
Effet du traitement sur les propriétés thermomécaniques et hydriques de la paille céréalière utilisée pour un matériau d'isolation thermique

Naima Belayachi¹, Dashnor Hoxha¹, Brahim Ismail¹

¹ Université d'Orléans, INSA-CVL, PRISME, EA 4229, 8 Rue Léonard de Vinci, 45072 Orléans cedex 2, France
naima.belayachi@univ-orleans.fr ; dashnor.hoxha@univ-orleans.fr ; ismailbrahimo@gmail.com

RÉSUMÉ. L'objectif de ce travail est d'étudier l'influence de deux traitements sur le comportement de la paille céréalière en vue de son utilisation dans l'élaboration d'un bio-composite destiné à l'isolation thermique des bâtiments. Le papier présente les essais réalisés sur deux variétés de paille blé et d'orge, comprenant les essais d'absorption d'eau après différents temps d'immersion, les essais thermomécaniques, et les analyses ATG-DSC pour l'étude de la dégradation ou décomposition thermique. L'exploitation des résultats de dilatation de la paille soumise à une sollicitation thermomécanique permet d'identifier le module d'Young pour la paille de blé et d'orge. Le protocole utilisé pour l'identification du module d'Young a été développé en utilisant un DMA pour une température constante de 35°C et une force statique. En prenant en compte le module d'Young de la paille, la comparaison de l'évolution du coefficient d'absorption d'eau pour différents temps de traitement à celui des fibres sans traitement, a permis également de choisir un seul temps (optimal) d'immersion ou de traitement des fibres avant le mélange liant-paille pour l'élaboration du bio-composite béton-paille. La comparaison des résultats pour les fibres traitées et non traitées a mis en évidence une influence significative du traitement à l'huile de lin.

ABSTRACT. The objective of this study is to investigate the influence of two treatment two fibre treatments on the behaviour of cereal straw for the perspective for his use in the development of a bio-composite for thermal insulation of buildings. The paper presents the tests after various immersion times, the thermomechanical tests, and the TG-DSC analysis for thermal degradation. The exploitation of straw expansion results submitted to thermomechanical sollicitation allows to identify the Young's Modulus for wheat and barley straw used in this work. The protocol used for identifying the Young modulus was developed using a DMA apparatus using a constant temperature of 35°C and a static force. Considering the Young's modulus results, the comparison of water absorption coefficient of fibres for the different treatment times with the untreated also allows to choose only one optimal time immersion of the fibres before the straw-binder mixture. The comparison of the results for treated and untreated fibres shows a significant influence of linseed oil treatment.

MOTS-CLÉS : Paille, isolation thermique, traitement des fibres, thermomécanique, huile de lin, ATG-DSC.

KEY WORDS: Straw, thermal insulation, fibre treatment, thermomechanical, linseed oil, TGA-DSC.

1. Introduction

L'utilisation des fibres végétales renouvelables et biodégradables dans l'élaboration des matériaux composites est une solution très attractive pour à la fois diminuer le poids des structures, et leur coût tout en respectant l'environnement. Leur utilisation, notamment dans le domaine de bâtiment est une des actions privilégiée dans les années à venir pour augmenter l'efficacité énergétique des bâtiments, et diminuer les (GES) gaz à effet de serre afin de protéger pour le même coup l'environnement.

L'enjeu est d'améliorer la performance thermique des bâtiments existant et de construire des nouveaux bien plus performants en utilisant des matériaux agro-sourcés avec un faible cout énergétique et économique depuis sa fabrication et jusqu'à sa fin de vie. Ces matériaux sont renouvelables et économiques par excellence et avec des propriétés exceptionnelles par fois selon les différentes exigences d'exploitation des bâtiments, néanmoins, il y a des facteurs qui limitent jusqu'à maintenant leur utilisation plus large dans le domaine industriel. Le premier facteur majeur, est leur capacité d'absorption d'eau, le second est leur faible résistance à la traction comparée aux fibres synthétique, et leur mauvaise adhérence à l'interface matrice-fibre. Ces inconvénients conduisent souvent à des propriétés inadéquates à leur utilisation mettant en cause leur durabilité.

Il est donc important d'améliorer les propriétés des fibres avant de les mélanger à d'autres matériaux pour élaborer des bio-composites avec des meilleures performances. En effet un nombre important d'investigation a été proposé pour améliorer les propriétés des fibres au vue d'une meilleure résistance à la traction, ou une meilleure durabilité en évitant la fissuration [HER 05], [ISH 07], [GOM 07] en utilisant différents traitements.

Dans ce contexte, l'objectif de ce travail est d'améliorer les propriétés de la paille pour une meilleure compatibilité avec le liant pour la fabrication d'un matériau d'isolation thermique, en diminuant sa capacité d'absorption d'eau. Cette diminution augmentera en plus la durabilité du matériau par la diminution de l'apparition des micro-organismes qui se développent dans des conditions d'humidités élevées dans les matériaux cellulosiques. Le présent travail s'inscrit dans la continuité d'un programme de recherche financé par la région centre sur le développement des matériaux d'isolation thermique à base de paille céréalière, ou il a été observé plus particulièrement, une diminution des propriétés mécaniques des composites à cause de l'aptitude de la paille à absorber l'eau [BEL 13] [BOU 14].

Parmi plusieurs solutions proposées dans la littérature [SEL 13] deux types de traitements ont été retenus pour leur simplicité et leur cout afin de respecter l'éco-conception du matériau, à l'eau et à l'huile de lin. Notre objectif est d'utiliser des additifs qui améliorent les propriétés mais qui soient eux-mêmes issues de ressources renouvelables. Ces deux traitement peuvent influencer de manière importante le comportement des fibres seules et les composites. Le travail expérimental consiste à étudier l'influence de ces traitements sur les propriétés thermo-mécaniques et hydriques des fibres seules ainsi que leur dégradation thermique. Deux types de paille ont été étudiés, la paille de blé et d'orge qui sont mélangés avec la chaux et le gypse pour l'élaboration de l'isolant béton paille. Des essais thermo-mécaniques à l'aide d'un système TMA sur les brins de paille ont été réalisés pour étudier le comportement mécanique de la paille et calculer son module d'Young afin d'examiner l'effet du traitement sur leur propriétés mécaniques. Le temps d'immersion optimal pour le traitement a été déterminé en utilisant les résultats du module d'Young et le coefficient d'absorption d'eau des fibres. La dégradation thermique en utilisant l'analyse ATG-DSC a été utilisée sur les fibres préalablement traitées et brutes afin d'examiner l'effet du traitement sur la composition et la microstructure de la paille d'une part et de comparer les résultats par rapport à la littérature qui reste différente pour les températures de dégradation des composés des fibres d'autre part. En effet, de nombreuses investigations ont porté sur l'étude de la dégradation des compositions chimiques des fibres naturelles. Loan [LOA 06] a montré par exemple que les hémicelluloses se décomposent vers 286°C et la cellulose se dégrade autour de 352°C. Martins et al [MAR 03], Yang et al [YAN 07] ont montré à leur tour que la cellulose se dégrade entre 300 et 420°C alors que les pectines et les hémicelluloses se décomposent entre 250 et 320°C. Les lignines se décomposent vers 200°C selon Joseph et al [JOS 03], et au-delà de 400°C selon Tomczak et al, Van et al [TOM 07] [VAN 04]. Yang et al par contre ont montré que la lignine se dégrade sur une large gamme de température qui va de 160°C à 900°C [YAN 07].

L'effet du traitement a été examiné par la comparaison du comportement des fibres non traitées et traitées. Les différentes comparaisons des résultats montrent que le traitement à l'huile de lin a un effet significatif sur le comportement des fibres.

2. Matériaux et méthodes de caractérisation

Le travail expérimental présenté ici représente une continuité des travaux réalisés sur le développement d'un éco-matériau d'isolation thermique par extérieur proposé pour la rénovation thermique des bâtiments [BEL 13] et [BOU 14]. En effet, à partir des résultats précédents, il en ressort que la paille a une capacité importante d'absorption d'eau qui influence de manière importante le comportement du bio-composite (chaux-paille). Il est donc intéressant de tenter d'améliorer les propriétés de la paille comme le rapporte la littérature en utilisant des traitements respectant la conception des éco-matériaux. Nous nous intéressons donc ici au comportement de la paille après deux traitements à l'huile de lin et à l'eau bouillante en utilisant des essais d'absorption d'eau, thermomécaniques et de dégradation thermique (ATG-DSC).

2.1 Matériau utilisé

Dans ce travail, deux types de pailles ont été sélectionnés, le blé et l'orge. Ce choix a été justifié par l'abondance de ces fibres dans la région Centre, de leur faible coût et de leur microstructure poreuse offrant un bon comportement thermique au matériau final [BEL 13]. Les deux pailles sont des matériaux complexes, constitués principalement de cellulose, de lignine et d'hémicellulose [PAN 06], [BEL 14] [BOU 14]. Pour les traiter, les fibres ont été immergées dans une quantité d'huile de lin, ou d'eau bouillante pendant différentes durées. Les fibres sont ensuite séchées à l'étuve pendant 48h à 60°C avant leur utilisation pour les différents essais et pour le mélange chaux-paille.

2.2 Absorption d'eau

La capacité importante d'absorption d'eau de la paille représente le premier point examiné après chaque traitement dans l'objectif de tester son efficacité. Des essais d'absorption d'eau ont été donc réalisés sur les différentes fibres (traitées ou brutes). Il s'agit d'immerger les échantillons de fibres dans un bac d'eau à plus de 20°C et de suivre l'évolution de leur masse pendant 1h. Ces mesures de masse ont été réalisées pour des instants correspondants à 1min, 2min, 5min, 10min, 15min, 20min, 30min, 45min et 60 min. Avant chaque mesure de masse l'échantillon a été placé sur un papier absorbant pour enlever l'eau entraînée. Le coefficient d'absorption d'eau a été déterminé après différents temps de traitement.

Les différentes masses obtenues à chaque relevé ont permis de tracer la courbe correspondant au taux d'absorption d'eau de chaque échantillon en fonction du temps selon la formule suivante :

$$A(t) = \frac{m(t) - m(t_0)}{m(t_0)} \quad [1]$$

Avec : A(t) [%] Le taux d'absorption d'eau
m(t) [kg] La masse de l'échantillon à l'instant t (à chaque relevé)
m(t₀) [kg] La masse de l'échantillon à l'instant initial (à la sortie de l'étuve)

2.3 Analyse thermo-mécanique (TMA)

L'analyse thermomécanique est une technique qui permet de mesurer les propriétés physiques d'un matériau et en particulier le coefficient de dilatation thermique. Dans ce travail, nous nous intéressons particulièrement à l'effet des deux traitements sur le module d'Young des fibres étudiées.



Figure 1: Analyse thermomécanique en utilisant Linseis TMA-PT1000 : essai de traction.

En effet, des essais de traction ont été effectués sur les différents échantillons de fibres (traitées ou brutes) par l'utilisation d'un appareil Linseis TMA (DMA) PT 1000 (Figure 1). Dans le but d'avoir une déformation qui est due uniquement à la traction mécanique et de calculer par la suite le module d'Young, la température a été fixée à 35 °C.

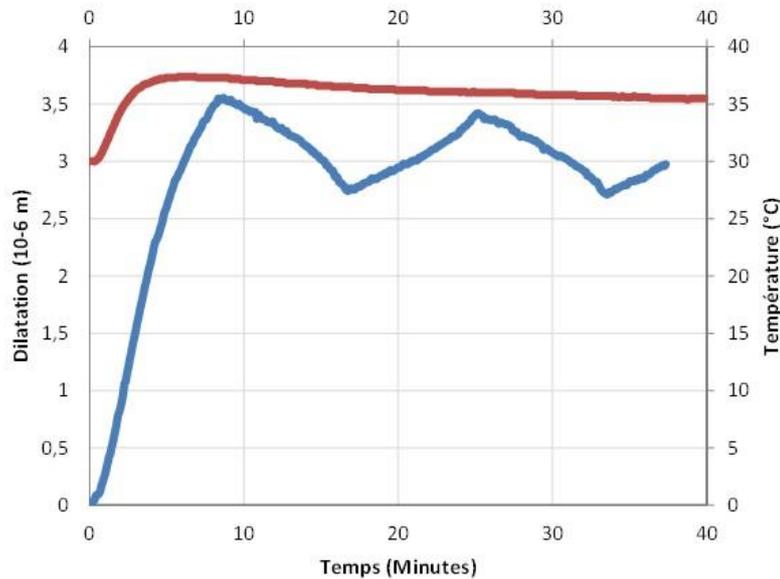


Figure 2: Exemple d'évolution de déformations (bleu) et de température (rouge) utilisé pour l'essai de traction de la paille

Les échantillons de fibres utilisés dans chaque essai ont une longueur d'environ 20 mm (Figure 1). Après la mesure de leur surface, les échantillons ont été soumis à une force de traction de 300 mN, et d'une fréquence de 0.001Hz, chaque essai a été répété trois fois pour vérifier la reproductibilité des résultats. Les valeurs de la déformation de fibre ont été calculées à partir des déplacements enregistrés et des dimensions initiales de chaque fibre (Figure 2). Le module d'Young est calculé en utilisant la loi de Hooke en utilisant la dilatation maximale (à 8 min) et minimale (à 16 min) dans la partie de température constante comme le montre la Figure 2 :

$$E = F / S \cdot \varepsilon \quad [2]$$

Avec :

E [MPa]	Le module d'Young
F [N]	L'amplitude de la force d'excitation
S [mm ²]	La section de la fibre
ε [%]	La déformation

2.4 Analyse ATG-DSC

Dans le but d'identifier et de comprendre l'influence du traitement de fibres sur leur décomposition thermique, des analyses thermogravimétriques couplés avec des analyses DSC (Differential Scanning Calorimetry) ont été effectuées sur les deux pailles étudiés à l'aide d'un appareil LINSEIS STA PT-1000. Un échantillon d'environ 20 mg a été pesé pour chaque fibre après un broyage fin, puis placé dans un creuset en alumine que l'on introduit dans le four de l'appareil. Les mesures ont été effectuées sous une atmosphère inerte avec une seule montée en température de 30 à 1000°C à une vitesse de 20°C/min.

3. Résultats et discussions

3.1. Capacité d'absorption d'eau

La figure 3 montre l'évolution du taux d'absorption d'eau en fonction du temps pour les fibres traitées pendant les six durées choisies (10 sec, 5 min, 10 min, 15 min, 1h, 4h) ainsi que les fibres non traitées (ST : Sans

Traitement). Nous constatons que les fibres non traitées (ST) absorbent une quantité d'eau importante, qui peut atteindre à 60 min 452.74% pour les fibres d'orge et 372.38 % pour les fibres de blé.

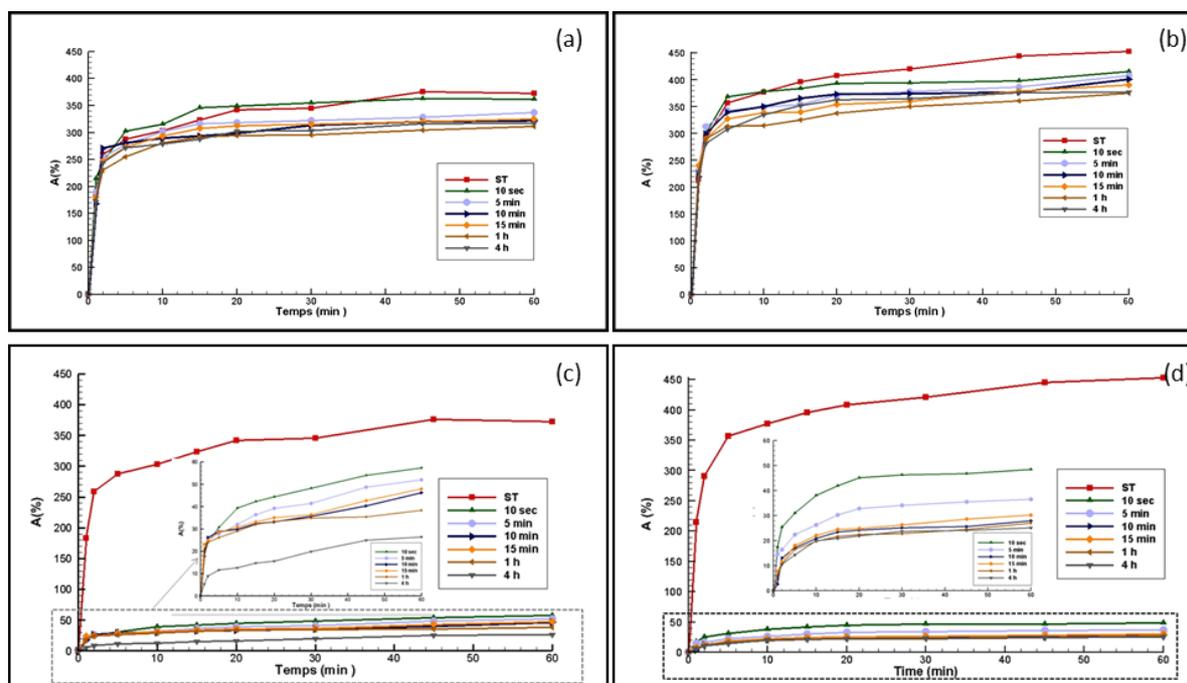


Figure 3 : Taux d'absorption d'eau (a) : traitement de fibres de blé à l'eau bouillante (b) : traitement de fibres d'orge à l'eau bouillante (c) : traitement de fibres de blé à l'huile de lin (d) : traitement de fibres d'orge à l'huile de lin

Nous pouvons dire d'après ces résultats que les fibres absorbent moins d'eau pour des durées d'immersion plus grandes pour l'huile de lin. Cependant, les fibres traitées pendant 1h et celles traitées pendant 4 h dans l'eau bouillante ne suivent pas ce raisonnement: cela veut dire qu'il existe une durée de traitement optimale pour l'eau bouillante qui ne dépasse pas 1 h. Aussi nous remarquons que la courbe des fibres traitées à 15 min est légèrement au-dessus de celles traitées à 10 min par l'huile de lin : cela peut être le résultat d'une erreur de manipulation au moment de l'essai.

Le traitement des fibres à l'eau bouillante entraîne une légère diminution du taux d'absorption d'eau pour les deux types de fibres; par contre le traitement à l'huile de lin réduit considérablement ce taux d'absorption. Cette grande diminution s'explique par le fait que le traitement d'huile de lin enrobe la surface des fibres par une couche d'huile, qui a pour effet de repousser l'eau [JUA05].

3.2. Module d'Young pour différents temps de traitement

Les résultats d'analyse thermomécanique obtenus montrent que le traitement d'eau bouillante influence d'une manière significative les propriétés mécaniques des fibres (Figure 4). En effet, le module d'Young diminue pour tous les échantillons traités, quelle que soit la durée de traitement. Cette diminution devient importante avec l'augmentation de la durée de traitement. La réduction du module d'Young a été maximale et atteint 54.13% pour un traitement de 4h et 48 % pour un traitement de 1h pour les fibres de blé et d'orge respectivement. Cette réduction s'explique par le fait que le traitement à l'eau bouillante aide à extraire des substances hydrosolubles des fibres qui deviennent moins rigides par rapport aux fibres non traitées [MERO8].

En revanche, le traitement de fibres à l'huile de lin entraîne une augmentation importante du module d'Young, plus particulièrement pour les fibres traitées pendant les durées de 10 min et 15 min (Figure 4). Cependant, pour les autres durées de traitement, il est difficile de voir une même tendance de diminution ou d'augmentation. Nous pouvons donc choisir un temps de traitement optimal qui donne une amélioration des propriétés mécaniques de fibres traitées à l'huile de lin qui est situé entre 10 min et 15 min pour les fibres d'orge et de blé. Par conséquent, le temps de traitement est un paramètre important qui influence considérablement les propriétés mécaniques des fibres. Sur la figure 4, le temps 0 représente les fibres non traitées (ST).

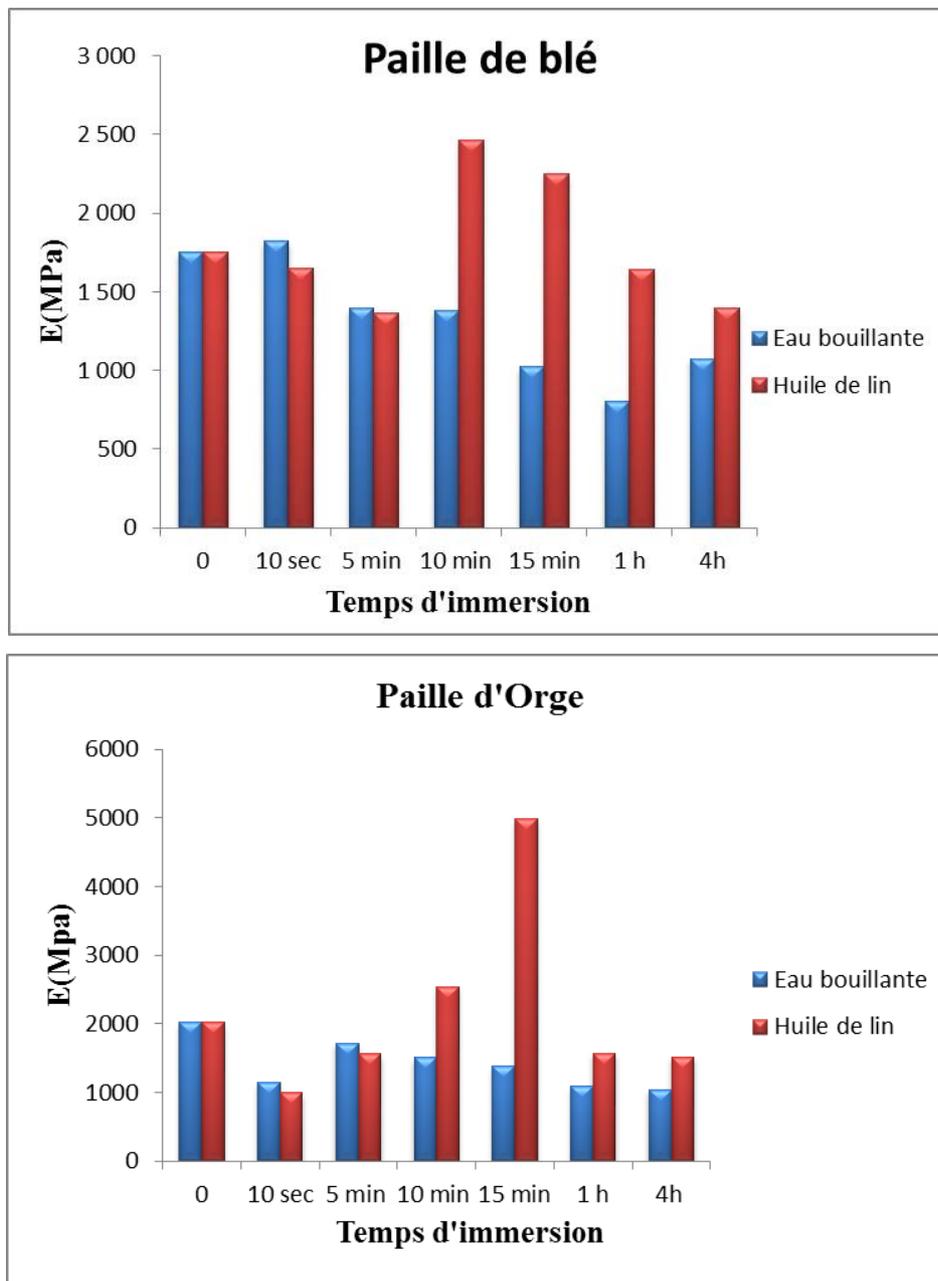


Figure 4: Module d'Young de la paille pour les deux traitements en fonction du temps d'immersion.

3.3. Dégradation et décomposition thermique des fibres

L'évolution de la perte de masse et du flux de chaleur échangé lors de la décomposition thermique est présentée sur la figure 5. Dans le cas des fibres non traitées (ST), on constate qu'au-delà de 600°C, la perte de masse totale a été stabilisée à 76 % pour la paille de blé et à 88 % pour la paille d'orge. De manière globale et selon la courbe d'ATG, on voit que cette perte de masse se produit sur quatre étapes pour les deux pailles : 50-240°C, 240-320°C, 320-560°C. La première phase (50-240°C) est attribuée à la déshydratation des fibres, la deuxième phase (240-320°C) correspond à la décomposition des pectines et d'hémicelluloses, tandis que la zone entre 320 et 560°C représente la dégradation de la cellulose combinée avec la décomposition des lignines. On remarque aussi d'après la courbe DSC que les deux dernières phases coïncident avec deux pics endothermiques que ce soit dans le cas de la paille de blé ou la paille d'orge. Les fibres traitées à l'eau bouillante (TEB) ont le même comportement que les fibres non traitées (ST), les courbes d'ATG restent similaires. Cependant, une légère augmentation (de 4%) de la perte de masse a été observée pour la paille de blé avec une petite variation pour la courbe DSC enregistrée dans l'intensité des pics endothermiques.

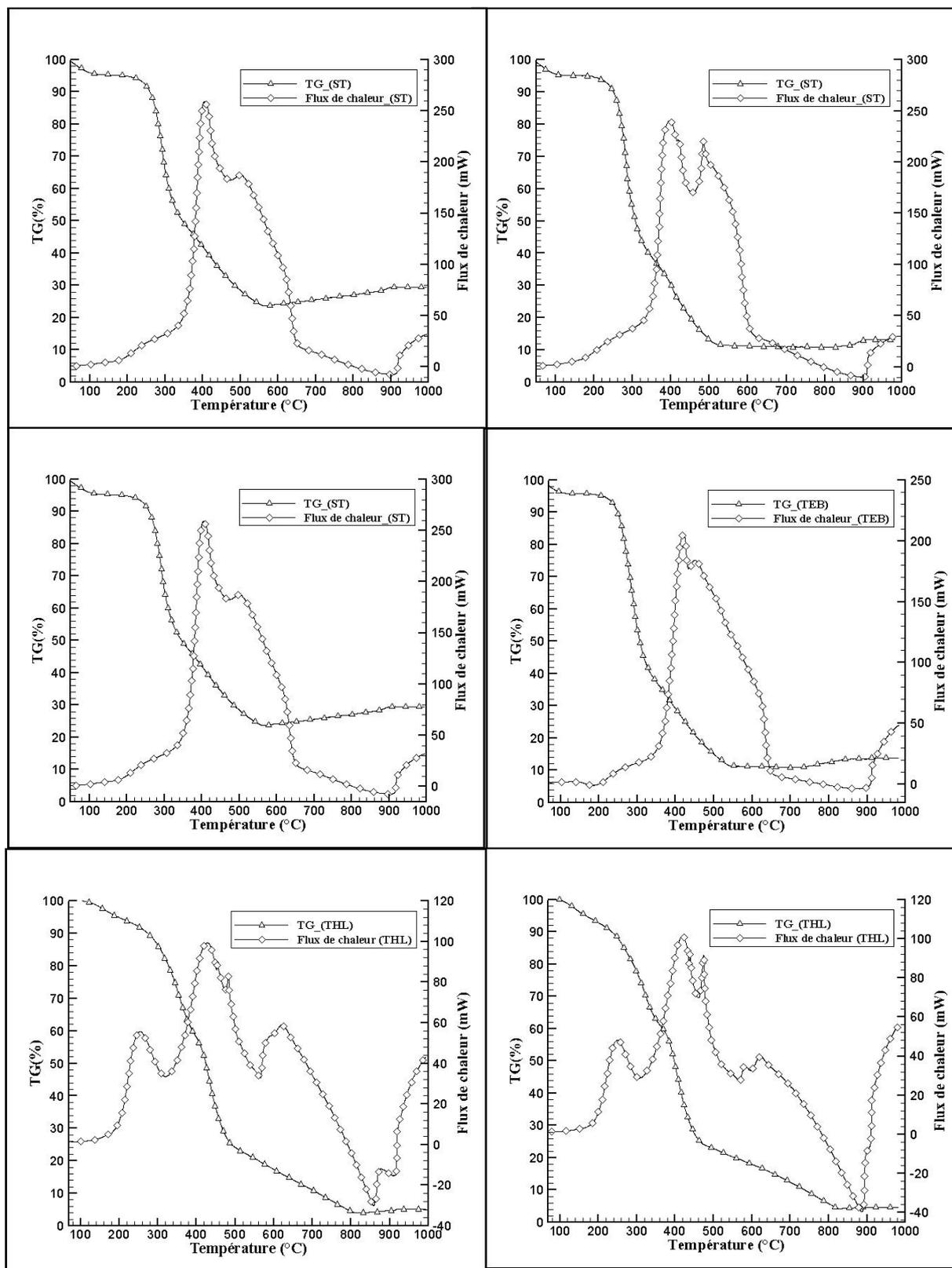


Figure 5: Perte de masse et flux de chaleur de l'analyse ATG-DSC des fibres seules, la paille de blé (à gauche), la paille d'orge (à droite) ; ST : sans traitement ; TEB : traitement à l'eau bouillante ; THL : Traitement à l'huile de lin.

On peut en déduire que le traitement de l'eau bouillante n'entraîne pas une modification dans les composants chimiques principaux des fibres (la cellulose, l'hémicellulose, la pectine et la lignine). Contrairement au

traitement à l'eau bouillante, le traitement des fibres à l'huile de lin entraîne un changement significatif des courbes ATG et DSC que ce soit pour la paille d'orge ou la paille de blé. En effet, la perte de masse totale atteint 96% pour les deux types de paille. Cette perte de masse est due à quatre réactions endothermiques selon la courbe de flux de chaleur.

4. Conclusion

Les résultats obtenus montrent que la capacité d'absorption d'eau des fibres (blé et orge) a été considérablement diminuée avec le traitement à l'huile de lin. Le traitement à l'eau bouillante montre par contre une influence importante sur le comportement mécanique marquée par la diminution du module d'Young des fibres, observée par l'analyse thermo-mécanique. Le traitement à l'huile de lin montre aussi une influence sur le module d'Young qui est en plus fonction du temps d'immersion. Les analyses thermiques mettent, elles aussi, en évidence l'influence importante du traitement à l'huile de lin avec une perte de masse considérable. Après l'élaboration du composite en utilisant les fibres traitées à l'huile de lin, les résultats ont montré un effet négatif sur les propriétés thermiques de l'isolant (résultats qui ne sont pas présentés ici-pages limitées). Des études seront donc consacrées à la formulation du bio-composite avec les fibres traitées à l'huile de lin.

5. Bibliographie

[BEL 13] Belayachi N.; Bouasker M.; Hoxha D.; Al-Mukhtar M., Thermo-mechanical behaviour of an innovant straw lime composite for thermal insulation applications. *Applied Mechanics and Materials*, vol 390, 2013, p. 542-546.

[BEL 14] Belhadj B, Bederina M, Montrelay N, Houessou J, Quéneudec M, Effect of substitution of wood shavings by barley straws on the physico-mechanical properties of lightweight sand concrete, *Construction and Building Materials* vol, 66, 2014, p 247–258.

[BOU 14] Bouasker M.; Belayachi N.; Hoxha D.; Al-Mukhtar M. (2014) Physical characterization of natural straw fibers as aggregates for construction materials applications. *Material*, vol 7, 2014, p. 3034-3048.

[GOM 07] A.Gomes, T. Matsuo, K.Goda, J. Ohgi (2007), Development and effect of alkali treatment on tensile properties of curaua fiber green composites, *Composites: Part A*, vol 38, 2007, p. 1811–1820.

[HER 05] Herrera-Franco P.J., Valadez-Gonzalez A. "A study of the mechanical properties of short natural-fiber reinforced composites", *Composites Part B: Engineering*, vol 36, 2005, p. 597-608.

[ISH 07] Ishak M. A., Maleque F., Belal Y. and Sapuan S.M., "Mechanical Properties Study of Pseudo-Stem Banana Fiber Reinforced Epoxy Composite", *The Arabian Journal for Science and Engineering*, vol 32, 2007, p. 359-364.

[JOS 03] Joseph P.V, Joseph K, Thomas S, Pillai C.K.S, Prasad V.S, Groeninckx G, Sarkissova M, The thermal and crystallisation studies of short sisal fibre reinforced polypropylene composites; *Composites: Part A* 34, 2003, P253-266.

[JUA 05] Juarez C, Dura A, Valdez P, Fajardo G. Performance of "Agave Lecheguilla" natural fiber in portland cement composites exposed to severe environment conditions, *Building and Environment* vol 42 2007, p 1151–1157.

[LOA 06] Loan D.; Investigation on jute fibres and their composites based on polypropylene and epoxy matrices; Thèse de doctorat, Université de Dresden, 2006.

[MAR 03] Martins M, Joekes I.; Tire Rubber–Sisal Composites: Effect of Mercerization and Acetylation on Reinforcement; *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 89, 2003, p 2507-2515.

[MER 08] M.Merzoud ,M.Habita ; Elaboration de composite cimentaire à base de diss « *Ampelodesma Mauritanica* » ; *Afrique SCIENCE*, vol 04, 2008, p 231 – 245.

[PAN 06] Panthapulakkal S, Zereshkian A, Sain M, Preparation and characterization of wheat straw fibers for reinforcing application in injection molded thermoplastic composites, *Bioresource Technolog* vol 97, 2006, p 265–272.

[SEL 13] A.Sellami, M. Merzoud, S. Amziane; Improvement of mechanical properties of green concrete by treatment of the vegetals fibers; *Construction and Building Materials*, vol 47, 2013, p. 1117–1124.

[TOM 07] Tomczak F, Sydenstricker T, Satyanarayana K, Studies on lignocellulosic fibers of Brazil. Part II: Morphology and properties of Brazilian coconut fibers; *Composites: Part A* 38, 2007, p 1710-1721.

[VAN 04]. Van Dam J.E.G, Martien J.A, Den Oever V, Teunissen W, Edwin R.P. Keijsers, Peralta G, Process for production of high density/high performance binderless boards from whole coconut husk Part 1: Lignin as intrinsic thermosetting binder resin, *Industrial Crops and Products* vol 19, 2004, p 207-216.

[YAN 07] Yang H, Rong Y, Chen H, Lee D, .Zheng C, Characteristics of hemicellulose, cellulose and lignin pyrolysis; *Fuel* vol 86,2007,p 1781-1788.