement (évaporation de l'eau).

| | ADEV-T | REF-T |
|---|---|---|
| Masse volumique (kg/m$^3$) | 300,9 | 302,5 |
| Écart type | 1,5 | 1,2 |

*Tableau 47 Masses volumiques des échantillons terre*

Les résultats mécaniques en compression sont récapitulés dans le Tableau 48. Les courbes ne présentaient pas de point d'inflexion ce qui ne permet pas d'identifier une résistance en compression.

| | | ADEV-T | | | REF-T | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV |
| Cylindres | Module d'élasticité selon la traverse | 5,90 | 0,16 | 2,7 % | 9,92 | 0,04 | 0,4 % |
| | Module d'élasticité selon l'extensomètre | 6,60 | 0,44 | 6,9 % | 10,99 | 0,35 | 3,2 % |
| Cubes | Module d'élasticité selon la traverse | 8,13 | 0,88 | 10,8 % | 11,92 | 0,65 | 5,5 % |
| | Module d'élasticité selon les extensomètres virtuels sur Aramis | 10,63 | 1,35 | 12,7 % | 14,24 | 0,10 | 0,7 % |

*Tableau 48 Modules d'élasticité des cylindres et cubes à base de terre*

Afin de mieux visualiser les différences liées à la méthode de mesure du module d'élasticité, le diagramme en Figure 167 présente les valeurs de modules des deux formulations terre pour les cylindres et la Figure 168 pour les cubes.

Nous notons que les modules d'élasticité des cylindres sont assez proches quelle que soit la méthode avec tout de même un module mesuré avec l'extensomètre légèrement plus élevé. Le module d'élasticité des cylindres ADEV-T se situe à 6 MPa tandis que celui des cylindres REF-T est de 10 MPa.

Une différence plus importante selon la méthode de mesure est observée pour les cubes. En effet, la formulation ADEV-T atteint 8 MPa avec la mesure traverse et 10 MPa avec la mesure Aramis tandis que la formulation REF-T atteint 12 MPa en module travers et 14 MPa en module Aramis. Ces valeurs sont assez significatives et révèlent là aussi le caractère localisé de la mesure avec les extensomètres virtuels Aramis.

Pour une comparaison des modules selon le granulat, nous pouvons regarder les résultats selon la méthode Aramis. La formulation avec le roseau obtient un module d'élasticité de10 MPa contre 14 MPa pour la formulation avec la chènevotte. Ces valeurs ne sont pas suffisantes pour l'application en isolant de mur mais cependant nous devons noter que la masse volumique des échantillons est

d'environ 300 kg/m$^3$. Comme nous avons vu précédemment que la masse volumique est en lien direct avec le module, des formulations à 350 kg/m$^3$ pourraient atteindre les recommandations des règles professionnelles. De plus, utiliser un liant terre permet de s'affranchir des défauts de prise de la chaux.

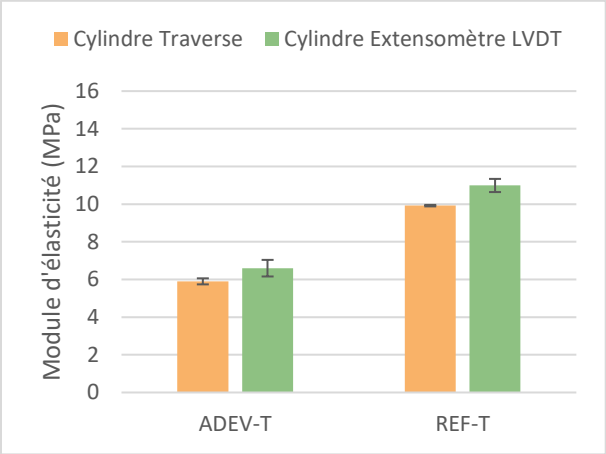



*Figure 167 Comparaison de méthodes de mesures du module d'élasticité des cylindres ADEV-T et REF-T*

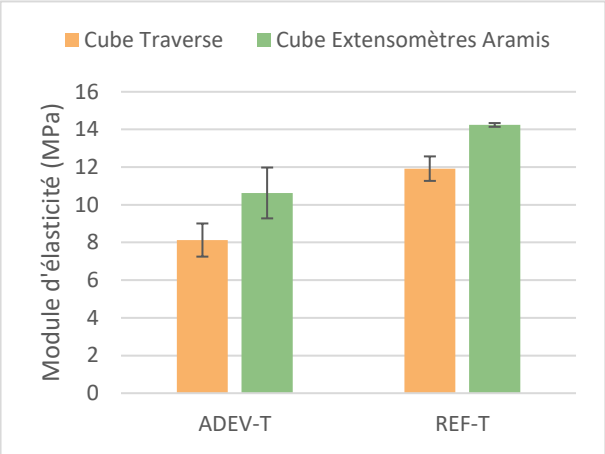



*Figure 168 Comparaison de méthodes de mesures du module d'élasticité des cubes ADEV-T et REF-T*

### **I.9.** Liant PCC 24bis : comparaison ADEV-F1 et ADEV-P1

Un troisième liant a été étudié sur une formulation utilisant le roseau de Bretagne (ADEV) pour une comparaison avec la formulation ADEV-F1. Les masses volumiques et résultats des tests de compression sur les cubes sont donnés dans le Tableau 49.

Nous remarquons tout d'abord une masse volumique plus faible pour la formulation ADEV-P1 avec 322 kg/m$^3$ tandis que la formulation ADEV-F1 atteint 356 kg/m$^3$. Le liant PCC 24 bis est composé à 40 % en plâtre, 40 % en chaux aérienne, 10 % de terre et 10 % de brique pilée et donc aucun liant hydraulique. Cette différence de composition par rapport au Bâtichanvre composé à 70 % de chaux aérienne et 30 % de liant hydraulique explique la différence de masse volumique des deux formulations. En effet, le liant hydraulique prend avec l'eau de la formulation, celle-ci prend donc en masse contrairement au PCC 24bis où l'eau s'évapore permettant la cohésion de liant avec les granulats en attendant la carbonatation de la chaux aérienne.

Les valeurs de modules sont comparables avec la méthode de mesure selon le déplacement traverse mais est différent avec les mesures Aramis. En effet, la formulation ADEV-F1 atteint 13 MPa tandis que ADEV-P1 n'atteint que 9 MPa ce qui est insuffisant pour l'application en isolant de mur selon les règles professionnelles. De plus, les courbes de compression des cubes ADEV-P1 ne présentent pas de point d'inflexion ce qui témoigne d'une mauvaise cohésion entre les granulats et le liant.

| | Masse volumique | | Module d'élasticité selon la traverse | | | Module d'élasticité selon les extensomètres virtuels sur Aramis | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | Moyenne (kg/m$^3$) | Écart type (kg/m$^3$) | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV | Moyenne (MPa) | Écart type (MPa) | CV |
| ADEV-F1 | 355,5 | 4,0 | 6,91 | 0,72 | 10,4 % | 13,07 | 4,41 | 33,7 % |
| ADEV-P1 | 322,0 | 2,2 | 6,50 | 0,10 | 1,5 % | 9,45 | 0,74 | 7,9 % |

*Tableau 49 Comparaison des modules d'élasticité des formulations ADEV-F1 et ADEV-P1*

## II. PROPRIÉTÉS THERMIQUES

La conductivité thermique des différentes formulations a été mesurée sur trois demi-cubes pour chaque formulation et après stockage à 23°C et 50 % d'humidité relative puis séchage à 70°C pour certaines formulations.

### II.1. ADEV1 et ADEV2 : comparaison de la conductivité selon le sens de découpe

Les formulations de la première campagne ont également été fabriquées sous forme de cubes avec la même gâchée que les cylindres de compression pour réaliser les mesures de conductivité thermique après une découpe soit longitudinale soit transversale et un stockage des éprouvettes différent (23°C et 50 % d'humidité relative ou séchage en étuve à 70°C). Les résultats sont présentés en Figure 169.

La première observation est que le sens du flux lors de la mesure a un impact sur les valeurs de conductivité thermique. En effet, la conductivité thermique mesurée après une découpe longitudinale (//) est plus faible comparée à la découpe transversale. Ceci s'explique par le fait que lorsque la découpe est transversale au remplissage, le flux, lui, est parallèle aux couches de granulats. Les lits de granulats jouent donc un rôle de pont thermique.

La seconde remarque concerne le stockage des échantillons. À température ambiante, la conductivité thermique est plus élevée qu'après un séchage à 70°C. En effet, l'humidité des échantillons permet une meilleure conduction du flux de chaleur et induit donc de moins bonnes propriétés isolantes. Cette influence des conditions de stockage a été démontrée dans les travaux de Colinart et al. [152].

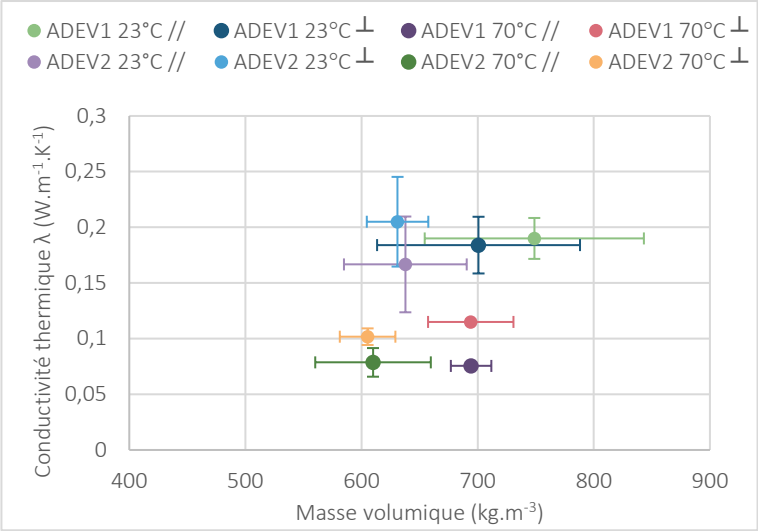



*Figure 169 Conductivité thermique des formulations ADEV1 et ADEV2 selon le stockage et le sens de découpe des éprouvettes*

### II.2. Conductivité à 23°C selon le type de liant et le granulat

L'ensemble des résultats des mesures thermique à 23°C des formulations utilisant comme granulats la chènevotte (référence) ou les roseaux phragmites ainsi que les différents liants (Bâtichanvre, PCC 24bis et Terre) est donné en Figure 170.

Nous remarquons tout d'abord une zone regroupant les formulations Bâtichanvre/chènevotte à 350 kg.m$^{-3}$ et 0,14 W.m$^{-1}$.K$^{-1}$. Les valeurs pour les formulations Bâtichanvre/phragmites sont plus éparses avec des valeurs qui s'étendent de 0,14 à 0,08 W.m$^{-1}$.K$^{-1}$ pour des masses volumiques allant de 340 à 430 kg/m$^{3}$.

Des valeurs similaires de conductivité, de 0,10 à 0,12 W.m$^{-1}$.K$^{-1}$, sont observées dans les travaux de G. Delannoy [153] sur des mélanges chaux/chanvre pour des masses volumiques allant de 340 à 380 kg.m$^{-3}$. De même dans les travaux de V. Cérézo [139], la conductivité thermique des bétons de chanvre varie de 0,06 à 0,18 W.m$^{-1}$.K$^{-1}$ pour des masses volumiques variant de 200 à 800 kg.m$^{-3}$. De plus les valeurs de conductivité sont liées de façon linéaire à la masse volumique : plus celle-ci est élevée et plus la conductivité thermique est grande.

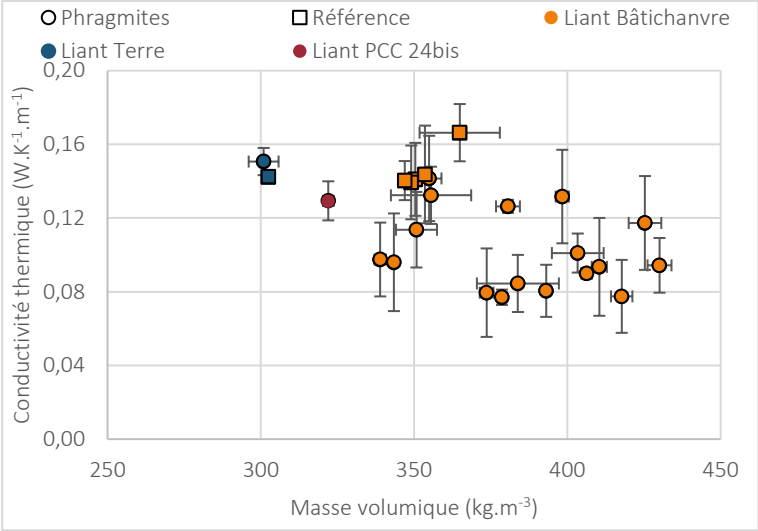



*Figure 170 Conductivité thermique à 23°C des formulations selon la masse volumique*

## II.3. Conductivité après un séchage à 70°C en fonction de la masse volumique

Certains échantillons de différentes masses volumiques analysés en conductivité thermique après un stockage à 23°C ont été séchés en étuve à 70°C pendant 5 jours avant d'être de nouveau analysés. La Figure 171 présente une comparaison des valeurs de conductivité thermique pour ces mêmes échantillons selon les conditions de stockage.

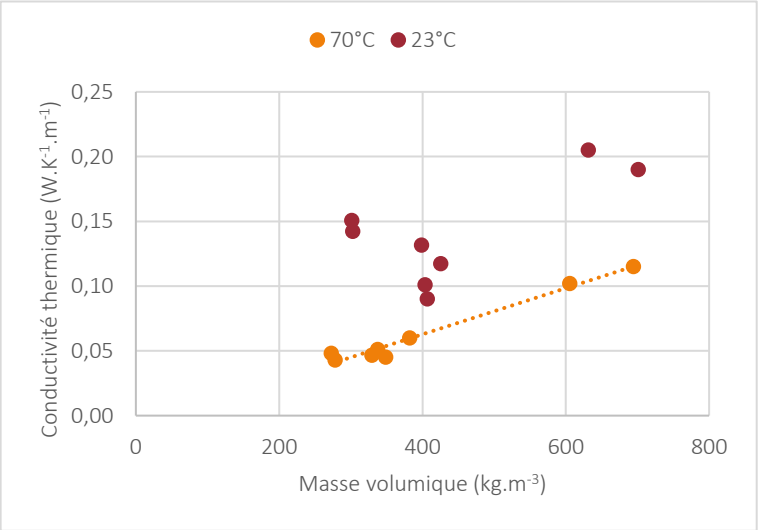



*Figure 171 Conductivité thermique à 70°C des formulations selon la masse volumique*

Nous remarquons tout d'abord une allure plus linéaire des points de la conductivité après un séchage à 70°C en fonction de la masse volumique avec des valeurs allant de 0,05 à 0,10 $W.m^{-1}.K^{-1}$ pour des masses volumique de 280 à 700 $kg.m^{-3}$. Nous retrouvons la même allure de courbe que dans les

travaux de V. Cérézo avec une augmentation de la conductivité thermique lorsque la masse volumique augmente [139].

De plus, une nette diminution de la conductivité est observée pour un même échantillon. Par exemple l'échantillon de 631 $kg.m^{-3}$ et 0,2 $W.m^{-1}.K^{-1}$ à 23°C présente une conductivité de 0,1 $W.m^{-1}.K^{-1}$ lorsqu'il est séché à 70°C soit une conductivité divisée par deux. Il s'agit de la formulation ADEV2.

Le séchage en étuve fait évaporer l'eau non liée et diminue donc la conduction des échantillons ce qui a pour action de diminuer la conductivité thermique.

Les échantillons dont la masse volumique se situe à 400 $kg.m^{-3}$ à 23°C présentent des conductivités différentes, 0,13, 0,1 et 0,09 $W.m^{-1}.K^{-1}$ ce qui signifie que la masse volumique n'est pas le seul critère dans la validation d'un bon isolant mais il s'agit également de regarder la quantité d'eau restante dans la formulation après prise de la chaux ou après séchage (à 23°C) d'une formulation terre.

## CONCLUSION

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à l'éligibilité du roseau *Phragmites australis* pour une application pour le bâtiment. Le roseau pouvant être utilisé sous diverse formes, la thèse s'est focalisée sur l'emploi des granulats, ou broyats, sous forme de béton isolant. Cette étude a pour but d'évaluer la possibilité de substitution de la chènevotte largement étudiée et utilisée par le roseau phragmites. La chènevotte constitue donc la référence pour la totalité de ce volet.

Une première partie est consacrée à une revue de littérature nous permettant de mieux situer le travail de cette thèse parmi les études scientifiques actuelles. En effet, bien que le phragmites soit déjà utilisé par certaines entreprises, il existe très peu de travaux scientifiques portant sur la valorisation de celui-ci dans le domaine de l'écoconstruction.

Deux axes principaux se dégagent de ce chapitre. Le premier concerne la méthode d'évaluation des propriétés en compression des échantillons de béton. En effet, les valeurs peuvent être différentes selon l'appareillage et la méthode de mesure et nous avons pu constater que la mesure localisée du module d'élasticité permet d'obtenir des valeurs plus proches de la réalité car s'affranchissant des biais liés à la mise en œuvre, à l'hétérogénéité des matériaux et à la forme des échantillons, cylindrique ou cubique. Le comportement très hétérogène sur la hauteur d'un échantillon, et les biais de mesure induits par les défauts de parallélisme et de planéité à l'interface des plateaux de compression incitent à préconiser l'utilisation de mesures locales et au centre de l'échantillon, à savoir l'usage d'un extensomètre ou d'analyse d'images.

Le deuxième axe a été articulé suivant les liants utilisés, trois en tout. Le premier, le Bâtichanvre, nous a permis d'évaluer les différences observées selon l'échantillon de roseau. Nous avons tout d'abord étudié les formulations possibles en faisant varier la quantité d'eau pour un rapport granulats/liant égal à 0,6. Nous avons également évalué l'influence de la masse volumique sur les propriétés mécaniques avant de faire varier le granulat incorporé suivant la granulométrie, le lieu de récolte ainsi que la période (roseau vert ou roseau sec).

Cette partie nous permet d'établir que des formulations très chargées en liant présentent des propriétés mécaniques satisfaisantes pour l'application en isolant de toiture ou mur mais que thermiquement ces formulations ne sont pas assez isolantes. Lorsque nous diminuons la quantité de liant en faisant varier la quantité d'eau, les formulations avec le moins d'eau deviennent friables et donc beaucoup moins résistantes mécaniquement, ceci étant dû à une mauvaise prise de la chaux.

La taille des granulats a une influence sur les propriétés mécaniques des bétons de roseau. En effet, la plus grande taille de granulat permet d'avoir des propriétés plus élevées avec une meilleure cohésion des particules lignocellulosiques à la chaux. Cette observation peut être due à la zone de transition interfaciale plus petite pour les grands granulats induisant moins d'interactions

solubles/liant et donc une meilleure prise. A l'inverse, lorsque la surface d'interaction augmente du fait d'une plus grande surface spécifique (cas des petits granulats) cela provoque une mauvaise prise.

L'origine géographique des granulats n'a pas d'influence notable sur les propriétés mécaniques en compression des bétons de roseau, de même pour le caractère salé du roseau de Camargue qui n'influence pas la prise de la chaux.

Nous avons pu constater que le module d'élasticité de l'échantillon est directement lié à sa masse volumique. En effet, plus celle-ci est élevée et plus le module d'élasticité sera élevé.

Le changement de liant avec une utilisation de la terre en remplacement du Bâtichanvre permet de s'affranchir d'une mauvaise prise de la chaux. En effet, la cohésion de la terre sur les granulats se fait par évaporation de l'eau. Nous avons réalisé une unique formulation avec le roseau en effectuant strictement la même avec de la chènevotte. La masse volumique des échantillons étant de 300 $kg.m^{-3}$, les propriétés mécaniques ne rentrent pas dans les recommandations des règles professionnelles. Cependant, nous avons pu constater que la masse volumique est en lien avec les propriétés mécaniques. Les formulations terre pourraient être améliorées mécaniquement en augmentant la masse volumique tout en restant dans les valeurs permettant des propriétés thermiques acceptables.

La formulation réalisée avec le liant à base de plâtre et chaux aérienne (PCC 24bis) ne nous permet pas de la valider car celle-ci n'a pas obtenu des propriétés mécaniques suffisantes.

Toutes les formulations ont été évaluées thermiquement. La conductivité thermique est elle aussi fortement corrélée à la masse volumique. En effet, plus celle-ci est élevée et moins l'échantillon sera isolant, c'est-à-dire avec une conductivité thermique élevée. L'ensemble des échantillons dont la masse volumique est comprise entre 300 et 450 $kg/m^{-3}$ obtient des valeurs de conductivité thermique acceptables pour une utilisation en isolation de mur ou de toiture.

Pour aller plus loin dans cette étude, deux pistes nous paraissent intéressantes à explorer :

- Concernant les méthodes de mesure : une méthodologie claire doit être mise en œuvre dans le monde scientifique pour caractériser ce type de matériaux de construction. D'un point de vue mécanique, nous préconisons d'utiliser la limite d'élasticité pour comparer les résistances les bétons de granulats bio-sourcés. Cette limite représente en effet le passage d'un mode pseudo-élastique à un mode plastique de la compression du matériau. Elle est donc représentative d'une limite à ne pas dépasser en service. Concernant la mesure de la rigidité, nos résultats montrent qu'il faut privilégier les mesures locales (extensomètres, analyse d'image), et que les résultats diffèrent en fonction de la forme et de l'élancement de l'échantillon. D'un point de vue thermique, comme Colinart et al. l'ont démontré [152], il parait absolument nécessaire, à minima, de décrire les conditions de stockage et de préparation des échantillons pour pouvoir comparer leurs performances.

- Concernant l'utilisation du roseau Phragmites dans des mélanges chaux/roseau et terre/roseau , l'étude a montré des limites claires de l'utilisation du roseau en tant que granulat dans une matrice minérale, du fait du grand nombre d'extractibles qu'il contient. Néanmoins, les résultats prometteurs du roseau vert roui montrent que par le rouissage, ou simplement un lessivage des granulats, la fabrication de bétons de roseau avec des proportions massiques de bio-sourcés plus élevées serait envisageable. L'utilisation du matériau terre semble être elle aussi une voie prometteuse, et méritera une campagne d'essai plus conséquente dans des travaux futurs.

# CONCLUSION GÉNÉRALE

Les fibres végétales poursuivent leur développement dans les composites, à matrices polymère comme minérale, avec un certain nombre de travaux réalisés ces dernières années sur des bio-composites à base de bois, chanvre et miscanthus. Afin de diversifier les gisements de matériaux, de viser une meilleure gestion globale de l'environnement et éventuellement apporter de nouvelles propriétés d'usage aux composites , nous avons étudié le potentiel du roseau *Phragmites australis* en tant que charge en plasturgie et en tant que granulat en éco-construction . Ce travail contribue donc au développement de la connaissance de cette plante invasive très peu étudiée dans la littérature et pourtant utilisée depuis de nombreux siècles en tant que matériau de couverture des toits.

*Bilan des travaux*

Dans le premier chapitre, nous avons présenté le roseau commun appelé *Phragmites australis*. Cette plante aux multiples propriétés possède une caractère invasif très développé et on la trouve dans toutes les zones humides sur Terre. Cette invasion menace l'écosystème des marais en réduisant la richesse des espèces végétales et animales qui y vivent. De nombreuses espèces végétales sont étouffées par ce roseau. La densification d'une roselière non entretenue rend difficile voire impossible l'accès à des zones pourtant indispensables aux espèces menacées. Un fauchage et une récolte responsables, c'est-à-dire en alternant les zones récoltées d'une année sur l'autre, font partie de la gestion des roselières et permettent la sauvegarde de cette riche diversité. Il s'agit donc d'une matière renouvelable qui n'empiète pas sur les surfaces agricoles et qui est potentiellement valorisable dans les bio-composites. Cette thèse est un travail exploratoire sur l'éligibilité de ce roseau incorporé dans des matrices polymères et minérales pour diverses applications.

L'ensemble de nos travaux permet d'établir plusieurs conclusions :

Le roseau phragmites est une plante à caractère hydrophobe pouvant être expliqué par la forte présence de silicium et/ou la taille de ses porosités. En effet, à travers les mesures de mouillabilité et l'analyse des courbes de sorption et d'absorption d'eau des granulats, nous avons montré que le roseau commun présente une certaine résistance à l'humidité et donc à l'eau. Ce caractère hydrophobe entraine une mauvaise cohésion lorsque le végétal est en contact avec une matrice, polymère comme minérale.

Les résultats montrent qu'avec une matrice polypropylène l'ajout d'un compatibilisant polypropylène greffé anhydride maléique est nécessaire pour l'amélioration des propriétés

mécaniques et suffisant dès 4 % (massique). Cet agent de couplage agit également sur les propriétés d'usage du composite, en ralentissant la cinétique d'absorption d'eau. Malgré cela, le compatibilisant agit de façon peu marquée sur la cohésion entre les charges et la matrice. En revanche, l'utilisation d'une matrice biosourcée, le polybutylène succinate, apparait mieux adaptée aux charges de roseau commun : sans nécessité de compatibilisant, compte tenu du caractère polaire du polymère, les bio-composites obtenus sont plus rigides qu'avec une matrice PP, grâce notamment à une meilleure cohésion à l'interface PBS/charge végétale. L'ensemble des résultats pour le roseau commun est comparable à ceux obtenus avec les composites chargés en bois et en miscanthus avec pour le phragmites de meilleures propriétés au vieillissement.

Les mêmes limites sont observées lorsque le phragmites est associé à une matrice minérale. En effet, la cohésion est mauvaise pour les mélanges chaux/roseau du fait de la quantité importante d'extractibles dans les granulats. On peut noter cependant des résultats prometteurs avec le roseau vert roui montrant que par le rouissage, la fabrication de bétons de roseau avec des proportions massiques de granulats plus élevées serait envisageable. La substitution du liant minéral par de la terre apparait également comme une voie prometteuse et méritera une étude plus approfondie dans de futurs travaux.

La variabilité du roseau a également été un point clef de ces travaux. En effet, nous avons pu démontrer dans le chapitre 2 que cette variabilité n'a pas d'influence significative sur les propriétés intrinsèques des granulats comme l'absorption d'eau par exemple. Toutefois, la composition chimique peut légèrement varier et notamment le taux de solubles qui est plus faible pour le roseau coupé vert et roui. Les résultats sont assez similaires pour les deux origines de phragmites utilisés avec les matrices polymères, de même pour les formulations du volet éco-construction dont les propriétés ne varient pas significativement lorsqu'un paramètre est modifié, comme le lieu ou la période de récolte. Quant à la taille des granulats, celle-ci a une influence sur la cohésion à l'interface granulat/liant minéral. Plus la taille des granulats est grande et plus la prise du liant sera bonne grâce à une surface spécifique plus faible induisant une zone interfaciale de transition moins concentrée en extractibles.

Nous retenons également de ces travaux que la méthode d'évaluation des différentes caractéristiques est primordiale. Dans le chapitre 2, les méthodes de composition chimique employées font varier les quantités de solubles et de matières lignocellulosiques de façon significative selon l'espèce végétale. Dans le chapitre 4, plusieurs techniques existent dans la littérature notamment pour la limite d'élasticité qui représente le passage d'un mode pseudo-élastique à un mode plastique de la compression du matériau (limite à ne pas dépasser en service) mais également pour le module d'élasticité qui peut être évalué de diverses façons. Nos résultats montrent qu'il faut privilégier les mesures locales (extensomètres, analyse d'image) et que les résultats diffèrent en fonction de la forme

et de l'élancement de l'échantillon. De la même manière, il parait absolument nécessaire de décrire les conditions de stockage et de préparation des échantillons pour pouvoir comparer leurs performances. L'ensemble de ces résultats nous amène à préconiser l'utilisation d'une méthodologie claire pour la caractérisation des matériaux bruts comme des matériaux formulés.

*Perspectives*

Ce travail pluridisciplinaire ouvre de nombreuses voies à explorer, premièrement dans la connaissance du matériau de première transformation. Les potentielles causes de l'hydrophobie du roseau doivent être analysées plus profondément afin de prévenir les problématiques liées à une mauvaise cohésion entre les particules végétales et la matrice, quelle qu'elle soit.

Toutefois les voies utilisant des matrices biodégradables telles que le PBS pour le volet plasturgie et la terre crue pour le volet écoconstruction doivent être privilégiées pour plusieurs raisons : celles-ci présentent une meilleure cohésion avec les particules végétales tout en étant plus respectueuses de l'environnement.

Le volet plasturgie devra être développé avec d'autres matrices bio-sourcées et biodégradables afin d'étudier le potentiel d'utilisation de roseau phragmites, en particulier dans des applications de type vaisselle ou emballage cosmétique ; Il apparait nécessaire de mettre en place des essais de vieillissement afin d'évaluer les conditions de dégradation des bio-composites à base de farine de phragmites. Cette étude a également montré que l'influence de la taille des particules n'était pas assez significative pour observer une différence au niveau des propriétés mécaniques. Une nouvelle campagne de formulations pourrait viser une plus grande dispersion de longueur des particules par exemple.

De la même façon, une nouvelle campagne de mélanges à base de terre/roseau en faisant varier la teneur en liant pourra également permettre de légitimer l'utilisation de roseau en écoconstruction tout en apportant un confort thermique dans l'habitat.

De plus, il est indispensable d'étudier plus amplement les caractéristiques environnementales de la plante *Phragmites australis* par une analyse complète de cycle de vie. Ce bilan environnemental confortera probablement les différents atouts liés à l'utilisation du roseau qui, rappelons-le, est une plante non agricole, invasive donc abondante et présente partout sur la planète.

# COMMUNICATIONS ET PUBLICATIONS

**COMMUNICATIONS :**

**Congrès international "Eco-Plasturgie: osez les matériaux biosourcés ou recyclés!"**

10 et 11 octobre 2018, Alençon, France

M. Honoré, S. Pimbert et T. Lecompte

"The common reed Phragmite Australis: Presentation of the material and comparison with other plant fibers"

**Matériaux 2018**

19 - 23 novembre 2018, Strasbourg, France

M. Honoré, S. Pimbert et T. Lecompte

« Le roseau commun Phragmite Australis : Présentation du matériau brut et valorisation dans des composites »

**4th International Conference on Natural Fibers (ICNF)**

1er- 3 juillet 2019, Porto, Portugal

M. Honoré, S. Pimbert et T. Lecompte

"Study of the common reed *Phragmites australis* for a valorisation in biocomposites and building materials"

**PUBLICATION:**

M. Honoré, S. Pimbert and T. Lecompte, "Characterisation of plant flours for biocomposite applications focussing on *Phragmites australis* properties," *Biosyst. Eng.*, vol. 197, pp. 367–377, 2020.

# BIBLIOGRAPHIE

[1] J. Swearingen and K. Saltonstall, “Phragmites field guide: distinguishing native and exotic forms of common reed in the united states,” in *USDA - Natural Ressources Conservation Service*, no. 56, 2012, p. 23.

[2] SIDE, “Chapitre 3: Le roseau.”

[3] A. Blanc, “Problèmes d’aménagement dans le delta du Danube,” *Bulletin de l’Association de géographes français*, vol. 44, no. 357. pp. 3–16, 1967.

[4] D. Dykyjova and J. Kvet, *Pond littoral ecosystems-Structure and functioning*. Springer Berlin Heidel, 1978.

[5] P. J. Hocking, C. M. Finlayson, and A. J. Chick, “Biology of Australian weeds. 12. Phragmites australis (Cav.) Trin ex Steud,” *J. Aust. Inst. Agric. Sci.*, vol. 49(3):123-, 1983.

[6] F. Morari, N. Dal Ferro, and E. Cocco, “Municipal wastewater treatment with Phragmites australis L. and Typha latifolia L. for irrigation reuse. Boron and heavy metals,” *Water. Air. Soil Pollut.*, vol. 226, no. 3, 2015.

[7] F. Xufeng, Z. Zhaoping, and X. Gang, “Comparative study on pyrolysis characteristics and dynamics of grass biomass.,” *Trans. Chinese Soc. Agric. Eng.*, vol. 25, pp. 199–202, 2009.

[8] K. H. Shaltout, Y. Al-sodany, and E. M. Eid, “Biology of Common Reed Phragmites Review and Inquiry,” no. 7, 2006.

[9] J. Ishaii and Y. Kadono, “Factors influencing seed production of Phragmites australis,” *Aquat. Bot.*, vol. 72, pp. 129–141, 2002.

[10] J. G. Packer, L. A. Meyerson, H. Skálová, P. Pyšek, and C. Kueffer, “Biological Flora of the British Isles: Phragmites australis,” *J. Ecol.*, vol. 105, no. 4, pp. 1123–1162, 2017.

[11] C. R. Hurry, E. A. James, and R. M. Thompson, “Connectivity, genetic structure and stress response of Phragmites australis: Issues for restoration in a salinising wetland system,” *Aquat. Bot.*, vol. 104, pp. 138–146, 2013.

[12] T. R. Batterson and D. W. Hall, “Common reed, Phragmites australis (Cav.) Trin. ex Steudel,” *Aquatics*, vol. 6, no. 2, pp. 16–20, 1984.

[13] W. Guo, R. Wang, S. Zhou, S. Zhang, and Z. Zhang, “Genetic diversity and clonal structure of Phragmites australis in the Yellow River delta of China,” *Biochem. Syst. Ecol.*, vol. 31, no. 10, pp. 1093–1109, 2003.

[14] CARMA, “Carma - Glossaire Des Materiaux Composites Renforces De Fibres D ’ Origine Renouvelable,” *Cent. d’Animation Régional en Matériaux Avancés*, pp. 1–24, 2006.

[15] H. V. Scheller and P. Ulvskov, “Hemicelluloses,” *Annu. Rev. Plant Biol.*, vol. 61, no. 1, pp. 263–289, 2010.

[16] J.-L. Wertz, “Les hémicelluloses,” *ValBiom, Gembloux Agro-Bio Tech, Univ. Liège*, 2011.

[17] J.-L. Wertz, “La lignine,” *ValBiom, Gembloux Agro-Bio Tech, Univ. Liège*, p. 23, 2010.

[18] J. Schaller, C. Brackhage, and M. . Gessner, “Silicon supply modifies C:N:P stoichiometry and growth of Phragmites australis,” *Plant Biol*, vol. 14, no. 2, pp. 392–396, 2012.

[19] A. Vissac, “Matière En Fibres,” Ecole Nationale Supérieure d’Architecture de Grenoble, 2014.

[20] M. Brancourt-, “A Review on Miscanthus Biomass Production and Composition for Bioenergy

Use: Genotypic and Environmental Variability and Implications for Breeding," vol. 8, no. 2, pp. 502–526, 2015.

[21] E. Bittman, *Das Schilf (Phragmites communis Trin.) und seine Verwendung im Wasserbau*, Angewandte. Zentralstelle für Vegetationkartierung, 1953.

[22] K. Saltonstall, "Cryptic invasion by a non-native genotype of the common reed, Phragmites australis, into North America," *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, vol. 99, no. 4, pp. 2445–2449, 2002.

[23] A. Challice, "Phragmites australis, Common Reed," *Ontario Fed. Anglers Hunters invasive species Progr.*, 2007.

[24] C. Le Barz, M. Michas, and C. Fouque, "Les roselières en France métropolitaine : premier inventaire (1998-2008)," 2009.

[25] "Littoraux." [Online]. Available: https://www.bretagne.com/fr/la-bretagne/son-environnement/littoraux.

[26] ONCFS, "Les roselières en Bretagne: état des lieux," 2008.

[27] L. Abbadie, "Historique de la notion d'écosystème." [Online]. Available: https://www.universalis.fr/encyclopedie/ecosystemes/1-historique-de-la-notion-d-ecosysteme/.

[28] L. Windham and R. G. Lathrop Jr, "Effects of Phragmites australis (Common Reed) invasion on aboveground biomass and soil properties in brackish tidal marsh of Mullica River," *Estuaries*, vol. 22, no. 4, pp. 927–935, 1999.

[29] Groupe d'experts Zones humides, "Zones Humides Infos Changement climatique," *Zo. humides info*, pp. 1–32, 2008.

[30] G. Barnaud and E. Fustec, *Conserver les zones humides: pourquoi ? comment ?*, Educagri é. 2007.

[31] D. H. Cross and K. L. Fleming, "Control of Phragmites or Common Reed," *Fish Wildl. Leafl.*, vol. 13, pp. 1–5, 1989.

[32] B. Blossey, "Before, during and after: the need for long-term monitoring in invasive plant species management," *Biol. Invasions*, vol. 1, pp. 301–311, 1999.

[33] H. Bucsbaum, M. Horowitz, Y. Kleifeld, G. Herzlinger, and A. Bargutti, "Experiments on the control of Phragmites in drainage canals," *Phytoparasitica*, vol. 13, pp. 249–250, 1985.

[34] A. Monteiro, I. Moreira, and E. Sousa, "Effect of prior common reed (Phragmites australis) cuting on herbicide efficacy," *Hydrobiologica*, vol. 415, pp. 305–308, 1999.

[35] M. S. Ailstock, C. M. Norman, and P. J. Bushmann, "Common Reed Phragmites australis: Control and Effects Upon Bio diversity in in Freshwater Nontidal Wetlands," *Soc. Ecol. Restor.*, vol. 9, no. 1, p. 11 pp., 2001.

[36] P. François, "Coupe de roseau et niveaux d'eau," *Parc Nat. Régional Brière*, 1977.

[37] P. Goergen, "Entre patrimoine naturel et patrimoine architectural: Le chaume des marais," 1996.

[38] R. G. Wetzel, "Rodewald-Rudescu, L. 1974. Das Schilfrohr. Phragmites communis Trinius. Die Binnengewasser Band 27. E. Schweizerbart'sche, Stuttgart, ix + 302 p. + 11 plates. DM97.50.," *Limnol. Oceanogr.*, vol. 20, 1975.

[39] L. Rudescu, C. Niculescu, and I. P. Chivu, *Monografia stufului din delta Dunării*. Editura Academiei Republicii Socialiste Romania, 1965.

[40] S. Sjöroos, “Expertise in reed construction,” Turku University of Applied Sciences, 2008.

[41] G. Holzman, M. Wangelin, and R. Bruns, *Natural Plant Construction Materials: Raw material - Building Physics - Construction*. 2009.

[42] H. Brix *et al.*, “Large-scale management of common reed, Phragmites australis, for paper production: A case study from the Liaohe Delta, China,” *Ecol. Eng.*, vol. 73, pp. 760–769, 2014.

[43] A. Iital, M. Kloga, U. Kask, V. Voronova, and B. Cahill, *Reed Harvesting*. 2012.

[44] A. Hemmi *et al.*, “Guidebook of reed business,” Tallin University of Technology, 2013.

[45] W. Jin *et al.*, “Tween-80 is effective for enhancing steam-exploded biomass enzymatic saccharification and ethanol production by specifically lessening cellulase absorption with lignin in common reed,” *Appl. Energy*, vol. 175, pp. 82–90, 2016.

[46] M. Kumari and B. D. Tripathi, “Efficiency of Phragmites australis and Typha latifolia for heavy metal removal from wastewater,” *Ecotoxicol. Environ. Saf.*, vol. 112, pp. 80–86, 2015.

[47] A. Wöhler-Geske, C. R. Moschner, A. Gellerich, H. Militz, J. M. Greef, and E. Härtung, “Provenances and properties of thatching reed,” *Landbauforschung Volkenrode*, vol. 66, no. 1. pp. 1–10, 2016.

[48] F. Asdrubali *et al.*, “Experimental thermo-acoustic characterization of innovative common reed bio-based panels for building envelope,” *Build. Environ.*, vol. 102, pp. 217–229, 2016.

[49] F. Asdrubali, F. D. Alessandro, S. Schiavoni, and N. Mencarelli, “Sound Absorption Properties of Reed,” no. July, pp. 12–16, 2015.

[50] V. Chilekwa, G. Sieffert, C. A. Egan, and D. Oldham, “the Acoustical Characteristics of Reed Configurations,” *Euronoise 2006*, no. October, pp. 1–6, 2006.

[51] A. Youssef, “Etude mécanique des mélanges chaux/chanvre pour leur prise en compte dans le calcul de structure au sein d’une ossature,” Thèse de Doctorat, Université Bretagne Sud, 2017.

[52] T. Vinceslas, “Caractérisation d’éco-matériaux terre-chanvre en prenant en compte la variabilité des ressources disponibles localement,” Thèse de doctorat, Université Bretagne Sud, 2020.

[53] T. Colinart, D. Lelievre, and P. Glouannec, “Experimental and numerical analysis of the transient hygrothermal behavior of multilayered hemp concrete wall,” *Energy Build.*, vol. 112, pp. 1–11, 2016.

[54] N. Pellerin, “Technique de Van Soest pour la détermination des constituants pariétaux de végétaux à l’analyse des produits de compostage et litières diverses à usage agronomique . Principe Mode opératoire,” 2002.

[55] S. J. Jung, S. H. Kim, and I. M. Chung, “Comparison of lignin, cellulose, and hemicellulose contents for biofuels utilization among 4 types of lignocellulosic crops,” *Biomass and Bioenergy*, vol. 83, pp. 322–327, 2015.

[56] AFNOR, “NF V 18-122 - Aliments des animaux - Détermination séquentielle des constituants pariétaux - Méthode par traitement aux détergents neutre et acide et à l’acide sulfurique,” 1997.

[57] AFNOR, “NF V 18101 - Aliments des animaux - Dosage des cendres brutes,” 1977.

[58] A. P. Rowland and J. D. Roberts, “Lignin and cellulose fractionation in decomposition studies using acid-detergent fibre methods,” *Commun. Soil Sci. Plant Anal.*, vol. 25, no. 3–4, pp. 269–277, 1994.

[59] P. J. Van Soest, J. B. Robertson, and B. A. Lewis, “Methods for Dietary Fiber, Neutral Detergent Fiber, and Nonstarch Polysaccharides in Relation to Animal Nutrition,” *J. Dairy Sci.*, vol. 74, pp. 3583–3597, 1991.

[60] B. Godin *et al.*, “Revue bibliographique sur les méthodes d’analyse des polysaccharides structuraux des biomasses lignocellulosiques,” *Biotechnol. Agron. Soc. Environ.*, vol. 15, no. 1, pp. 165–182, 2011.

[61] TAPPI, “D 1105-96 Standard Test Method for Preparation of Extractive-Free Wood,” *ASTM Int.*, 2001.

[62] TAPPI, “T 222 om-02 : Acid-insoluble lignin in wood and pulp,” *ASTM Int.*, 2006.

[63] T. Ehrman, “Determination of Acid-Soluble Lignin in Biomass,” *Lab. Anal. Proced. LAP-004*, 1996.

[64] H. Rabemanolontsoa and S. Saka, “Holocellulose determination in biomass,” in *Zero-Carno Energy Kyoto 2011*, 2011, pp. 135–140.

[65] Korean Standards Association, “Testing method for alpha, beta, gamma cellulosein pulp (KSM 7044 method),” *Korean Agency Technol. Stand.*, 1995.

[66] M. Quaquarelli, “Changement de couleur du bois de bouleau à papier et d’érable à sucre au cours du séchage en relation avec la lignine,” Thèse de doctorat, Université Laval, 2011.

[67] R. K. Deshmukh, J. M. Ma, and R. R. Bélanger, *Role of Silicon in Plants*. Frontiers Research Topics, 2017.

[68] F. Fauteux, W. Rémus-Borel, J. Menzies, and R. Bélanger, “Silicon and plant disease resistance against pathogenic fungi,” *FEMS Microbiol Lett.*, vol. 249, no. 1, pp. 1–6, 2005.

[69] J. Schaller, J. Hines, C. Brackhage, E. Bäucker, and M. O. Gessner, “Silica decouples fungal growth and litter decomposition without changing responses to climate warming and N enrichment,” *Ecology*, vol. 95, no. 11. pp. 3181–3189, 2014.

[70] H. Chen, “Chemical composition and sturcture of natural lignocellulose,” in *Biotechnology of lignocellulose: Theory and practice*, Chemical Industry Press, Ed. 2014, pp. 1–511.

[71] J. Schoelynck and E. Struyf, “Silicon in aquatic vegetation,” *Funct. Ecol.*, vol. 30, pp. 1323–1330, 2016.

[72] Parc Naturel Régional de Brière, “Eléments pour une durabilité des toitures en chaume détail.”

[73] A. Bourmaud, J. Beaugrand, D. U. Shah, V. Placet, and C. Baley, “Towards the design of high-performance plant fi bre composites,” *Prog. Mater. Sci.*, vol. 97, no. July 2017, pp. 347–408, 2018.

[74] S. Chaudemanche, A. Perrot, S. Pimbert, T. Lecompte, and F. Faure, “Properties of an industrial extruded HDPE-WPC: The effect of the size distribution of wood flour particles,” *Constr. Build. Mater.*, vol. 162, pp. 543–552, 2018.

[75] F. Faure, A. Perrot, S. Pimbert, and T. Lecompte, “Water absorption measurements on WPCs: Assessment of size and direction dependencies in order to design fast and accurate quality control tests,” *Polym. Test.*, vol. 77, 2019.

[76] V. Nozahic, “Vers une nouvelle démarche de conception des bétons de végétaux

lignocellulosiques basée sur la compréhension et l'amélioration de l'interface liant/végétal," Thèse de Doctorat, Université Blaise Pascal – Clermont II, 2012.

[77] Y. Jannot, "Isothermes de sorption : modèles et détermination," 2008.

[78] E. W. Washburn, "The dynamics of capillary flow," *Phys. Rev.*, vol. XVII, 1921.

[79] S. Kirdponpattara, M. Phisalaphong, and B. M. Z. Newby, "Applicability of Washburn capillary rise for determining contact angles of powders/porous materials," *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 397, pp. 169–176, 2013.

[80] M. De Meijer, S. Haemers, W. Cobben, and H. Militz, "Surface energy determinations of wood: Comparison of methods and wood species," *Langmuir*, vol. 16, no. 24, pp. 9352–9359, 2000.

[81] M. E. P. Wålinder and D. J. Gardner, "Factors influencing contact angle measurements on wood particles by column wicking," *Journal of Adhesion Science and Technology*, vol. 13, no. 12. pp. 1363–1374, 1999.

[82] T. Liu, Z. Chen, and C.-J. Kim, "A dynamic Cassie-Baxter model," *Soft Matter*, no. 8, 2015.

[83] S. Amziane and F. Collet, Eds., *Bio-aggregates Based Building Materials, State-of-the-Art Report of the RILEM Technical Committee 236-BBM*, vol. 23. 2017.

[84] M. M. Kabir, H. Wang, K. T. Lau, and F. Cardona, "Chemical treatments on plant-based natural fibre reinforced polymer composites : An overview," *Compos. Part B*, vol. 43, no. 7, pp. 2883–2892, 2012.

[85] V. K. Thakur, A. S. Singha, and M. K. Thakur, "Natural Cellulosic Polymers as Potential Reinforcement in Composites : Physicochemical and Mechanical Studies," pp. 1–9, 2012.

[86] Braskem, "I'M GREEN POLYETHYLENE." [Online]. Available: www.plasticoverde.braskem.com.br/site.aspx/lm-greenTM-Polyethylene.

[87] E. Ozen, A. Kiziltas, E. E. Kiziltas, and D. J. Gardner, "Natural Fiber Blend — Nylon 6 Composites," *Polym. Compos.*, 2013.

[88] C. Borsoi, L. C. Scienza, and A. J. Zattera, "Characterization of Composites Based on Recycled Expanded Polystyrene Reinforced with Curaua Fibers," *Appl. Polym.*, vol. 128, no. 1, pp. 653–659, 2013.

[89] W. Amass, A. Amass, and B. Tighe, "A Review of Biodegradable Polymers : Uses , Current Developments in the Synthesis and Characterization of Biodegradable Polyesters , Blends of Biodegradable Polymers and Recent Advances in Biodegradation Studies," *Polym. Int.*, vol. 47, pp. 89–144, 1998.

[90] S. M. Sapuan and Y. A. El-Shekeil, "Natural Fiber Reinforced Polymer Composites : a Green Alternative," *Int. Conf. Mech. Ind. Mater. Eng.*, pp. 16–22, 2013.

[91] N. K. Kim, R. J. T. Lin, and D. Bhattacharyya, "Composites : Part B Extruded short wool fibre composites : Mechanical and fire retardant properties," *Compos. Part B*, vol. 67, pp. 472–480, 2014.

[92] L. Yan, B. Kasal, and L. Huang, "A review of recent research on the use of cellulosic fibres, their fibre fabric reinforced cementitious, geo-polymer and polymer composites in civil engineering," *Compos. Part B Eng.*, vol. 92, pp. 94–132, 2016.

[93] Y. Deng, Y. Guo, P. Wu, and G. Ingarao, "Optimal design of flax fiber reinforced polymer composite as a lightweight component for automobiles from a life cycle assessment perspective," *J. Ind. Ecol.*, vol. 23, no. 4, pp. 986–997, 2019.

[94] E. Gourlay, P. Glé, S. Marceau, C. Foy, and S. Moscardelli, “Effect of water content on the acoustical and thermal properties of hemp concretes,” *Constr. Build. Mater.*, vol. 139, pp. 513–523, 2017.

[95] T. Vinceslas, T. Colinart, E. Hamard, A. Hellouin de Ménibus, T. Lecompte, and H. Lenormand, “Light earth performances for thermal insulation: application to Earth-Hemp,” *2nd Int. Conf. Bio-based Build. Mater. 1st Conf. Ecol. Valoris. Granul. FIbrous Mater.*, no. August, pp. 1–7, 2017.

[96] H. C. Chen, T. Y. Chen, and C. H. Hsu, “Effects of wood particle size and mixing ratios of HDPE on the properties of the composites,” *Holz als Roh - und Werkst.*, vol. 64, no. 3, pp. 172–177, 2006.

[97] D. Ndiaye, E. Fanton, S. Morlat-Therias, L. Vidal, A. Tidjani, and J.-L. Gardette, “Durability of wood polymer composites: Part 1. Influence of wood on the photochemical properties,” *Compos. Sci. Technol.*, vol. 68, no. 13, pp. 2779–2784, 2008.

[98] S. and al Migneault, “Effect of fiber length on processing and properties of extruded wood-fiber/HDPE composites,” *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 110, no. 2, pp. 1085–1092, 2008.

[99] T. Gurunathan, S. Mohanty, and S. K. Nayak, “A review of the recent developments in biocomposites based on natural fibres and their application perspectives,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 77, no. June 2015, pp. 1–25, 2015.

[100] A. K. Bledzki, S. Reihmane, and J. Gassan, “Thermoplastics reinforced with wood fillers: a literature review,” *Polym.-Plast. Technol. Eng.*, vol. 37, no. 4, pp. 451–458, 1998.

[101] A. Bourmaud and S. Pimbert, “Investigations on mechanical properties of poly(propylene) and poly(lactic acid) reinforced by miscanthus fibers,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, no. 9, pp. 1444–1454, 2008.

[102] S. Modi, K. Cornish, K. Koelling, and Y. Vodovotz, “Thermal and Morphological Analysis of Novel Composites Made with Fibers from Invasive Wetland Plants and Poly-(3-Hydroxybutyrate-co-3-Hydroxyvalerate),” *Trans. ASABE*, vol. 59, no. 5, pp. 1451–1458, 2016.

[103] D. Kraiem, S. Pimbert, A. Ayadi, and C. Bradai, “Effect of low content reed (Phragmite australis) fibers on the mechanical properties of recycled HDPE composites,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 44, no. 1, pp. 368–374, 2013.

[104] M. Ragoubi *et al.*, “Composites : Part A Effect of corona discharge treatment on mechanical and thermal properties of composites based on miscanthus fibres and polylactic acid or polypropylene matrix,” *Compos. PART A*, vol. 43, no. 4, pp. 675–685, 2012.

[105] J. Girones, L. Vo, S. Arnoult, M. Brancourt-Hulmel, and P. Navard, “Miscanthus stem fragment – Reinforced polypropylene composites: Development of an optimized preparation procedure at small scale and its validation for differentiating genotypes,” *Polym. Test.*, vol. 55, pp. 166–172, 2016.

[106] Y. U. Wang-wang, L. I. Cai-hong, L. I. Juan, and Z. Jiang-peng, “Effects of MAPE Modified on Physico-mechanical Properties of Silvergrass Reinforced High Density Polyethylene Composites,” *Appl. Mech. Mater.*, vol. 423, pp. 53–57, 2013.

[107] K. Kirwan, R. M. Johnson, D. K. Jacobs, G. F. Smith, L. Shepherd, and N. Tucker, “Enhancing properties of dissolution compounded Miscanthus giganteus reinforced polymer composite systems Part 1 . Improving flexural rigidity,” *Ind. Crop. Prod.*, vol. 26, pp. 14–27, 2007.

[108] B. Tisserat, L. Reifschneider, D. Grewell, and G. Srinivasan, “Effect of particle size, coupling agent

and DDGS additions on Paulownia wood polypropylene composites," *J. Reinf. Plast. Compos.*, vol. 33, no. 14, pp. 1279–1293, 2014.

[109] Q. Yuan, D. Wu, J. Gotama, and S. Bateman, "Wood fiber reinforced polyethylene and polypropylene composites with high modulus and impact strength," *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 21, no. 3, pp. 195–208, 2008.

[110] N. M. Stark and R. E. Rowlands, "Effects of wood fiber characteristics on mechanical properties of wood/polypropylene composites," *Wood fiber Sci.*, vol. 35, no. 2, pp. 167–174, 2007.

[111] D. Basalp, F. Tihminlioglu, S. C. Sofuoglu, F. Inal, and A. Sofuoglu, "Utilization of Municipal Plastic and Wood Waste in Industrial Manufacturing of Wood Plastic Composites," *Waste and Biomass Valorization*, 2020.

[112] D. Xue, W. Lei, Y. Deng, L. Jing, and Q. Liu, "Effect of interface modification on mechanical and thermal properties of high-density polyethylene / silvergrass composites," *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, pp. 128–141, 2015.

[113] J. Girones *et al.*, *Natural filler-reinforced composites : Comparison of the reinforcing potential among technical fibers , stem fragments and industrial by-products*. Romanian Academy Publishing House, 2017.

[114] Z. Liang, P. Pan, B. Zhu, T. Dong, and Y. Inoue, "Mechanical and Thermal Properties of Poly(butylene succinate)/Plant Fiber Biodegradable Composite," *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 115, pp. 3559–3567, 2010.

[115] T. Czvikovszky, H. Hargitai, I. Rácz, and G. Csukat, "Reactive compatibilization in polymer alloys, recyclates and composites," *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 151, no. 1–4, pp. 190–195, 1999.

[116] L. Gustavo Barbosa, M. Piaia, and G. Henrique Ceni, "Analysis of Impact and Tensile Properties of Recycled Polypropylene," *Int. J. Mater. Eng.*, vol. 7, no. 6, pp. 117–120, 2017.

[117] G. Keledi, A. Sudár, C. Burgstaller, K. Renner, J. Móczó, and B. Pukánszky, "Tensile and impact properties of three-component PP / wood / elastomer composites," *eXPRESS Polym. Lett.*, vol. 6, no. 3, pp. 224–236, 2012.

[118] S. N. Kartal, S. Aysal, E. Terzi, N. Yilgör, T. Yoshimura, and K. Tsunoda, "Wood and bamboo-PP composites: Fungal and termite resistance, Water absorption, and FT-IR analyses," *BioResources*, vol. 8, no. 1, pp. 1222–1244, 2013.

[119] J. Kajaks, K. Kalnins, S. Uzulis, and J. Matvejs, "Physical and mechanical properties of composites based on polypropylene and timber industry waste," *Cent. Eur. J. Eng.*, vol. 4, no. 4, pp. 385–390, 2014.

[120] K. B. Adhikary, S. Pang, and M. P. Staiger, "Long-term moisture absorption and thickness swelling behaviour of recycled thermoplastics reinforced with Pinus radiata sawdust," *Chem. Eng. J.*, vol. 142, no. 2, pp. 190–198, 2008.

[121] L. M. Matuana, J. J. Balatinecz, R. N. S. Sodhi, and C. B. Park, "Surface characterization of esterified cellulosic fibers by XPS and FTIR spectroscopy," *Wood Sci. Technol.*, vol. 35, no. 3, pp. 191–201, 2001.

[122] "Occupations, habitats, logements au Néolithique," *Inrap*, 2016. [Online]. Available: https://www.inrap.fr/occupations-habitats-logements-au-neolithique-10218.

[123] C. Lefrançois, "La maison en construction: son histoire au travers des matériaux," *Build Green*, 2017. [Online]. Available: https://www.build-green.fr/la-maison-en-construction-son-histoire-

au-travers-des-materiaux/.

[124] J. Le Tallec, “L’émergence des matériaux biosourcés dans le bâtiment,” Mémoire de Master, ENSA Nantes, 2017.

[125] Ministère de la Transition Ecologique et Solidaire, “Stratégie Nationale Bas-Carbone,” 2015.

[126] Global Alliance for Buildings and Construction, “2018 Global Status Report -Towards a zero-emission, efficient and resilient buildings and construction sector,” 2018.

[127] T. Lecompte, “Matériaux bio-sourcés pour le bâtiment et stockage temporaire de carbone Bio-based building materials and temporary carbon storage,” pp. 1–41, 2019.

[128] L. F. Liu *et al.*, “The development history and prospects of biomass-based insulation materials for buildings,” *Renew. Sustain. Energy Rev.*, vol. 69, no. November 2016, pp. 912–932, 2017.

[129] L. Ducoulombier and Z. Lafhaj, “Case Studies in Thermal Engineering Comparative study of hygrothermal properties of fi ve thermal insulation materials,” *Case Stud. Therm. Eng.*, vol. 10, no. October, pp. 628–640, 2017.

[130] L. Y. Mwaikambo and M. P. Ansell, “The determination of porosity and cellulose content of plant fibers by density methods,” *J. Mater. Sci. Lett.*, vol. 20, no. 23, pp. 2095–2096, 2001.

[131] P. Glé, E. Gourdon, L. Arnaud, K.-V. Horoshenkov, and 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, no. 6, pp. 4698–4709, 2013.

[132] S. R. Karade, “Cement-bonded composites from lignocellulosic wastes,” *Constr. Build. Mater.*, vol. 24, no. 8, pp. 1323–1330, 2010.

[133] Y. Chen, Q. L. Yu, and H. J. H. Brouwers, “Acoustic performance and microstructural analysis of bio-based lightweight concrete containing miscanthus,” *Constr. Build. Mater.*, vol. 157, pp. 839–851, 2017.

[134] S. Marceau *et al.*, “Influence of accelerated aging on the properties of hemp concretes,” *Constr. Build. Mater.*, vol. 139, pp. 524–530, 2017.

[135] L. K. Aggarwal and J. Singh, “Effect of plant fibre extractives on properties of cement,” *Cem. Concr. Compos.*, vol. 12, no. 2, pp. 103–108, 1990.

[136] G. Vaickelionis and R. Vaickelioniene, “Cement hydration in the presence of wood extractives and pozzolan mineral additives,” *Ceram. - Silikaty*, vol. 50, no. 2, pp. 115–122, 2006.

[137] C. Le Magniont, “Contribution à la formulation et à la caractérisation d’un écomatériau de construction à base d’agroressources,” Thèse de Doctorat, Université de Toulouse, 2010.

[138] P. Tronet *et al.*, “Béton de chanvre : Effet du dosage en granulat sur les propriétés thermique et mécanique,” *17èmes Journées Natl. sur les Compos.*, 2011.

[139] V. Cérézo, “Propriétés mécaniques, thermiques et acoustiques d’un matériau à base de particules végétales : approche expérimentale et modélisation théorique,” Thèse de Doctorat, Ecole Nationale des Tavaux Publics de l’Etat, 2005.

[140] L. Debout, “L’utilisation du roseau dans une logique d’éco-rénovation et d’éco-construction,” 2020.

[141] “Projet Interreg CobBauge.” [Online]. Available: http://www.cobbauge.eu/.

[142] F. Collet and S. Pretot, “Thermal conductivity of hemp concretes: Variation with formulation,

density and water content," *Constr. Build. Mater.*, vol. 65, pp. 612–619, 2014.

[143] AFNOR, "NF EN 826: Produits isolants thermiques destinés aux applications du bâtiment - Détermination du comportement en compression," 2013.

[144] Règles professionnelles d'exécution d'ouvrages en béton de chanvre, "Enduits en mortier de chanvre," 2010.

[145] Règles professionnelles d'exécution d'ouvrages en béton de chanvre, "Mur en béton de chanvre," 2010.

[146] Règles professionnelles d'exécution d'ouvrages en béton de chanvre, "Isolation de toiture en béton de chanvre," 2010.

[147] Technichanvre, "Mise en oeuvre du mortier de chanvre & chaux en banchage d'ossature," 2013.

[148] P. Carré and R. Le Gall, "Définition et détermination des conductivités thermiques dans les structures multicouches C.V.R," *Rev. générale Therm.*, vol. 340, pp. 211–215, 1990.

[149] J. Williams, M. Lawrence, and P. Walker, "The influence of constituents on the properties of the bio-aggregate composite hemp-lime," *Constr. Build. Mater.*, vol. 159, pp. 9–17, 2018.

[150] T. Lecompte and A. Le Duigou, "Mechanics of straw bales for building applications," *J. Build. Eng.*, vol. 9, pp. 84–90, 2017.

[151] Y. Diquelou, "Interactions entre les granulats de chanvre et les liants à base de ciment et de chaux : Mécanismes de la prise et propriétés des interfaces formées dans les agrobétons," Thèse de Doctorat, Université de Champagne-Ardenne, 2013.

[152] T. Colinart, T. Vinceslas, H. Lenormand, A. H. De Menibus, E. Hamard, and T. Lecompte, "Hygrothermal properties of light-earth building materials," *J. Build. Eng.*, vol. 29, p. 101134, 2020.

[153] G. Delannoy, "Durabilité d'isolants à base de granulats végétaux," Thèse de Doctorat, Université Paris-Est, 2019.

[154] X. Yan, A. Cayla, E. Devaux, and F. Salaün, "Microstructure evolution of immiscible PP-PVA blends tuned by polymer ratio and silica nanoparticles," *Polymers (Basel).*, vol. 10, p. 17, 2018.

[155] O. Valerio, M. Misra, and A. K. Mohanty, "Statistical design of sustainable thermoplastic blends of poly(glycerol succinate-co-maleate) (PGSMA), poly(lactic acid) (PLA) and poly(butylene succinate) (PBS)," *Polym. Test.*, vol. 65, no. December, pp. 420–428, 2018.

[156] W. M. Sigmund and S.-H. Hsu, "Cassie--Baxter Model," in *Encyclopedia of Membranes*, E. Drioli and L. Giorno, Eds. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2016, pp. 310–311.

[157] G. Delannoy *et al.*, "Aging of hemp shiv used for concrete," *Mater. Des.*, vol. 160, pp. 752–762, 2018.

[158] C. S.-C. Guezennec, J., Y.-M. Corre, "Polyhydroxyalcanoates (PHA) : applications dans le domaine de la santé," in *Bioprocédés dans les domaines de la santé, de l'agroalimentaire et de la chimie, Techniques de l'Ingénieur*, 2014, pp. 25–27.

[159] A. Mazière, P. Prinsen, A. Garcia, R. Luque, and C. Len, "A review of progress in (bio)catalytic routes from/to renewable succinic acid," *Biofuels, Bioprod. Biorefining*, vol. 11, pp. 908–931, 2017.

[160] S. Courgey and J.-P. Oliva, *L'isolation thermique écologique*, Terre Viva. Technique, 2010.

[161] B. Mazhoud, “Elaboration et caractérisation mécanique, hygrique et thermique de composites bio-sourcés,” Thèse de Doctorat, INSA Rennes, 2017.

[162] T. T. Nguyen, “Contribution à l ’ étude de la formulation et du procédé de fabrication d’éléments de construction en béton de chanvre,” Thèse de Doctorat, Université Bretagne Sud, 2014.

[163] R. Walker, S. Pavia, and R. Mitchell, “Mechanical properties and durability of hemp-lime concretes,” *Constr. Build. Mater.*, vol. 61, pp. 340–348, 2014.

# ANNEXES

*Annexe 1 Fiche technique de la matrice polypropylène*

TOTAL

Refining & Chemicals
Polymers

## Polypropylene PPC 10642

Technical data sheet
Polypropylene – Heterophasic Copolymer
Produced in Europe

### Description

Polypropylene PPC 10642 is a nucleated antistatic heterophasic copolymer with high Melt Flow Index of 44 g/10 min.
Polypropylene PPC 10642 is characterized by high fluidity with good mechanical properties. It has been formulated for excellent antistatic properties.
Polypropylene PPC 10642 has been developed for high speed injection moulding of pails and food packaging.

We hereby confirm that we do not use peroxide in the manufacturing of the above-mentioned Product.

### Characteristics

| | Method | Unit | Typical Value |
|---|---|---|---|
| **Rheological properties** | | | |
| Melt Flow Index 230°C/2.16 kg | ISO 1133 | g/10 min | 44 |
| **Mechanical properties** | | | |
| Tensile Strength at Yield | ISO 527-2 | MPa | 27 |
| Elongation at Yield | ISO 527-2 | % | 4 |
| Tensile modulus | ISO 527-2 | MPa | 1600 |
| Flexural modulus | ISO 178 | MPa | 1500 |
| Izod Impact Strength (notched) | ISO 180 | kJ/m² | |
| at 23°C | | | 7.5 |
| at -20°C | | | 4 |
| Charpy Impact Strength (notched) | ISO 179 | kJ/m² | |
| at 23°C | | | 7 |
| at -20°C | | | 4.5 |
| Hardness Rockwell - R-scale | ISO 2039-2 | | 100 |
| **Thermal properties** | | | |
| Melting Point | ISO 3146 | °C | 165 |
| Vicat Softening Point | ISO 306 | °C | |
| 50N-50°C per hour | | | 80 |
| 10N-50°C per hour | | | 148 |
| Heat Deflection Temperature | ISO 752 | °C | |
| 1.80 MPa - 120°C per hour | | | 57 |
| 0.45 MPa - 120°C per hour | | | 114 |
| **Other physical properties** | | | |
| Density | ISO 1183 | g/cm³ | 0.905 |
| Bulk Density | ISO 1183 | g/cm³ | 0.525 |

### Handling and storage

Please refer to the safety data sheet (SDS) for handling and storage information. It is advisable to convert the product within one year after delivery provided storage conditions are used as given in the SDS of our product. SDS may be obtained from the website: http://www.totalrefiningchemicals.com

An Injection Moulding troubleshooting guide is available upon request.

Information contained in this publication is true and accurate at the time of publication and to the best of our knowledge. The nominal values stated herein are obtained using laboratory test specimens. Before using one of the products mentioned herein, customers and other users should take all care in determining the suitability of such product for the intended use. Unless specifically indicated, the products mentioned herein are not suitable for applications in the pharmaceutical or medical sector. The Companies within Total Petrochemicals do not accept any liability whatsoever arising from the use of this information or the use, application or processing of any product described herein. No information contained in this publication can be considered as a suggestion to infringe patents. The Companies disclaim any liability that may be claimed for infringement or alleged infringement of patents.

TOTAL RESEARCH & TECHNOLOGY FELUY
Zone Industrielle C
B-7181 Feluy
Belgium

Rev : August 13



website : www.totalrefiningchemicals.com

Polypropylene

# BioPBS™ FZ71PM / FZ71PB Technical Data Sheet

## Injection molding for general purpose

### Product Description

BioPBS™ is bio-based polybutylene succinate (PBS) produced from polymerization of bio-based succinic acid and 1,4-butanediol. Alike LDPE, BioPBS™ is soft and flexible semi-crystalline polyester with excellent properties suitable for injection molding articles for general purpose.

### Features:

- Good processability and flow ability, easy ejection of parts from the mold
- Soft and flexible, good impact property
- Good dimensional stability
- Short cycle time
- Superior heat resistance compared to other bioplastics
- FZ71PM is food contact grade, approved by FDA (FCN No.1574) and JHOSPA, comply to EU10/2011
- OK COMPOST certified by Vincotte in European Union
- Renewable content certified by DIN CERTCO and JBPA

| Properties | Test Method | Unit | FZ71PM/FZ71PB |
|---|---|---|---|
| Density | ISO 1183 | g/cm³ | 1.26 |
| MFR (190°C, 2.16 kg) | ISO 1133 | g/10 min | 22 |
| Melting Point | ISO 3146 | °C | 115 |
| Yield Stress | ISO 527-2 | MPa | 40 |
| Stress at Break | ISO 527-2 | MPa | 30 |
| Strain at Break | ISO 527-2 | % | 170 |
| Flexural Modulus | ISO 178 | MPa | 630 |
| Flexural Strength | ISO 178 | MPa | 40 |
| Izod Impact Strength (23°C) | ISO 180 | kJ/m² | 7 |
| Heat Deflection Temperature (0.45 MPa) | ISO 75-1 | °C | 95 |
| Rockwell Hardness | ISO 2039-2 | R Scale | 107 |

### Process Information

BioPBS™ is dried and packed in aluminum-lined packaging before delivering to customers. Pre-dry of the unopened BioPBS™ is not necessary. It is recommended to keep packages sealed until ready to process and using up the whole 25-kg bag. Unused material should be tightly sealed, kept away from open air, and pre-dried (Temperature 80°C for over 5 hours) to moisture content of less than 1,000 ppm (preferable less than 700 ppm) prior to using next time.

| Recommended Processing Parameters | |
|---|---|
| Nozzle | 190°C |
| Front Cylinder | 200°C |
| Middle Cylinder | 190°C |
| Rear Cylinder | 180°C |
| Hopper | 60°C |
| Mold | 25°C |
| Mold shrinkage | 0.014 mm/mm ± 0.001 |

Information in this document is based on our current knowledge and experience. It does not relieve customers of the responsibility to carry out their own tests and experiments nor do they imply any legally binding assurance. Customers are responsible to determine their freedom to operate to ensure that their products do not infringe any intellectual properties. PTT MCC Biochem Company Limited assumes no obligation or liability for the information in this document

# OREVAC® CA100/CA100N

## Polypropylene based coupling agent

### DESCRIPTION

**OREVAC® CA100/CA100N** is a chemically functionalized polypropylene with a high content of maleic anhydride. Grafted maleic anhydride induces polarity to polypropylene and so outstanding adhesion properties on glass and natural fibers, and mineral fillers.

### TYPICAL PROPERTIES

| Characteristics | Value | Unit | Test Method |
|---|---|---|---|
| Melt index (190°C / 0.325 kg) | 10 | g/10min | ISO 1133 / ASTM D1238 |
| Melting point | 167 | °C | ISO 11357-3 |
| Density | 0.905 | g/cm³ | ISO 1183 / ASTM D1505 |

Pellet size, color and shape may vary depending on the production site without affecting typical properties.

### APPLICATIONS

**OREVAC® CA100/CA100N** has been designed as coupling agent to develop a reliable bonding strength between PP or PA resins and glass fiber, mineral filler or natural fibers.

For more detailed information and recommendations regarding your specific application, please contact your local ARKEMA technical representative.

OREVAC™ BY ARKEMA

# OREVAC® CA100/CA100N

## PROCESSING

**OREVAC® CA100/CA100N** can be processed over a wide range of conditions. Compounding can be achieved on conventional equipments such as mono-screw, twin-screw or co-kneader with usual temperatures.

## STORAGE, HANDLING AND SAFETY

**OREVAC® CA100/CA100N** should be stored in dry conditions protected from UV-light. Improper storage conditions may cause degradation and have consequences on physical properties of the product.

Safety data sheet as well as information on handling and storage of **OREVAC® CA100/CA100N** is available upon request to your ARKEMA representative or at orevac.com

## SHELF LIFE

Two years from the date of delivery, in unopened packaging. For any use above this limit, please refer to our technical services.

March 2018

The statements, technical information and recommendations contained herein are believed to be accurate as of the date hereof. Since the conditions and methods of use of the product and of the information referred to herein are beyond our control, ARKEMA expressly disclaims any and all liability as to any results obtained or arising from any use of the product or reliance on such information; NO WARRANTY OF FITNESS FOR ANY PARTICULAR PURPOSE, WARRANTY OF MERCHANTABILITY OR ANY OTHER WARRANTY, EXPRESSED OR IMPLIED, IS MADE CONCERNING THE GOODS DESCRIBED OR THE INFORMATION PROVIDED HEREIN.
The information provided herein relates only to the specific product designated and may not be applicable when such product is used in combination with other materials or in any process. The user should thoroughly test any application before commercialization. Nothing contained herein constitutes a license to practice under any patent and it should not be construed as an inducement to infringe any patent and the user is advised to take appropriate steps to be sure that any proposed use of the product will not result in patent infringement. See SDS for Health & Safety Considerations. Arkema has implemented a Medical Policy regarding the use of Arkema products in Medical Devices applications that are in contact with the body or circulating bodily fluids:
http://www.arkema.com/en/social-responsibility/responsible-product-management/medical-devicepolicy/index.html
Arkema has designated Medical grades to be used for such Medical Device applications. Products that have not been designated as Medical grades are not authorized by Arkema for use in Medical Device applications that are in contact with the body or circulating bodily fluids. In addition, Arkema strictly prohibits the use of any Arkema products in Medical Device applications that are implanted in the body or in contact with bodily fluids or tissues for greater than 30 days. The Arkema trademarks and the Arkema name shall not be used in conjunction with customers' medical devices, including without limitation, permanent or temporary implantable devices, and customers shall not represent to anyone else, that Arkema allows, endorses or permits the use of Arkema products in such medical devices.
It is the sole responsibility of the manufacturer of the medical device to determine the suitability (including biocompatibility) of all raw materials, products and components, including any medical grade Arkema products, in order to ensure that the final end-use product is safe for its end use; performs or functions as intended; and complies with all applicable legal and regulatory requirements (FDA or other national drug agencies) It is the sole responsibility of the manufacturer of the medical device to conduct all necessary tests and inspections and to evaluate the medical device under actual end-use requirements and to adequately advise and warn purchasers, users, and/or learned intermediaries (such as physicians) of pertinent risks and fulfill any post market surveillance obligations. Any decision regarding the appropriateness of a particular Arkema material in a particular medical device should be based on the judgment of the manufacturer, seller, the competent authority, and the treating physician.
Any claim relating to defects or non-compliance of the products shall be valid only if it is sent to Arkema in writing within fifteen (15) calendar days following delivery of the Product.

ARKEMA Société anonyme au capital de 614 937 940 euros - 445 074 686 RCS Nanterre

**Arkema Functional Polyolefins**
420, rue d'Estienne d'Orves
92705 Colombes Cedex - France
arkema.com – orevac.com

ARKEMA
INNOVATIVE CHEMISTRY

*Annexe 4 Fiche technique du Bâtichanvre*

# BATICHANVRE®

Chaux formulée

**LIANT à la chaux naturelle de SAINT-ASTIER spécialement formulé pour la réalisation de mortiers et bétons en mélange avec du chanvre. Le couple BATICHANVRE®/ISOCANNA® à été validé par l'association "Construire en Chanvre"** (avis favorable du LMDC N° ET/09.172 e) **après des essais réalisés dans un laboratoire indépendant agréé.**

## POUR UN HABITAT SAIN ET ÉCOLOGIQUE

- **CONDITIONNEMENT :**
  - *Sac de 25 kg*
  - *Palette de 1T250 soit 50 sacs*
- **PRÉCAUTIONS CLIMATIQUES :**
  - *Utiliser entre 5° et 30°C*
- **COMPOSITION EN POIDS :**
  - *Chaux naturelle de Saint-Astier : 70%*
  - *Liants hydrauliques et pouzzolaniques : 30%*
  - *Adjuvants spécifiques*

*Exemple banché Chaux/Chanvre*

- **CONSERVATION :**
  - *1 an à l'abri de l'humidité dans l'emballage d'origine*
- **ÉQUIVALENCE :**
  - *1 sac de 25 kg correspond à 35 à 40 litres de LIANT environ*
- **PRÉCAUTIONS PARTICULIÈRES :**

Voir page 11

CHANVORTA : ISOCANNA®

## Dosage pour le mélange en bétonnière CHAPES DE SOL ou MORTIER EN COLOMBAGES

*Voir pages 4 à 7 du document Chanvre et Chaux pour la mise en œuvre.*

BATICHANVRE® + 100 litres de chanvre + 3,0 à 3,5 (30 à 35 litres d'eau)

OU 10 litres de BATICHANVRE® + 25 litres de chanvre + 0,75 à 0,9 (7,5 à 9 litres d'eau)

- *Densité du béton*
- *Conductivité thermique*

MVA = 380 à 420 kg/m³

λ = 0,07 à 0,09 W.m⁻¹K⁻¹ en fonction du tassement

## Dosage pour la réalisation de MORTIER LÉGER EN SOUS-TOITURE (15 à 25 cm d'épaisseur)

*Voir pages 8 et 9 du document Chanvre et Chaux pour la mise en œuvre.*

BATICHANVRE® + 200 litres de chanvre + 4,0 à 5,0 (40 à 50 litres d'eau)

OU 10 litres de BATICHANVRE® + 50 litres de chanvre + 1,0 à 1,25 (10 à 12,5 litres d'eau)

- *Densité du mortier*
- *Conductivité thermique*

MVA = 150 kg/m³

λ = 0,06 W.m⁻¹K⁻¹

## Dosage pour la réalisation D'ENDUITS ISOLANTS (3 à 8 cm d'épaisseur)

*Voir pages 10 et 11 du document Chanvre et Chaux pour la mise en œuvre.*

2 sacs de BATICHANVRE® + 100 litres de chanvre + 5,5 à 6,5 (55 à 65 litres d'eau)

OU 20 litres de BATICHANVRE® + 25 litres de chanvre + 1,4 à 1,6 (14 à 16 litres d'eau)

- *Densité du mortier*
- *Conductivité thermique*

MVA = 900 kg/m³

λ = 0,2 W.m⁻¹K⁻¹

**• NOTA**

- *Le mélange BATICHANVRE® / ISOCANNA® formulation validé, peut servir à réaliser des enduits isolants Chaux/Chanvre à l'extérieur, consulter notre document spécial "Chanvre et Chaux".*
- *Utilisation en machine à projeter, nous consulter.*

DOCTORAT BRETAGNE LOIRE / SCIENCES POUR L'INGENIEUR

Université Bretagne Sud

**Titre :** Mise au point de nouveaux bio-composites verts innovants à base de roseau commun *Phragmites australis*

Applications en Plasturgie et Écoconstruction pour le bâtiment

**Mots clés :** *Phragmites australis*, bio-composites, farine de bois, farine de miscanthus, plasturgie, absorption d'eau, béton isolant, chènevotte de chanvre, propriétés mécaniques et thermiques

**Résumé :** L'utilisation de fibres végétales, tant dans le domaine de la plasturgie que dans celui du bâtiment, permet de réduire les émissions de gaz à effet de serre et par conséquent l'impact environnemental de l'Homme. L'intérêt envers les bio-composites utilisant des fibres végétales telles que le chanvre, le bois, le lin mais également le roseau miscanthus ne cesse d'augmenter. Il n'existe, à l'heure actuelle, que très peu de travaux s'intéressant au roseau *Phragmites australis*. Pourtant, n'utilisant pas de surfaces cultivées, cette plante invasive est indépendante des enjeux agricoles et ne demande aucun intrant chimique. La récolte du roseau s'inscrit donc dans une démarche de gestion des zones humides tout en valorisant un matériau aux multiples propriétés. Les travaux de cette thèse sont consacrés à la caractérisation du matériau brut *Phragmites australis* et à l'étude de son éligibilité comme matériau en substitution de trois matériaux de référence, le bois, le miscanthus et la chènevotte, largement utilisés comme renforts en plasturgie et en éco-construction. Des formulations de composites utilisant deux matrices polymères (polypropylène et polybutylène succinate) à différents taux de charges végétales et d'agent compatibilisant ont été caractérisées d'un point de vue de leurs propriétés mécaniques par des essais de traction, flexion et choc Charpy. Le vieillissement à l'eau de ces composites a également été étudié et corrélé au caractère hydrophobe du roseau. Pour le volet construction, des formulations à base de roseaux de différentes origines et utilisant différents liants (chaux aérienne, plâtre et terre) ont été testées en compression et avec des mesures de conductivité thermique afin d'évaluer le comportement du roseau en tant que matériau d'usage pour le bâtiment.

**Title :** Development of new innovative green biocomposites based on common reed *Phragmites australis*

Applications in Plastics processing and Eco-construction for the building industry

**Keywords :** *Phragmites australis*, biocomposites, wood flour, miscanthus flour, plastics processing, water absorption, insulating concrete, hemp shiv, mechanical and thermal properties

**Abstract :** The use of plant fibres, both in the field of plastics processing and in the building industry, makes it possible to reduce greenhouse gas emissions and therefore the environmental impact of mankind. Interest in biocomposites using plant fibres such as hemp, wood, flax and also miscanthus reed is increasing. Nowadays, there is very little work on the reed *Phragmites australis*. However, as it does not use cultivated areas, this invasive plant is independent of agricultural issues and does not require any chemical inputs. The reed harvest is therefore part of a wetlands management approach while enhancing the value of a material with multiple properties. This work is devoted to the characterisation of the raw material *Phragmites australis* and to the study of its eligibility as a substitute material of three reference materials, wood, miscanthus and hemp shiv, widely used as reinforcements in plastics processing and eco-construction. Composite formulations using two polymer matrices (polypropylene and polybutylene succinate) with different rates of plant fillers and coupling agent were characterised from the point of view of their mechanical properties by Charpy tensile, flexural and impact tests. The water ageing of these composites was also studied and correlated to the hydrophobic character of the reed. For the construction application, formulations based on reeds of different origins and using different binders (lime, plaster and earth) were tested in compression and with thermal conductivity measurements in order to evaluate the behaviour of the reed as a material for building use.