



HAL
open science

Procédés compacts pour le bioraffinage intégré de plantes entières : valorisation multi-produit à valeur ajoutée

Philippe Evon

► **To cite this version:**

Philippe Evon. Procédés compacts pour le bioraffinage intégré de plantes entières : valorisation multi-produit à valeur ajoutée. Sciences agricoles. Institut National Polytechnique (Toulouse), 2019. tel-02790035

HAL Id: tel-02790035

<https://hal.inrae.fr/tel-02790035>

Submitted on 5 Jun 2020

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.



Open Archive Toulouse Archive Ouverte (OATAO)

OATAO is an open access repository that collects the work of Toulouse researchers and makes it freely available over the web where possible

This is an author's version published in: <http://oatao.univ-toulouse.fr/25201>

To cite this version:

Evon, Philippe  *Procédés compacts pour le bioraffinage intégré de plantes entières : valorisation multi-produit à valeur ajoutée.* (2019) [HDR]

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository administrator: tech-oatao@listes-diff.inp-toulouse.fr

Mémoire de travaux scientifiques
présenté auprès de
l'Institut National Polytechnique de Toulouse
pour obtenir
l'Habilitation à Diriger des Recherches

Procédés compacts pour le bioraffinage
intégré de plantes entières :
valorisation multi-produit à valeur ajoutée

Par

Philippe Evon

Ingénieur de Recherche

Laboratoire de Chimie Agro-industrielle, INP-ENSIACET, Toulouse

Soutenue le 9 Décembre 2019 devant un jury composé de :

Johnny Beaugrand, Directeur de Recherche (HDR) - BIA - INRA - Nantes (rapporteur)
Jean-Louis Lanoisellé, Professeur des Universités (HDR) - IRDL - UBS - Lorient (rapporteur)
Valérie Nassiet, Professeur des Universités (HDR) - LGP - ENI - Tarbes (rapporteur)
Alain Bourmaud, Ingénieur de Recherche (HDR) - IRDL - UBS - Lorient (président du jury)
Gilles Escadeillas, Professeur des Universités (HDR) - LMDC - INSA - Toulouse
Pierre Ouagne, Professeur des Universités (HDR) - LGP - ENI - Tarbes
Antoine Rouilly, Maître de Conférences (HDR) - LCA - ENSIACET - Toulouse (invité)
Thierry Véronèse, Directeur Scientifique - Ovalie Innovation - Auch (invité)



*À mes parents qui ont toujours su m'accompagner
et me soutenir dans mes actions*

*À Caroline, ma grande sœur, marraine et
« deuxième maman », qui m'a tant apporté
tout au long de sa présence à mes côtés !*

*À Anita et nos deux garçons, Pierre et Valentin,
dont l'attention et leur présence quotidienne
à mes côtés sont pour moi gage de bien-être*

Sommaire :

I.	Remerciements	4
II.	Liste des abréviations	5
III.	Curriculum Vitae	8
	1. Titres universitaires et diplômes	8
	2. Cursus professionnel	8
	3. Autres expériences professionnelles	9
IV.	Enseignements et responsabilités pédagogiques	10
	1. Enseignements	10
	a. À l'INP-ENSIACET	10
	b. À l'INP-ENSAT	10
	c. À l'INP-ENIT	10
	d. À l'IUT de Tarbes	11
	e. Participation à d'autres activités d'enseignement (MOOC, Summer Schools)	11
	2. Tutorat et encadrement	12
	3. Responsabilités administratives	14
	4. Participation à des jurys	15
V.	Animation, encadrement de la recherche et expertise	16
	1. Projets de recherche	16
	2. Partenariats institutionnels ou industriels	17
	3. Participation au montage de projets de recherche	21
	4. Encadrement de la recherche	24
	a. Codirection de Thèses de Doctorat	24
	b. Assistance technique et scientifique de Thèses de Doctorat	25
	c. Encadrement de Post-Doctorats	26
	5. Activités d'expertise	27
VI.	Production scientifique	28
	1. Publication dans des revues à comité de lecture	28
	a. Articles publiés	28
	b. Articles soumis	31
	c. Articles en préparation	32
	d. Articles de congrès ou à diffusion limitée	32
	2. Chapitres de livres	34
	3. Brevets d'invention	34
	4. Enveloppes Soleau	35
	5. Communications à des congrès nationaux et internationaux	35
	a. Conférences invitées et communications orales	35
	b. Posters	38
	6. Autres communications orales	42
VII.	Activités de recherche	45
	1. Introduction	45
	2. Les procédés bi-vis pour le fractionnement du végétal	46
	a. Un bref historique sur l'extrusion bi-vis	46
	b. Les potentialités de l'extrusion bi-vis	47
	c. Les éléments constitutifs de l'extrudeur bi-vis	48
	d. Les vis de convoyage	53

e. <i>Les éléments restrictifs</i>	54
f. <i>Les vis à pas inverse</i>	55
g. <i>Les avantages de la technologie bi-vis</i>	56
3. <i>L'extrusion bi-vis, une alternative à l'expression et à l'extraction des huiles</i>	56
4. <i>L'extrudeur bi-vis utilisé pour l'expression des huiles végétales</i>	58
a. <i>Contexte général</i>	58
b. <i>Configuration de l'extrudeur bi-vis</i>	59
c. <i>Optimisation de la zone de broyage du profil de vis</i>	61
d. <i>Optimisation de la zone de pressage du profil de vis</i>	64
e. <i>Adaptation des conditions opératoires de l'extrusion bi-vis</i>	65
5. <i>Utilisations potentielles des huiles obtenues par pressage</i>	73
a. <i>Le raffinage des huiles végétales obtenues par pressage</i>	73
b. <i>Estimation de la qualité des huiles obtenues par pressage</i>	74
c. <i>Les utilisations non alimentaires des huiles végétales obtenues par pressage</i>	76
6. <i>L'extrudeur bi-vis utilisé pour l'extraction aqueuse des huiles végétales</i>	79
a. <i>Influence du profil de vis sur la séparation liquide/solide</i>	82
b. <i>Modélisation du remplissage du réacteur bi-vis</i>	87
c. <i>Scale-up du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol en bi-vis</i>	95
d. <i>Bilan du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol en bi-vis</i>	98
7. <i>Utilisations potentielles des émulsions huile/eau générées par extraction aqueuse</i>	105
8. <i>Valorisation des tourteaux pour la fabrication d'agromatériaux</i>	107
a. <i>Méthodologie expérimentale pour l'obtention de panneaux de fibres et/ou de particules par thermopressage</i>	111
b. <i>Effet des conditions du thermopressage sur les propriétés des panneaux</i>	116
c. <i>Le thermopressage, une opportunité pour l'expression de l'huile résiduelle</i>	126
d. <i>L'extraction au solvant de l'huile résiduelle des tourteaux avant pressage à chaud, une opportunité pour améliorer les propriétés des panneaux obtenus</i>	127
e. <i>L'obtention de matériaux isolants pour la construction, une voie originale de valorisation des tourteaux de tournesol issus de la plante entière</i>	130
f. <i>Le compoundage bi-vis pour le moulage de pièces d'usage par injection ou par extrusion, un autre mode d'obtention d'agromatériaux</i>	136
VIII. Bilan et perspectives (projet scientifique)	147
1. <i>Bilan</i>	147
2. <i>Perspectives (projet scientifique)</i>	156
a. <i>Extension à d'autres matières premières du fractionnement thermo-mécano-chimique des plantes entières en réacteur bi-vis</i>	157
b. <i>Mise en œuvre optimisée des fibres courtes dans le domaine des biocomposites</i>	158
c. <i>Vers une meilleure qualification des agromatériaux au travers de l'étude de leurs émissions de COV</i>	160
d. <i>Modélisation du fonctionnement des extrudeurs bi-vis pour un scale-up facilité des procédés de fractionnement liquide/solide de la matière végétale</i>	163
e. <i>Optimisation des procédures d'extraction mécanique à sec des fibres longues et moyennement longues pour des applications textiles</i>	165
f. <i>Développement d'un référentiel de caractérisation des co-produits agricoles comme sources de granulats végétaux pour les agro-bétons</i>	171
3. <i>Conclusion générale</i>	176
IX. Références bibliographiques	179

I. Remerciements :

Je tiens tout d'abord à remercier toutes les personnes qui m'ont apporté leur aide et leur soutien actif tout au long de mon parcours professionnel.

Mes remerciements vont tout d'abord aux directeurs du Laboratoire de Chimie Agro-industrielle (LCA) qui se sont succédés à ce poste depuis mon arrivée dans la structure en 2004, à savoir Marie-Élisabeth Borredon puis Carlos Vaca-Garcia et enfin Gérard Vilarem.

Mes remerciements s'adressent également à Luc Rigal, mon Directeur de Thèse, qui m'a ensuite permis d'assurer la responsabilité technique et administrative de la halle AGROMAT à partir de septembre 2007. J'ai ainsi pu participer à divers programmes internationaux de recherche et contrats industriels, ce qui fut pour moi l'occasion de nouer des contacts à la fois fructueux d'un point de vue scientifique et enrichissants d'un point de vue humain.

Enfin, merci à Johnny Beaugrand, Jean-Louis Lanoisellé et Valérie Nassiet d'avoir accepté d'être les rapporteurs de mon travail, et également à Alain Bourmaud, Gilles Escadeillas, Pierre Ouagne (mon correspondant), Antoine Rouilly (mon collègue de travail sur les agromatériaux au LCA) et Thierry Véronèse d'avoir bien voulu participer à ce jury, les deux derniers cités en tant que membres invités.

C'est au Laboratoire de Chimie Agro-industrielle que j'ai pu assurer mes missions de co-encadrement de thèse, auprès de Guillaume Gamon puis d'Evelien Uitterhaegen. Merci à eux deux de m'avoir permis d'enrichir mes connaissances scientifiques dans les domaines de la raffinerie du végétal et des agromatériaux.

Merci également aux personnels du laboratoire avec lesquels les échanges ont toujours été des plus constructifs :

■ Pierre-Yves Pontalier, Christine Raynaud, Matthieur Rigal et Virginie Vandebossche pour la complémentarité de leurs thématiques de recherche avec les miennes, sans oublier tous les autres (Marion Alignan, Ika Amalia Kartika, Laure Candy, Muriel Cerny, Élodie Chabrat, Éric Lacroux, Anne Lung, Céline Mathieu, Jérôme Peydecastaing, Caroline Sablayrolles, Guadalupe Vaca-Medina, Romain Valentin, Claire Vialle, etc.) avec lesquels les relations auront peut-être été moins fréquentes mais tout aussi fructueuses.

■ Othmane Merah, Thierry Talou et Valérie Simon avec lesquels j'ai collaboré pendant trois ans sur le projet transversal consacré au bioraffinage de la plante entière de coriandre ; grâce à l'intérêt de la société Ovalie Innovation pour ces travaux, ce projet est d'ailleurs en passe de se concrétiser par la mise en place d'une unité industrielle de production d'une huile végétale de coriandre sur le territoire de la Région Occitanie.

■ William Tapia puis Laurent Labonne, pour leur implication à faire vivre avec moi la halle AGROMAT au quotidien.

Je n'oublie pas non plus les autres personnels du Laboratoire de Chimie Agro-industrielle, notamment ses équipes logistique (Didier Dangla, Romain Armengau et Emmanuelle Dao) et administrative (Isabelle Bauviès puis Christina Labejof, Isabelle Noël, Marie-Christine Talou, Karine Tremauville et Mireille Juan) pour leur soutien, les différents stagiaires que j'ai pu encadrer pour leur contribution active à mes travaux scientifiques mais aussi les personnels de l'École Nationale d'Ingénieurs de Tarbes que je fréquente quotidiennement et qui bien souvent m'apportent soutien logistique et humain.

Enfin, un merci sincère à mes proches (famille et amis) sans qui rien n'aurait été possible !

II. Liste des abréviations :

3BCAR	Institut Carnot « <i>Bioénergies, Biomolécules & matériaux Biosourcés du CARbone renouvelable</i> »
AAPBAT	Appel À Projets Investissements d'Avenir : méthodes industrielles pour la rénovation et la construction de BÂTiments
ACS	American Chemical Society
ACV	Analyse de Cycle de Vie
ADEME	Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie
AERES	Agence d'Évaluation de la Recherche et de l'Enseignement Supérieur
AGRIVANA	VAlorisation Non Alimentaire des AGRoressources
ANR	Agence Nationale de la Recherche
AOCS	American Oil Chemists' Society
APESA	Centre Technologique en Environnement et Maîtrise des Risques
ATG	Analyse ThermoGravimétrique
ATOC	Aroma-Tincto-Oleo-Crops
ATR	Attenuated Total Reflection (ou réflexion totale atténuée)
BFFM	Biorefinery for Food, Fuels and Materials symposium
BIA	Biopolymères Interactions Assemblages
BIP	Bioressources, Industries et Performance
BTP	Bâtiment et Travaux Publics
CA	Conseil d'Administration
CATAR	Centre d'Application et de Traitement des AgroRessources
CCCE	Communauté de Communes Cœur d'Estuaire
CEMEF	CÉntre de Mise En Forme des matériaux
CHEDD	Cycle des Hautes Études du Développement Durable
CIFRE	Convention Industrielle de Formation par la REcherche
CIRC	Centre International de Recherche sur le Cancer
CMR	Produits Cancérogènes, Mutagènes, Reprotoxiques
CNC	Cellulose NanoCristals
COST	COopération Européenne en Science et Technologie
COV	Composé Organique Volatil
CPER	Contrat de Plan État-Région
CRFs	Controlled-Release Fertilisers
CRITT	Centre Régional d'Innovation et de Transfert de Technologie
CRTCI	Centre de Ressources et de Transfert en Composites Innovants
DEA	Diplôme d'Études Approfondies
DEMAIN	DÉveloppement de MAériaux INnovants
DIACT	Délégation Interministérielle à l'Aménagement et à la Compétitivité des Territoires
DMSO	DiMéthylSulfOxyde
DMTA	Dynamic Mechanical Thermal Analysis (ou Analyse Thermique Mécanique Dynamique)
DRRT	Délégation Régionale à la Recherche et à la Technologie
DSC	Differential Scanning Calorimetry (ou Analyse Enthalpique Différentielle)
DTG	Courbe Dérivée de l'analyse ThermoGravimétrique
DVS	Dynamic Vapor Sorption (ou Gravimétrie d'Adsorption de Vapeur d'eau)
EBCE	European Biomass Conference & Exhibition

ED SDM	École Doctorale Sciences De la Matière
EEHV	Esters Éthyliques d'Huile Végétale
EFSA	European Food Safety Authority (ou Agence Européenne de Sécurité Alimentaire)
EMHV	Esters Méthyliques d'Huile Végétale
ENIT	École Nationale d'Ingénieurs de Tarbes
ENSAIT	École Nationale Supérieure des Arts et Industries Textiles
ENSAT	École Nationale Supérieure d'Agronomie de Toulouse
ENSCT	École Nationale Supérieure de Chimie de Toulouse
ENSIACET	École Nationale Supérieure des Ingénieurs en Arts Chimiques Et Technologiques
EVOH	Copolymère d'éthylène et d'alcool vinylique
FARE	Fractionnement des AgroRessources et Environnement
FCBA	Institut technologique Forêt Cellulose Bois-construction Ameublement
FTIR	Fourier Transform InfraRed spectroscopy (ou spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier)
FUI	Fonds Unique Interministériel
GC-FID	Gas Chromatography coupled with a Flame Ionization Detector (ou Chromatographie Gazeuse couplée à un Détecteur à Ionisation de Flamme)
GC-MS	Gas Chromatography coupled with a Mass Spectrometer detector (ou Chromatographie Gazeuse couplée à la Spectrométrie de Masse)
GDR	Groupement De Recherche
GFP	Groupe Français d'études et d'applications des Polymères
GIE	Groupement d'Intérêt Économique
GPE	International congress on Green Process Engineering
G2C2	Global Green Chemistry Centres
HCERES	Haut Conseil de l'Évaluation de la Recherche et de l'Enseignement Supérieur
HDF	High Density Fiberboard (ou panneau de fibres de haute densité)
IMN	Ingénierie des Matériaux Nouveaux
INP	Institut National Polytechnique
INPI	Institut National de la Propriété Industrielle
INRA	Institut National de la Recherche Agronomique
INSA	Institut National des Sciences Appliquées
IPREM	Institut des Sciences Analytiques et de Physico-Chimie pour l'Environnement et les Matériaux
IR	Ingénieur de Recherche
ISO	International Organization for Standardization
IUT	Institut Universitaire de Technologie
LCA	Laboratoire de Chimie Agro-industrielle
LGP	Laboratoire Génie de Production
LISBP	Laboratoire d'Ingénierie des Systèmes Biologiques et des Procédés
LMDC	Laboratoire Matériaux et Durabilité des Constructions
MADEELI	Agence du Développement Économique, de l'Export et de l'Innovation de la Région Occitanie
MALS	MultiAngle Light Scattering (ou diffusion de lumière multi-angle)
MBS	Matériaux de construction BioSourcés
MDF	Medium Density Fiberboard (ou panneau de fibres de densité moyenne)
MEB	Microscopie Électronique à Balayage
MECD	Matériaux & Équipements pour la Construction Durable
MESR	Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche

MOOC	Massive Online Open Course (ou formation en ligne ouverte à tous)
NFI	Novel Food Ingredient (ou nouvel ingrédient alimentaire)
OSB	Oriented Strand Board (ou panneau structural orienté, panneau de grandes particules orientées)
PAC	Politique Agricole Commune
PC	Paille de Coriandre
PCL	PolyCaproLactone
PE	PolyÉthylène
PF	Phénol-Formol
PHA	PolyHydroxyAlcanoate
PHB	PolyHydroxyButyrate
PHBV	Copolymère de PolyHydroxyButyrate et de PolyHydroxyValérate
PHC	Partenariat Hubert Curien
PHV	PolyHydroxyValérate
PLA	Acide PolyLactique
PME	Petite et Moyenne Entreprise
POCTEFA	Programme Interreg V-A Espagne-France-Andorre
PP	PolyPropylène
PP-g-MA	PolyPropylène greffé Anhydride Maléique
PPS	Polymer Processing Society
PTR	Aide Prestation Technologique Réseau
PVC	PolyChlorure de Vinyle
PVOH	Alcool PolyVinylique
PVT	Pression Volume Température
RRB	International Conference on Renewable Resources & Biorefineries
SBO	Water-soluble biopolymers (ou biopolymères solubles dans l'eau)
SEC	Size Exclusion Chromatography (ou chromatographie d'exclusion stérique)
SF	Structure Fédérative
SIRYUS	Structure Interdisciplinaire de Recherche sur les sYstèmes, les instruments et leurs USages
SPME	Solid Phase MicroExtraction (ou technique de MicroExtraction sur Phase Solide)
STSM	Short Term Scientific Mission
SynBioC	Synthesis, Bioresources and bioorganic Chemistry research group
TMC	Thermo-Mécano-Chimique
TTT	Toulouse Tech Transfer
UBS	Université Bretagne Sud
UF	Urée-Formol
UMR	Unité Mixte de Recherche
UNI-	
SOCIESC	UNIversidade SOCIEDade Educacional de Santa Catarina
UNITO	UNIversità di TORino
UPB	Université du Pays Basque
UPPA	Université de Pau et des Pays de l'Adour
UPS	Université Paul Sabatier
UTC	Université de Technologie de Compiègne
UTT	Université de Technologie de Troyes
WPC	Wood Plastic Composite

III. Curriculum Vitae :

Philippe Evon

Né le 15 Septembre 1973 à Cholet (49).

Marié, deux enfants.

Adresse professionnelle :

Laboratoire de Chimie Agro-industrielle (UMR 1010 INRA/INP-ENSIACET)

AGROMAT – Site de l'ENIT – 47, avenue d'Azereix – BP 1629

65016 Tarbes Cedex / France

Tél. : + 33 (0)5 62 44 60 80 / + 33 (0)6 88 09 40 41

Fax : + 33 (0)5 62 44 60 82

e-Mail : Philippe.Evon@ensiacet.fr

1. Titres universitaires et diplômes :

1996

Ingénieur chimiste, École Nationale Supérieure de Chimie (INP-ENSCT), Toulouse (mention Bien).

1996

DEA « Sciences des Agroressources », option « Réactivité des Agroressources », INP-ENSCT, Toulouse (mention Très Bien).

2008

Doctorat en « Sciences de la Matière », spécialité « Sciences des Agroressources », Laboratoire de Chimie Agro-industrielle, Toulouse :

« Nouveau procédé de bioraffinage du tournesol plante entière par fractionnement thermo-mécano-chimique en extrudeur bi-vis : étude de l'extraction aqueuse des lipides et de la mise en forme du raffinat en agromatériaux par thermomoulage ».

2. Cursus professionnel :

2004-2008 (3 ans)

Ingénieur de recherche, Laboratoire de Chimie Agro-industrielle, Toulouse (31)

Missions :

- Transformation thermo-mécano-chimique de la plante entière de tournesol selon un procédé aqueux et à l'aide de la technologie d'extrusion bi-vis.
- Traitement de l'extrait par centrifugation pour la production de fractions déjà pré-formulées (émulsions huile/eau, suspensions aqueuses) et susceptibles de trouver des applications directes comme bases de produits industriels.
- Mise au point d'un procédé de valorisation du raffinat permettant sa transformation en agromatériaux selon les techniques de thermopressage et de thermomoulage.

Depuis le 1^{er} Janvier 2008

Ingénieur de recherche (IR 2C), halle de transfert AGROMAT, Laboratoire de Chimie Agro-industrielle, site de l'École Nationale d'Ingénieurs de Tarbes (65)

Membre de l'équipe de recherche « *Fractionnement des Agroressources & Procédés de Transformations Agro-industriels* », dirigée par M. Luc Rigal (Ingénieur de Recherche)

Missions :

- En charge de la plateforme AGROMAT : responsable logistique et administratif, gestion des personnels, actions de formation et de communication, prospection de nouveaux clients, etc.
- En charge du développement de nouveaux agromatériaux composites, thermoplastiques et/ou thermodurcissables, obtenus à partir de diverses matières végétales (chargé du montage et du suivi des contrats de recherche associés, menés pour le compte de clients industriels).

Mots clés :

Fractionnement liquide/solide, agromatériaux, biopolymères, biocomposites, procédés de préparation, procédés de mise en forme.

Expertise scientifique :

Analyse thermique & thermo-mécanique, physico-chimie des biopolymères, défibrage des fibres végétales, extrusion bi-vis, extrusion mono-vis, injection-moulage, thermopressage.

3. Autres expériences professionnelles :

1996 (7 mois)

Ingénieur, INRA, Nantes (44)

Missions :

- Étude du fractionnement d'hydrolysats peptidiques de blé par ultrafiltration.
- Étude des propriétés fonctionnelles des fractions recueillies.

1997-1999 (2 ans)

Attaché de direction, Grand Parc du Puy du Fou et GIE Puy du Fou, Les Épesses (85)

1999-2004 (5 ans)

Responsable commercial, GIE Puy du Fou, Les Épesses (85)

IV. Enseignements et responsabilités pédagogiques :

Dans ce chapitre, sont listées mes diverses actions d'enseignement, de tutorat et d'encadrement d'étudiants en stage. Mes différentes responsabilités administratives sont également mentionnées ainsi que mes actions de participation à des jurys.

1. Enseignements :

Depuis ma prise de fonction à AGROMAT en 2008, je participe à différentes actions d'enseignement. Effectuées sous la forme de vacations, ces heures d'enseignement le sont (ou l'ont été) dans quatre établissements différents : l'INP-ENSIACET, l'INP-ENSAT, l'INP-ENIT et l'IUT de Tarbes.

a. À l'INP-ENSIACET :

À l'INP-ENSIACET, je suis intervenu jusqu'en 2017 auprès d'étudiants en 3^{ème} année du cycle ingénieur en encadrant des Travaux Pratiques, pour un total de 24 h équivalent TD chaque année. Appartenant à l'option « **MA**tériaux **F**onctionnels » (MAFO), ces étudiants se voyaient proposer quatre ateliers différents, tous relatifs à la mise en forme des plastiques, en particulier ceux issus de ressources renouvelables :

- L'**extrusion bi-vis**, utilisée comme réacteur thermo-mécano-chimique pour le défibrage de fibres végétales telles que la paille de blé, utilisée comme modèle lignocellulosique.

- Le **thermopressage** (ou **thermocompression**), pour la fabrication de panneaux de fibres et/ou de particules par utilisation d'une presse hydraulique à plateaux chauffants.

- La mesure de la **rhéologie en phase fondue** de polymères thermoplastiques au comportement rhéofluidifiant, par utilisation d'une ligne d'extrusion mono-vis munie d'une filière capillaire.

- Le **moulage** de composites thermoplastiques par **injection** en presse à injecter.

Je participais tout particulièrement à l'encadrement des ateliers consacrés au thermopressage et aux mesures rhéologiques.

b. À l'INP-ENSAT :

À l'INP-ENSAT, je suis intervenu jusqu'en 2016 auprès d'apprentis ingénieurs en 3^{ème} année du cycle ingénieur en donnant un cours intitulé « **Les agromatériaux, une alternative aux objets plastiques d'origine synthétique** », pour un total de 3 h équivalent TD chaque année.

c. À l'INP-ENIT :

À l'INP-ENIT, j'interviens tout d'abord auprès d'étudiants du semestre S7 en encadrant des Travaux Pratiques, pour un total de 8 h équivalent TD chaque année (deux sessions annuelles). Ces étudiants se voient proposer deux ateliers différents, tous deux relatifs à la mise en forme des plastiques, en particulier ceux issus de ressources renouvelables :

- La mesure de la **rhéologie en phase fondue** de polymères thermoplastiques au comportement rhéofluidifiant, par utilisation d'un micro-compoundeur bi-vis muni d'une boucle de recirculation permettant la mesure rhéologique.

- Le **moulage** de composites thermoplastiques par **injection** en presse à injecter.

Je participe tout particulièrement à l'encadrement de l'atelier consacré aux mesures rhéologiques.

J'interviens également auprès d'étudiants du semestre S8 en leur proposant un module optionnel de cours consacré à l'agroplasturgie, pour un total de 42 h équivalent TD chaque année (deux sessions annuelles). Ces étudiants se voient proposer un cours organisé en trois parties successives :

- Tout d'abord, un premier chapitre est consacré aux techniques de mise en forme utilisées pour l'assemblage des composites à fibres naturelles : le compoundage par **extrusion bi-vis** suivi du moulage de la pièce finale par **injection thermoplastique**, puis le **thermopressage** et ses deux techniques dérivées que sont le **thermomoulage** et le **thermoformage**, et enfin l'**extrusion mono-vis**.

- Puis, un second chapitre est consacré à la présentation des techniques analytiques permettant la caractérisation des agromatériaux obtenus, notamment pour l'étude de leur comportement **mécanique** (traction, flexion, résistance au choc), **thermique** (DSC, ATG) et **thermo-mécanique** (DMTA, PVT) et de leur **durabilité** (DVS, propriétés de mouillage, gonflement par immersion). Ce chapitre est également l'occasion d'évoquer quelques notions sur la **compostabilité** et la **biodégradabilité** des matériaux composites d'origine biosourcée.

- Enfin, un troisième chapitre est consacré en l'étude d'un cas, celui du moulage par injection thermoplastique du tourteau de tournesol en pot de repiquage pour plantes. Cette étude de cas est abordée à la fois d'un point de vue technologique et économique.

À l'issue de ces trois cours magistraux, les étudiants se voient également proposer une visite de la plateforme AGROMAT à la découverte des équipements pilotes qui s'y trouvent puis une session de Travaux Pratiques identique à celle mentionnée ci-dessus.

d. À l'IUT de Tarbes :

À l'IUT de Tarbes, j'interviens auprès d'étudiants de la Licence Professionnelle IMN en leur proposant un cours consacré à l'agroplasturgie, pour un total de 12 h équivalent TD chaque année. Ce cours est construit de la même manière que celui proposé aux étudiants de l'INP-ENIT, à savoir une première partie consacrée aux techniques de mise en forme utilisées pour l'obtention des agromatériaux d'une part, et une seconde partie consacrée à leur caractérisation d'autre part. À l'issue, une visite des équipements pilotes de la plateforme AGROMAT est également proposée aux étudiants.

e. Participation à d'autres activités d'enseignement (MOOC, Summer Schools) :

Outre les vacances mentionnées ci-dessus, j'ai également participé de façon active à la mise en place du MOOC « **Agroressources et Agro-Industries durables** », lancé en 2015 par Toulouse INP et joué pour la première fois au printemps 2016. Largement portée par les chercheurs et enseignants-chercheurs du LCA, cette formation en ligne ouverte à tous dispensait des cours sur une période de six semaines, visant à répondre aux questions suivantes :

- Module n° 1 : Les agroressources : contexte et enjeux ?
- Module n° 2 : Quelles ressources ? Quels usages ?
- Module n° 3 : De la ressource aux produits : quels procédés physiques et/ou chimiques ?
- Module n° 4 : De la ressource aux produits : quels procédés biocatalytiques ?
- Module n° 5 : Comment évaluer l'empreinte environnementale ?

Dans le cadre de ce MOOC, j'intervenais au niveau du module n° 3 où je dispensais un cours présentant les trois méthodes de transformation physique utilisées en agroplasturgie : l'**extrusion**

(mono- et bi-vis), l'injection-moulage et le thermopressage. J'y présentais également les agromatériaux issus de ces techniques de mise en forme ainsi que leurs usages.

Signalons d'ailleurs ici que le MOOC « **Agroressources et Agro-Industries durables** » a été rejoué à l'hiver 2018.

En septembre 2017, j'ai également participé en tant qu'enseignant à la Summer School U4, pour "**Energy, Sustainability and Society: Sustainable use and re-use of biomass**", mise en place par l'université UGent de Gand en Belgique. J'y ai proposé un cours d'une heure présentant mes travaux de recherche menés sur le bioraffinage de la plante entière de tournesol et intitulé "*The thermo-mechano-chemical twin-screw reactor, a new perspective for the biorefinery of whole plants: case study of sunflower (aqueous extraction of oil and other biopolymers, and production of biodegradable fiberboards from cake)*". Ce même cours sera également proposé lors de la Summer School **BEsST**, pour "**BioEconomy summer School of Toulouse**", en cours de mise en place par l'INSA de Toulouse et pour laquelle plusieurs intervenants du LCA ont été sollicités.

2. Tutorat et encadrement :

Dans le cadre de mes activités de recherche au sein du LCA et d'AGROMAT, j'ai eu l'occasion de participer à de nombreuses reprises au tutorat et à l'encadrement d'étudiants. Ce suivi a été effectué dans le cadre de stages de fin d'étude, auprès d'étudiants de niveau Master ou Licence. J'ai également participé aux différents jurys d'évaluation de ces travaux. Une liste des différents stagiaires de niveau Master et des deux principaux stagiaires de niveau Licence est présentée ci-dessous.

M1 - Ribet, É., Étude de l'influence des conditions d'extraction aqueuse d'huile végétale sur la structure de l'émulsion obtenue. *Stage de Fin d'Étude*, Master 2 Recherche Chimie, Spécialité Chimie Supramoléculaire et Macromoléculaire, Université Paul Sabatier, Toulouse, France (de Janvier à Juin 2006).

M2 - Rubiolo, S., Expression et extraction à l'eau de l'huile de graines de tournesol classique avec la technologie bi-vis. *Stage de Fin d'Étude*, Politecnico di Torino, Turin, Italie (de Janvier à Juin 2006).

M3 - Luna, M., Lafargue, G., Mise en forme d'agromatériaux par thermopressage d'un tourteau issu de la plante entière de tournesol : caractérisation des objets obtenus. *Projet Tutoré S8*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (d'Octobre à Décembre 2010).

M4 - Martello, V., Composites multicouches pour la réalisation de matériaux isolants. *Stage de Fin d'Étude*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (de Février à Juin 2012).

M5 - Eschenhagen, A., Raj, M., Rodrigo, N., Zamora, A., Potential uses of renewable materials in the construction industry (bibliographic review). *European Project Semester*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (de Février à Juin 2013).

Ce travail a fait l'objet d'une publication dans une revue à comité de lecture (A39).

M6 - Latko, K., Barca Pensado, A., Segura Pérez, M., Design of an industrial Indoor Air Biofilter (Green Filter). *European Project Semester*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (d'Octobre 2013 à Janvier 2014).

M7 - Uitterhaegen, E., Coriander biorefinery: reactive extrusion and oleochemistry. *Master Thesis*, Université de Gand, Belgique (d'Octobre 2013 à Février 2014).

M8 - Gromsrud, M., Paez Castanera, J.A., Stella da Silva Natividade, M., Wieczorek, A., Development of bio-fibers reinforced concrete for building industry: manufacturing issues and mechanical investigation. *European Project Semester*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (de Février à Juin 2014).

M9 - **Orlandini Keller, F.**, Jute woven/PLA based multilayer materials as new promising thermal insulating materials in building industry. *Semestre de Projet d'Initiation à la Recherche*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (de Février à Juillet 2014).

M10 - **Moreno, A.**, Jute woven/polyamide based multilayer materials as new promising thermal insulating materials in building industry. *Semestre de Projet d'Initiation à la Recherche*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (de Février à Juillet 2014).

M11 - **Ravel, R.**, Élaboration, mise en œuvre et caractérisation de nouveaux composites biosourcés à base de fibres de bambou. *Stage de Fin d'Étude*, Master Physique et Sciences pour l'Ingénieur, Spécialité Ingénierie des Agro-Matériaux Composites, UTT, Troyes, France (de Février à Juillet 2014).

M12 - **Boschert, F., Closa Pasquina, R., Hyden, V., Jauneikaite, J., Lehmann, B.**, Investigation of fully-biomaterials: association of a biobased thermosetting resin and vegetable fibers. *European Project Semester*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (d'Octobre 2014 à Janvier 2015).

M13 - **Dubern, S., Richter, C.**, Conception de tuiles de captage permettant le détroquage automatique. *Projet Tutoré S8*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (d'Octobre à Décembre 2014).

M14 - **Quevedo, S.**, Development and characterization of new thermoplastic biocomposites made from coriander straw and PP. *Semestre de Projet d'Initiation à la Recherche*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (de Février à Juillet 2016).

M15 - **Louvel, S.**, Study of the interactions between an inorganic binder and vegetable granules: influence of both binder type and chemical composition of the raw material. *Stage de Fin d'Étude*, Master Génie Civil, Structures et Matériaux, LMDC, INSA, Toulouse, France (de Février à Juillet 2016).

M16 - **Correa, G.**, Development and characterization of new bio-based composite materials for the construction industry. *Semestre de Projet d'Initiation à la Recherche*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (de Février à Juillet 2016).

M17 - **Ahmed Maaloum, A.**, Contribution to the development and characterization of a fully biobased insulation panel for building applications. *Stage de Fin d'Étude*, Master Sciences des Matériaux, Spécialité Caractérisation, Élaboration et Application des Matériaux, UPPA, Pau, France (de Février à Juillet 2016).

M18 - **Parinet, J.**, The coriander straw, a promising renewable filler for the production of new injection-moldable biocomposites. *Stage de Fin d'Étude*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (de Septembre 2016 à Janvier 2017).

M19 - **Barthod-Malat, B.**, Optimisation du défibrage mécanique de la fibre de lin oléagineux en ouvreuse Laroche Cadette 1000 et étude de sa filabilité en vue de produire des géotextiles. *Semestre de césure*, ENSAIT, Roubaix, France (d'Octobre 2016 à Mars 2017).

M20 - **Ben Rhouma, A.**, Développement d'un procédé de fractionnement de la tige de maïs pour obtenir des granulats de moelle et d'écorce valorisables en construction. *Stage de Fin d'Étude*, Master Sciences des Matériaux, Spécialité Caractérisation, Élaboration et Application des Matériaux, UPPA, Pau, France (de Février à Juillet 2017).

M21 - **Costa, G., El Kady, M., Fort, O., Jauretche, A., Marsal, A., Nair, P., Ravaute, R., Sohet, T.**, Agro-raffinage de plantes aromatiques. *Projet Fil Rouge*, École Nationale Supérieure des Ingénieurs en Arts Chimiques Et Technologiques, Toulouse, France (de Septembre 2017 à Avril 2018).

Ce Projet Fil Rouge a été récompensé en 2018 par un prix dans le cadre du concours national organisé par le groupe INEOS.

M22 - **Robillard, A.**, Caractérisation des émissions de composés organiques volatils oxygénés issus d'agromatériaux. *Stage de Fin d'Étude*, Master Chimie Analytique et Instrumentation, UPS, Toulouse, France (de Janvier à Juillet 2018).

M23 - **Ramaux, T.**, Procédé d'extraction et caractérisation physico-chimique de fibres d'ortie en vue de leur valorisation ultérieure dans les domaines textile et composite. *Stage de Fin d'Étude*, Master Ecoconception des Polymères et Composites, UBS, Lorient, France (d'Avril à Juillet 2018).

M24 - Moine, L., Kalmouni, L., Design and modeling of a wakesurf made of biosourced materials. *Projet tutoré S8*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (d'Octobre à Décembre 2018).

M25 - de Langalerie, G., L'amarante, une plante modèle pour la bioraffinerie du végétal. *Stage de Fin d'Étude*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (de Février à Juin 2019).

M26 - Larroque, T., Valorisation de fractions végétales fibreuses de plantes invasives du Sud-Est de la France dans les domaines textile, composite et papetier. *Stage de Fin d'Étude*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes France (de Février à Juin 2019).

M27 - Rivière, S., Clavier, O., Gobelet écoresponsable. *Projet tutoré S8*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (d'Avril à Juin 2019).

M28 - Samalens, F., Amélioration des propriétés d'usage de panneaux de fibres auto-liés 100% d'origine végétale réalisés par thermopressage et étude du scale-up de leur mise en forme. *Stage de Fin d'Étude*, Master Sciences et Génie des Matériaux, Spécialité Chimie et Physico-chimie des Matériaux, UPPA, Pau, France (de Mai à Juin 2019).

L1 - Haurou-Béjottes, O., Caractérisation physico-chimique de tourteaux de Jatropha et propriétés mécaniques des panneaux de particules obtenus par thermopressage de ces tourteaux. *Stage de Technicien*, Université Technologique de Compiègne (UTC), Compiègne, France (de Janvier à Mars 2013).

L2 - Vinet, J., Influence des conditions de thermopressage sur les propriétés mécaniques de panneaux de fibres biodégradables issus d'un tourteau délipidé de tournesol plante entière. *Stage de Technicien*, École Nationale Supérieure de Chimie de Rennes, Rennes, France (de Mai à Juillet 2013).

Je suis également membre du comité de la thèse de **G. Cazaudehore**, commencée au début de l'année 2019 à l'UPPA (laboratoire IPREM, UMR 5254). Portant sur l'étude de la biodégradabilité par méthanisation de supports bioplastiques biodégradables, ce travail de thèse visera à étudier les performances de l'écologie microbienne associée.

3. Responsabilités administratives :

Au travers du poste que j'occupe actuellement, j'assure la responsabilité logistique et administrative de la plateforme AGROMAT, la gestion de ses personnels, des actions de formation et de communication ainsi que la prospection de nouveaux clients. Je suis également membre du Conseil Pédagogique de l'ENIT depuis 2010, membre de la Commission Recherche de l'IUT de Tarbes depuis 2012, membre fondateur du CA du Cluster 47 DEMAIN (DÉveloppement de MATériaux Innovants), porté par la Communauté de Communes Val de Garonne (Marmande), et membre du GDR MBS (Matériaux de construction BioSourcés), porté par l'Institut Pascal (UMR 6602) d'Aubière.

Je suis également co-animateur du groupe thématique « *Matériaux* » du LCA et le représentant du laboratoire au sein de la SF SIRYUS. À ce titre, j'ai participé de façon active au montage du dossier de labellisation de cette SF, labellisée auprès de l'AERES en 2012. Je participe encore aujourd'hui à son animation scientifique lors de réunions périodiques.

Par ailleurs, j'ai participé en tant que membre du comité d'organisation et membre du comité scientifique à la mise en place de la 3^{ème} édition des Journées Jeunes Chercheurs Éco-composites et Composites Bio-sourcés qui s'est tenue les 15 et 16 Mars 2018 à l'ENI de Tarbes. J'étais également membre du comité scientifique de la 8^{ème} édition de l'International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018) qui s'est tenue du 28 au 31 Août 2018 à l'ENI de Tarbes. J'ai aussi été membre du comité scientifique local chargé de l'organisation de la 15^{ème} édition de

l'International Conference on Renewable Resources & Biorefineries (RRB15) qui s'est tenue du 3 au 5 Juin 2019 à l'ENSIACET (Toulouse).

Enfin, j'ai contribué en tant que représentant du LCA-AGROMAT aux actions suivantes :

■ Rédaction du Rapport d'Expérimentation « **Enseignement Supérieur - Recherche** » déposé en 2010 par le Grand Tarbes dans le cadre de l'appel à projet « **20 villes moyennes témoins** », lancé par la DIACT.

■ Rédaction du « **Guide de la Recherche** » édité en 2011 par le Grand Tarbes.

■ Rédaction de la demande de création du CRTCI à Tarbes auquel est associée la plateforme AGROMAT au même titre que l'ENIT, autre acteur académique du site Tarbais travaillant sur les matériaux composites ; aidé financièrement par la Région Occitanie tant pour la construction du bâtiment que pour l'acquisition des équipements, ce centre innovant est opérationnel depuis le début de l'année 2018.

■ Élaboration du volet dédié à la recherche du projet de Département Génie Civil à l'IUT de Tarbes, conjointement au LMDC de l'INSA de Toulouse ; ce département a ouvert ses portes aux étudiants lors de la rentrée universitaire 2014-2015.

4. Participation à des jurys :

Outre les jurys d'évaluation des travaux des stagiaires qu'il m'a été donné d'encadrer, je participe également chaque année depuis 2011 aux jurys du concours d'entrée à l'ENIT. J'ai également été membre invité au jury de soutenance de trois Thèses de Doctorat de l'Université de Toulouse, la première présentée et soutenue par M. Guillaume Gamon le vendredi 12 Juillet 2013 (**T1**), la seconde par M. Quang Hung Nguyen le jeudi 24 Septembre 2015 (**AT9**) et la troisième par Mlle Evelien Uitterhaegen le mardi 26 juin 2018 (**T2**).

Par ailleurs, j'ai également été rapporteur et membre suppléant du jury de soutenance de la Thèse de Doctorat de Mlle Angela Tatiana Luengas Muñoz. Réalisée en cotutelle entre l'UPPA (France) et l'UPB (Espagne), cette Thèse de Doctorat a été soutenue le jeudi 17 Décembre 2015 à Bilbao (Espagne). Elle était intitulée "**Indoor air treatment by coupling biofiltration and adsorption**".

V. Animation, encadrement de la recherche et expertise :

Dans ce chapitre, il est proposé un état des lieux de mes différentes actions d'animation et d'encadrement de la recherche : coordination ou simple participation à des projets de recherche, ou autres partenariats institutionnels ou industriels. Une liste des projets de recherche que j'ai contribués à monter et ayant été ensuite acceptés à financement ou étant en cours d'instruction aujourd'hui est également proposée, de même qu'une liste des étudiants en Thèse de Doctorat pour lesquels j'ai assuré une responsabilité d'encadrement (sous la forme d'une codirection ou d'une simple assistance technique et scientifique). Enfin, la fin de ce chapitre est consacrée à mes activités d'expertise.

1. Projets de recherche :

Depuis ma prise de fonction en tant qu'Ingénieur de Recherche au LCA, j'ai été impliqué dans différents projets de recherche traitant le plus souvent du fractionnement de la matière végétale ou de sa transformation en agromatériaux. Suivent les principaux projets de recherche auxquels j'ai participé, classés par ordre chronologique. Pour chacun d'eux, sont précisés mon niveau d'implication (coordination ou assistance technique et/ou scientifique), l'organisme financeur (entre parenthèses) ainsi qu'un bref descriptif du projet.

PR1 - **Projet BioTPE** (bioraffinage du tournesol plante entière) (Région Midi-Pyrénées) : coordonnateur (2008-2012).

Faisant suite à mon travail de Thèse de Doctorat, ce projet avait pour objectif le développement technique du procédé de bioraffinage de la plante entière de tournesol par fractionnement thermo-mécano-chimique en extrudeur bi-vis. Il a permis l'embauche d'un ingénieur de valorisation pour une durée d'un an, sous mon entière responsabilité.

Grâce à l'intervention du cabinet conseil en cosmétique ActionBio (Mme Catherine Bonnafous), ce projet a permis de confirmer toutes les potentialités des deux émulsions issues de ce nouveau procédé pour une utilisation dans le domaine de la formulation cosmétique. Il a également conforté les premiers résultats obtenus lors de mon travail de thèse concernant la mise en forme du raffinat en agromatériaux par thermopressage ou par thermomoulage.

Enfin, ce projet de recherche a permis le dépôt d'un brevet d'invention auprès de l'INPI.

PR2 - **Projet VEGECOMP** (ADEME BIP) : coordonnateur (2010-2013).

Porté par la PME des Hautes-Pyrénées Vegeplast, ce projet avait pour objectif de développer de nouveaux matériaux biocomposites injectables par incorporation de fibres végétales dans des matrices thermoplastiques biosourcées et biodégradables à l'aide de la technologie d'extrusion bi-vis.

PR3 - **Projet BABETHANOL** (Union Européenne / FP7-ENERGY n° 227498) : participant au travers d'une assistance technique (2009-2014).

Ce projet qui s'est déroulé de 2009 à 2014 avait pour objet de mettre au point un procédé continu, innovant et durable, combinant une action thermo-mécano-chimique et une action biocatalytique en extrudeur bi-vis, pour la production d'éthanol lignocellulosique (bioéthanol de seconde génération) à partir de matières premières végétales (co-produits agricoles) provenant d'Europe et d'Amérique Latine parmi lesquelles les co-produits (tige et rafle) déshydratés de la culture du maïs doux, la bagasse de

canne à sucre, la bagasse d'agave bleue, la sciure de bois d'eucalyptus, les sarments de vigne, les fibres résiduelles de la palme, la paille d'orge, etc.

Associant treize partenaires universitaires (sept européens et six latino-américains) durant cinq ans, ce projet a fait l'objet du dépôt d'un brevet et de trois publications dans des revues internationales à comité de lecture dont une, celle relative au transfert dudit procédé de bioextrusion à une échelle pilote (c'est-à-dire sur un extrudeur bi-vis de haute capacité), à laquelle j'ai été associé en tant que co-auteur (**A20**).

PR4 - Projet VEGEPACK (FUI 8) : participant au travers d'une assistance technique (2010-2013).

Porté par la PME des Hautes-Pyrénées Vegeplast et le groupe toulousain 3A, ce projet avait pour objectif de développer un nouvel emballage bioplastique, rigide et compostable, permettant la conservation des denrées alimentaires.

PR5 - Projet BIOEXTRA (FUI 7) : participant au travers d'une assistance technique (2010-2013).

Ce projet avait pour objectif de fractionner en milieu aqueux des co-produits de pin maritime et de peuplier à l'aide de la technologie bi-vis, ceci afin de produire des extraits polyphénoliques à activité antioxydante.

PR6 - Projet FOSSIL (Région Midi-Pyrénées) : coordonnateur (2013-2014).

Porté par la PME AB7 Industries (31), ce projet avait pour objet de développer de nouveaux matériaux actifs (matériaux thermoplastiques injectés sous la forme de colliers souples, matériaux coulables et matériaux porosifiés).

PR7 - Projet FOSSIL (phase n° 2) (Région Midi-Pyrénées) : coordonnateur (2015-2016).

Porté par la PME AB7 Industries (31), ce projet faisait suite au précédent. Il avait pour objets de développer des dispositifs, isolés thermiquement, de protection de la culture du maïs contre ses ravageurs d'une part, et un enrobage de protection des semences de maïs, de pois et de soja d'autre part.

PR8 - Projet BABET REAL 5 (Union Européenne / Horizon 2020) : participant au travers d'une assistance technique (2016-2020).

Ce projet porte sur la mise au point de nouvelles technologies et de nouvelles stratégies pour un développement durable et à grande échelle du bioéthanol de seconde génération à partir de la biomasse lignocellulosique. Associant quinze partenaires (onze européens et quatre latino-américains) durant quatre ans, ce projet fait suite au projet **BABETHANOL (PR3)** dans lequel j'avais également été impliqué, déjà au travers d'une assistance technique, entre 2009 et 2014. Son objectif final est de développer une solution alternative pour la production de bioéthanol, compétitive pour de petites unités industrielles, applicable à une grande variété de co-produits agricoles et multipliable dans les zones rurales de régions d'Europe ou du reste du monde.

2. Partenariats institutionnels ou industriels :

J'ai également été impliqué dans un certain nombre de partenariats institutionnels ou industriels. Ils sont eux aussi classés ci-dessous par ordre chronologique.

PI1 - Société TEMBEC (31) : participant au travers d'une assistance technique (2008-2009).

Ce partenariat industriel avait pour objectif d'optimiser le procédé d'extraction des tannins du bois de châtaigner, en milieu aqueux et à l'aide de la technologie bi-vis ; en raison de leurs propriétés

antioxydantes, les tannins sont devenus aujourd'hui des molécules d'intérêt dans des secteurs comme ceux de la cosmétique et de la pharmacie.

PI2 - Société **PMI** (Suisse) : participant au travers d'une assistance technique (2008-2009).

Ce partenariat industriel avait pour objectif d'optimiser le profil de vis à utiliser pour la fabrication de feuilles extrudées de tabac à l'aide de la technologie bi-vis.

PI3 - Participation au **PHC** franco-indonésien **NUSANTARA** sur le thème du fractionnement et de la transformation des graines oléagineuses en extrudeur bi-vis (n° du dossier EGIDE : 21410RM) (2010-2011).

Ce travail collaboratif mené avec Mlle Ika Amalia Kartika, Maître de Conférences à l'Institut Pertanian Bogor (Department of Agroindustrial Technology, FATETA, Bogor Agricultural University) a fait l'objet d'une visite d'une semaine en Indonésie en 2010 et des communications suivantes :

- Lors de mon séjour en Indonésie, une **CONFÉRENCE INVITÉE** à destination des personnels de la Bogor Agricultural University, intitulée "**The twin-screw extrusion technology: an original and powerful solution for the fractionation of vegetable matter**".

- Cinq publications dans des revues internationales à comité de lecture : **A7, A8, A10, A12** et **A21**.

- Trois communications dans des congrès internationaux : **AC9** et **AC10** (actes de congrès à comité de lecture) ainsi que **P20** (poster).

PI4 - Société **Bois Valor** (81) : coordonnateur (2010-2012).

Ce partenariat industriel avait pour objectif d'étudier l'injectabilité et les propriétés mécaniques d'un compound PLA/fibres RSH obtenu par extrusion-compoundage-granulation en extrudeur bi-vis.

PI5 - Société **The Green Factory** (75) : participant au travers d'une assistance technique (2010-2012).

Ce partenariat industriel avait pour objectif d'étudier le fractionnement thermo-mécano-chimique de fibres de miscanthus et de chanvre en extrudeur bi-vis pour la production de cellulose microfibrillaire (Zelfo®) à utiliser comme charge de renfort dans les biocomposites.

PI6 - Société **SPF DIANA** (56) : coordonnateur (2011).

Ce partenariat industriel avait pour objectif d'étudier la faisabilité d'une production de croquettes sèches destinées à l'alimentation des animaux domestiques (« *Pet Food* ») par extrusion bi-vis puis séchage continu. Il a notamment consisté en une étude de l'influence des paramètres opératoires de l'extrusion (profil de vis, profil de température, vitesse de vis, nombre et diamètre des inserts en filière) et du séchage (température, débit de circulation d'air, taux de renouvellement de l'air, temps de séchage) sur les caractéristiques des croquettes obtenues (diamètre, densité).

PI7 - Société **European Green Compound** (39) : coordonnateur (2011-2012).

Ce partenariat industriel avait pour objectif d'étudier l'injectabilité et les propriétés mécaniques (traction, flexion et résistance au choc Charpy) de composites thermoplastiques fournis par l'entreprise ; ceux-ci associaient une matrice de synthèse (PE, PP, PVC et PLA) et une charge de renfort d'origine végétale (noyau d'olive, pulpe d'olive, balle de riz, bois de hêtre et bois de pin) ainsi qu'un agent de couplage de l'interface matrice/fibre.

PI8 - **Communauté de Communes Cœur d'Estuaire** (44) : participant au travers d'une assistance technique et scientifique (2011-2014).

Ce partenariat institutionnel avait pour objectif d'éco-concevoir des matériaux pour la construction à partir de la biomasse (fibres naturelles) présente sur le territoire de CCCE.

PI9 - Société **Aquitaine Chanvre** (47) : coordonnateur (2013-2014).

Ce partenariat industriel (PTR) avait pour objectif d'étudier la faisabilité du défibrage du chanvre au moyen d'une ouvreuse de type Laroche (France) Cadette 1000 pour la production de fibres filables à utiliser comme mat tissé dans les biocomposites.

PI10 - Société **BUNGE** (USA) : coordonnateur (2013-2014).

Ce partenariat industriel avait pour objectif de caractériser des fractions de tourteaux industriels de tournesol issus de la trituration des graines pour la recherche de nouvelles voies de valorisation dans le domaine des agromatériaux.

PI11 - Société **Ovalie Innovation** (32) : coordonnateur (2014).

Ce partenariat industriel avait pour objectif de presser mécaniquement l'huile végétale de graines de moutarde à l'aide de la technologie bi-vis en vue d'étudier le pouvoir biocide du raffinat solide ainsi obtenu (farine déshuilée).

PI12 - Société **Ovalie Innovation** (32) : coordonnateur (2014-2018).

Ce partenariat industriel avait pour objectif d'étudier le bioraffinage conjugué de l'huile végétale et de l'huile essentielle de graines d'Apiacées, la graine de coriandre (*Coriandrum sativum* L.) ayant été choisie comme modèle. Une valorisation des raffinats solides issus du procédé en agromatériaux a été également envisagée.

Ce partenariat a fait l'objet d'une Thèse de Doctorat, débutée au LCA en Octobre 2014 par Mlle Evelien Uitterhaegen. Soutenue en Juin 2018, j'en assurais le co-encadrement.

PI13 - Société **Ovalie Innovation** (32) : coordonnateur (2016).

Ce partenariat industriel avait pour objectif de mettre au point un procédé de broyage de la tige de tournesol permettant non seulement de favoriser le décollement de la moelle de l'écorce mais également d'obtenir des morceaux de moelle d'une taille toujours inférieure à 10 mm. Ce procédé de broyage a été prolongé par le développement d'un dispositif continu permettant une élimination de l'écorce par séparation centrifuge et des poussières par tamisage, la moelle étant pour sa part récupérée en partie supérieure du tamiseur vibrant par aspiration. L'objectif final est de l'utiliser ultérieurement pour sa capacité d'isolation thermique dans le domaine du Génie Civil, notamment par incorporation dans des enduits (isolation par l'extérieur).

PI14 - Participation au **PHC** franco-indonésien **NUSANTARA** sur le thème du fractionnement et de la transformation des graines de Calophyllum en extrudeur bi-vis en vue de produire une huile végétale, un biodiesel, une oléorésine et des panneaux de particules renouvelables (n° du projet Campus France : 36742TD) (2016-2017).

Ce travail collaboratif mené avec Mlle Ika Amalia Kartika, Maître de Conférences à l'Institut Pertanian Bogor (Department of Agroindustrial Technology, FATETA, Bogor Agricultural University) a fait l'objet d'une visite d'une semaine en Indonésie en 2016. Il s'est poursuivi en 2018 par un séjour de deux mois de Mlle Ika Amalia Kartika en France dans le cadre du programme "Make Our Planet Great Again", financé par l'agence française pour la promotion de l'enseignement supérieur, l'accueil et la mobilité internationale (Campus France).

■ Lors de mon séjour en Indonésie, j'ai assuré une **CONFÉRENCE INVITÉE** à destination des personnels de la Bogor Agricultural University, intitulée **“The thermo-mechano-chemical twin-screw reactor, a new perspective for the biorefinery of sunflower whole plant: aqueous extraction of oil and other biopolymers, and production of biodegradable fiberboards from cake”**.

■ Des publications dans des revues internationales à comité de lecture (**A34, AP5, AP6, AP7**) ainsi que des communications dans des congrès internationaux (**C8, P31**) ont déjà été effectuées ou sont également envisagées pour les mois à venir.

PI15 - Société **Sticks Management (SmartWood)** (60) : coordonateur (2017-2019).

Ce partenariat industriel avait pour objectif de proposer à la société, à l'origine du tiers de la production mondiale de bâtonnets de glace, un moyen de valoriser ses écarts de production (bâtonnets non conformes présentant des défauts de planéité ou des surfaces irrégulières, nœuds, écorces, cylindres de cœur de grume, sciures, etc.). Les co-produits identifiés ont été utilisés pour la fabrication de nouveaux objets commercialisables dans le secteur alimentaire *via* les mêmes circuits de distribution que ceux déjà en place pour les bâtonnets. À terme, cela devrait permettre à la société de valoriser au mieux sa matière première, lui apportant un gain de productivité. L'étude a cherché à démontrer la faisabilité d'une déstructuration par procédé thermo-mécanique des bâtonnets non conformes en extrudeur bi-vis, suivie ou conjointe à un réassemblage, en présence ou en l'absence de liant, pour former de nouveaux objets.

PI16 - Participation au projet **PLASTIMETHA** (*“End of life of coffee capsules by anaerobic digestion”*) sur le thème de la fin de vie des capsules de café commerciales selon un processus de digestion anaérobie en vue de la production de biogaz (2018-2019).

Ce travail collaboratif mené avec M. Florian Monlau, Chargé de Recherche à l'APESA, avait pour objectif de développer un test (protocole) permettant d'évaluer la biodégradabilité par digestion anaérobie de capsules de café commerciales, déjà connues pour leur compostabilité selon la norme NF EN 13432. En effet, par comparaison au procédé de compostage industriel, la digestion anaérobie pourrait permettre la production et la récupération de biogaz, source d'énergie.

Dans le cadre de ce projet collaboratif, j'ai été chargé de l'étude physico-chimique des capsules avant et pendant leur biodégradation anaérobie : tenue mécanique en compression puis observation des faciès de rupture au MEB, mesure de l'adsorption d'eau par analyse DVS, détermination de la tenue en température des capsules par analyse ATG, etc.

Ce travail a déjà fait l'objet d'une communication dans un congrès international (**P46**). À terme, il est également prévu une publication dans une revue internationale à comité de lecture.

PI17 - Société **Nutricia** (40) : coordonateur (2018-2021).

Ce partenariat industriel a pour objectif d'étudier l'influence des propriétés physico-chimiques des matières premières entrant dans la composition des aliments pour poissons sur leurs propriétés d'usage. Au cours de ce projet de recherche, de nouvelles formulations optimisées seront développées ainsi qu'un procédé bi-vis novateur de plastification / mélange / granulation. Il est attendu de ce projet de recherche un saut technologique qui devra permettre à l'entreprise d'être innovante et rupturante pour, demain, concevoir différemment les granulés d'aliment pour poissons d'élevage.

L'objectif de l'étude sera ainsi pour Nutricia de mieux maîtriser les propriétés d'usage de ses granulés en termes (i) de relargage de matière grasse, (ii) de flottabilité, (iii) de dureté, (iv) de durabilité et (v) d'appétence, tout en prenant en compte les contraintes en termes (i) de coûts, (ii) d'approvisionnement et de disponibilité des matières premières et (iii) de qualité nutritionnelle et de digestibilité.

Cette étude s'organisera en les cinq phases suivantes : (i) une étude bibliographique, (ii) la mise en place de protocoles permettant la caractérisation physico-chimique des matières premières et des granulés actuellement produits, (iii) la simulation à petite échelle du procédé actuellement exploité par

l'entreprise sur le réacteur bi-vis de la plateforme AGROMAT, (iv) la production de nouvelles formulations et le développement d'un procédé bi-vis novateur, et (v) la réalisation de tests *in vivo* d'appétence et de digestibilité ainsi que le transfert du nouveau procédé bi-vis sur la ligne industrielle de la société.

Ce partenariat fait l'objet d'une Thèse de Doctorat via un financement CIFRE, débutée au LCA en Septembre 2018 par Mlle Asma Chaabani et dont j'assure le co-encadrement.

3. Participation au montage de projets de recherche :

Depuis mon arrivée à AGROMAT, j'ai également pu participer au montage de différents projets de recherche. La liste mentionnée ci-dessous propose un état des lieux de ceux ayant été acceptés à financement ou en cours d'instruction aujourd'hui, tous ayant été là encore classés par ordre chronologique.

MP1 - **Projet dédié au fractionnement et à la transformation des graines oléagineuses en extrudeur bi-vis**, soumis en 2009 dans le cadre du **PHC** franco-indonésien **NUSANTARA**. Soumis en collaboration avec Mlle Ika Amalia Kartika, Maître de Conférences à l'Institut Pertanian Bogor (Indonésie), ce travail collaboratif a fait l'objet entre 2010 et 2011 du partenariat institutionnel **PI3** cité précédemment.

MP2 - **Projet VEGECOMP**, soumis en 2010 dans le cadre de l'appel à projet **BIP** de l'**ADEME**. Soumis en collaboration avec la société Vegeplast (65), représentée par M. Antoine Longieras, Responsable R&D, ce travail avait pour objectif de mettre au point un biocomposite pour l'injection thermoplastique par incorporation de charges fibreuses végétales dans des matrices biosourcées. Il a fait l'objet entre 2010 et 2013 du projet de recherche **PR2** cité précédemment.

MP3 - **Projet dédié au fractionnement et à la transformation des graines de Calophyllum en réacteur bi-vis en vue de produire une huile végétale, un biodiesel, une oléorésine et des panneaux de particules renouvelables**, soumis en 2016 dans le cadre du **PHC** franco-indonésien **NUSANTARA**. Ce travail collaboratif a été soumis et accepté à financement (**PI14**) en collaboration avec Mlle Ika Amalia Kartika, Maître de Conférences à l'Institut Pertanian Bogor (Indonésie).

MP4 - **Projet DIVA**, soumis en 2016 dans le cadre de l'appel à projet **AAPBAT** de l'**ADEME**, dédié au développement de nouvelles méthodes industrielles pour la rénovation et la construction des bâtiments. Soumis en collaboration avec les sociétés Parex et Ovalie Innovation (32), cette dernière représentée par MM. Thierry Véronèse et Stéphane Ballas, Directeur Scientifique et Chargé de Projets, ce travail a été accepté à financement en 2016. Pour le LCA, il visait à transférer à l'échelle du pilote industriel un procédé de broyage et de séparation de la moelle et de l'écorce de la tige de tournesol, déjà développé au laboratoire (**PI13**), en vue d'une incorporation de la moelle dans des enduits projetés (pour une isolation thermique des bâtiments par l'extérieur).

MP5 - **Projet VENDRE**, soumis en 2016 dans le cadre de l'appel à projet **Chimie du Végétal et Matériaux Biosourcés** de l'**ADEME**, dédié à la mise en place de démonstrateurs pour la transition écologique et énergétique. Soumis en collaboration avec les entreprises Smurfit Kappa (Cellulose du Pin) (33) et Novacap (69) d'une part, et avec le Centre Technique du Papier (38) d'autre part, ce travail a été accepté à financement en 2017. Il visait à valoriser les extractibles issus des nœuds de pin maritime sous la forme d'ingrédients actifs, riches en polyphénols, pour des applications cosmétiques

(photoprotection de la peau). Il faisait suite au projet **BIOEXTRA (PR5)** auquel j'avais déjà participé sous la forme d'une assistance technique. Je suis intervenu dans le projet **VENDRE** au niveau de la valorisation des résidus de l'extraction continue (extrudats), ceci afin de les mettre en forme et/ou de les incorporer dans la fabrication de matériaux biosourcés qui ont ensuite été caractérisés, notamment en termes de résistance mécanique et de tenue à l'eau. Leurs performances ont alors été comparées à celles de matériaux commerciaux de façon à identifier les domaines d'application dans lesquels ils seraient susceptibles de trouver une utilisation (ameublement, bâtiment, emballages d'usage éphémère, etc.).

MP6 - Projet BIOPLAST, soumis en 2016 dans le cadre du 2nd appel à projet **Interreg V-A POCTEFA 2014-2020** de l'**Union Européenne**. Ce programme de coopération transfrontalière a été créé afin de promouvoir le développement durable des territoires frontaliers des trois pays que sont la France, l'Espagne et la Principauté d'Andorre. Porté par l'APESA (France), représenté par Mme Christine Ferrer, Chargée de Mission, et M. Florian Monlau, Chargé de Recherche, ce travail de recherche et d'innovation transfrontalière (entre la France et l'Espagne) a été accepté à financement en 2017. Il consiste à utiliser des déchets issus de l'agriculture et de l'agro-industrie pour la production de PHAs par fermentation bactérienne puis pour la production de biocomposites plastiques PHAs/fibres dans un concept d'économie circulaire (application au secteur agricole). Dans le cadre de ce projet, j'interviens à deux niveaux. Le premier consiste à produire à partir de ces déchets des effluents liquides enrichis en lipides par fractionnement bi-vis. Ces effluents sont ensuite utilisés par le LISBP pour l'obtention des PHAs. Je participe également au développement de formulations PHAs/fibres par compoundage bi-vis. Celles-ci sont destinées à l'obtention de films plats et de films soufflés par extrusion (films destinés notamment à l'ensilage, à l'enrubannage des balles, etc.), et de pots de repiquage pour plantes par injection thermoplastique.

MP7 - Projet SAVASCO (StructurAtion d'une filière de Valorisation transfrontalière des tiges de mAïs et de tourneSol pour la CONstruction), soumis en 2016 dans le cadre du 2nd appel à projet **Interreg V-A POCTEFA 2014-2020** de l'**Union Européenne**. Porté par le LMDC de l'INSA de Toulouse (France), représenté par M. Jean-Emmanuel Aubert, Professeur des Universités, et Mme Camille Magniont, Maître de Conférences, ce travail de recherche et d'innovation visait à structurer une filière de valorisation transfrontalière (entre la France et l'Espagne) des tiges de tournesol et de maïs pour la construction. Bien qu'ayant été accepté en seconde phase, ce projet n'a pu y être déposé suite au retrait de l'un des partenaires. Au cours de ce travail, il était prévu que je sois impliqué dans le développement d'un référentiel de caractérisation des deux principaux produits issus de la transformation de ces tiges : les écorces (sous la forme de granulats végétaux) et les moelles. Je devais également intervenir dans le développement et la caractérisation de produits de construction à base de ces tiges, à savoir des blocs préfabriqués avec complément d'isolation. Ce projet a été redéposé en 2019 au 3^{ème} et dernier appel à projet **Interreg V-A POCTEFA 2014-2020**. Il est actuellement en cours d'instruction.

MP8 - Projet EVAMIBA (Esters de glycérol « Verts » comme Adjuvants pour Matériaux Isolants Biosourcés Antimicrobiens), soumis en 2017 dans le cadre de l'appel à projet (action de ressourcement scientifique) du **Tremplin Carnot MECD**. Porté par le LMDC de l'INSA de Toulouse (France), représenté par Mme Camille Magniont, Maître de Conférences, ce travail de pré-maturation a été accepté à financement cette même année. Il a pour objectif le traitement d'isolants biosourcés par des formulations à base d'esters, ceci afin de limiter la prolifération microbienne (**AC20, P42**). Ces formulations avaient été développées par l'équipe de recherche « *Lipochimie et Réactivité Chimique des Agromolécules* » du LCA dans le cadre d'un précédent projet de type FUI, intitulé AGRIBTP (2012-2015) et portant sur la mise en place d'une filière de valorisation de sous-produits et produits de l'industrie agro-alimentaire destinée aux marchés du Bâtiment et des Travaux Publics. L'impact de ces

traitements sur la qualité de l'air intérieur des habitations est étudié au cours du projet. Les isolants biosourcés du projet sont ceux à base de moelle de tournesol et de maïs, développés conjointement entre le LCA et le LMDC lors des stages M2R d'Abdellahi Ahmed Maaloum en 2016 (M17) et d'Ahmed Ben Rhouma en 2017 (M20). Dans le cadre de ce projet, je suis impliqué dans la préparation des concentrats de moelle (séparation de la moelle et de l'écorce par le biais d'un procédé de soufflage) ainsi que dans la fabrication des blocs isolants qui sont obtenus par moulage à froid en présence d'un liant amylic puis séchage en étuve ventilée. Les écorces de tournesol et de maïs également générées sont quant à elles testées au cours du projet comme isolants en vrac (de type laine de bois ou ouate de cellulose).

MP9 - **Projet GEOFIBNET**, soumis en 2017 dans le cadre de l'appel à projet **READYNOV** de la Région Occitanie (thème « *Productions agro-alimentaires territorialisées et valorisation de la biomasse* »). Porté par la société Adient (Laroque d'Olmes, France), représentée par M. Mathias Daynie, Directeur d'Usine, ce travail de recherche et d'innovation a été accepté à financement cette même année. Il a pour objectif d'envisager l'utilisation de la paille de lin oléagineux en vue de produire des géotextiles. Dans le cadre de ce projet, je suis notamment impliqué dans l'optimisation du procédé d'extraction des fibres de la paille par utilisation de l'ouvreuse de type Laroche (France) Cadette 1000 de la halle AGROMAT.

MP10 - **Projet PRINT 4D**, soumis en 2017 dans le cadre de l'appel à projet de pré-maturation de la **Région Occitanie** (programme de recherche visant à apporter la preuve de concept). Porté par le LCA, représenté par M. Thierry Talou, Ingénieur de Recherche, ce programme de recherche a été accepté à financement cette même année. Il a pour objectif la validation technologique d'un concept de fabrication additive novateur : l'impression 3D d'objets odorisés (impression 4D). Pour ce faire, une première étape consiste à produire les fils odorisés qui sont nécessaires à l'alimentation de l'imprimante 3D. Cela nécessite l'incorporation préalable d'huiles essentielles ou de formulations parfumantes à l'intérieur du bioplastique sélectionné pour ce projet, à savoir le PLA. C'est précisément cette phase du projet qui est à ma charge. L'incorporation des molécules odorantes dans le PLA est effectuée *via* une étape de compoundage bi-vis.

MP11 - **Projet Plant2Soil**, soumis en 2017 dans le cadre de l'appel à projet **Horizon 2020** (H2020-BBI) de l'**Union Européenne**, dédié au développement de l'industrie des produits biobasés en Europe, plus précisément dans l'optique de mettre au point des fertilisants innovants pour accroître la durabilité des pratiques de fertilisation en agriculture (BBI.2017.D4-2017). Porté par Toulouse INP (France), représenté par M. Carlos Vaca-Garcia, Professeur des Universités, ce travail de recherche et d'innovation avait pour objectif le développement d'engrais et de biostimulants à libération contrôlée (CRFs) issus à la fois de sous-produits agricoles (en particulier ceux riches en protéines) et de biodéchets municipaux. Plus particulièrement, j'avais activement participé à la rédaction du Work Package **WP2** et du Work Package **WP3**.

Le premier (**WP2**) avait pour objectif de définir et de mettre en place les unités de production des CRFs nécessaires au bon déroulement du projet. Plus particulièrement, j'avais à ma charge de définir les caractéristiques d'un système mobile d'extrusion bi-vis nécessaire à la fabrication des CRFs sous la forme de granulés épançables.

Quant au second Work Package (**WP3**), il avait pour objectif de produire ces CRFs tout en maîtrisant leurs propriétés d'usage (propriétés mécaniques, capacité de libération contrôlée, estimation de leur efficacité à la fertilisation des cultures grâce à la réalisation de tests agronomiques, etc.). Pour ce Work Package, il était d'abord prévu une production de diverses formulations expérimentales de produits fertilisants, et ce d'abord en quantité limitée. Puis, sur la base de premiers résultats agronomiques, des productions ciblées devaient être menées à l'aide de l'unité mobile d'extrusion bi-vis préalablement

définie afin de produire ces nouveaux matériaux fertilisants en quantité suffisante pour la réalisation des tests normalisés nécessaires à leur homologation, à l'échelle de la serre ainsi qu'à celle du terrain. Ici, l'objectif était de montrer aux agriculteurs et/ou aux collecteurs de biodéchets la capacité du procédé développé lors du projet à produire des CRFs à partir de ressources végétales locales, et ce avec des unités de taille moyenne et à l'échelle réelle.

Bien que très bien noté dès sa première instruction, ce projet n'a pas été accepté à financement : des travaux expérimentaux sont donc actuellement en cours au sein de la halle AGROMAT et à l'UNITO (Italie) afin d'enrichir son contenu avant une nouvelle soumission, à un appel à projet restant à définir.

4. Encadrement de la recherche :

Tout au long de mon parcours professionnel, il m'a été donné l'occasion d'encadrer des travaux de recherche menés au LCA au travers de Thèses de Doctorat ou de Post-Doctorats. Ces activités d'encadrement furent pour moi l'occasion de faire partager mes connaissances et autres compétences dans des domaines comme celui du fractionnement thermo-mécano-chimique de la matière végétale à l'aide de la technologie bi-vis ou celui de l'agroplasturgie. Depuis ma prise de fonction au sein de la halle AGROMAT, ces activités d'encadrement de la recherche ont aussi souvent été l'occasion de procéder à des opérations de transfert de technologie.

Parmi les travaux encadrés, six l'ont été sous la forme d'une codirection et vingt-deux autres sous la forme d'une assistance technique et scientifique. J'ai également eu l'occasion d'encadrer trois post-doctorants. Tous ces travaux d'encadrement sont mentionnés ci-dessous.

a. Codirection de Thèses de Doctorat :

T1 - **Gamon, G.**, Incorporation de fibres végétales dans des matrices thermoplastiques biosourcées et biodégradables par extrusion bi-vis pour la production de matériaux biocomposites moulés par injection. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2010-2013).

T2 - **Uitterhaegen, E.**, Study of the integrated biorefinery of vegetable and essential oil in *Apiaceae* seeds (Étude du bioraffinage conjugué d'huile végétale et d'huile essentielle issues de graines d'*Apiaceae*). *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2014-2018).

Lauréate du prix Léopold Escande 2018 récompensant chaque année les meilleures Thèses de Doctorat de l'INP de Toulouse.

T3 - **Chaabani, A.**, Influence des propriétés physico-chimiques des matières premières entrant dans la composition d'aliments pour poissons : nouvelles formulations optimisées et développement d'un procédé bi-vis novateur. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (thèse en cours depuis Septembre 2018).

T4 - **Ratsimbazafy, H.H.**, Évaluation du Potentiel de co-produits Agricoles LOcaux valorisables dans le domaine des MATériaux de Construction (PALOMAC). *Thèse de Doctorat*, INSA, Toulouse, France (thèse en cours depuis Octobre 2018).

T5 - **Ullah Khan, S.**, Optimisation du procédé mécanique d'extraction des fibres de la paille de lin oléagineux et étude de l'influence de ce procédé sur leur filabilité en vue de produire des géotextiles. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (thèse en cours depuis Janvier 2019).

T6 - **Jamaledine, A.**, Bioraffinage des drèches de tomates. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (thèse en cours depuis Octobre 2019).

b. Assistance technique et scientifique de Thèses de Doctorat :

AT1 - **Humbert, J.**, Conception, élaboration et production d'agrocomposite à partir de tourteau de tournesol : étude du procédé d'extrusion-formulation-granulation et d'injection-moulage. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2004-2008).

AT2 - **Faye, M.**, Nouveau procédé de fractionnement de la graine de Neem (*Azadirachta Indica* A. Jussi) sénégalais : production d'un bio-pesticide, d'huile et de tourteau. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2006-2010).

AT3 - **Foret, S.**, Étude d'un nouveau procédé de fractionnement des co-produits de fabrication de jambon sec et des propriétés physico-chimiques et fonctionnelles des extraits et raffinats. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2008-2011).

AT4 - **Colas, D.**, Étude de la bioraffinerie des plantes vertes : Application au fractionnement des protéines de luzerne par extrusion bi-vis et chromatographie hydrophobe. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2008-2012).

AT5 - **Chabrat, É.**, Développement de nouvelles formulations d'agromatériaux thermo-plastiques par mélange en extrudeur bi-vis de céréales et de polymères issus de ressources renouvelables. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2008-2012).

AT6 - **Celhay, C.**, Fractionnement de co-produits de pin maritime (*Pinus pinaster*) et de peuplier (*Populus tremula*) pour l'obtention d'extraits polyphénoliques à activité antioxydante : procédé d'extraction aqueuse en extracteur bi-vis et étude des conditions subcritiques. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2010-2013).

AT7 - **Brault, J.**, Développement d'un procédé innovant de dégradation enzymatique des parois végétales pour la production de bioéthanol de seconde génération. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2010-2013).

AT8 - **Abdillahi, H.**, Propriétés barrières et mécaniques d'agromatériaux thermoplastiques à base de farine de blé et de polyesters biosourcés et biodégradables. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2010-2014).

AT9 - **Nguyen, Q.H.**, Étude de la bioaccumulation et de l'extraction séquentielle des huiles végétale et essentielle issues de graines de coriandre (*Coriandrum sativum*) originaires d'Europe et d'Asie. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2010-2015).

AT10 - **Rigal, M.**, Valorisation de la biomasse présente sur le territoire de la Communauté de Communes Cœur d'Estuaire (44) : Étude des propriétés physico-chimiques de matrices fibreuses et de fractions extractibles, pour leur mise en œuvre par voie de thermopressage et d'injection-moulage en vue de l'obtention d'agromatériaux pour le secteur des éco-industries. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2011-2015).

AT11 - **Diedhiou, D.**, Bioraffinage du Neem (*Azadirachta indica* A. Jussi) : valorisation intégrée des constituants de la graine par fractionnement. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2011-2017).

AT12 - **Magimel, A.**, Étude du fractionnement de plantes régionales sélectionnées pour l'obtention de fractions multifonctionnelles de type « émulsions actives » dans le domaine de la formulation à vocation santé et cosmétique. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2011-2016).

AT13 - **Rebière, J.**, Nouvelle méthodologie pour la caractérisation des distributions de masses moléculaires d'échantillons celluloses complexes. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2012-2016).

AT14 - **Charton, M.**, Valorisation de la biomasse algale résiduelle en biomatériaux. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2014-2017).

AT15 - **Sayed Ahmad, B.**, Étude de l'agroraffinage de graines d'*Apiaceae*, *Lamiaceae* et *Chenopodiaceae* pour la production de molécules biosourcées en vue d'application en industrie cosmétique. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2014-2018).

AT16 - **Kouassi Esaïe Kouadio, A.**, Contribution à la valorisation de sous-produits agricoles en bioproduits. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2014-2018).

AT17 - **Gatt, E.**, Déconstruction de matières végétales ligno-hémi-cellulosiques par extrusion biocatalytique : construction/élaboration d'un bioextrudeur. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2015-2018).

AT18 - **Del Carmen Fong Lopez, M.**, Développement d'un procédé innovant de la dégradation enzymatique des parois végétales mettant en œuvre des moyens thermo-mécano-chimiques. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2016-2019).

AT19 - **Grégoire, M.**, De la plante au fil technique : extraction, préparation et filature de fibres de chanvre (optimisation du potentiel mécanique des fibres pour des applications concernant des matériaux composites 100% bio-sourcés). *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2017-2020).

AT20 - **Altamirano de la Cruz, G.**, Développement et caractérisation de matériaux de construction composites à faible impact environnemental à base de tiges de maïs. *Thèse de Doctorat*, Université Paul Sabatier, Toulouse, France & Université Autonome de Nuevo León, Monterrey, Mexique (2017-2020).

AT21 - **Jumeaux, M.**, Nouveaux procédés de mise en œuvre de matériaux pour la valorisation de déchets agricoles contenant des scléroprotéines. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2018-2021).

AT22 - **Saad, M.**, Potentiel des fibres végétales courtes dans l'amélioration du comportement mécanique des mortiers. *Thèse de Doctorat*, Université Paul Sabatier, Toulouse, France (2018-2021).

c. Encadrement de Post-Doctorats :

PD1 - Co-encadrement scientifique de **Flavia Franzoso** (Ph.D.) (UNITO, Italie) dans le cadre d'une Short-Term Scientific Mission (STSM, EU-COST), d'une durée de deux mois (entre Juin et Juillet 2014) et sur le thème "**New biomaterials from extrusion**".

Ce travail a fait l'objet d'une publication (A18) dans un journal international à comité de lecture (Journal of Applied Polymer Science).

PD2 - Encadrement scientifique de **Roberto Nisticò** (Ph.D.) (UNITO, Italie) dans le cadre d'une Short-Term Scientific Mission (STSM, EU-COST), d'une durée d'un mois (Avril 2015) et sur le thème "**Extruded biobased composite films from urban biowaste added value products**".

Ce travail a fait l'objet de trois publications (A23, A26 et A31) dans des journaux internationaux à comité de lecture (ChemistrySelect, Trends in Green Chemistry et Journal of Cleaner Production).

PD3 - Encadrement scientifique de **Dyna Theng** (Ph.D.) (University of Girona, Spain) dans le cadre d'une mobilité internationale d'études (ERASMUS+, KA107), d'une durée d'un an (de Juin 2016 à Mai 2017) et sur le thème "**Feasibility of incorporating BIOLIGNIN™ as natural adhesive on binderless fiberboards made from rice straw previously treated using a thermo-mechano-chemical action in a twin-screw reactor**".

Fournie gracieusement par la société CIMV, la lignine utilisée au cours de ce programme était une lignine extraite de paille de blé *via* un procédé de type *organosolv*, mettant en œuvre un mélange d'acide acétique et d'acide formique et conduisant à l'extraction de 90% de la lignine présente initialement dans la paille, pour une pureté dans le produit final (BIOLIGNIN™) de 91%.

Ce travail a fait l'objet de deux publications (A27 et A38) dans des journaux internationaux à comité de lecture (Industrial Crops and Products et European Journal of Wood and Wood Products).

5. Activités d'expertise :

Diverses activités d'expertise ont accompagné mon parcours professionnel. Parmi les plus significatives, j'ai notamment évalué le projet **VALDAC** (« *VALorisation des Déchets du BTP issus du territoire d'Artois Comm.* ») dans le cadre de l'appel à projet 2014 de R&D de l'ADEME, relatif aux déchets du BTP.

Je suis également expert du projet collaboratif **NABITEX** visant à développer des textiles techniques innovants à partir de fibres naturelles, et ce pour des applications dans l'habitat (projet **InterReg V Sudoe**, 2018-2021).

Par ailleurs, je siège depuis 2017 au comité d'experts de l'appel à projet **READYNOV** de la **Région Occitanie**, dans la thématique « *Matériaux et procédés pour l'aéronautique et les industries de pointe* ».

Enfin, j'ai été amené à expertiser bon nombre d'articles scientifiques soumis dans divers journaux internationaux à comité de lecture :

- *Industrial Crops and Products* (ISSN : 0926-6690) : 6 expertises.
- *Journal of Applied Polymer Science* (ISSN : 1097-4628) : 4 expertises.
- *Foods* (ISSN : 2304-8158) : 2 expertises.
- *International Journal of Biological Macromolecules* (ISSN : 0141-8130) : 2 expertises.
- *Journal of Composite and Advanced Materials* (ISSN : 1169-7954) : 2 expertises.
- *Advanced Materials Research* (ISBN-13 : 978-0-87849-262-6) : 1 expertise.
- *Agronomy Research* (ISSN : 1406-894X) : 1 expertise.
- *Annals of Agrarian Science* (ISSN : 1512-1887) : 1 expertise.
- *Bioresource Technology* (ISSN : 0960-8524) : 1 expertise.
- *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* (ISSN : 1359-835X) : 1 expertise.
- *European Journal of Wood and Wood Products* (ISSN : 0018-3768) : 1 expertise.
- *Fibers* (ISSN : 2079-6439) : 1 expertise.
- *Frontiers in Materials (Polymeric and Composite Materials)* (ISSN : 2296-8016) : 1 expertise.
- *LWT - Food Science & Technology* (ISSN : 0023-6438) : 1 expertise.
- *Macedonian Journal of Chemistry and Chemical Engineering* (ISSN : 1857-562) : 1 expertise.
- *Molecules* (ISSN : 1420-3049) : 1 expertise.
- *Research in Agricultural Engineering* (ISSN : 1805-9376) : 1 expertise.

Enfin, je suis depuis le début de l'année 2015 *International Reviewer* au sein du journal indonésien *Jurnal Teknologi Industri Pertanian* (ISSN : 0216-3160). Il s'agit d'un journal international à comité de lecture.

VI. Production scientifique :

Bon nombre de mes travaux de recherche ont pu être valorisés sous la forme de publications dans des revues à comité de lecture, de chapitres de livres, de brevets d'invention, d'enveloppes Soleau, de communications à des congrès nationaux et internationaux ou d'autres communications orales. Les pages suivantes sont un récapitulatif de l'ensemble de cette production scientifique. À ce sujet, les références pour lesquelles le numéro est suivi d'une étoile correspondent aux publications et communications résultant d'une activité d'encadrement, le(s) nom(s) de la (des) personne(s) encadrée(s), et qui figure(nt) comme co-publiant(s), étant souligné(s).

Concernant les publications, je dispose à ce jour de quarante-et-un articles publiés, de sept articles soumis (en cours de révision), de dix articles en préparation, de vingt articles de congrès ou à diffusion limitée et de trois chapitres de livre dont un sous presse. Leurs versions complètes sont consultables sur mon profil *ResearchGate* : https://www.researchgate.net/profile/Philippe_Evon.

Mes travaux de Thèse de Doctorat furent aussi l'occasion en 2012 du dépôt d'un brevet d'invention auprès de l'INPI. Par ailleurs, cinq autres brevets d'invention sont déposés, en cours de dépôt ou en préparation, dont un rédigé conjointement avec la société Ovalie Innovation, ainsi que trois enveloppes Soleau. J'ai également effectué de nombreuses communications dans des congrès nationaux et internationaux, sous la forme de conférences invitées ou de communications orales (vingt-neuf au total) ou à travers la présentation de posters (quarante-neuf au total). Enfin, j'ai effectué vingt-cinq autres communications orales, sous la forme de conférences à destination du Grand Public (actions de vulgarisation scientifique), d'institutionnels ou de représentants des mondes industriel ou académique.

1. Publications dans des revues à comité de lecture :

a. Articles publiés :

A1 - Popineau, Y., Pineau, F., Evon, Ph., Bérot, S., Influence of pH and salt concentration on the emulsifying properties of native wheat gliadins and of their chymotryptic hydrolysates. *Nahrung/Food*, **43** (6), 361-367 (1999).

A2 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Direct extraction of oil from sunflower seeds by twin-screw extruder according to an aqueous extraction process: feasibility study and influence of operating conditions. *Industrial Crops and Products*, **26** (3), 351-359 (2007).

A3 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Aqueous extraction of residual oil from sunflower press cake using a twin-screw extruder: feasibility study. *Industrial Crops and Products*, **29** (2-3), 455-465 (2009).

A4 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Thermo-mechanical behaviour of the raffinate resulting from the aqueous extraction of sunflower whole plant in twin-screw extruder: manufacturing of biodegradable agromaterials by thermopressing. *Advanced Materials Research*, **112**, 63-72 (2010).

A5 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., The twin-screw extrusion technology, an original and powerful solution for the biorefinery of sunflower whole plant. *Oilseeds and fats, Crops and Lipids*, **17** (6), 404-417 (2010).

- A6** - Evon, Ph., Vandebossche, V., Rigal, L., Manufacturing of renewable and biodegradable fiberboards from cake generated during biorefinery of sunflower whole plant in twin-screw extruder: Influence of thermo-pressing conditions. *Polymer Degradation and Stability*, **97** (10), 1940-1947 (2012).
- A7** - Amalia Kartika, I., Yani, M., Ariono, D., Evon, Ph., Rigal, L., In situ transesterification of oil-containing *Jatropha curcas* seeds to produce biodiesel fuel. *Jurnal Teknik Kimia Indonesia*, **11** (1), 41-49 (2012).
- A8** - Amalia Kartika, I., Ariono, D., Evon, Ph., Rigal, L., Yani, M., Biodiesel production from *Jatropha* seeds: solvent extraction and in situ transesterification in a single step. *Fuel*, **106**, 111-117 (2013).
- A9*** - Gamon, G., Evon, Ph., Rigal, L., Twin-screw extrusion impact on natural fibre morphology and material properties in poly(lactic acid) based biocomposites. *Industrial Crops and Products*, **46**, 173-185 (2013).
- A10** - Evon, Ph., Amalia Kartika, I., Cerny, M., Rigal, L., Extraction of oil from *Jatropha* seeds using a twin-screw extruder: Feasibility study. *Industrial Crops and Products*, **47**, 33-42 (2013).
- A11** - Evon, Ph., Vandebossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., New thermal insulation fiberboards from cake generated during biorefinery of sunflower whole plant in a twin-screw extruder. *Industrial Crops and Products*, **52**, 354-362 (2014).
- A12** - Evon, Ph., Amalia Kartika, I., Rigal, L., New renewable and biodegradable particleboards from *Jatropha* press cakes. *Journal of Renewable Materials*, **2** (1), 52-65 (2014).
- A13*** - Evon, Ph., Vinet, J., Labonne, L., Rigal, L., Influence of thermo-pressing conditions on mechanical properties of biodegradable fiberboards made from a deoiled sunflower cake. *Industrial Crops and Products*, **65**, 117-126 (2015).
- A14*** - Nguyen, Q.H., Talou, T., Cerny, M., Evon, Ph., Merah, O., Oil and fatty acid accumulation during coriander (*Coriander sativum* L.) fruit ripening under organic agriculture. *The Crop Journal*, **3** (4), 366-369 (2015).
- A15*** - Uitterhaegen, E., Nguyen, Q.H., Sampaio, K.A., Stevens, C.V., Merah, O., Talou, T., Rigal, L., Evon, Ph., Extraction of coriander oil using twin-screw extrusion: Feasibility study and potential press cake applications. *Journal of the American Oil Chemists' Society*, **92** (8), 1219-1233 (2015).
- A16*** - Evon, Ph., Vinet, J., Rigal, M., Labonne, L., Vandebossche, V., Rigal, L., New insulation fiberboards from sunflower cake with improved thermal and mechanical properties. *Journal of Agricultural Studies*, **3** (2), 194-211 (2015).
- A17*** - Moreno, A., Keller, F.O., Evon, Ph., Labonne, L., Chabert, F., Obtaining and characterization of sandwich composite of polyamide 11 and jute fiber. *Revista de Extensão e Iniciação Científica UNISOCIESC*, **2** (2), 9-15 (2015).
- A18*** - Franzoso, F., Vaca-Garcia, C., Rouilly, A., Evon, Ph., Montoneri, E., Persico, P., Mendichi, R., Nisticò, R., Francavilla, M., Extruded versus Solvent Cast Blends of Poly(vinyl alcohol-co-ethylene) and Biopolymers Isolated from Municipal Biowaste. *Journal of Applied Polymer Science*, **133** (9), 43009 (2016).
- A19*** - Uitterhaegen, E., Nguyen, Q.H., Merah, O., Stevens, C.V., Talou, T., Rigal, L., Evon, Ph., New renewable and biodegradable fiberboards from a coriander press cake. *Journal of Renewable Materials*, **4** (3), 225-238 (2016).
- A20*** - Vandebossche, V., Brault, J., Hernandez-Melendez, O., Evon, Ph., Barzana, E., Vilarem, G., Rigal, L., Suitability assessment of a continuous process combining thermo-mechano-chemical and bio-catalytic action in a single pilot-scale twin-screw extruder for six different biomass sources. *Bioresource Technology*, **211**, 146-153 (2016).

- A21** - Amalia Kartika, I., Evon, Ph., Cerny, M., Suparno, O., Ariono, D., Hermawan, D., Rigal, L., Simultaneous solvent extraction and transesterification of jatropha oil for biodiesel production, and potential application of the obtained cakes for binderless particleboard. *Fuel*, **181**, 870-877 (2016).
- A22*** - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Labonne, L., Vinet, J., Pontalier, P.Y., Rigal, L., The thermo-mechano-chemical twin-screw reactor, a new perspective for the biorefinery of sunflower whole plant: aqueous extraction of oil and other biopolymers, and production of biodegradable fiberboards from solid raffinate. *Oilseeds & fats, Crops and Lipids*, **23** (5), D505 (2016).
- A23*** - Nisticò, R., Evon, Ph., Labonne, L., Vaca-Medina, G., Montoneri, E., Nègre, M., Francavilla, M., Vaca-Garcia, C., Magnacca, G., Franzoso, F., Extruded Poly(vinyl alcohol-co-ethylene) Composite Films Containing Biopolymers Isolated from Municipal Biowaste. *ChemistrySelect*, **1** (10), 2354-2365 (2016).
- A24*** - Uitterhaegen, E., Sampaio, K.A., Delbeke, E.I.P., De Greyt, W., Cerny, M., Evon, Ph., Merah, O., Talou, T., Stevens, C.V., Characterization of French coriander oil as source of petroselinic acid. *Molecules*, **21** (9), 1202 (2016).
- A25*** - Uitterhaegen, E., Labonne, L., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., Optimization of thermopressing conditions for the production of binderless boards from a coriander twin-screw extrusion cake. *Journal of Applied Polymer Science*, **134** (13), 44650 (2017).
- A26*** - Evon, Ph., Labonne, L., Nisticò, R., Nègre, M., Vaca-Garcia, C., Montoneri, E., Thermopressed binderless fiberboards made from post-harvest tomato and maize plants: influence of the raw material chemical composition and molding conditions. *Trends in Green Chemistry*, **3** (1), 1 (2017).
- A27*** - Theng, D., Arbat, G., Delgado-Aguilar, M., Ngo, B., Labonne, L., Evon, Ph., Mutje, P., Comparison between two different pretreatment technologies of rice straw fibers prior to fiberboard manufacturing: twin-screw extrusion and digestion plus defibration. *Industrial Crops and Products*, **107**, 184-197 (2017).
- A28*** - Uitterhaegen, E., Evon, Ph., Twin-screw extrusion technology for vegetable oil extraction: a review. *Journal of Food Engineering*, **212**, 190-200 (2017).
- A29*** - Ouagne, P., Barthod-Malat, B., Evon, Ph., Labonne, L., Placet, V., Fibre extraction from oleaginous flax for technical textile applications: influence of pre-processing parameters on fibre extraction yield, size distribution and mechanical properties. *Procedia Engineering*, **200**, 213-220 (2017).
- A30*** - Uitterhaegen, E., Labonne, L., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., Impact of a thermomechanical fiber pre-treatment using twin-screw extrusion on the production and properties of renewable binderless coriander fiberboards. *International Journal of Molecular Sciences*, **18**, 1539 (2017).
- A31*** - Nisticò, R., Evon, Ph., Labonne, L., Vaca-Medina, G., Montoneri, E., Vaca-Garcia, C., Nègre, M., Post-harvest tomato plants and urban food wastes for manufacturing plastic films. *Journal of Cleaner Production*, **167**, 68-74 (2017).
- A32*** - Evon, Ph., Barthod-Malat, B., Grégoire, M., Vaca-Medina, G., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Ouagne, P., Production of fiberboards from shives collected after continuous fibre mechanical extraction from oleaginous flax. *Journal of Natural Fibers*, <https://doi.org/10.1080/15440478.2017.1423264> (2018).
- A33** - Merah, O., Evon, Ph., Monneveux, Ph., Participation of green organs to grain filling in *Triticum turgidum* var *durum* grown under Mediterranean conditions. *International Journal of Molecular Sciences*, **19**, 56 (2018).
- A34** - Amalia Kartika, I., Cerny, M., Vandenbossche, V., Rigal, L., Sablayrolles, C., Vialle, C., Suparno, O., Ariono, D., Evon, Ph., Direct *Calophyllum* oil extraction and resin separation with a binary solvent of *n*-hexane and methanol mixture. *Fuel*, **221**, 159-164 (2018).

- A35** - **Ouagne, P., Evon, Ph., Placet, V., Soulat, D.**, From fibre extraction to the composite manufacturing processes: Which path to adopt to maximise the mechanical properties of natural fibre based composites? *AIP Conference Proceedings*, **1932**, 020004 (2018).
- A36*** - **Uitterhaegen, E., Burianová, K., Ballas, S., Véronèse, T., Merah, O., Talou, T., Stevens, C.V., Evon, Ph., Simon, V.**, Characterization of volatile organic compound emissions from self-bonded boards resulting from a coriander biorefinery. *Industrial Crops and Products*, **122**, 57-65 (2018).
- A37*** - **Uitterhaegen, E., Parinet, J., Mérian, T., Ballas, S., Véronèse, T., Merah, O., Talou, T., Labonne, L., Stevens, C.V., Chabert, F., Evon, Ph.**, Performance, durability and recycling of thermoplastic biocomposites reinforced with coriander straw. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **113**, 254-263 (2018).
- A38*** - **Theng, D., Arbat, G., Delgado-Aguilar, M., Ngo, B., Labonne, L., Mutje, P., Evon, Ph.**, Production of fiberboards from rice straw thermo-mechanical extrudates using thermopressing: influence of fiber morphology, water addition and lignin content. *European Journal of Wood and Wood Products*, **77** (1), 15-32 (2019).
- A39*** - **Eschenhagen, A., Raj, M., Rodrigo, N., Zamora, A., Labonne, L., Rigal, L., Evon, Ph., Welemane, H.**, Investigation of miscanthus and sunflower stalk fibers reinforced composites for insulation applications. *Advances in Civil Engineering*, ID 9328087, 1-7 (2019).
- A40*** - **Evon, Ph., Barthod-Malat, B., Grégoire, M., Vaca-Medina, G., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Ouagne, P.**, Fabrication de panneaux agglomérés de fibres à partir des anas collectés lors de l'extraction mécanique des fibres libériennes de la paille de lin oléagineux. *Journal of Composite and Advanced Materials*, **29** (1), 95-105 (2019).
- A41*** - **Grégoire, M., Ouagne, P., Barthod-Malat, B., Evon, Ph., Labonne, L., Placet, V.**, Extraction de fibres de lin oléagineux pour des applications textiles techniques : influence des paramètres de pré-traitement sur le rendement en fibres, la répartition granulométrique et les propriétés mécaniques. *Journal of Composite and Advanced Materials*, **29** (1), 107-112 (2019).

b. *Articles soumis :*

- AS1*** - **Grégoire, M., Barthod-Malat, B., Labonne, L., Evon, Ph., de Luycker, E., Ouagne, P.**, Investigation of the potential of hemp fibre straws harvested using a combine machine for the production of technical load-bearing textiles. *Industrial Crops and Products*, under review (2019).
- AS2*** - **Nguyen, Q.H., Talou, T., Evon, Ph., Cerny, M., Merah, O.**, Fatty acid composition and oil content during coriander fruit development. *Food Chemistry*, under review (2019).
- AS3** - **Bourdot, A., Magniont, C., Lagouin, M., Niyigena, C., Evon, Ph., Amziane, S.**, Impact of bio-aggregates properties on the chemical interactions with mineral binder: application to vegetal concrete. *Journal of Advanced Concrete Technology*, under review (2019).
- AS4** - **Jeannin, T., Yung, L., Evon, Ph., Labonne, L., Ouagne, P., Lecourt, M., Cazaux, D., Chalot, M., Placet, V.**, Are nettle fibers produced on metal-contaminated lands suitable for composite applications? *Materials Today: Proceedings*, under review (2019).
- AS5*** - **Ratsimbazafy, H.H., Magniont, C., Evon, Ph., Laborel-Préneron, A.**, Multi-physical characteristics of plant aggregates used in lightweight materials with mineral binder: A review. *Construction and Building Materials*, under review (2019).
- AS6** - **Sayed-Ahmad, B., Urrutigoity, M., Talou, T., Evon, Ph., Hijazi, A., Saad, Z., Cerny, M., Merah, O.**, Amaranth oilseed as a potential source of phytosqualene for cosmetic applications. *Industrial Crops and Products*, under review (2019).

AS7 - Jeannin, T., Yung, L., Evon, Ph., Labonne, L., Ouagne, P., Lecourt, M., Cazaux, D., Chalot, M., Placet, V., Native stinging nettle (*Urtica dioica* L.) growing spontaneously under short rotation coppice for phytomanagement of trace element contaminated soils: fibre yield, processability and quality. *Industrial Crops and Products*, under review (2019).

c. Articles en préparation :

AP1* - Uitterhaegen, E., Sampaio, K.A., Merah, O., Talou, T., De Greyt, W., Stevens, C.V., Evon, Ph., Influence of moisture content on vegetable oil extraction from coriander fruits by single- and twin-screw extrusion. *Bioresource Technology*, in preparation.

AP2* - Uitterhaegen, E., Robillard, A., Ballas, S., Véronèse, T., Merah, O., Talou, T., Stevens, C.V., Evon, Ph., Simon, V., Building materials: a comparative study of VOC emission rates involving commercial glued wood panels and fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *Journal of Hazardous Materials*, in preparation.

AP3 - Evon, Ph., Faye, M., Rigal, L., Prat, L., Development of a filling model for predicting the efficiency of the aqueous extraction of sunflower and neem vegetable oils using a pilot scale twin-screw extruder. *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*, in preparation.

AP4* - Ahmed Maaloum, A., Labonne, L., Sabathier, V., Evon, Ph., Magniont, C., Development and characterization of a fully biobased insulation material made of sunflower pith for building applications. *Journal of Building Physics*, in preparation.

AP5 - Amalia Kartika, I., Mujdalipah, S., Vandenbossche, V., Sablayrolles, C., Vialle, C., Evon, Ph., Isolation of vegetable oil and resin from *Calophyllum inophyllum* kernels through mechanical pressing plus water extraction using a twin-screw reactor: feasibility study. *Industrial Crops and Products*, in preparation.

AP6 - Vialle, C., De Vita, I., Evon, Ph., Amalia Kartika, I., Vandenbossche, V., Rigal, L., Sablayrolles, C., Innovative extrusion process eco-design for *Calophyllum inophyllum* as feedstock for biofuel production. *Industrial Crops and Products*, in preparation.

AP7 - Amalia Kartika, I., Vandenbossche, V., Sablayrolles, C., Vialle, C., Evon, Ph., Production of binderless fiberboards from *Calophyllum inophyllum* twin-screw extrusion cakes through thermopressing. *Journal of Renewable Materials*, in preparation.

AP8* - Uitterhaegen, E., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Talou, T., Merah, O., Evon, Ph., New thermal insulation blocks for building applications made from coriander straw using compression molding. *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, in preparation.

AP9* - Gamon, G., Evon, Ph., Rigal, L., Effect of injection-molding conditions on mechanical properties of poly(lactic acid) based biocomposites. *Industrial Crops and Products*, in preparation.

AP10* - Evon, Ph., Chino Geronimo, G., Labonne, L., Influence of thermo-pressing conditions on mechanical properties of fiberboards made from coco fibers. *Journal of Renewable Materials*, in preparation.

d. Articles de congrès ou à diffusion limitée :

AC1 - Bérot, S., Evon, Ph., Chaufer, B., Popineau, Y., Fractionnement d'un hydrolysate peptidique de blé par ultrafiltration en milieu acide. *Recueil des textes des conférences du colloque PROSÉTIA (Procédés de Séparation et de Transformation en Industrie Alimentaire)*, Rennes, France, 125-130 (1996).

- AC2** - Bérot, S., Evon, Ph., Chaufer, B., Popineau, Y., Fractionation of gliadin hydrolysates by ultrafiltration. *Proceedings of the Conference on Plant Proteins from European Crops; food and non-food applications*, Nantes, France (1996). Ed. by Guéguen, J., and Popineau, Y., 286-291, INRA Éditions, Springer, Paris, Heidelberg (1998).
- AC3** - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Transformation of sunflower whole plant by twin-screw extrusion technology according to an aqueous process: direct applications of the fractions obtained as bases for industrial products. *Proceedings of the 15th European Biomass Conference & Exhibition*, Berlin, Germany, 2094-2098 (2007).
- AC4** - Nenonene, A.Y., Sanda, K., Evon, Ph., Rigal, L., Thermochemical fractionation effect on mechanical behaviour of biomaterial based composites. *Proceedings of the 15th European Biomass Conference & Exhibition*, Berlin, Germany, 2084-2087 (2007).
- AC5** - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Manufacturing of biodegradable agromaterials by thermo-pressing of the raffinate resulting from the aqueous extraction of sunflower whole plant in twin-screw extruder. *Proceedings of the 17th European Biomass Conference & Exhibition*, Hamburg, Germany, 1576-1582 (2009).
- AC6** - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Thermo-mechanical behaviour of the raffinate resulting from the aqueous extraction of sunflower whole plant in twin-screw extruder: manufacturing of biodegradable agromaterials by thermo-pressing. *Proceedings of the International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials*, Tarbes, France (2009).
- AC7** - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., The twin-screw extrusion technology, an original and powerful solution for the biorefinery of sunflower whole plant. *Proceedings of the 18th European Biomass Conference & Exhibition*, Lyon, France, 1481-1489 (2010).
- AC8*** - Chabrat, É., Rouilly, A., Evon, Ph., Longieras, A., Rigal, L., Relevance of lab-scale conical twin-screw extruder for thermoplastic starch/PLA blends rheology study. *Proceedings of the 26th PPS Annual Meeting*, Banff, AB, Canada (2010).
- AC9** - Amalia Kartika, I., Ariono, D., Evon, Ph., Rigal, L., Biodiesel production from Jatropha seeds: solvent extraction and transesterification in a single step. *Proceedings of the 2nd NRCT-IFS Workshop on Research Advances in Natural Products, Food Science & Nutrition*, Bangkok, Thailand (2011).
- AC10** - Amalia Kartika, I., Yani, M., Ariono, D., Evon, Ph., Rigal, L., Transformation of Jatropha seed to biodiesel by in situ transesterification. *Proceedings of the International Seminar on Chemical Engineering Soehadi Reksowardojo 2011*, Bandung, Indonesia (2011).
- AC11*** - Gamon, G., Evon, Ph., Longieras, A., Rigal, L., Incorporation of natural fibres in a biodegradable thermoplastic polymer via a twin-screw extruder. *Proceedings of the 5th International Wood Fibre Polymer Composites Symposium*, Biarritz, France (2011).
- AC12** - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Thermo-pressing of cake meal from sunflower whole plant, one only operation for two actions: expression of residual oil and molding of biodegradable agromaterials. *Proceedings of the 18th International Sunflower Conference*, Mar del Plata, Argentina, 937-942 (2012).
- AC13*** - Magniont, C., Ratiarisoa, R.V., Louvel, S., Correa, G., Sabathier, V., Ginestet, S., Evon, Ph., Labonne, L., Escadeillas, G., Potentiel de la paille de lavande distillée comme granulats végétal associé à un liant minéral. *Actes de la 17^{ème} édition des Journées scientifiques du Regroupement francophone pour la recherche et la formation sur le béton ((RF)²B)*, Marne-la-Vallée, France (2016).
- AC14*** - Sabathier, V., Louvel, S., Correa, G., Magniont, C., Evon, Ph., Labonne, L., Incidence of the water-soluble compounds contained into lavender and sunflower bioaggregates on the hardening process of mineral binders. *Proceedings of the 2nd International Conference on Bio-based Building Materials (ICBBM ECOGRAFI 2017)*, Clermont-Ferrand, France (2017).

AC15* - Sabathier, V., Ahmed Maaloum, A., Magniont, C., Evon, Ph., Labonne, L., Développement d'un panneau isolant 100% biosourcé à base de moelle de tournesol (Contribution to the design and the characterization of a fully bio-based insulating panel including sunflower pith). *Congrès National de la Recherche en IUT (CNRIUT2017)*, Auxerre, France (2017).

AC16* - Ouagne, P., Barthod-Malat, B., Evon, Ph., Labonne, L., Placet, V., Fibre extraction from oleaginous flax and hemp for technical textile applications: influence of pre-processing and processing parameters on fibre extraction yield, fibre size distribution and fibre mechanical properties. *Proceedings of the 3rd International Conference on Natural Fibers (ICNF 2017)*, Braga, Portugal (2017).

AC17* - Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., Production and characterization of novel renewable fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *Proceedings of the 6th International Conference on Biobased and Biodegradable Polymers (BIOPOL 2017)*, Mons, Belgium (2017).

AC18 - Bourdot, A., Magniont, C., Lagouin, M., Lambaré, G., Labonne, L., Evon, Ph., Evaluation of the potential of corn and sunflower bark particles as bio-aggregates for lightweight concrete. *Proceedings of SynerCrete 2018*, Funchal, Madeira Island, Portugal (2018).

AC19* - Uitterhaegen, E., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., The coriander straw, an original agricultural by-product for the production of building insulation materials. *Proceedings of the 3rd International Conference on Bio-based Building Materials (ICBBM 2019)*, 627-633, Belfast, United Kingdom (2019).

AC20 - Verdier, T., Balthazar, L., Montibus, M., Magniont, C., Evon, Ph., Bertron, A., Development of sunflower-based insulation materials coated with glycerol esters to prevent microbial growth. *Proceedings of the 3rd International Conference on Bio-based Building Materials (ICBBM 2019)*, 50-56, Belfast, United Kingdom (2019).

2. Chapitres de livres :

CL1 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Candy, L., Pontalier, P.Y., Rouilly, A., Twin-screw extrusion: a key technology for the biorefinery. *Biomass extrusion and reaction technologies: principles to practices and future potential*, American Chemical Society, ACS Symposium Series, eBooks, **1304 (2)**, 25-44 (2018).

CL2 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Candy, L., Rouilly, A., Pontalier, P.Y., The twin-screw extrusion technology, an innovative technique for the green extraction of food products. *Green Food Processing Techniques: Preservation, Transformation and Extraction*, Elsevier, **10**, 289-314 (2019).

CL3 - Ouagne, P., Soulat, D., Evon, Ph., Ferreira, M., Labonne, L., Use of flax fibres for high challenge technical textile applications: extraction, preparation and requirements for the manufacturing of composite reinforcement fabrics and for geotextiles. *Handbook of Natural Fibers (2nd Edition)*, Elsevier, in press.

3. Brevets d'invention :

B1 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Procédé de fabrication d'un matériau solide à partir d'une plante oléagineuse, et matériau solide obtenu (Method for manufacturing a solid material from an oleaginous plant, and resulting solid material). *Brevet FR 2 967 689* (2012).

B2 - Evon, Ph., Rouilly, A., Fournier, T., Salinier, A., Rein, C., Menny, V., Composite scléroprotéine (brevet déposé).

B3 - Evon, Ph., Rouilly, A., Fournier, T., A., Rein, C., Menny, V., Composite lignocellulosique (brevet déposé).

B4 - Evon, Ph., Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Simon, V., Ballas, S., Véronèse, T., Procédé d'obtention simultanée d'une huile végétale odorante et d'une eau aromatique à partir de graines d'Apiacées, et huile végétale odorante et eau aromatique obtenues (brevet en cours de dépôt).

B5 - Vaca-Garcia, C., Evon, Ph., Labonne, L., Rouilly, A., Novel controlled-release fertilisers from vegetable residues (brevet en préparation).

B6 - Sayed Ahmad, B., Hijazi, A., Evon, Ph., Saad, Z., Talou, T., Merah, O., Développement et caractérisation de panneaux de fibres biodégradables à partir de tourteaux de fenouil (brevet en préparation pour un dépôt au Liban).

4. Enveloppes Soleau :

ES1 - Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., Labonne, L., Utilisation d'un tapis de convoyage pour séparer la moelle de l'écorce provenant de la canne de tournesol (enveloppe Soleau déposée par Ovalie Innovation).

ES2 - Dellys, F., Debacker, F., Evon, Ph., Labonne, L., Raynaud, C., Système et procédé de fabrication d'un mélange de fibre de bois et de produits biosourcés pour l'industrie agroalimentaire (enveloppe Soleau déposée par SmartWood).

ES3 - Dellys, F., Debacker, F., Evon, Ph., Labonne, L., Raynaud, C., Système et procédé de fabrication d'un mélange de fibre de bois et de lignine pour l'industrie agroalimentaire (enveloppe Soleau déposée par SmartWood).

5. Communications à des congrès nationaux et internationaux :

a. Conférences invitées et communications orales :

C1 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Aqueous extraction of sunflower oil by twin-screw extruder: feasibility study, influence of screw configuration and operating conditions. *First Symposium on Sunflower Industrial Uses*, International Sunflower Association, Faculty of Agriculture, Udine, Italy (2006).

C2 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Thermo-mechanical behaviour of the raffinate resulting from the aqueous extraction of sunflower whole plant in twin-screw extruder: manufacturing of biodegradable agromaterials by thermo-pressing. *3rd International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials*, Tarbes, France (2009).

C3 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., The twin-screw extrusion technology, an original and powerful solution for the biorefinery of sunflower whole plant. *18th European Biomass Conference & Exhibition*, Lyon, France (2010).

C4 - Evon, Ph., Colas, D., Pontalier, P.Y., Rigal, L., The twin-screw extrusion technology, an original solution for the extraction of proteins from sunflower and alfalfa. *101st AOCS Annual Meeting & Expo*, AOCS, Phoenix, Arizona, USA (2010). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

C5 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., The aqueous extraction of sunflower oil from whole plant in twin-screw extruder, a first step for the manufacturing of biodegradable agromaterials by thermo-pressing. *World Conference on Oilseed Processing, Fats & Oils Processing, Biofuels & Applications*, AOCS, Izmir, Turkey (2011).

C6* - **Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Stevens, C.V., Rigal, L., Evon, Ph.**, Extrusion technology as a promising tool for vegetable oil extraction: biorefinery of *Apiaceae* fruits. *Biorefinery for Food, Fuels & Materials 2015 Symposium*, Montpellier, France (2015).

Communication orale effectuée par Mlle Evelien Uitterhaegen.

C7 - **Rouilly, A., Evon, Ph., Vandenbossche, V., Rigal, M., Rigal, L.**, Twin-screw extrusion: a versatile tool for the pretreatment of biomass. *253rd ACS National Meeting & Exposition*, ACS, San Francisco, California, USA (2017). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

Communication orale effectuée par M. Antoine Rouilly.

C8 - **Amalia Kartika, I., Aulya Syamani, F., Vandenbossche, V., Sablayrolles, C., Vialle, C., Evon, Ph.**, Production of binderless fiberboards from *Calophyllum inophyllum* twin-screw extrusion cakes through thermopressing. *4th International Conference on Biobased Materials and Composites (ICBMC2017)*, Nantes, France (2017).

C9 - **Talou, T., Sayed Ahmad, B., Merah, O., Evon, Ph., Cerny, M., Straumite, E., Sabovics, M., Kruma, Z., Saad, Z., Hijazi, A.**, Aroma-Tincto-Oleo Crops Agrorefinery: cases of fennel, cumin and caraway seeds global valorization. *11th Baltic Conference on Food Science and Technology*, Jelgava, Lettonie (2017).

Communication orale effectuée par M. Thierry Talou.

C10 - **Rouilly, A., Vandenbossche, V., Evon, Ph.**, Twin-screw extrusion: a key technology for the biorefinery of renewable resources. *13th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Wroclaw, Poland (2017). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

Communication orale effectuée par M. Antoine Rouilly.

C11 - **Ouagne, P., Evon, Ph., Placet, V.**, From fibre extraction to the composite manufacturing processes: which paths should be considered to maximise the mechanical properties of vegetal fibre based composites? *7th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials*, Bucharest, Romania (2017). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

Communication orale effectuée par M. Pierre Ouagne.

C12* - **Ouagne, P., Evon, Ph., Barthod-Malat, B., Grégoire, M., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T.**, Towards a global valorisation of the linseed flax stems (fibres and shives) for composites and other technical applications: analysis of the technical fibres and shives properties after extraction and manufacture of technical panels using the shives. *6th Conference on Natural Fibre Composites*, Rome, Italy (2017).

Communication orale effectuée par M. Pierre Ouagne.

C13* - **Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Simon, V., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, La technologie bi-vis, un outil polyvalent pour le bioraffinage de la coriandre et l'obtention de bioproduits aux multiples utilisations. *6^{ème} colloque du Réseau Français de Biologie des Graines (GRAINES 2017)*, Montpellier, France (2017).

C14* - **Grégoire, M., Ouagne, P., Barthod-Malat, B., Evon, Ph., Labonne, L., Placet, V.**, L'extraction des fibres du lin oléagineux pour des applications textiles techniques : influence des paramètres de prétraitement et de transformation sur le rendement d'extraction des fibres, la distribution de la taille des fibres et leurs propriétés mécaniques. *3^{ème} édition des Journées Jeunes Chercheurs Éco-composites et Composites Bio-sourcés*, ENIT, Tarbes, France (2018).

Communication orale effectuée par Mlle Marie Grégoire.

C15* - **Evon, Ph., Barthod-Malat, B., Grégoire, M., Vaca-Medina, G., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Ouagne, P.**, Fabrication de panneaux agglomérés à partir d'anas collectés après extraction mécanique des fibres situées sur le pourtour des tiges de lin oléagineux. *3^{ème} édition des Journées Jeunes Chercheurs Éco-composites et Composites Bio-sourcés*, ENIT, Tarbes, France (2018). *Communication orale effectuée par M. Benjamin Barthod-Malat.*

C16* - Uitterhaegen, E., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., La paille de coriandre, un résidu agricole original pour l'obtention de matériaux de construction 100% biosourcés. *Journée scientifique du GDR MBS*, Ifsttar, Champs sur Marne, France (2018).

C17* - Ouagne, P., Grégoire, M., Barthod-Malat, B., Gandat, B., Evon, Ph., Labonne, L., Placet, V., Impact of extraction of linseed flax and hemp fibre processed by a "all fibre line" and a scutching/hackling unit. *18th European Conference on Composite Materials (ECCM 18)*, Athens, Greece (2018).

Communication orale effectuée par M. Pierre Ouagne.

C18* - Evon, Ph., Uitterhaegen, E., Renewable binderless boards molded using vegetable proteins and lignocellulosic fibers: case studies of sunflower and coriander. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

C19* - Labonne, L., Chino, G., Evon, Ph., Influence of thermo-pressing conditions on the mechanical properties of fiberboards made from coconut fibers. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018).

Communication orale effectuée par M. Laurent Labonne.

C20* - Grégoire, M., Ouagne, P., Labonne, L., Evon, Ph., Minimisation of the hemp fibre extraction impact using "all fibre" devices. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018).

Communication orale effectuée par Mlle Marie Grégoire.

C21* - Ouagne, P., Grégoire, M., Barthod-Malat, B., Labonne, L., Placet, V., Evon, Ph., Vegetal fraction extraction and potential of valorisation of linseed flax stems. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

Communication orale effectuée par M. Pierre Ouagne.

C22* - Robillard, A., Uitterhaegen, E., Merah, O., Ballas, S., Véronèse, T., Talou, T., Evon, Ph., Simon, V., Building materials, a comparative study of VOC emission rates involving commercial glued wood panels and fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *Journée scientifique du GDR MBS, Halle Pajol, Paris, France* (2018).

C23 - Evon, Ph., Ouagne, P., Présentation du projet collaboratif GEOFIBNET (confection de géotextiles respectueux de l'environnement à partir de paille de lin oléagineux, un déchet agricole régional). *SIANE 2018 (salon des partenaires de l'industrie)*, Toulouse, France (2018). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

C24 - Grivot, S., Labonne, L., Simon, V., Evon, Ph., Talou, T., Utilisation de casques aéro-audio-olfactifs dans la gestion du stress en aéronautique. *14^{èmes} Journées du Cancéropôle Grand Sud-Ouest*, La Grande Motte, France (2018).

Communication orale effectuée par Mlle Sarah Grivot.

C25 - Grivot, S., Labonne, L., Simon, V., Evon, Ph., Talou, T., Utilisation de casques aéro-audio-olfactifs dans la gestion du stress en aéronautique. *AEROMART (convention d'affaires internationale des industries aéronautique et spatiale)*, Toulouse, France (2018). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

C26 - Ouagne, P., Grégoire, M., Barthod-Malat, B., Evon, Ph., Labonne, L., de Luycker, E., Placet, V., Mechanics of biobased fibrous assemblies: from single fiber to composite material. *22nd International Conference on Structure and Structural Mechanics of Textiles (STRUTEX)*, Liberec, Czech Republic (2018). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

Communication orale effectuée par M. Pierre Ouagne.

C27 - Chalot, M., Jeannin, T., Yung, L., Evon, Ph., Labonne, L., Ouagne, P., Lecourt, M., Cazaux, D., Placet, V., Cropping trees and fiber plants at phytomanaged sites. *SETAC Europe 29th Annual Meeting*, Helsinki, Finland (2019). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

Communication orale effectuée par M. Michel Chalot.

C28* - Simon, V., Robillard, A., Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Evon, Ph., Evaluation of formaldehyde and total volatile organic compounds emissions of fiberboards resulting from a coriander biorefinery versus commercial wood-based building materials. *15th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Toulouse, France (2019).

C29 - Jeannin, T., Yung, L., Evon, Ph., Labonne, L., Ouagne, P., Lecourt, M., Cazaux, D., Chalot, M., Placet, V., Are nettle fibres produced on metal-contaminated lands suitable for composite applications? *4th International Conference on Natural Fibers (ICNF 2019)*, Porto, Portugal (2019).

Communication orale effectuée par M. Thomas Jeannin.

b. Posters :

P1 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Aqueous extraction of sunflower oil by twin-screw extruder: feasibility study, influence of screw configuration and operating conditions. *First Symposium on Sunflower Industrial Uses*, International Sunflower Association, Faculty of Agriculture, Udine, Italy (2006).

P2 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Aqueous extraction of oleic sunflower oil from whole plant by twin-screw extruder: feasibility study, influence of screw configuration and operating conditions. *First International Congress on Green Process Engineering*, Toulouse, France (2007).

P3 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Transformation of sunflower whole plant by twin-screw extrusion technology according to an aqueous process: direct applications of the fractions obtained as bases for industrial products. *15th European Biomass Conference & Exhibition*, Berlin, Germany (2007).

P4 - Nenonene, A.Y., Sanda, K., Evon, Ph., Rigal, L., Thermochemical fractionation effect on mechanical behaviour of biomaterial based composites. *15th European Biomass Conference & Exhibition*, Berlin, Germany (2007).

P5 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Aqueous extraction of oil from sunflower seeds in batch reactor: reorganization of the mixing in three formulated fractions. *98th AOCS Annual Meeting & Expo*, AOCS, Québec City, QC, Canada (2007).

P6 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., New process for the biorefinery of sunflower whole plant by thermomechanical fractionation and aqueous extraction in a twin-screw extruder. *5th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Ghent, Belgium (2009).

P7 - Evon, Ph., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Prat, L., Biorefinery of sunflower whole plant by thermo-mechanical fractionation in twin-screw extruder: representation of liquid/solid transport inside the barrel. *2nd International Congress on Green Process Engineering*, Venice, Italy (2009).

P8 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Manufacturing of biodegradable agromaterials by thermo-pressing of the raffinate resulting from the aqueous extraction of sunflower whole plant in twin-screw extruder. *17th European Biomass Conference & Exhibition*, Hamburg, Germany (2009).

P9 - Talou, Th., Codoner Montoya, A.M., Doumeng, C., Evon, Ph., Merah, O., Alignan, M., Biorefinery of coriander seeds: from vegetable oil and essential oil co-extractions to by-products valorization. *6th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Düsseldorf, Germany (2010).

P10* - Nguyen, Q.H., Sriti, J., Codoner Montoya, A.M., Merah, O., Evon, Ph., Talou, Th., ATOC refinery: sequential valorization of agromolecules extracted from coriander leaves, seeds and roots. *7th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Bruges, Belgium (2011).

P11 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Rigal, L., Manufacturing of renewable and biodegradable fiberboards from cake generated during biorefinery of sunflower whole plant in twin-screw extruder. *3rd International Conference on Biodegradable & Biobased Polymers (BIOPOL 2011)*, Strasbourg, France (2011).

P12* - Gamon, G., Evon, Ph., Longieras, A., Rigal, L., Rheological behavior of vegetable fibre-PLA compounds for injection-molding. *3rd International Conference on Biodegradable & Biobased Polymers (BIOPOL 2011)*, Strasbourg, France (2011).

P13 - Evon, Ph., Rigal, L., Vilarem, G., Rouilly, A., Dangla, D., Vandenbossche, V., AGROMAT : un outil de démonstration pour la production d'agromatériaux. *40^{ème} Colloque National GFP 2011*, Pau, France (2011).

P14 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Thermo-pressing of cake meal from sunflower whole plant, one only operation for two actions: expression of residual oil and molding of biodegradable agromaterials. *18th International Sunflower Conference*, Mar del Plata, Argentina (2012).

P15* - Nguyen, Q.H., Merah, O., Evon, Ph., Talou, T., ATOC refinery: Aroma-Tincto-Oleo-Crops as a source of bio-active extracts for biosourced additives. *8th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Toulouse, France (2012).

P16 - Evon, Ph., Rigal, L., Vilarem, G., Vandenbossche, V., Rouilly, A., AGROMAT, a pre-industrial department for the development of agro-materials. *8th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Toulouse, France (2012).

P17 - Evon, Ph., Rigal, L., Vilarem, G., Rouilly, A., Dangla, D., Vandenbossche, V., AGROMAT : un outil de démonstration pour la production d'agromatériaux. *Rencontre Technique & Scientifique du CRITT Matériaux Alsace*, Strasbourg, France (2012).

P18* - Talou, T., Nguyen, Q.H., Evon, Ph., Merah, O., Aroma-Tincto-Oleo-Crops: potential worldwide sources for production of bioactive extracts, agromaterials, pelleted feeds and green charcoal. *9th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Antwerp, Belgium (2013).

P19 - Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., The thermo-mechano-chemical fractionation of sunflower whole plant in twin-screw extruder, an opportunity for its biorefinery. *104th AOCS Annual Meeting & Expo*, Montréal, QC, Canada (2013).

P20 - Evon, Ph., Amalia Kartika, I., Rigal, L., New renewable and biodegradable particleboards from jatropa press cakes. *4th International Conference on Biodegradable & Biobased Polymers*, Rome, Italy (2013).

P21* - Uitterhaegen, E., Sampaio, K.A., Delbeke, E.I.P., Nguyen, Q.H., Evon, Ph., Merah, O., Stevens, C.V., Talou, T., Coriander biorefinery: reactive extrusion and oleochemistry. *10th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Valladolid, Spain (2014).

P22* - Evon, Ph., Vinet, J., Rigal, M., Labonne, L., Vandenbossche, V., Rigal, L., New insulation fiberboards from sunflower cake with improved thermal and mechanical properties. *2nd International Conference on Bio-Based Polymers and Composites*, Visegrád, Hungary (2014).

P23* - Uitterhaegen, E., Deletraz, A., Dufour, A., Huy Bui, G., Ibnou, S.M., Merah, O., Evon, Ph., Talou, T., Simon, V., Biorefinery of coriander seeds cultivated in France. *10th Baltic Conference on Food Science and Technology*, Kaunas, Lithuania (2015).

- P24*** - **Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Stevens, C.V., Rigal, L., Evon, Ph.**, Extraction of flavored coriander oil through extrusion technology. *11th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, York, United Kingdom (2015).
- P25** - **Evon, Ph., Labonne, L., Rigal, L.**, The twin-screw extruder, a continuous liquid/solid extractor and separator during sunflower (*Helianthus annuus* L.) biorefinery. *Biorefinery for Food & Fuels & Materials 2015 Symposium*, Montpellier, France (2015).
- P26*** - **Uitterhaegen, E., Nguyen, Q.H., Merah, O., Stevens, C.V., Talou, T., Rigal, L., Evon, Ph.**, New renewable and biodegradable fiberboards from a coriander press cake. *5th International Conference on Biodegradable and Biobased Polymers (BIOPOL 2015)*, San Sebastian, Spain (2015).
- P27*** - **Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Stevens, C.V., Evon, Ph.**, Towards high vegetable oil recoveries through combined pressing and green solvent extraction using twin-screw extrusion technology. *12th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Ghent, Belgium (2016).
- P28** - **Talou, T., Labonne, L., Evon, Ph.**, Self-bonded fiberboard from lavender straw, an environmentally-friendly material. *12th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Ghent, Belgium (2016).
- P29*** - **Uitterhaegen, E., Schlossareck, C., Evon, Ph., Merah, O., Talou, T., Stevens, C.V., Jung, S.**, Enzyme-assisted aqueous extraction of coriander vegetable oil from a twin-screw extrusion press cake. *IFT16 Annual Meeting & Food Expo*, Chicago, IL, USA (2016).
- P30*** - **Burianová, K., Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Evon, Ph., Simon, V.**, Volatile organic compound emissions from agromaterials resulting from a coriander biorefinery. *International Conference on Environmental & Food Monitoring (ISEAC39)*, Hamburg, Germany (2016).
- P31** - **Amalia Kartika, I., Aulya Syamani, F., Vandenbossche, V., Sablayrolles, C., Vialle, C., Evon, Ph.**, Production of binderless fiberboards from *Calophyllum inophyllum* twin-screw extrusion cakes through thermopressing. *4th International Conference on Biobased Materials and Composites (ICBMC2017)*, Nantes, France (2017).
- P32*** - **Ahmed Maaloum, A., Sabathier, V., Evon, Ph., Magniont, C., Labonne, L.**, Contribution to the design and the characterization of a fully bio-based insulated panel including sunflower pith. *2nd International Conference on Bio-based Building Materials (ICBBM ECOGRAFI 2017)*, Clermont-Ferrand, France (2017).
- P33*** - **Simon, V., Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, Innovant agromaterials from biorefinery of coriander: impact of VOC emissions of particleboards on indoor air quality. *Europe's Analytical Chemistry Meeting (Euroanalysis 2017)*, Stockholm, Sweden (2017).
- P34** - **Beaufils, N., Oriez, V., Pontalier, P.Y., Evon, Ph.**, Fractionnement d'extraits alcalins de résidus lignocellulosiques. *1^{er} Congrès Francophone sur la Séparation Fluides-Particules (FRANCOFILT 2017)*, Bordeaux, France (2017).
- P35*** - **Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, Production and characterization of novel renewable fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *Proceedings of the 6th International Conference on Biobased and Biodegradable Polymers (BIOPOL 2017)*, Mons, Belgium (2017).
- P36*** - **Ahmed Maaloum, A., Sabathier, V., Evon, Ph., Magniont, C., Labonne, L.**, Contribution à la formulation et à la caractérisation d'un panneau isolant thermique 100% biosourcé. *Journée de Rencontre Laboratoires/Entreprises consacrée à la Transition Énergétique*, Université Fédérale Toulouse Midi-Pyrénées, Toulouse, France (2017).

P37* - Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Simon, V., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., La technologie bi-vis, un outil polyvalent pour le bioraffinage de la coriandre et l'obtention de bioproduits aux multiples utilisations. *6^{ème} colloque du Réseau Français de Biologie des Graines (GRAINES 2017)*, Montpellier, France (2017).

P38* - Uitterhaegen, E., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., La paille de coriandre, un résidu agricole original pour l'obtention de matériaux de construction 100% biosourcés. *Journée scientifique du GDR MBS, Ifsttar, Champs sur Marne, France* (2018).

P39* - Robillard, A., Uitterhaegen, E., Merah, O., Ballas, S., Véronèse, T., Talou, T., Evon, Ph., Simon, V., Building materials, a comparative study of VOC emission rates involving commercial glued wood panels and fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *14th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Ghent, Belgium (2018).

P40* - Talou, T., Costa, G., El Kady, M., Fort, O., Jauretche, A., Marsal, A., Nair, P., Ravaute, R., Sohet, T., Grivot, S., Simon, V., Evon, Ph., BIOREF-MAP: Sustainable biorefinery of aromatic plants for an environmental friendly production of essential oils, biosourced active molecules and biomaterials. *14th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Ghent, Belgium (2018).

P41 - Bourdot, A., Magniont, C., Lagouin, M., Lambaré, G., Labonne, L., Evon, Ph., Evaluation of the potential of corn and sunflower bark particles as bio-aggregates for lightweight concrete. *SynerCrete 2018*, Funchal, Madeira Island, Portugal (2018).

P42 - Verdier, T., Bertron, A., Magniont, C., Montibus, M., Evon, Ph., Monoglycerides to protect bio-based insulation materials from microbial growth. *Final Conference of RILEM TC 253-MCI: Microorganisms-Cementitious Materials Interactions*, Toulouse, France (2018).

P43* - Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., Production and characterization of novel renewable fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018).

P44* - Uitterhaegen, E., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., The coriander straw, an original agricultural residue for 100% bio-based building materials. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018).

P45* - Robillard, A., Uitterhaegen, E., Merah, O., Ballas, S., Véronèse, T., Talou, T., Evon, Ph., Simon, V., Building materials, a comparative study of VOC emission rates involving commercial glued wood panels and fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018).

P46 - Cazaudehore, G., Vasmara, C., Guyoneaud, R., Evon, Ph., Marchetti, R., Raynaud, C., Labonne, L., Jacquet, C., Monlau, F., End of life of biodegradable plastic supports through anaerobic digestion: case study of coffee capsules. *2nd International Conference on Bioresource Technology for Bioenergy, Bioproducts & Environmental Sustainability (BIO-RESTEC)*, Melia Sitges, Spain (2018).

P47* - Robillard, A., Uitterhaegen, E., Merah, O., Ballas, S., Véronèse, T., Talou, T., Evon, Ph., Simon, V., Building materials, a comparative study of VOC emission rates involving commercial glued wood panels and fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *Journée scientifique du GDR MBS, Halle Pajol, Paris, France* (2018).

P48* - Evon, Ph., de Langalerie, G., Ramaux, T., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Merah, O., Talou, T., Ouagne, P., Amaranth, a model for the future biorefinery of whole plants. *Plant fibres and biopolymers for biobased materials and composites applications, GDR SYMBIOSE & FLOWER project*, Nantes, France (2019).

P49* - Evon, Ph., de Langalerie, G., Labonne, L., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Innovative low-density blocks from amaranth pith for the thermal insulation of buildings. *15th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Toulouse, France (2019).

6. Autres communications orales :

CO1 - Evon, Ph., Les agromatériaux, une alternative aux objets plastiques d'origine synthétique. *Salon Agricole* (conférence à destination du Grand Public), Tarbes, France (2008). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO2 - Evon, Ph., Les agromatériaux, une alternative aux objets plastiques d'origine synthétique. *Salon Agricole* (conférence à destination du Grand Public), Tarbes, France (2009). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO3 - Evon, Ph., Les agromatériaux, une alternative aux objets plastiques d'origine synthétique. *Salon Agricole* (conférence à destination du Grand Public), Tarbes, France (2010). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO4 - Evon, Ph., Les perspectives de développement des produits d'origine agricole comme matériaux d'origine renouvelable. *CHEDD Midi-Pyrénées* (conférence à destination d'institutionnels et de représentants du monde industriel), ENSAT, Auzeville-Tolosane, France (2010). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO5 - Evon, Ph., Rouilly, A., Les agromatériaux : de la plante au plastique. *Les Médiations Scientifiques de l'INP de Toulouse* (conférence à destination de lycéens), Toulouse, France (2010). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO6 - Evon, Ph., The twin-screw extrusion technology: an original and powerful solution for the fractionation of vegetable matter. *PHC NUSANTARA* (conférence à destination d'universitaires), Department of Agroindustrial Technology, FATETA, Institut Pertanian Bogor, Bogor Agricultural University, Bogor, Indonesia (2010). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO7 - Evon, Ph., Les agromatériaux, une alternative aux objets plastiques d'origine synthétique. *Atelier VALUE* (conférence à destination d'institutionnels et de représentants du monde industriel), soutenu par Interreg IV B SUDOE et consacré à la valorisation des co-produits agro-alimentaires, Tarbes, France (2011). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO8 - Evon, Ph., Les agromatériaux, une alternative aux objets plastiques d'origine synthétique. *Salon Agricole* (conférence à destination du Grand Public), Tarbes, France (2012). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO9 - Evon, Ph., Les agromatériaux, une alternative aux objets plastiques d'origine synthétique. *La Nuit des Chercheurs* (conférence à destination du Grand Public), Météo France, Toulouse (2012). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO10 - Evon, Ph., AGROMAT : un outil de démonstration pour la production d'agromatériaux. *Journée Technologique « Plastiques biosourcés & fonctionnalisation de matières plastiques par addition de charges »* (conférence à destination d'institutionnels et de représentants du monde industriel), Midi-Pyrénées Innovation, ENSIACET, Toulouse (2012). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO11 - Evon, Ph., AGROMAT, un outil de transfert pour les matériaux biosourcés : existant et perspectives. *Les Journées de l'Économie, de l'Emploi et de la Recherche* (conférence à destination d'institutionnels et de représentants du monde industriel), Le Grand Tarbes, Campus VÉOLIA, Tarbes (2013). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO12 - Evon, Ph., Les agromatériaux, une alternative aux objets plastiques d'origine synthétique. *Atelier PROVALUE* (conférence à destination d'institutionnels et de représentants du monde industriel), soutenu par Interreg IV B SUDOE et consacré à la valorisation des co-produits agro-alimentaires, LCA, ENSIACET, Toulouse (2013). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO13 - Evon, Ph., AGROMAT, un outil de démonstration pour la production d'agromatériaux. *Cluster DEMAIN* (conférence à destination d'institutionnels et de représentants du monde industriel), pépinière EUREKA, Marmande, France (2014). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO14 - Evon, Ph., Le Laboratoire de Chimie Agro-industrielle, AGROMAT & leurs moyens dans le domaine des agrocomposites. *Journée Technologique « Textile / Agrocomposites »* (conférence à destination d'institutionnels et de représentants du monde industriel), MADEELI, ENIT, Tarbes, France (2016). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO15 - Evon, Ph., Mise au point pour le compte d'Ovalie Innovation d'un procédé de broyage et de tamisage de la tige de tournesol en vue de séparer la moelle de l'écorce. *Assemblée Générale du CATAR CRITT AGRORESSOURCES* (conférence à destination de représentants du monde industriel), ENSIACET, Toulouse, France (2016). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO16 - Evon, Ph., The thermo-mechano-chemical twin-screw reactor, a new perspective for the biorefinery of sunflower whole plant: aqueous extraction of oil and other biopolymers, and production of biodegradable fiberboards from cake. *PHC NUSANTARA* (conférence à destination d'universitaires), Department of Agroindustrial Technology, FATETA, Institut Pertanian Bogor, Bogor Agricultural University, Bogor, Indonesia (2016). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO17 - Rigal, M., Rigal, L., Evon, Ph., Rouilly, A., Vilarem, G., Kervoelen, A., Bourmaud, A., Baley, C., Vandenbossche, V., Le défibrage thermomécanique en extrudeur bi-vis, une voie de valorisation de biomasses lignocellulosiques dans les composites thermoplastiques *via* le traitement par une technologie unique. *3^{ème} séminaire du GDR SYMBIOSE* (conférence à destination d'universitaires), La Grande Motte, France (2017).

Communication orale effectuée par M. Matthieu Rigal.

CO18* - Uitterhaegen, E., Labonne, L., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., Coriander straw, an original lignocellulosic by-product for the mechanical reinforcement of polypropylene and biobased polyethylene. *3^{ème} séminaire du GDR SYMBIOSE* (conférence à destination d'universitaires), La Grande Motte, France (2017).

CO19 - Evon, Ph., Ballas, S., Past and present collaborative projects between LCA laboratory (Toulouse University, France) and Ovalie Innovation company for biomass production. *GREEN-CHEM (new international network on Green Chemistry & Circular Economy) kick-off meeting* (conférence à destination d'universitaires et de représentants du monde industriel), Ghent University, Gand, Belgique (2017). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO20 - Evon, Ph., Coriander straw, an original lignocellulosic by-product for the mechanical reinforcement of PP and BioPE. *PHC NUSANTARA* (visioconférence à destination d'universitaires), Biocomposites and Eco-Structure Laboratory, Research Center for Biomaterials, LIPI (Indonesian Institute of Sciences), Cibinong, Indonesia (2017). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO21 - Evon, Ph., Ballas, S., Past and present collaborative projects between LCA laboratory (Toulouse University, France) and Ovalie Innovation company for biomass production. *3^{ème} édition des Journées Jeunes Chercheurs Éco-composites et Composites Bio-sourcés* (conférence à destination d'universitaires), ENIT, Tarbes, France (2018). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO22 - Evon, Ph., Renforcement mécanique du PP et du BioPE à l'aide de paille de coriandre (influence du taux de charge, étude de la recyclabilité des composites et de leur comportement après vieillissement UV ou climatique). *Forum Recherche & Industrie « Matériaux Biosourcés »* (conférence à destination d'universitaires et de représentants du monde industriel), Institut Carnot 3BCAR, Paris, France (2018). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

CO23 - Evon, Ph., Ingénieur de Recherche au sein d'une halle de transfert technologique, au croisement des mondes académique et industriel. *11^{ème} Journées de l'ED SDM* (conférence à destination d'universitaires), ENSIACET, Toulouse, France (2018). **CONFÉRENCE INVITÉE. PARTICIPATION À UNE TABLE RONDE SUR L'INSERTION PROFESSIONNELLE DES DOCTEURS.**

CO24 - Talou, T., Evon, Ph., Biorefinery@LCA (Toulouse INP-ENSIACET): case study of global valorization of coriander. *6th Annual Workshop and Symposium of the G2C2 Global Network* (conférence à destination d'universitaires et de représentants du monde industriel), Ghent University, Gand, Belgique (2018). **CONFÉRENCE INVITÉE.**

Communication orale effectuée par M. Thierry Talou.

CO25 - Evon, Ph., Comment la Recherche et l'Innovation peuvent accompagner les entreprises dans le 4.0 ? *Sharing on Human, Innovation and Future Technologies (SHIFT)* (conférence à destination d'universitaires et de représentants du monde industriel), ENIT, Tarbes, France (2018). **CONFÉRENCE INVITÉE. PARTICIPATION À UNE TABLE RONDE SUR LES PROCÉDÉS ET LES MATÉRIAUX (technologies, organisation, métiers, formation).**

VII. Activités de recherche :

1. Introduction :

Face à la prise de conscience des risques liés à l'épuisement des ressources fossiles d'une part et aux émissions de gaz à effet de serre (le CO₂ en particulier) que provoque leur exploitation intensive d'autre part, des recherches sont menées depuis plusieurs années pour la mise au point de nouveaux procédés de fractionnement des agroressources, les plantes oléagineuses en particulier, selon le concept de la bioraffinerie (ou raffinerie du végétal) (Nieddu et Vivien, 2013). Celui-ci revient au cœur des réflexions prospectives sur l'évolution du développement de nos économies et sur les moyens de le rendre durable.

Née dans les années 90 et basée sur le modèle de la raffinerie pétrolière qui utilise du pétrole brut, d'origines variées, pour fabriquer des carburants et des produits dérivés, la raffinerie du végétal s'est formalisée autour de plusieurs critères :

- Envisager le fractionnement global de la biomasse, notamment par fractionnement de la plante entière, de façon à permettre une valorisation complète de l'intrant, y compris les co-produits de culture, afin de proposer une valorisation pour tous les constituants de la plante.

- Optimiser les co-valorisations.

- Concevoir un procédé respectueux de l'environnement :

- Réduire les émissions de CO₂ (la biomasse étant considérée comme un agent séquestrant du dioxyde de carbone, le bilan entre le CO₂ absorbé par la plante lors de sa croissance et le CO₂ émis pour la production culturale, la transformation du végétal et le recyclage des produits finis est généralement plus favorable).

- Diminuer les rejets d'effluents jusqu'à, idéalement, ne plus produire de déchets.

- Réduire voire éliminer l'usage ou la formation de substances dangereuses et/ou toxiques.

- Concevoir un procédé économe :

- De taille raisonnable, polyvalente et flexible, l'unité de transformation du végétal est située au plus près de son lieu de production afin de minimiser les coûts du transport nécessaire à l'approvisionnement de l'unité en matière première.

- Pour la distribution des produits finis à destination de la clientèle, il est également prévu une zone géographique la plus restreinte possible afin de limiter les frais d'expédition afférents.

La raffinerie du végétal ouvre donc la porte au développement d'une biotechnologie industrielle qui pourrait évoluer vers ce qu'est aujourd'hui la pétrochimie. Ressource renouvelable, la biomasse deviendrait alors une alternative au pétrole brut et une source importante de nouveaux produits aux usages courants et variés, dans des domaines énergétiques (biocarburants), non énergétiques (polymères, tensioactifs, solvants, lubrifiants, intermédiaires de synthèse, agromatériaux, etc.) et agroalimentaires. Partout dans le monde, de nombreux congrès internationaux sont d'ailleurs l'occasion de faire le point sur les avancées scientifiques et technologiques en rapport avec le sujet, dont quatre congrès en Europe auxquels il m'a été donné l'occasion à plusieurs reprises de présenter certains de mes travaux : BFFM (Biorefinery for Food, Fuels and Materials symposium), EBCE (European Biomass Conference & Exhibition), GPE (International Congress on Green Process Engineering) et RRB (International Conference on Renewable Resources & Biorefineries).

En outre, de nombreux travaux ont été réalisés dans ce sens au Laboratoire de Chimie Agro-industrielle concernant l'extraction, la séparation et la purification des constituants de la matière végétale, pour leur transformation chimique ou l'obtention d'agromatériaux composites (Bazus, 1991 ;

Manolas, 1993 ; Manolas et al., 1994, 1995 ; Lalou, 1995 ; N'Diaye, 1996 ; Lacaze-Dufaure, 1998 ; Leyris, 1998 ; Prat, 1998 ; Dufaure et al., 1999a, 1999b ; Maréchal et Rigal, 1999 ; N'Diaye et Rigal, 2000 ; Maréchal, 2001 ; Prat et al., 2002 ; Jorda, 2003 ; Amalia Kartika, 2005 ; Amalia Kartika et al., 2005, 2006, 2010 ; Colas, 2012 ; Colas et al., 2013a, 2013b ; Celhay, 2013 ; Celhay et al. , 2014). En particulier, mon travail de Thèse de Doctorat, soutenue en Avril 2008, a été consacré au développement d'un nouveau procédé de bioraffinage du tournesol plante entière (**A5, A22, B1, TD**). De tels travaux se sont poursuivis au laboratoire, notamment à partir d'autres plantes oléagineuses comme le neem (Faye, 2010 ; Diedhiou, 2017), le jatropha (**A7, A8, A10, A21**), la coriandre (Sriti et al., 2012 ; Nguyen, 2015 ; Uitterhaegen, 2014, 2018 ; **A15 ; A19 ; A24 ; A25 ; AP1**) et le fenouil (Sayed Ahmad, 2018). Il s'agit de travaux de recherche auxquels j'ai participé de façon active.

Pour la quasi-totalité des travaux auxquels il est fait référence dans le paragraphe précédent, c'est la technologie d'extrusion bi-vis qui a été choisie comme outil industriel pour le fractionnement thermo-mécano-chimique (TMC) de la matière végétale (Rigal, 1997, 2000). La suite de mon propos sera donc consacrée à une présentation détaillée de cette technique.

2. Les procédés d'extrusion bi-vis pour le fractionnement du végétal :

Afin d'optimiser son efficacité, le fractionnement du végétal nécessite le plus souvent l'application d'une triple contrainte (thermique, mécanique et chimique) à la matière première. D'autre part, l'utilisation d'appareils fonctionnant en continu et capables d'effectuer plusieurs opérations élémentaires en une seule étape permet une intensification des procédés de fractionnement de même qu'une meilleure co-valorisation des fractions produites.

À ce titre, l'extrusion bi-vis répond parfaitement à cette double exigence (**C7, C10, CL1, CL2**), permettant par la même occasion la production simultanée et de façon continue d'un extrait liquide et d'un raffinat solide. En particulier, la trituration des graines d'oléagineux pour la production d'huile, assistée ou non par un solvant (extraction ou expression par pressage mécanique, respectivement), a déjà été réalisée efficacement à l'aide de cette technologie :

- À partir de graines de tournesol (Isobe et al., 1992 ; Guyomard, 1994 ; Bouvier et Guyomard, 1997 ; Lacaze-Dufaure, 1998 ; Dufaure et al., 1999a, 1999b ; Amalia Kartika, 2005 ; Amalia Kartika et al., 2005, 2006, 2010 ; **A2 ; TD**).

- À partir de tourteaux gras de tournesol (**A3, TD**).

- À partir de la plante entière de tournesol (**A5, A22, B1, TD**).

- À partir de graines de colza (Guyomard, 1994 ; Bouvier et Guyomard, 1997).

- À partir de graines de neem (Faye, 2010 ; Diedhiou, 2017).

- À partir de graines de jatropha (**A10**).

- À partir de graines de coriandre (Sriti et al., 2012 ; Nguyen, 2015 ; Uitterhaegen, 2014, 2018 ; **A15 ; AP1**), etc.

a. Un bref historique sur l'extrusion bi-vis :

L'extrusion est un procédé par lequel un matériau susceptible de s'écouler sous différentes conditions contrôlées est poussé à chaud par une presse afin de le forcer à passer à travers une filière à une vitesse prédéterminée. L'extrusion permet donc le formage sous pression de produits éventuellement préchauffés.

Dès la fin du XVIII^{ème} siècle, cette technologie fut utilisée en Angleterre dans l'industrie métallurgique pour la fabrication de tuyaux de plomb sans soudure. Néanmoins, il faut attendre 1873 pour voir apparaître le premier extrudeur industriel mono-vis, utilisé pour la fabrication de câbles en

continu. À partir de 1930, l'extrusion mono-vis fut adaptée à l'industrie alimentaire pour la fabrication de saucissons et de pâtes alimentaires. À l'inverse, le premier extrudeur bi-vis semble avoir d'abord été utilisé dans l'industrie alimentaire pour la fabrication de saucisses. Il ne fit son apparition dans le domaine des polymères synthétiques que dans le courant des années 1940.

Le principe de base de l'extrudeur bi-vis utilisé pour l'industrie des thermoplastiques fut développé en Italie par Colombo et Pasquetti. Pour ce faire, de nouvelles machines furent conçues et leur fonctionnement fut également modélisé (Martelli, 1983). Colombo développa ainsi un système à vis co-pénétrantes et co-rotatives permettant d'y réaliser simultanément les deux opérations de mélange et d'extrusion. Ce nouveau concept fut très largement utilisé avant d'être remplacé par un extrudeur à vis contra-rotatives conçu par Pasquetti.

Depuis, la technologie de l'extrusion s'est développée grâce à la conception de nouveaux types de vis. Aujourd'hui encore, l'industrie agroalimentaire utilise abondamment l'extrusion bi-vis. Elle permet notamment la cuisson-extrusion des produits amylacés (produits céréaliers, biscuits, biscottes, snacks, crackers, etc.) mais aussi la texturation des protéines et la fabrication d'aliments pour les animaux d'élevage comme les poissons ainsi que les animaux de compagnie.

b. Les potentialités de l'extrusion bi-vis :

Très largement utilisée dans l'industrie alimentaire, l'extrusion bi-vis est une technologie plus coûteuse que l'extrusion mono-vis. Elle permet néanmoins un travail plus élaboré de la matière. Plus récemment, l'extrusion bi-vis a vu son champ d'application s'élargir au domaine du fractionnement thermo-mécano-chimique de la matière végétale (Rigal, 1997, 2000). Ce nouveau concept a permis le développement de véritables réacteurs capables de transformer ou de fractionner physiquement et chimiquement la matière végétale en une seule étape, pouvant aller jusqu'à l'obtention séparée d'un extrait et d'un raffinat par séparation liquide/solide en fin de profil de vis (Bouvier et Campanella, 2014). L'élévation de la température est alors due à la fois à un apport extérieur et à la dissipation visqueuse d'énergie mécanique dans le produit. Menés depuis près de vingt-cinq ans au LCA, plusieurs travaux ont mis en évidence les multiples possibilités de la technologie bi-vis pour le fractionnement et la valorisation des agroressources (**C7, C10, CL1, CL2**). Vous trouverez quelques exemples en suivant :

■ L'expression par pressage mécanique et/ou l'extraction au solvant de l'huile de graines oléagineuses (**A28**) :

● L'huile de tournesol (Lacaze-Dufaure, 1998 ; Dufaure et al., 1999a, 1999b ; Amalia Kartika, 2005 ; Amalia Kartika et al., 2005, 2006, 2010 ; **A2 ; A3 ; A5 ; A22 ; B1 ; TD**).

● L'huile de neem (Faye, 2010 ; Diedhiou, 2017).

● L'huile de jatropha (**A10**).

● L'huile de coriandre (Sriti et al., 2012 ; Nguyen, 2015 ; Uitterhaegen, 2014, 2018 ; **A15 ; AP1**).

■ L'extraction d'hémicelluloses à partir de matières lignocellulosiques (Manolas, 1993 ; Manolas et al., 1994, 1995 ; N'Diaye, 1996 ; Prat, 1998 ; N'Diaye et Rigal, 2000 ; Maréchal, 2001 ; Prat et al., 2002).

■ L'extraction de pectines :

● Les pectines contenues dans la moelle des tiges de tournesol (Maréchal et Rigal, 1999).

● Les pectines contenues dans la pulpe de betterave (Jorda, 2003).

■ L'extraction de protéines végétales (Leyris, 1998 ; Silvestre et al., 1999 ; Colas, 2012 ; Colas et al., 2013a, 2013b).

■ L'extraction d'extraits polyphénoliques à activité antioxydante (Celhay, 2013 ; Celhay et al., 2014).

■ La dégradation enzymatique de parois végétales pour la production de bioéthanol de seconde génération (Brault, 2013 ; Vandebossche et al., 2014, 2015 ; **A20**).

■ Le défibrage de matières lignocellulosiques en vue de la production de pâte à papier (Manolas et al., 1995 ; Maréchal et Rigal, 1999) et de panneaux de fibres (Markessini et al., 1997 ; Uitterhaegen, 2018 ; **A27** ; **A38** ; **CO17**).

■ L'obtention d'agromatériaux composites à matrice protéique (Leyris, 1998 ; Leyris et al., 1998 ; Rouilly, 2002 ; Geneau, 2006 ; Humbert, 2008) ou polysaccharidique (Rigal et al., 1999 ; Peyrat, 2000 ; Peyrat et al., 2000 ; Rouilly, 2002 ; Jorda, 2003).

■ L'obtention d'agromatériaux thermoplastiques par mélange de céréales et de polyesters biosourcés et biodégradables (Chabrat, 2012 ; Chabrat et al., 2012 ; Abdillahi et al., 2013 ; Abdillahi, 2014).

■ L'obtention de biocomposites injectables par compoundage d'un polyester biosourcé et biodégradable, ici utilisé comme matrice, et de charges végétales (Gamon, 2013 ; **A9**), etc.

Du fait de la combinaison d'actions chimiques (points d'injection de réactifs liquides), thermiques (régulation thermique du fourreau) et mécaniques (adaptation des profils de vis) en une seule étape, l'extrudeur bi-vis est donc souvent qualifié de réacteur TMC (Thermo-Mécano-Chimique). Il fonctionne en continu et peut également être muni d'un ou plusieurs modules de filtration afin de permettre l'obtention séparée d'un extrait et d'un raffinat en une seule étape (Rigal, 1997, 2000 ; Bouvier et Campanella, 2014).

c. Les éléments constitutifs de l'extrudeur bi-vis :

L'extrudeur bi-vis est constitué de deux vis parallèles et identiques, de profondeur de filet constante, tournant en même temps et à la même vitesse dans un fourreau bilobé (**Figure 1**) et régulé thermiquement (**Figure 2**). La **Figure 3** présente également une vue d'ensemble de l'extrudeur bi-vis Clextral (France) Evolum HT 53 de haute capacité présent au sein de la plateforme AGROMAT et sur lequel bon nombre de mes travaux de recherche ont été menés ces dernières années.

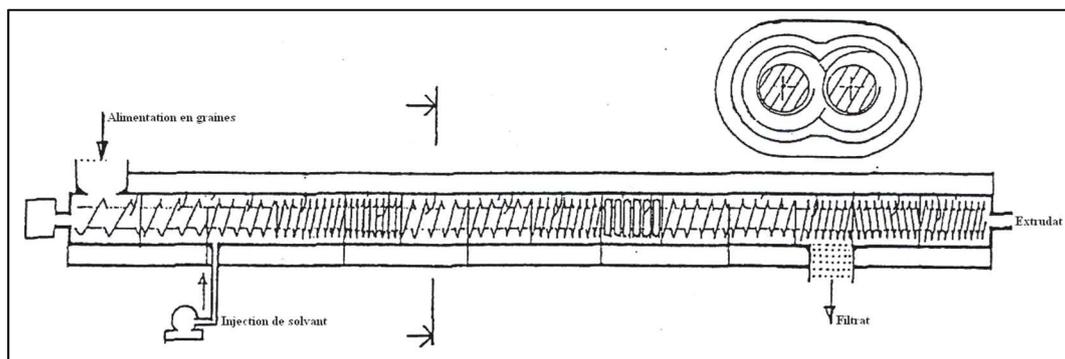


Figure 1

Représentation schématique de l'ensemble constitué du fourreau bilobé et des vis dans un extrudeur bi-vis (cas de l'utilisation de l'extrudeur bi-vis en tant qu'extracteur liquide/solide) (**A22**).

Suivant la position des vis l'une par rapport à l'autre, les extrudeurs bi-vis sont classés en deux catégories (Martelli, 1983) (**Figure 4**) :

- Les extrudeurs bi-vis à vis non co-pénétrantes (ou non interpénétrées).
- Les extrudeurs bi-vis à vis co-pénétrantes (ou interpénétrées).

Selon le sens de rotation des vis, les extrudeurs bi-vis peuvent également être classés en deux groupes (**Figure 4**) :

- Les extrudeurs bi-vis à vis contra-rotatives.
- Les extrudeurs bi-vis à vis co-rotatives.

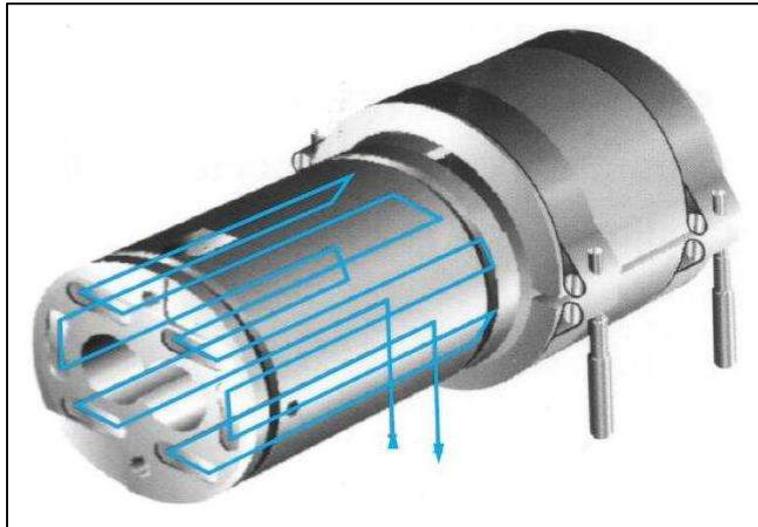


Figure 2

Régulation thermique des fourreaux : chauffage par collier et refroidissement par circulation de fluide (d'après documentation Clextal).

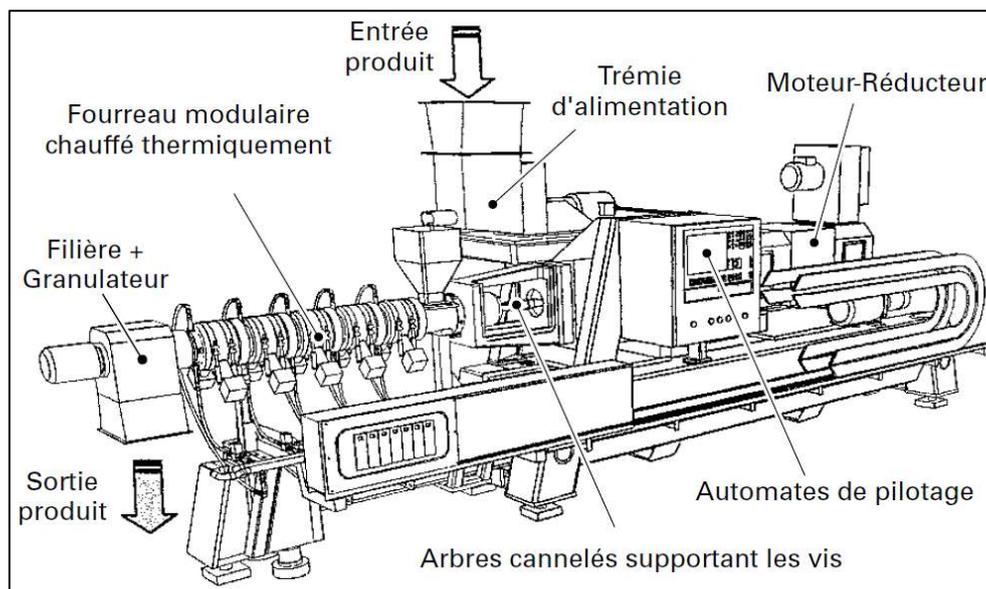


Figure 3

Vue d'ensemble de l'extrudeur bi-vis Clextal (France) Evolum HT 53 de la plateforme AGROMAT (d'après documentation Clextal).

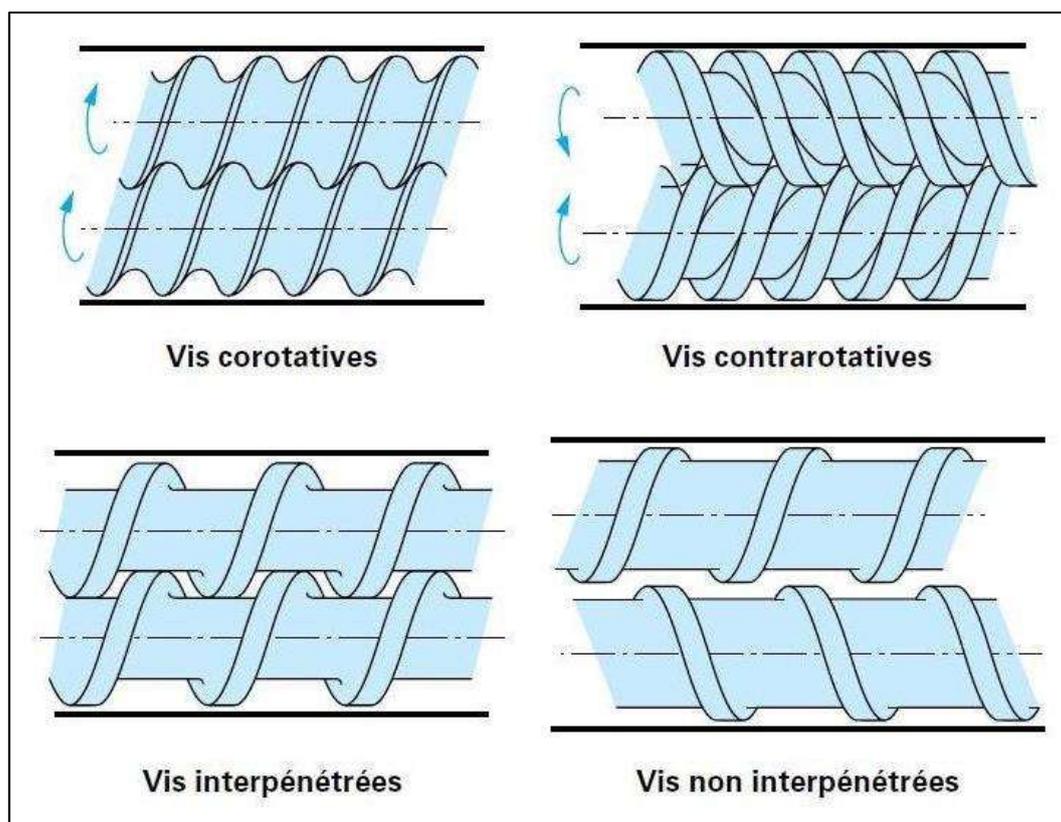


Figure 4

Les principales configurations d'extrudeurs bi-vis (d'après documentation Cletral).

Les extrudeurs bi-vis à vis non co-pénétrantes sont peu répandus car leur fonctionnement est à peu près équivalent à celui des extrudeurs « double vis », constitués de deux extrudeurs mono-vis juxtaposés. À l'inverse, les extrudeurs bi-vis à vis co-pénétrantes sont plus intéressants car la rotation des vis peut apporter à la matière un travail mécanique sous la forme d'un cisaillement ou d'une action de mélange. De plus, l'adhésion de la matière extrudée n'est pas réellement un problème dans la mesure où le mouvement des vis l'une par rapport à l'autre détache la matière qui aurait pu y coller.

Les extrudeurs bi-vis à vis co-pénétrantes et co-rotatives sont ceux qu'on rencontre le plus souvent. Identiques et autonettoyantes, les deux vis sont situées dans l'alésage d'une enveloppe fixe, le fourreau. Le fourreau et les tronçons de vis sont réalisés en acier nitruré ou avec des alliages industriels spéciaux et adaptés aux conditions opératoires les plus abrasives et/ou corrosives. La matière progresse axialement en passant d'une vis à une autre. Elle suit donc un trajet en « huit ouvert ». De plus, elle subit un champ de contraintes relativement uniforme. Les tronçons de vis sont empilés sur des arbres cannelés qui autorisent ainsi de multiples configurations pour des traitements optimums (**Figure 5**). Un choix très étendu d'éléments de vis est disponible de manière à assurer très précisément et avec souplesse les différentes fonctions requises (**Figure 6** et **Tableau 1**) :

- Les vis de convoyage.
- Les éléments restrictifs (disques malaxeurs).
- Les vis à pas inverse (ou contre-filets).

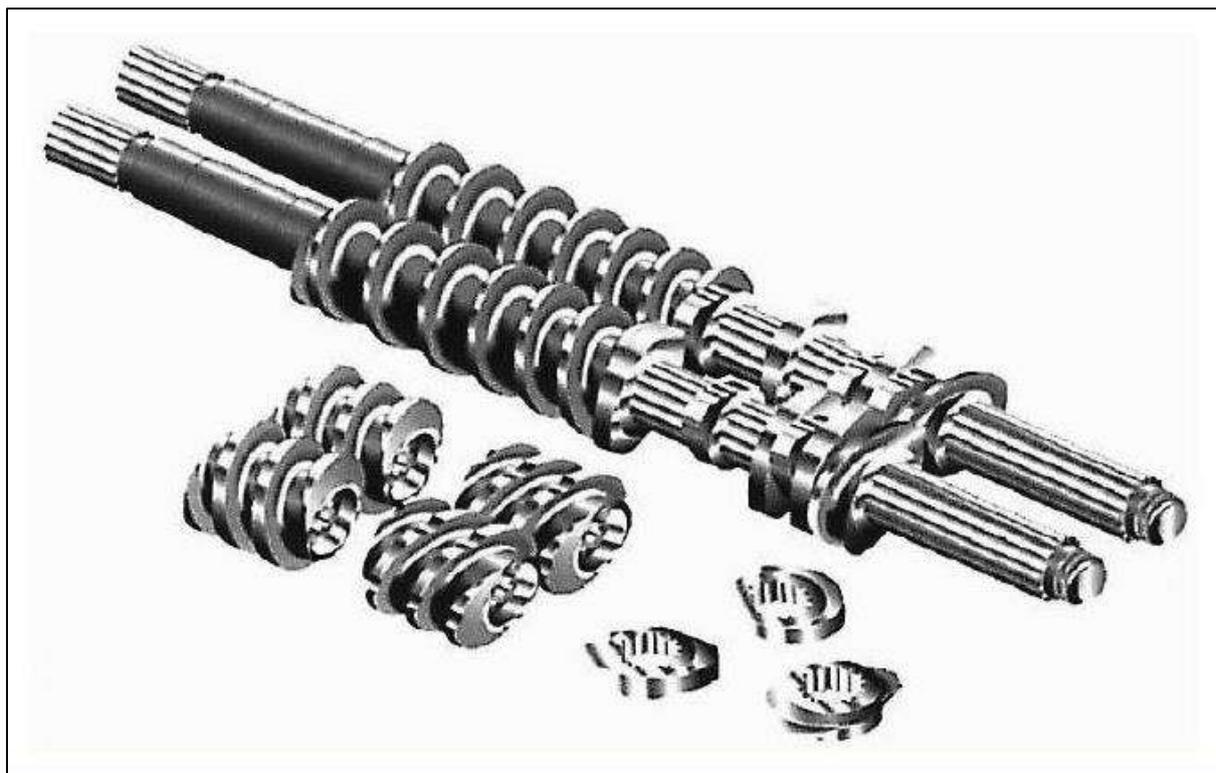
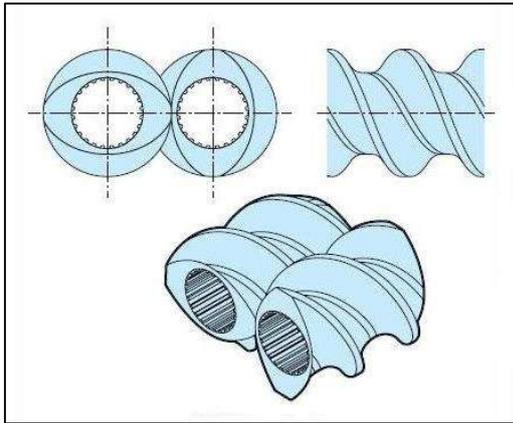
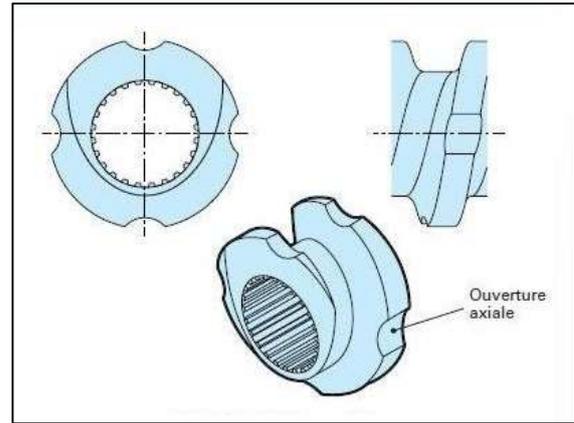


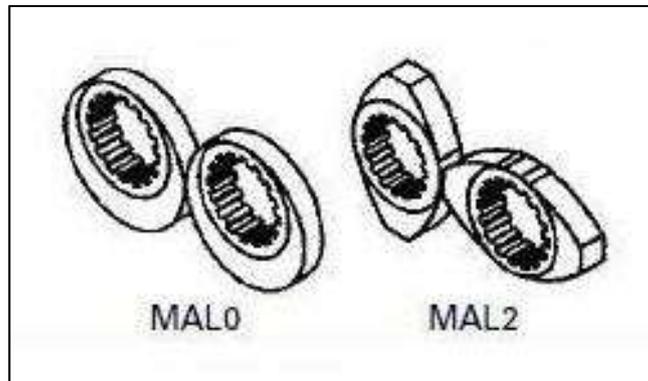
Figure 5
Tronçons de vis et arbres cannelés (d'après documentation Clextal).



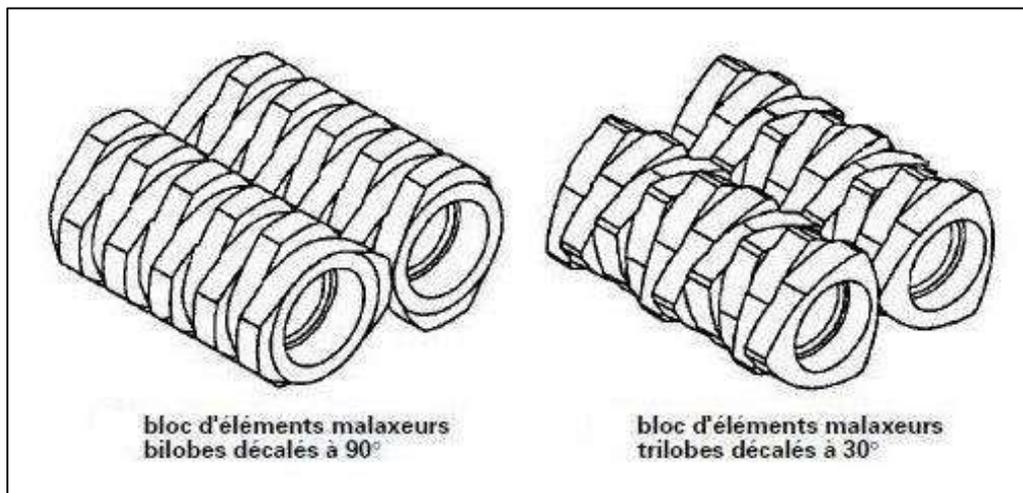
Vis de convoyage (à double filet)



Vis à pas inverse (à simple filet)



Disques malaxeurs monolobes (MAL0)
et bilobes (MAL2)



Blocs d'éléments malaxeurs bilobes et trilobes

Figure 6
Vis les plus fréquemment utilisées dans les extrudeurs bi-vis (d'après documentation Cletral).

Tableau 1

Effets mécaniques des vis les plus fréquemment utilisées dans les extrudeurs bi-vis.

Type de vis	Mélange	Cisaillement	Convoyage	Remarques
T2F	+	+	+++	<ul style="list-style-type: none"> ■ Vis non autonettoyante. ■ Augmente l'avancement dans la zone d'alimentation en solide.
C2F	+	+	+++	<ul style="list-style-type: none"> ■ Vis autonettoyante.
C1F	+	++	++++	<ul style="list-style-type: none"> ■ Vis autonettoyante.
MAL0 (ou BL00)	++	+++	+	<ul style="list-style-type: none"> ■ Compression radiale. ■ Fort cisaillement. ■ Augmente le temps de séjour
MAL2 (ou BL22)	++++	++	Neutre (si montage à 90°)	<ul style="list-style-type: none"> ■ Fort mélange. ■ Convoyage ou compression axiale en fonction de l'angle de montage. ■ Augmente le temps de séjour.
MAL3 (ou BL33)	+++++	+	Neutre (si montage à 180°)	<ul style="list-style-type: none"> ■ Très fort mélange. ■ Convoyage ou compression axiale en fonction de l'angle de montage. ■ Augmente le temps de séjour.
CF2C	+++	++++	---	<ul style="list-style-type: none"> ■ Forte contre-pression. ■ Augmente le temps de séjour. ■ Forme un bouchon de matière.
CF1C	+++	+++++	----	<ul style="list-style-type: none"> ■ Très forte contre-pression. ■ Augmente le temps de séjour. ■ Forme un bouchon de matière.

T2F, vis trapézoïdale et à double filet. C2F, vis conjuguée et à double filet. C1F, vis conjuguée et à simple filet. MAL0, disque malaxeur monolobe. MAL2, disque malaxeur bilobe. MAL3, disque malaxeur trilobe. CF2C, contre-filet conjugué et à double filet. CF1C, contre-filet conjugué et à simple filet.

d. Les vis de convoyage :

Les vis de convoyage sont des vis à pas direct qui assurent principalement une action de convoyage et, dans une moindre proportion, de mélange et de cisaillement du fait du caractère copénétrant des vis. À simple ou à double filet, elles sont modulaires et composées d'éléments de pas déterminés et dont la longueur peut varier. Différents pas de vis étant disponibles, leur combinaison permet de mettre la matière sous pression (pas de vis décroissant) ou de la détendre (pas de vis croissant) après une zone de compression. La compression de la matière sera d'autant plus forte que celle-ci sera gênée dans son convoyage par la présence d'éléments restrictifs comme une vis à pas inverse (contre-filet), la plaque avant du fourreau ou un ensemble convergent/filière (le plus souvent utilisé pour des opérations de compoundage). Lors de l'injection de liquides dans le fourreau, l'enchaînement des zones de compression et de détente favorise la diffusion des réactifs dans la matrice végétale de même que celle des solutés dans le solvant extractant. Par ailleurs, même si la profondeur du chenal est la même

pour tous les éléments, la forme de ce dernier peut être conjuguée ou trapézoïdale (**Figure 6** et **Tableau 1**).

■ T2F et C2F sont des éléments de vis à pas direct et à double filet. La forme des filets est trapézoïdale (vis non autonettoyantes) dans le cas des vis T2F et conjuguée (vis autonettoyantes) pour les vis C2F. De ce fait, les vis T2F ont de meilleures caractéristiques de convoyage et augmentent l'avalement. Elles sont donc souvent mises en œuvre dans la zone d'alimentation en solide.

■ Les vis C1F sont des éléments de vis à pas direct et à simple filet. Ayant un sommet de filet plus large, elles ont une meilleure poussée et un effet de cisaillement plus important que les éléments de vis à double filet. Elles renforcent donc encore plus l'effet de compression sur la matière ainsi que son auto-échauffement. Les temps de séjour du solide y sont aussi légèrement plus importants.

e. Les éléments restrictifs :

En plus des vis de convoyage qui agissent comme de simples éléments de transport, l'ajout d'éléments restrictifs (disques malaxeurs) le long du profil de vis a pour but d'augmenter l'effet de mélange et de cisaillement, le temps de séjour de la matière ainsi que le transfert d'énergie mécanique (**Figure 6** et **Tableau 1**). N'ayant pas par eux-mêmes d'effet de convoyage, ces éléments peuvent aussi entraîner le remplissage complet de certaines sections de l'extrudeur et favoriser ainsi les échanges thermiques entre la matière végétale et les parois du fourreau. Les éléments restrictifs sont aussi à l'origine de l'apparition de la phase fondue dans les extrudeurs bi-vis lorsque ceux-ci sont mis en œuvre en plasturgie.

Éléments de petite longueur (1 cm dans le cas d'un extrudeur bi-vis de type Cleextral BC 45 par exemple), l'arrangement de ces disques malaxeurs entre eux peut donner un élément de vis de forme hélicoïdale (convoyage de pas direct ou inverse) ou un élément de pas neutre (mélange statique et convoyage nul) lorsque les unités sont arrangées en quinconce. Ils peuvent aussi être orientés de façon à privilégier le cisaillement.

■ Les disques malaxeurs monolobes (MAL0 ou BL20 ou BL02) exercent un fort effet de compression radiale sur la matière qui est ainsi écrasée contre la paroi du fourreau. Ils favorisent donc un très fort cisaillement (broyage de la matière végétale) mais ont par contre un effet de mélange réduit.

■ Les disques malaxeurs bilobes (MAL2 ou BL22) sont généralement utilisés par série de 5 ou 10 sur chaque vis. Ils permettent de forts effets de cisaillement et de mélange sur la matière. En fonction de leur angle de montage selon un pas direct ou inverse, une action plus ou moins forte de convoyage ou de compression axiale peut également être obtenue en combinaison avec les vis à pas direct. Les disques malaxeurs bilobes favorisent donc une action de mélange intime particulièrement recherchée lorsqu'une réaction chimique doit se produire avec les constituants de la matière végétale. Ils sont aussi avantageusement exploités pour l'extraction de constituants liquides inclus dans la structure cellulaire.

■ Les disques malaxeurs trilobes (MAL3 ou BL33) disposent eux aussi d'une action de mélange intime, encore plus prononcée que celle des disques malaxeurs bilobes précédemment évoquée.

f. Les vis à pas inverse :

Les éléments de vis à pas inverse (ou contre-filets) sont les éléments restrictifs les plus importants du profil car ils permettent un mélange et un cisaillement intense de la matière ainsi qu'une augmentation de son temps de séjour (**Figure 6, Figure 7 et Tableau 1**). Fréquemment utilisés pour la mise en pression de la matière, les contre-filets sont indispensables à la séparation d'une phase liquide et d'une phase solide par pressage. Un bouchon de matière (ou bouchon dynamique) peut alors être formé (**Figure 8**) et la récupération éventuelle de l'extrait liquide ainsi exprimé se fait par la mise en place d'un module de filtration installé en amont des contre-filets (Martelli, 1983 ; Rigal, 1997, 2000 ; Bouvier et Campanella, 2014). À simple ou à double filet, les vis à pas inverse sont de forme conjuguée.

■ CF2C est un élément de vis à pas inverse, de forme conjuguée et à double filet. Ses filets sont échancrés en forme de demi-lune, en trois endroits disposés à 120°. Un débit de fuite de la matière comprimée est alors autorisé et justifie le qualificatif de « dynamique » pour le bouchon dans la mesure où la matière comprimée parvient à traverser le contre-filet sous la poussée exercée par les vis à pas direct.

■ CF1C est un élément de vis à pas inverse, de forme conjuguée et à simple filet. Il permet un pressage encore meilleur de la matière puisque l'action de contre-poussée des vis y est plus grande. De plus, le cisaillement est plus important et provoque donc une augmentation du temps de séjour du solide.

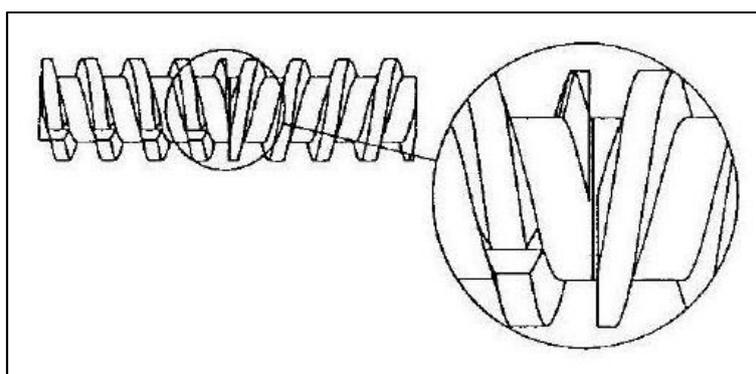


Figure 7
Contre-filet (d'après documentation Clextral).

	Q_s	S_s
①	↗	↗
②	↘	↘
③	↘	↗
④	↗	↘

Q_s , débit de matière solide dans le fourreau.
 S_s , vitesse de rotation des vis.

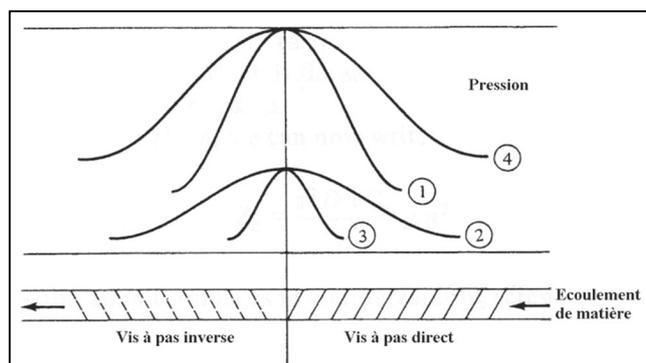


Figure 8
Principe de formation d'un bouchon dynamique et de pressage de la matière grâce à la mise en place de contre-filets (éléments de vis à pas inverse) le long du profil de vis (Martelli, 1983).

g. Les avantages de la technologie bi-vis :

Défini par l'arrangement des différents éléments de vis (nature, angle, longueur, pas) le long des arbres cannelés, le profil de vis est le principal facteur influençant l'efficacité du procédé d'extrusion bi-vis. Grâce à sa remarquable modularité, il agit notamment sur la transformation de la matière, sur la distribution de son temps de séjour et sur l'énergie mécanique transmise pendant le procédé d'extrusion (Gogoi et al., 1996 ; Choudhury et al., 1998 ; Gautam et Choudhury, 1999a et 1999b). De plus, même si on retrouve dans un extrudeur bi-vis les mêmes zones distinctes que dans un extrudeur mono-vis, celles-ci peuvent néanmoins apparaître plusieurs fois si on multiplie les restrictions et qu'on les sépare par des zones de convoyage. À la différence des presses conventionnelles, plusieurs opérations élémentaires peuvent ainsi être réalisées dans le même extrudeur bi-vis (Rigal, 1997, 2000 ; Bouvier et Campanella, 2014) :

- | | |
|---------------------------------|------------------------------|
| ■ Convoyage. | ■ Réaction. |
| ■ Cisaillement et broyage. | ■ Extraction liquide/solide. |
| ■ Compression et détente. | ■ Entraînement à la vapeur. |
| ■ Chauffage et refroidissement. | ■ Séparation liquide/solide. |
| ■ Introduction de liquide(s). | ■ Extraction de vapeurs. |
| ■ Introduction de solide(s). | ■ Séchage. |
| ■ Mélange. | ■ Extrusion, etc. |

L'arrangement des modules du fourreau définit donc la configuration de la machine. Le temps de séjour de la matière y est généralement assez bref (de l'ordre de quelques dizaines de secondes à quelques minutes). Il est fonction du profil de vis et des paramètres de fonctionnement de la machine. La distribution des temps de séjour peut notamment être élargie par la présence d'éléments restrictifs tels que les contre-filets et les éléments malaxeurs.

3. L'extrusion bi-vis, une alternative à l'expression et à l'extraction des huiles :

Avant même le commencement de ma Thèse de Doctorat au sein du LCA en 2004, l'utilisation de la technologie bi-vis avait déjà été envisagée à plusieurs reprises pour le conditionnement et la trituration des graines oléagineuses, ainsi que pour l'expression des huiles végétales (Isobe et al., 1992 ; Guyomard, 1994 ; Bouvier et Guyomard, 1997 ; Lacaze-Dufaure, 1998 ; Dufaure et al., 1999a ; Évrard, 2000 ; Amalia Kartika, 2005 ; Amalia Kartika et al., 2005, 2006), comme mentionné dans une récente revue bibliographique sur ce sujet et à laquelle il m'a été donné l'occasion de participer en tant que co-auteur (A28). Certains des travaux auxquels il est ici fait référence avaient d'ailleurs été menés au LCA, et ce à partir de graines de tournesol, choisies comme oléagineux modèle (Lacaze-Dufaure, 1998 ; Dufaure et al., 1999a ; Amalia Kartika, 2005 ; Amalia Kartika et al., 2005, 2006).

Pour une telle configuration, l'extrudeur bi-vis est alors utilisé à la fois comme presse et comme séparateur d'huile, un seul appareil permettant de réaliser l'enchaînement de plusieurs opérations unitaires des procédés habituels de trituration (A2, A3, A5, TD) :

- | | |
|------------------|-----------------------------|
| ■ Le broyage. | ■ Le séchage. |
| ■ L'aplatissage. | ■ Le pressage du solide. |
| ■ La cuisson. | ■ La séparation de l'huile. |

Au cours de ces travaux menés au LCA, l'extrudeur bi-vis avait aussi pu être mis en œuvre comme extracteur liquide/solide, permettant ainsi l'extraction de l'huile de graines de tournesol, après ajout d'un tiers solvant alors utilisé comme agent d'extraction de l'huile, au même titre que l'hexane pour les procédés conventionnels (Lacaze-Dufaure, 1998 ; Dufaure et al., 1999b ; Amalia Kartika,

2005 ; Amalia Kartika et al., 2010). Le choix du tiers solvant s'était alors porté vers des liquides apolaires, leur injection favorisant l'extraction de l'huile par solubilisation des triglycérides :

■ Un alcool, le 2-ethylhexanol, acidifié ou non par ajout d'acide phosphorique (Lacaze-Dufaure, 1998 ; Dufaure et al., 1999b).

L'utilisation d'un alcool comme tiers solvant permet de générer un milieu lipidique propice à une transformation chimique ultérieure des triglycérides par transestérification. Par ailleurs, les membranes des gouttelettes lipidiques contenues dans les cellules de cotylédon étant labiles sous l'action de l'acide, l'acide phosphorique active leur déstructuration et l'huile est ainsi plus facilement libérée. Enfin, l'acide agit comme agent de dégommeage en favorisant l'élimination des phospholipides contenus dans l'huile.

Néanmoins, l'ajout de ce tiers solvant peut perturber le pressage par un changement de consistance du mélange, composé alors des graines triturées et de l'alcool. La séparation liquide/solide devient alors moins facile que lors de l'expression des graines (sans injection de solvant), surtout si la quantité d'alcool mise en jeu est importante.

■ Des esters méthyliques de tournesol (Amalia Kartika, 2005 ; Amalia Kartika et al., 2010).

Effectuée dans des conditions opératoires douces (80 °C pour la température du fourreau), l'extraction de l'huile est alors plus efficace que dans les meilleures conditions d'expression : près de 90% de rendement en huile extraite, calculé par rapport à la teneur résiduelle en huile du tourteau (teneur minimisée à moins de 8%).

Lors de sa Thèse de Doctorat, Amalia Kartika avait également pu mettre en œuvre l'extrudeur bi-vis à la fois comme presse pour l'expression de l'huile et comme extracteur liquide/solide pour l'extraction de l'huile résiduelle du tourteau, les deux étapes ayant été réalisées en deux étages successifs et dans le même appareillage (Amalia Kartika, 2005 ; Amalia Kartika et al., 2010).

Supérieur à 70%, le rendement d'expression est équivalent à celui obtenu à l'aide d'une presse mono-vis, pour une température du fourreau limitée (80 °C) et avec un faible apport thermique. Les huiles exprimées révèlent une excellente qualité, contenant très peu d'acides gras libres (1,5 mg de KOH/g d'huile pour l'indice d'acide).

Concernant l'étage d'extraction, le rendement en huile extraite à l'aide des esters méthyliques de tournesol, calculé par rapport à l'huile contenue initialement dans la graine, est voisin de 10%, celui-ci augmentant en même temps que la quantité de solvant introduite. Dans le même temps, une diminution de l'énergie mécanique spécifique transmise à la matière est observée.

Le rendement global en huile (huile exprimée et huile extraite) est alors supérieur à 97% dans les meilleures conditions opératoires, pour une teneur résiduelle en huile du tourteau de seulement 3 à 4%.

Sur la base de cet état de l'art non exhaustif, mes travaux de recherche, menés au LCA depuis maintenant plus de dix ans et décrits ci-après, ont poursuivi ceux qui viennent d'être évoqués :

■ L'extrudeur bi-vis a été utilisé à la fois pour l'expression (**A3 ; A10 ; A15 ; AP1 ; TD ; Faye, 2010 ; Sriti et al., 2012 ; Nguyen, 2015 ; Uitterhaegen, 2014, 2018**) et pour l'extraction des huiles végétales (**A2 ; A3 ; A5 ; A22 ; B1 ; TD ; Faye, 2010 ; Diedhiou, 2017 ; Uitterhaegen, 2018**), y compris dans le même appareillage (**A3, TD**).

■ Pour le cas de l'extraction des huiles végétales, le choix du tiers solvant s'est principalement porté sur l'eau plutôt que sur des liquides apolaires (**A2 ; A3 ; A5 ; A22 ; B1 ; TD ; Faye, 2010**).

■ Outre le tournesol, les matières premières utilisées étaient des graines oléagineuses d'autres origines (**A10 ; A15 ; AP1 ; Faye, 2010 ; Sriti et al., 2012 ; Diedhiou, 2017 ; Nguyen, 2015 ; Uitterhaegen, 2014, 2018**) voire même des plantes entières (**A5 ; A22 ; B1 ; TD ; Uitterhaegen, 2018**).

4. L'extrudeur bi-vis utilisé pour l'expression des huiles végétales :

Quatre graines oléagineuses différentes ont été utilisées dans le cadre de mes travaux consacrés à l'expression des huiles végétales par simple pressage mécanique, c'est-à-dire sans ajout de solvant :

■ Le tournesol (*Helianthus annuus* L.) (A3, TD).

■ Le neem (*Azadirachta indica* A. Jussi) (Faye, 2010).

■ Le jatropha (*Jatropha curcas*) (A10).

■ La coriandre (*Coriandrum sativum* L.) (A15 ; AP1 ; Sriti et al., 2012 ; Nguyen, 2015 ; Uitterhaegen, 2014, 2018).

Le paragraphe suivant situe dans leur contexte général chacune de ces études.

a. Contexte général :

Parmi les quatre oléagineux mentionnés ci-dessus, seulement deux permettent la production d'une huile comestible, qui pourra donc être utilisée pour l'alimentation humaine ou animale mais également en industrie cosmétique. Il s'agit bien évidemment du tournesol qu'il n'est plus nécessaire de présenter (huile alimentaire ou de friture, fabrication de margarines, de sauces et d'assaisonnements, etc.) (Campbell, 1983 ; TD), mais aussi de la coriandre. En effet, cette plante aromatique est parfaitement adaptée à la climatologie du Sud-Ouest de la France. Par ailleurs, elle est assez simple à cultiver, se cultivant avec les mêmes outils que les céréales. Elle peut également constituer une solution pour la diversification de l'assolement imposée par la PAC, s'intégrant facilement dans la rotation des exploitations agricoles. En outre, l'huile végétale de coriandre a été récemment labellisée comme *Novel Food Ingredient* (NFI) par l'Autorité Européenne de Sécurité des Aliments (EFSA, 2013). Cette huile est maintenant considérée comme sûre pour être utilisée comme complément alimentaire par les adultes en bonne santé, à un niveau maximum de 600 mg par jour (soit 8,6 mg/kg de poids corporel par jour pour une personne de 70 kg).

Enfin, l'huile végétale de coriandre révèle une teneur élevée (plus de 70%) en acide pétrosélinique (C18:1n-12 ou acide (Z)-octadéc-6-énoïque). Cet acide gras rare est un isomère de l'acide oléique, présent seulement dans un nombre limité d'huiles végétales, principalement celles issues de la famille des Apiacées (*Apiaceae*) dont la coriandre fait partie. L'accumulation de l'acide pétrosélinique dans la graine de coriandre lors de sa maturation en culture biologique a d'ailleurs été récemment étudiée au LCA (A14, AS2). Au cours de ce travail auquel j'ai été associé en tant que co-auteur, il a été montré que la teneur en acide pétrosélinique augmentait jusqu'à une valeur maximale atteinte dix-huit jours après floraison. L'acide pétrosélinique constitue une molécule oléochimique unique, d'un potentiel élevé pour l'industrie alimentaire, la cosmétique et la pharmacie. En outre, l'acide pétrosélinique pourrait permettre la synthèse d'un grand nombre d'intermédiaires réactionnels (synthons) en oléochimie.

Pour ces différentes raisons, le développement d'un nouveau procédé d'extraction de l'huile végétale de coriandre à partir des graines est apparu comme un défi majeur pour les années à venir, justifiant ainsi la collaboration passée avec l'entreprise Ovalie Innovation, filiale R&D des groupes coopératifs Vivadour et Maïsadour, ainsi que le travail de Thèse de Doctorat de Mlle Evelien Uitterhaegen, initié en Octobre 2014 et dont j'ai assuré le co-encadrement avec le Dr Othmane Merah. Pour Ovalie Innovation, l'enjeu de ce projet de recherche était la création d'une nouvelle agrochaîne, (i) en offrant une nouvelle culture valorisante à ses adhérents, (ii) en développant une filière complète à partir d'un produit de niche innovant, (iii) en maîtrisant la production, de la semence au produit fini, et (iv) en utilisant l'intégralité de la plante, y compris la paille.

Quant aux deux autres graines oléagineuses étudiées, le neem et le jatropha, toutes deux contiennent au moins une molécule toxique qui rend leur huile végétale impropre à la consommation, tant humaine qu'animale. Le principal agent toxique présent dans l'huile végétale de neem est l'**azadirachtine** (Faye, 2010). Ce limonoïde présente néanmoins des propriétés insecticides remarquables, identifiées depuis près de cinquante ans (Butterworth et Morgan, 1968), et qui ont fait l'objet d'un grand nombre de travaux depuis. L'étude de l'activité biologique de l'azadirachtine et de ses dérivés a mis en évidence les propriétés insecticides suivantes : propriétés de régulation de la croissance des insectes, effet anti-nutritif ou répulsif, et de réduction de la fécondité. Ainsi, l'azadirachtine provoquerait plus de 90% des effets de la plupart des insecticides conventionnels. Cet insecticide naturel est aujourd'hui exploité par la société Senchim (Sénégal) pour la formulation de pesticides naturels (extraits actifs à base d'azadirachtine) destinés aux traitements agricoles. Au cours de sa Thèse de Doctorat, initiée à la demande de l'entreprise Senchim et soutenue en 2010 à Toulouse INP, Mamadou Faye a notamment procédé au pressage mécanique de la graine de neem en extrudeur bi-vis, et son travail s'est tout particulièrement attaché à étudier l'influence des principaux facteurs de l'extrusion bi-vis (profil de vis et conditions opératoires) sur le rendement d'expression de l'huile d'une part, et sur les caractéristiques des huiles exprimées, en particulier leurs teneurs en azadirachtine, d'autre part. Je l'ai accompagné activement dans ses travaux afin qu'il bénéficie de mon expérience de l'outil bi-vis.

Dans le cas du jatropha, c'est l'**ester de phorbol** qui a été identifié comme étant le principal agent toxique de l'huile (Gubiz et al., 1999 ; Haas et al., 2000). Aussi, le fait que l'huile de jatropha ne puisse pas être utilisée à des fins nutritionnelles sans détoxification préalable rend très attractive son utilisation comme source d'énergie. En effet, l'huile de jatropha est considérée comme une alternative potentielle au carburant diesel, et les huiles végétales ont de nombreux avantages à cet égard (stockage sûr et facilité à les manipuler en raison de leur point d'éclair élevé). Après isolement de l'huile, il est possible de transformer les triglycérides par transestérification pour la production d'esters méthyliques (EMHV) voire d'esters éthyliques (EEHV) d'acides gras, alors utilisés comme biocarburant (ou biodiesel). Réalisé en 2012 en collaboration avec l'Institut Pertanian Bogor (Bogor, Indonésie) et publié l'année suivante (**A10**), mon travail sur le jatropha a précisément été consacré à l'isolement de l'huile végétale par pressage mécanique des graines en extrudeur bi-vis, ceci afin de pouvoir la transformer ultérieurement en EMHV par transestérification. Cette première étude a été ensuite complétée d'une seconde visant cette fois-ci à réaliser simultanément l'extraction au solvant (*n*-hexane) de l'huile de jatropha et la transestérification *in situ* des triglycérides en esters méthyliques. Menés en Indonésie sur un réacteur batch de 2 L, ces travaux qui permettent donc la production d'un biodiesel de jatropha en une seule étape ont également fait l'objet d'un article de congrès et de trois publications dans lesquelles j'apparais comme co-auteur, ayant participé activement tant à l'acquisition des résultats analytiques qu'à la rédaction desdites publications (**A7**, **A8**, **A21**).

b. Configuration de l'extrudeur bi-vis :

L'expression des huiles végétales par pressage mécanique de graines oléagineuses en extrudeur bi-vis nécessite l'installation d'un profil de vis adapté le long du fourreau, qui permet de définir quatre zones fonctionnelles (**Figure 9**) :

■ Une zone d'alimentation :

L'alimentation en graine est effectuée par gravité, à un débit défini par le doseur pondéral utilisé, par l'ouverture supérieure du premier module. Les premiers éléments de vis choisis sont le plus souvent de type trapézoïdal à double filet (T2F) puis conjugué à double filet (C2F) et à pas large, ce qui permet de happer et de transporter rapidement les graines dans le fourreau fermé.

■ Une **zone de transport et de préparation (broyage) des graines** :

Le transport, la mise à température et le broyage des graines s'effectuent dans les modules suivants. Ces opérations élémentaires sont assurées par un assemblage de disques malaxeurs, monolobes (MAL0 ou BL20 ou BL02) et/ou bilobes (MAL 2 ou BL22), qui procurent tous les deux de forts effets de cisaillement et de mélange sur la matière. Entre deux séries successives de disques malaxeurs, des éléments de vis à pas direct, le plus souvent décroissant, assurent le convoyage de la matière.

■ Une **zone d'expression liquide/solide** :

Dans cette zone qui suit celle de broyage, la lyse cellulaire (destruction des parois des cellules de cotylédon puis des membranes des gouttelettes lipidiques) est déjà suffisante pour qu'au moins une partie de l'huile s'exprime (s'écoule) librement hors du squelette cellulaire.

■ Une zone de **séparation liquide/solide**, elle-même constituée de deux zones fonctionnelles distinctes et successives :

● Une **zone de filtration** :

Le module filtrant est le plus souvent placé au niveau de l'avant-dernier module, c'est-à-dire en amont immédiat de la zone de pressage. Les éléments de vis installés sont à pas direct décroissant, permettant d'assurer une mise en pression axiale de la matière solide depuis la zone de pressage vers la zone de filtration. L'huile est ainsi exprimée et s'écoule librement par gravité au niveau du filtre. Par ailleurs, les grilles filtrantes sont en permanence décolmatées grâce à la rotation des vis qui viennent racler leur surface.

● Une **zone de pressage** :

Le pressage s'effectue dans le dernier module, siège de la séparation liquide/solide. Dans cette zone est positionné un contre-filet (CF2C ou CF1C) qui s'oppose au déplacement de la matière vers la sortie du fourreau. Celui-ci assure la formation d'un bouchon dynamique contre lequel la matière convoyée vient se compresser, et le liquide huileux peut alors s'exprimer librement. La matière est extrudée à travers les demi-lunes du contre-filet puis reprise par des vis à pas direct pour être convoyée vers l'extérieur du fourreau.

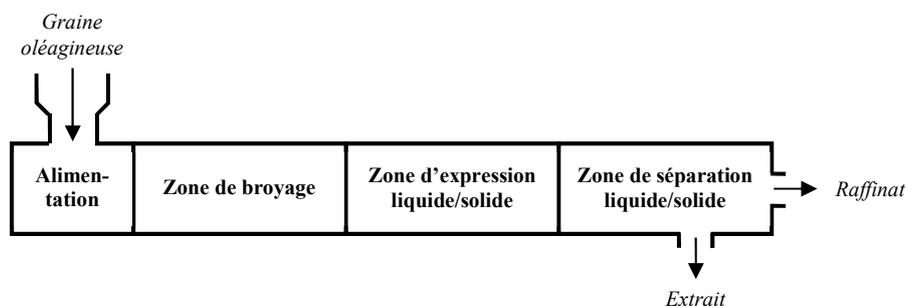


Figure 9

Configuration d'un extrudeur bi-vis mis en œuvre pour l'expression d'huile végétale par pressage mécanique de graines oléagineuses.

Au cours de mes différents travaux portant sur l'expression des huiles végétales par pressage mécanique en extrudeur bi-vis, l'objectif a consisté en une optimisation des conditions du pressage mécanique permettant l'obtention d'un rendement d'expression en huile le plus élevé possible. Pour ce faire, différents paramètres ont été étudiés :

■ L'adaptation du profil de vis, comprenant deux zones de travail distinctes :

● La zone de broyage (ou zone de trituration des graines) ; l'objectif est ici d'affiner autant que possible la taille des particules solides en fin de trituration des graines, ceci afin de faciliter la libération ultérieure de l'huile.

- La zone de pressage (ou zone de séparation liquide/solide) ; l'objectif est ici d'optimiser la qualité de la séparation de l'huile exprimée (extrait) et du tourteau gras (raffinat) par pressage mécanique.

- L'adaptation des conditions opératoires de l'extrusion bi-vis, comprenant en particulier les paramètres suivants :

- Le coefficient de remplissage de l'extrudeur bi-vis, défini comme le rapport du débit entrant de graines oléagineuses sur la vitesse de rotation des vis ; en particulier, le niveau de remplissage de la zone de pressage jouera un rôle particulièrement important pour ce qui est de l'efficacité de la séparation liquide/solide en fin de profil de vis.

- La température de la zone de pressage.

- L'humidité de la graine oléagineuse en entrée d'extrudeur bi-vis.

c. Optimisation de la zone de broyage du profil de vis :

Située en début de profil de vis, à savoir immédiatement après l'introduction des graines oléagineuses dans l'extrudeur bi-vis, la zone de broyage consiste en la succession de plusieurs séries de disques malaxeurs qui confèrent à la matière des effets de cisaillement et de mélange. Au travers de cette action mécanique intense, une réduction de la taille moyenne des particules solides est observée, favorisant ainsi la lyse cellulaire. À l'échelle microscopique, deux niveaux successifs de déstructuration se produisent :

- Celle de la paroi des cellules de cotylédon est d'abord observée, rendant ainsi le milieu plus perméable et favorisant donc la libération des composants du cytoplasme, notamment les gouttelettes lipidiques à l'intérieur desquelles l'huile se trouve.

- Puis, ce sont les membranes des gouttelettes lipidiques qui se rompent, permettant ainsi l'écoulement du liquide huileux hors du solide.

En début de zone de broyage, une série de disques malaxeurs monolobes est systématiquement utilisée. Ainsi, le fort effet de compression radiale exercé sur la matière par ces éléments permet dès le début de la zone de broyage une réduction significative de la taille moyenne des particules solides. Puis, la trituration des graines se poursuit par la mise en place le long du profil de vis d'une ou deux séries de disques malaxeurs bilobes, le plus souvent montés en quinconce afin d'augmenter le temps de séjour des graines dans ces éléments.

Le choix de la zone de broyage la plus adaptée a par exemple été étudié pour le cas du pressage mécanique de l'huile de graines de jatropha en extrudeur bi-vis Clextral (France) BC 21 (A10). En plus d'une première série de disques malaxeurs monolobes, deux configurations différentes ont ainsi été testées, comprenant une ou deux séries supplémentaires de disques malaxeurs bilobes, montés en quinconce (**Figure 10**). Lorsque deux séries successives de disques malaxeurs bilobes sont mises en œuvre (profil 1 et profil 2), la réduction de la taille des particules solides est si importante que la quantité de pied (particules solides en suspension dans l'huile exprimée) entraîné à travers le filtre devient très élevée, y compris dans le cas du profil 2 pour lequel précaution avait pourtant été prise d'éloigner le contre-filet CF2C de la fin du module de filtration (56-65% pour le taux massique de pied dans le filtrat). L'isolement de l'huile exprimée par élimination du pied du filtrat par centrifugation devient alors plus délicat, se traduisant par voie de conséquence par de faibles rendements d'expression en huile (maximum 54%). C'est donc la configuration de la zone de broyage des profils 3 et 4, comprenant une seule série de disques malaxeurs bilobes au lieu de deux, qui a été retenue pour cette étude, permettant une diminution significative de la teneur en pied du filtrat (jusqu'à 31%) et, par voie de conséquence, une augmentation conséquente du rendement de pressage (71% d'huile exprimée dans le meilleur des cas).

Profil 1	1		2		3		4		5		6		7	
	T2F 50	T2F 50	C2F 33	C2F 25	DM 10×10 (45°)	C2F 33	C2F 25	BB 10×10 (90°)	C2F 33	C2F 25	BB 10×10 (90°)	C2F 25	C2F 16	C2F 16
Profil 2	1		2		3		4		5		6		7	
	T2F 50	T2F 50	C2F 33	C2F 25	DM 10×10 (45°)	C2F 33	C2F 25	BB 10×10 (90°)	C2F 33	C2F 25	BB 10×10 (90°)	C2F 25	C2F 16	C2F 16
Profil 3	1		2		3		4		5		6		7	
	T2F 50	T2F 50	C2F 33	C2F 25	DM 10×10 (45°)	C2F 33	C2F 25	BB 10×10 (90°)	C2F 33	C2F 33	C2F 25	C2F 25	C2F 16	C2F 16
Profil 4	1		2		3		4		5		6		7	
	T2F 50	T2F 50	C2F 33	C2F 25	DM 10×10 (45°)	C2F 33	C2F 25	BB 10×10 (90°)	C2F 33	C2F 33	C2F 25	C2F 25	C2F 16	C2F 16

Figure 10

Profils de vis utilisés pour l'expression de l'huile de graines de jatropha par pressage mécanique en extrudeur bi-vis Clextral BC 21 (A10).

T2F, vis trapézoïdale à pas direct et à double filet ; C2F, vis conjuguée à pas direct et à double filet ; DM, disque malaxeur monolobe ; BB, disque malaxeur bilobe ; CF2C, vis conjuguée à pas inverse et à double filet. Les nombres suivant le type de vis correspondent au pas (en mm) des vis T2F, C2F et CF2C, et au nombre de disques malaxeurs monolobes (DM) et bilobes (BB).

Au cours de ce travail, un arrêt d'urgence de l'extrudeur bi-vis en charge puis son ouverture immédiate ont permis d'observer la localisation de la matière solide le long du profil de vis optimisé (profil 4) (A10). Les disques malaxeurs monolobes (DM) et tout particulièrement bilobes (BB) laissent apparaître un niveau de remplissage plus élevé que les éléments de convoyage situés dans les modules 1 à 3 (Figure 11). Leur capacité de broyage a également pu être confirmée. En effet, une réduction significative de la taille des particules solides a été observée après chacune de ces deux restrictions (Figure 12) : 553 µm et 377 µm pour leur taille moyenne, respectivement, au lieu de 1094 µm en entrée (graines d'abord concassées afin de faciliter leur introduction dans l'extrudeur bi-vis). Cette réduction de taille est la parfaite illustration de l'action de lyse des cellules de cotylédon par les éléments malaxeurs, préambule à une libération ultérieure de l'huile. Cette lyse mécanique a d'ailleurs été observée au travers de clichés de microscopie optique qui ont fait apparaître une multitude de points de rupture des parois cellulaires.

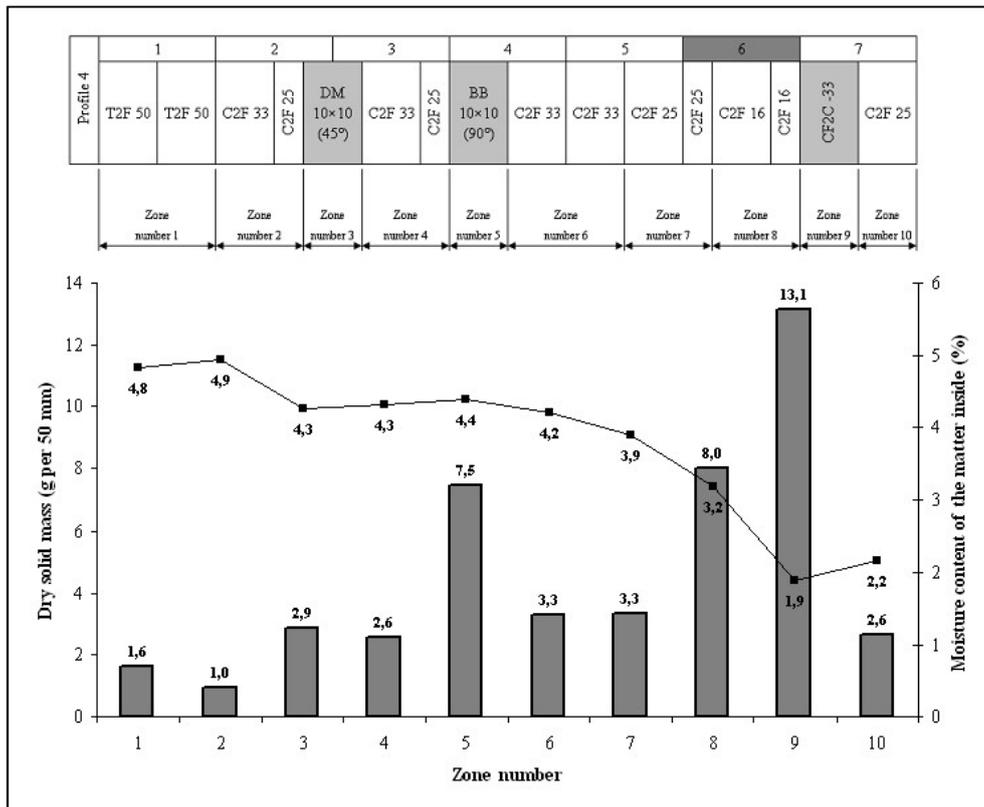


Figure 11

Masse de solide sec et teneur en humidité de la matière collectée le long du profil de vis après arrêt d'urgence et ouverture immédiate de l'extrudeur bi-vis (profil 4, 4,9 kg/h pour le débit entrant de graines de jatropha, 150 rpm pour la vitesse de rotation des vis et 120 °C pour la température de pressage) (A10). Pour chaque zone, la masse indiquée de solide sec a été rapportée à une même longueur de zone (50 mm) afin de rendre ces valeurs comparables les unes aux autres.

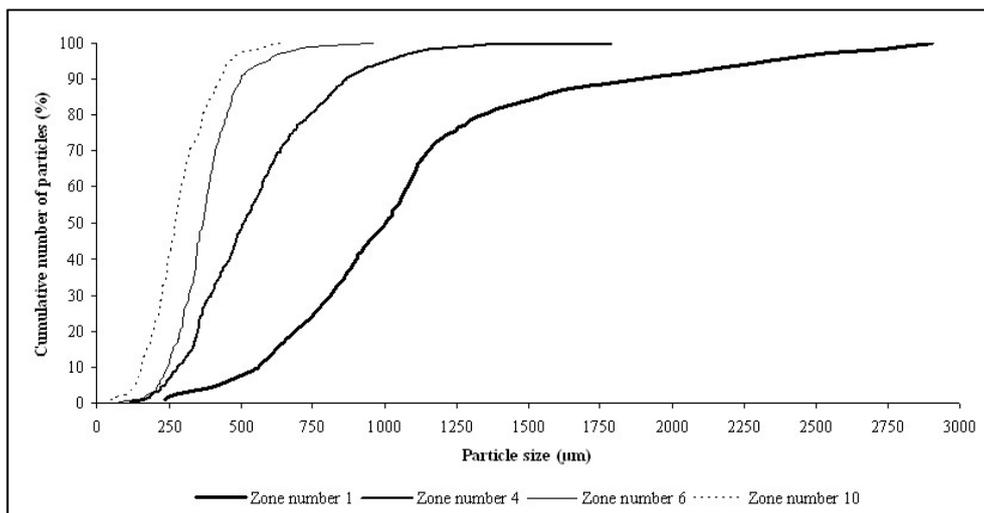


Figure 12

Nombre cumulé de particules en fonction de leur taille pour la matière solide collectée dans les zones n° 1, 4, 6, et 10 le long du profil de vis, après arrêt d'urgence et ouverture immédiate de l'extrudeur bi-vis (A10).

d. Optimisation de la zone de pressage du profil de vis :

Située immédiatement après le module de filtration, le plus souvent au niveau du dernier module de l'extrudeur, la zone de pressage est constituée d'éléments à pas inverse (ou contre-filets) (**Figure 7**) qui, en raison de leur forte action de compression axiale sur la matière, conduisent à la formation d'un bouchon dynamique puis à la séparation liquide/solide (**Figure 8**). L'huile végétale ainsi exprimée hors du solide n'a alors plus d'autre choix que de s'écouler par simple gravité au niveau des grilles du module de filtration. C'est la raison pour laquelle le positionnement des contre-filets par rapport à la grille filtrante est particulièrement important.

■ En effet, lorsque les contre-filets sont trop proches du module de filtration, l'entraînement des particules solides est favorisé, conduisant ainsi à une augmentation de la teneur en pied du filtrat qu'il est alors plus difficile d'éliminer par centrifugation. Bien entendu, une réduction du diamètre des trous de la grille de filtration permettra de limiter cet entraînement mais seulement dans une certaine limite.

■ À l'inverse, lorsque la distance entre la fin de la grille filtrante et le début des contre-filets est trop importante, l'huile déjà exprimée mais qui s'accumule dans cette zone ne peut s'écouler librement, réduisant du même coup le rendement de pressage. Tel fut le cas pour la coriandre lorsque les éléments CF2C de pas -33 mm étaient distants de la fin de la grille de filtration de 2,5 cm plutôt que directement accolés à cette grille (**A15**).

Pour chaque graine oléagineuse, il convient donc d'adapter le positionnement des éléments à pas inverse par rapport au filtre. Par ailleurs, la longueur et le pas de ces éléments influencent également la qualité de la séparation liquide/solide, l'augmentation de la première et la diminution du second contribuant toutes les deux à un renforcement de l'effet de compression axiale au niveau des contre-filets et donc à une meilleure efficacité de ladite séparation. Déjà faites lors d'études précédentes conduites sur des graines de tournesol (Amalia Kartika, 2005 ; Amalia Kartika et al., 2005, 2006), ces observations l'ont été de nouveau lors de mes travaux menés une nouvelle fois sur le tournesol (**A3**) mais également sur le jatropha (**A10**) et la coriandre (**A15**).

Pour la coriandre justement, il a toutefois été constaté que des éléments CF2C de trop faible pas (-25 mm) n'étaient pas adaptés. Trop restrictifs, ils conduisent au blocage systématique de l'extrudeur bi-vis Clextral BC 21, y compris pour les plus faibles remplissages. Il conviendra donc toujours d'adapter le pas des éléments à pas inverse utilisés aux spécificités de l'outil bi-vis mis en œuvre (limite de couple du moteur) et de la matière oléagineuse entrante (selon sa teneur en fibres et leur structure). Pour ce cas précis des graines de coriandre, les éléments à pas inverse de type CF2C ayant permis la meilleure séparation liquide/solide présentaient un pas de -33 mm. Par ailleurs, positionnés immédiatement après le module de filtration, ils ont permis d'accéder au meilleur appauvrissement en lipides du tourteau de l'ensemble de l'étude (seulement 15,0% de lipides résiduels dans la masse sèche du tourteau au lieu de 27,7% dans la graine), conduisant à un rendement calculé sur la base de la teneur résiduelle en huile du tourteau de 54% (**A15**).

Lors du pressage mécanique des graines de jatropha, le pas, la longueur et le positionnement des contre-filets CF2C pour le profil de vis optimisé étaient parfaitement identiques au cas précédent (**A10**). Et, lors de l'arrêt d'urgence de l'extrudeur en charge, ces éléments à pas inverse (zone n° 9) se sont avérés être les éléments les plus remplis du profil de vis (**Figure 11**). Ainsi, le cisaillement intense appliqué à la matière à cet endroit conduit bien à la formation d'un bouchon dynamique (**Figure 8**). Mais, il permet aussi une réduction supplémentaire de la taille des particules solides (**Figure 12**) : seulement 274 µm pour leur taille moyenne en zone n° 10. Par conséquent, en plus de son rôle premier de séparateur liquide/solide, la zone de pressage contribue également à une lyse complémentaire des parois des cellules, favorable à l'amélioration de l'efficacité globale d'extraction d'huile par pressage

mécanique : 71% d'huile exprimée dans le meilleur des cas pour cette étude, correspondant à une teneur en lipides résiduels dans le tourteau de seulement 7,7% de sa masse sèche au lieu de 33,7% dans la graine.

En fin de zone de pressage, la séparation liquide/solide permet l'obtention simultanée et en continu d'un extrait liquide (le filtrat) et d'un raffinat solide (le tourteau) (**Figure 9**).

■ En plus de l'huile extraite par pressage mécanique, le filtrat contient toujours des particules solides en suspension, désignées sous le terme de pied, et qu'il convient d'éliminer par centrifugation afin d'obtenir une huile végétale limpide. Puis, selon qu'elle soit ou non comestible, l'huile végétale ainsi isolée fera l'objet de diverses valorisations, dans le domaine de l'alimentation ou dans tout autre domaine non alimentaire. Celles-ci seront décrites plus en détail en suivant.

■ De son côté, le tourteau contient toujours une fraction lipidique, s'expliquant par le fait que l'extraction de l'huile végétale par pressage mécanique n'est que partielle. Ainsi, dans le cas du tournesol et selon les conditions opératoires utilisées (vitesse de rotation des vis, débit massique entrant de graines, profils de vis et de température, etc.), la teneur résiduelle en lipides du tourteau est comprise entre 14,3 et 17,2% de sa masse sèche au lieu de 49,7% dans la graine (**A3, TD**). Dans le cas du neem, elle est de 13,2-20,9% au lieu de 34,3% dans la graine (Faye, 2010). Dans le cas du jatropha, elle est de 5,9-19,1% au lieu de 33,7% dans la graine (**A10**). Enfin, pour la coriandre d'origine française, elle est de 15,0-18,1% au lieu de 27,7% dans la graine (**A15**). Cette teneur résiduelle en lipides dans le raffinat solide obtenu est d'ailleurs la raison pour laquelle celui-ci est le plus souvent désigné sous le terme de tourteau gras. Outre les lipides résiduels qu'il sera toujours possible d'éliminer par le biais d'une extraction au solvant, les tourteaux gras révèlent également la présence de protéines et de fibres lignocellulosiques. À ce titre, ils peuvent être considérés comme des composites naturels, rendant possible leur transformation en agromatériaux. Les tourteaux résultant de l'expression des huiles de jatropha et de coriandre ont ainsi été transformés avec succès en des panneaux de particules d'origine renouvelable et biodégradables par thermopressage (ou thermocompression), les protéines et les fibres jouant respectivement des rôles de liant naturel et de renfort mécanique à l'intérieur de ces agromatériaux (**A12, A19**). Une telle utilisation des tourteaux de jatropha et de coriandre sera décrite de façon plus exhaustive en suivant.

e. Adaptation des conditions opératoires de l'extrusion bi-vis :

Outre l'adaptation du profil de vis dont il vient d'être question, celle des conditions opératoires utilisées lors de l'extrusion bi-vis est également particulièrement importante. Deux d'entre elles concernent directement la manière dont l'outil bi-vis sera mis en œuvre, la troisième étant pour sa part liée aux caractéristiques de la matière première entrante. Les voici listées ci-dessous :

■ Le **remplissage de l'extrudeur bi-vis**, notamment dans la zone de pressage ; ce remplissage pourra être adapté par modification de la vitesse de rotation des vis et/ou du débit entrant de graines oléagineuses, influençant directement la qualité de la séparation liquide/solide.

■ Le **profil de température** le long de la machine, là encore tout particulièrement dans la zone de pressage, siège de la séparation liquide/solide ; parce qu'elle s'accompagne d'une augmentation de la rhéologie du mélange s'écoulant dans les éléments à pas inverse, il est attendu d'une diminution de la température de la zone de pressage qu'elle améliore la qualité de cette séparation.

■ La **siccité (pourcentage massique de matière sèche) de la graine oléagineuse en entrée** qui, lorsqu'elle augmente, permet une rigidification du squelette cellulaire dont la déstructuration sous cisaillement mécanique se trouve alors facilitée.

Les caractéristiques physiques (taille des graines, présence ou non d'une coque ou d'une pellicule en périphérie, dureté, rigidité, etc.) et chimiques (teneur en lipides, ratio lipides/fibres, etc.) des

graines oléagineuses pouvant être très différentes d'une espèce à l'autre, il est nécessaire de procéder à une optimisation fine de ces différents paramètres pour chaque nouvelle matière première testée. Au cours de mes travaux menés au LCA, les conditions opératoires de l'extrusion bi-vis ont ainsi été optimisées pour les graines de tournesol (**A3 ; TD**), de jatropha (**A10**) et de coriandre (**A15, AP1**). C'est pour le cas du jatropha que le travail fut le plus exhaustif. En voici les principaux résultats.

■ Lors de mes travaux sur le jatropha, le premier paramètre opératoire étudié a été le **remplissage de l'extrudeur bi-vis (A10)**. À partir d'un profil de vis préalablement optimisé (**Figure 11**) et pour une température de pressage fixée à une consigne de 80 °C, le remplissage de la machine, notamment dans la zone de pressage (éléments à pas inverse de type CF2C), a été progressivement augmenté (de 23 à 34 g/h.rpm) par diminution de la vitesse de rotation des vis (de 212 à 153 rpm) tout en maintenant le débit entrant de graines constant (environ 5 kg/h). Une augmentation progressive du degré de remplissage des contre-filets CF2C conduit alors à une meilleure action de pressage sur le mélange, se traduisant par une séparation liquide/solide plus efficace. Cela a été démontré par l'augmentation du couple moteur (de 13 à 22%), simultanément à une diminution de la teneur résiduelle en lipides du tourteau gras (de 9,0 à 7,7% de sa masse sèche). En parallèle, une légère augmentation du rendement R_C (rendement d'extraction en huile calculé sur la base de la teneur résiduelle en lipides du tourteau gras) a logiquement été observée avec l'augmentation du remplissage : de 82 à 85% (**Tableau 2**). Dans le même temps, comme déjà observé par Amalia Kartika et al. (2005, 2006) pour le tournesol, la teneur en pied du filtrat diminue (de 42 à 32%). Aussi, le rendement en huile exprimée (R_L), séparée du pied après centrifugation du filtrat, augmente également mais il le fait alors de façon bien plus significative que R_C : de 57 à 71% pour le remplissage le plus élevé. Par ailleurs, ce même remplissage permet la production d'une huile à un coût légèrement amoindri (314 W.h/kg d'huile exprimée).

Tableau 2

Résultats des essais de pressage mécanique en réacteur bi-vis Clextral BC 21 des graines de jatropha menés à l'aide d'un profil de vis préalablement optimisé (**Figure 11**) (**A10**).

N° d'essai	1	2	3	4	5	6
Conditions opératoires						
S _s (rpm)	153	170	191	212	150	150
Q _s (kg/h)	5,16	4,96	5,10	4,94	5,06	4,91
C _F (g/h.rpm)	33,8	29,2	26,7	23,3	33,7	32,8
θ ₇ (°C)	80	80	80	80	100	120
Filtrat						
Q _F (kg/h)	1,72	1,61	1,64	1,57	1,59	1,55
T _L (%)	67,7	68,6	64,7	57,6	64,2	61,2
T _F (%)	32,3	31,4	35,3	42,4	35,8	38,8
Tourteau						
Q _C (kg/h)	3,32	3,24	3,34	3,26	3,26	3,13
H _C (%)	4,16 ± 0,05 ^b	4,41 ± 0,00 ^a	4,15 ± 0,01 ^b	4,13 ± 0,08 ^b	1,59 ± 0,04 ^c	0,59 ± 0,00 ^d
L _C (% de MS)	7,74 ± 0,01 ^f	7,98 ± 0,03 ^e	8,62 ± 0,08 ^b	8,96 ± 0,06 ^a	8,12 ± 0,02 ^d	8,28 ± 0,01 ^c
P _C (% de MS)	23,82 ± 0,14 ^a	23,11 ± 0,06 ^b	22,65 ± 0,03 ^c	21,94 ± 0,03 ^c	22,36 ± 0,16 ^d	22,32 ± 0,19 ^d
Rendements d'extraction en lipides (%)						
R _L	70,6	70,0	65,3	57,5	63,5	60,7
R _C	85,0	84,4	83,0	82,2	83,8	83,5
Consommation énergétique						
T (%)	21,8	19,8	15,8	13,0	15,0	13,9
P (W)	365,0	368,7	331,2	301,9	246,4	229,1
SME (W.h/kg de graines traitées)	70,8	74,3	64,9	61,1	48,7	46,6
SME' (W.h/kg d'huile exprimée)	314,4	332,9	312,0	333,4	240,9	241,1

S_s, vitesse de rotation des vis ; Q_s, débit entrant de graines de jatropha ; C_F, coefficient de remplissage de la machine (il est défini comme le rapport du débit entrant de graines de jatropha sur la vitesse de rotation des vis) ; θ₇, consigne de température du fourreau au niveau du module 7 (zone de pressage) ; Q_F, débit de filtrat ; T_L, taux d'huile exprimée dans le filtrat ; T_F, taux de pied dans le filtrat ; Q_C, débit de tourteau ; H_C, teneur en humidité du tourteau ; L_C, teneur résiduelle en lipides du tourteau ; P_C, teneur résiduelle en protéines du tourteau ; R_L, rendement en huile exprimée, calculé par rapport à l'huile que la graine contient ; R_C, rendement en huile exprimée, calculé par rapport à l'huile résiduelle contenue dans le tourteau ; T, couple du moteur de l'extrudeur bi-vis ; P, puissance électrique fournie par le moteur de l'extrudeur bi-vis ; SME, énergie mécanique spécifique (par kg de graines traitées) ; SME', énergie mécanique spécifique (par kg d'huile exprimée).

Les modules 2, 3, 4 et 5 étaient chauffés à une consigne de température de 80 °C pour tous les essais ; MS, matière sèche ; les valeurs moyennes d'une même ligne et avec la même lettre (a-f) ne sont pas significativement différentes à P < 0,05.

■ Dans un deuxième temps, l'influence du **profil de température**, notamment la température de la zone de pressage, a été étudiée. Pour ce faire, c'est le remplissage optimal de l'extrudeur bi-vis (34 g/h.rpm) qui a été privilégié, et trois températures ont été envisagées pour la zone de pressage : 80 °C, 100 °C et 120 °C. Et, comme déjà mentionné dans la littérature pour les graines de tournesol (Amalia Kartika et al., 2005, 2006), l'augmentation de la température de pressage de 80 à 120 °C n'a pas amélioré l'efficacité du pressage de l'huile (**Tableau 2**). En effet, l'influence de la température sur le temps de séjour de la matière oléagineuse dans la zone de pressage peut être corrélée à sa viscosité ainsi qu'au degré de remplissage de l'extrudeur bi-vis à cet endroit (Gautam et Choudhury, 1999a). Le remplissage le plus élevé de la zone de pressage est ainsi obtenu lorsque le flux de matière s'écoulant à travers les contre-filets CF2C est le plus visqueux. Puisque l'augmentation de la température de pressage conduit à une fluidité accrue du mélange oléagineux, elle s'accompagne donc d'une diminution du temps de séjour et de l'apport d'énergie à cet endroit, conduisant logiquement à une diminution du couple moteur (de 22 à 14%), à une légère augmentation de la teneur en huile du tourteau gras (de 7,7 à 8,3% de sa masse sèche), à une augmentation de la teneur en pied du filtrat (de 32 à 39%), à une légère diminution du rendement R_C (de 85 à 83%) et surtout à une diminution significative du rendement R_L (de 71 à 61%)

(**Tableau 2**). Par conséquent, c'est par une diminution de la température de la zone de pressage qu'il sera possible d'améliorer la qualité de la séparation liquide/solide, s'expliquant par l'augmentation de la rhéologie du mélange s'écoulant alors dans les contre-filets CF2C.

■ En conclusion, même si le profil de vis s'est avéré être le paramètre le plus influent de l'étude menée sur le jatropha, celle-ci a également permis de montrer que le **remplissage de l'extrudeur bi-vis** et le **profil de température**, en particulier la température de la zone de pressage, avaient tous les deux une forte influence sur le rendement de pressage en huile (**A10**). Les meilleurs rendements (57% au minimum) ont été obtenus à l'aide d'un profil de vis préalablement optimisé. Ce profil était constitué d'une zone de trituration, composée de dix éléments malaxeurs monolobes et de dix éléments malaxeurs bilobes, et d'une zone de pressage, composée d'éléments à pas inverse de type CF2C, d'une longueur égale à 50 mm et présentant un pas de -33 mm (**Figure 11**). En outre, pour ce profil optimisé, une augmentation du rendement d'extraction en huile a bien été observée avec la diminution de la **température de la zone de pressage** ainsi que celle de la vitesse de rotation des vis, conduisant alors à une augmentation du **remplissage de l'extrudeur bi-vis**. C'est ainsi que le rendement d'extraction en huile le plus élevé de l'étude (71%), associé à une bonne qualité du tourteau gras (moins de 8% de sa masse sèche pour la teneur résiduelle en lipides), a été obtenu à partir des conditions opératoires suivantes : 153 rpm pour la vitesse de rotation des vis, 5,2 kg/h pour le débit entrant de graines de jatropha (soit 34 g/h.rpm pour le coefficient de remplissage de la machine) et 80 °C pour la température de la zone de pressage. Par ailleurs, le coût de production de l'huile extraite à partir de ces conditions optimisées a été estimé à 71 W.h/kg de graines traitées, soit 314 W.h/kg d'huile exprimée. Pour comparaison, une autre étude, menée à l'aide d'une presse mono-vis de capacité équivalente, communément utilisée pour l'extraction mécanique de l'huile de jatropha à partir des graines, faisait référence à un coût de production nettement plus élevé : 462 W.h/kg de graines traitées, soit environ 1,6 kW.h/kg d'huile exprimée (Karaj et Müller, 2011). En comparaison des presses mono-vis, la technologie bi-vis présente donc de nombreux avantages pour ce qui est de l'extraction de l'huile de jatropha par pressage mécanique des graines. Parmi les principaux, citons ici une capacité au transport du matériel oléagineux nettement améliorée, une meilleure aptitude au mélange et au broyage, notamment dans la zone d'interpénétration des deux vis, conduisant à une lyse mécanique des cellules bien meilleure, et la production d'une huile à moindre coût. En outre, la technologie bi-vis permet la production d'une huile de jatropha de qualité suffisante (5,4 mg de KOH/g d'huile pour son indice d'acide, 915 kg/m³ pour sa densité et 37×10^{-6} m²/s pour sa viscosité cinématique) pour la production ultérieure de biodiesel par transestérification (**A10**).

■ Déjà observés lors de ma Thèse de Doctorat pour le cas du tournesol (**TD**) mais également pour celui du jatropha (**A10**) comme évoqué précédemment, les effets du **remplissage de l'extrudeur bi-vis** et de la **température de la zone de pressage** sur l'efficacité de l'extraction d'huile ont par la suite été confirmés à partir de graines de coriandre présentant une teneur en humidité de 9,8% à l'introduction (**A15**). En effet, à partir d'un profil de vis là encore préalablement optimisé (**Figure 13**), une augmentation du remplissage de l'outil bi-vis (de 31 à 47 g/h.rpm), obtenue cette fois-ci par augmentation du débit entrant de graines (de 3,1 à 4,7 kg/h) tout en maintenant la vitesse de rotation des vis constante (100 rpm), se traduit bien par une amélioration de l'efficacité du pressage liquide/solide au niveau des contre-filets CF2C. Un meilleur appauvrissement du tourteau gras en lipides résiduels est alors obtenu (de 16,5 à 16,1% de sa masse sèche), conduisant à une légère augmentation du rendement R_C (de 47 à 49%) (**Tableau 3**). Mais, c'est surtout le rendement R_L en huile exprimée, séparée du pied après centrifugation du filtrat, pour lequel l'augmentation fut la plus significative (de 40 à 46%), s'expliquant par un entraînement du pied au filtrat bien moindre pour le remplissage le plus élevé (8% au lieu de 16%). Dans un deuxième temps, à partir du remplissage préalablement optimisé (47 g/h.rpm),

la diminution de la température de pressage (de 120 à 65 °C) a également été envisagée. Et, comme pour le jatropha, cette diminution a bien permis une augmentation de l'effet de compression dans la zone de pressage, se traduisant par une diminution de la teneur résiduelle en lipides du tourteau de 16,5 à 15,0% de sa masse sèche, et conduisant logiquement à une augmentation du rendement R_C de 47 à 54% (**Tableau 3**). Néanmoins, pour une température de pressage de 80 °C ou moins, l'accumulation de particules solides au-dessus des grilles filtrantes est telle qu'une forte augmentation de la teneur en pied du filtrat est alors observée (de 8 à 18%). Le rendement R_L est alors légèrement diminué (de 46 à 41-42%). Pour la coriandre, c'est donc une température de pressage médiane (100 °C) qui a été considérée comme la plus favorable, permettant de limiter la teneur en pied du filtrat à seulement 8% et conduisant à un rendement en huile exprimée (R_L) de 46%, le plus élevé de l'étude pour le débit entrant de graines optimisé (4,7 kg/h) (**A15**). Cette valeur optimale du rendement R_L n'en demeure pas moins faible en comparaison des résultats obtenus à partir des graines de jatropha : jusqu'à 71% en un seul étage de pressage mécanique (**A10**). En plus des conditions de pilotage de l'outil bi-vis déjà testées, une augmentation de la siccité de la graine de coriandre en entrée de réacteur a donc été envisagée dans un troisième temps.

1		2		3		4		5			6		7				
T2F 50	T2F 50	C2F 33	C2F 25	DM 10×10 (45°)	C2F 33	C2F 25	BB 10×10 (90°)	C2F 33	C2F 33	C2F 25	C2F 25	C2F 16	C2F 16	C2F 16	CF2C -33	C2F 25	C2F 33

Figure 13

Profil de vis optimisé utilisé pour l'expression de l'huile de graines de coriandre par pressage mécanique en extrudeur bi-vis Cleextral BC 21 (**A15**).

T2F, vis trapézoïdale à pas direct et à double filet ; C2F, vis conjuguée à pas direct et à double filet ; DM, disque malaxeur monolobe ; BB, disque malaxeur bilobe ; CF2C, vis conjuguée à pas inverse et à double filet. Les nombres suivant le type de vis correspondent au pas (en mm) des vis T2F, C2F et CF2C, et au nombre de disques malaxeurs monolobes (DM) et bilobes (BB).

Tableau 3

Résultats des essais de pressage mécanique en réacteur bi-vis Clextral BC 21 des graines de coriandre menés à l'aide d'un profil de vis préalablement optimisé (**Figure 13**) (**A15**).

N° d'essai	1	2	3	4	5	6
Conditions opératoires						
S _s (rpm)	100	100	100	100	100	100
Q _s (kg/h)	3,15	3,94	4,71	4,71	4,71	4,71
C _F (g/h.rpm)	31,5	39,4	47,1	47,1	47,1	47,1
θ ₆ (°C)	95,2±0,8	90,6±0,6	89,1±0,3	84,1±0,9	82,6±0,8	76,1±1,1
θ ₇ (°C)	120 (120,1±0,7)	120 (118,1±1,1)	120 (119,5±0,7)	100 (101,0±1,1)	80 (79,7±0,9)	65 (64,8±0,5)
Filtrat						
Q _F (kg/h)	0,38	0,52	0,59	0,59	0,59	0,59
T _L (%)	83,6	89,3	91,5	91,7	82,1	84,1
T _F (%)	16,4	10,7	8,5	8,3	17,9	15,9
Tourteau						
Q _C (kg/h)	2,61	3,31	3,92	4,00	3,97	4,00
H _C (%)	2,32 ± 0,14 ^f	3,73 ± 0,08 ^c	4,05 ± 0,06 ^d	4,88 ± 0,22 ^c	8,62 ± 0,27 ^b	8,99 ± 0,19 ^a
L _C (% de MS)	16,48 ± 0,21 ^b	16,82 ± 0,29 ^a	16,06 ± 0,08 ^c	16,46 ± 0,11 ^b	14,99 ± 0,05 ^d	15,23 ± 0,14 ^d
Rendement d'extraction en lipides (%)						
R _L	40,5	46,9	45,8	46,3	41,1	41,8
R _C	46,7	45,6	48,7	46,7	53,7	52,8
Consommation énergétique						
T (%)	5,0 ± 1,7 ^c	37,2 ± 1,4 ^d	45,6 ± 1,5 ^c	47,7 ± 2,0 ^b	54,2 ± 2,2 ^a	54,9 ± 1,3 ^a
P (W)	274,2 ± 18,8 ^c	407,8 ± 15,6 ^d	499,0 ± 16,1 ^c	522,9 ± 21,7 ^b	594,1 ± 23,9 ^a	601,0 ± 14,4 ^a
SME (W.h/kg de graines traitées)	86,9 ± 6,0 ^c	103,5 ± 4,0 ^{c,d}	105,9 ± 3,4 ^c	111,0 ± 4,6 ^b	126,1 ± 5,1 ^a	127,6 ± 3,0 ^a
SME' (W.h/kg d'huile exprimée)	859,1 ± 58,9 ^d	884,1 ± 33,9 ^{c,d}	925,6 ± 29,9 ^{b,c}	960,1 ± 39,9 ^b	1228,9 ± 49,5 ^a	1221,4 ± 29,2 ^a

S_s, vitesse de rotation des vis ; Q_s, débit entrant de graines de coriandre ; C_F, coefficient de remplissage de la machine (il est défini comme le rapport du débit entrant de graines de coriandre sur la vitesse de rotation des vis) ; θ₆, température du fourreau mesurée lors du prélèvement au niveau du module 6 (zone de filtration) ; θ₇, température du fourreau au niveau du module 7 (zone de pressage) (valeur de consigne mentionnée en premier lieu et température mesurée lors du prélèvement entre parenthèses) ; Q_F, débit de filtrat ; T_L, taux d'huile exprimée dans le filtrat ; T_F, taux de pied dans le filtrat ; Q_C, débit de tourteau ; H_C, teneur en humidité du tourteau ; L_C, teneur résiduelle en lipides du tourteau ; R_L, rendement en huile exprimée, calculé par rapport à l'huile que la graine contient ; R_C, rendement en huile exprimée, calculé par rapport à l'huile résiduelle contenue dans le tourteau ; T, couple du moteur de l'extrudeur bi-vis ; P, puissance électrique fournie par le moteur de l'extrudeur bi-vis ; SME, énergie mécanique spécifique (par kg de graines traitées) ; SME', énergie mécanique spécifique (par kg d'huile exprimée).

Les modules 2 à 5 étaient chauffés à une consigne de température de 65 °C pour tous les essais ; MS, matière sèche ; les valeurs moyennes d'une même ligne et avec la même lettre (a-f) ne sont pas significativement différentes à P < 0,05.

■ Directement lié à la matière première entrante, le troisième paramètre opératoire étudié au cours de mes travaux a donc été la **siccité de la graine oléagineuse en entrée** d'extrudeur bi-vis. Une étude exhaustive sur le sujet a ainsi été menée pour le cas des graines de coriandre. Les résultats obtenus feront prochainement l'objet d'une publication, actuellement en préparation, dans une revue à comité de lecture (**API**). Pour ce faire, les graines de coriandre ont été pressées mécaniquement à partir de conditions opératoires (profil de vis, profil de température, débit entrant de graines sèches et coefficient de remplissage de l'extrudeur bi-vis) préalablement optimisées. Et, seule l'humidité de la graine a varié : de 9,8% (humidité naturelle de la graine lors de son stockage sous atmosphère contrôlée, correspondant à une humidité relative de 60%) à 0,3%.

Ainsi, le séchage de la matière première est vu ici comme un pré-traitement appliqué à la graine avant extrusion, et qui favoriserait l'extraction de l'huile végétale par pressage mécanique. En effet, de précédentes études, menées à l'aide de presses mono-vis uniquement et à partir de germes de maïs (Moreau et al., 2005), de graines de jatropha (Pradhan et al., 2011) et de graines de crambe (Singh et al.,

2002), avaient montré que le pré-séchage de la matière oléagineuse entrante avait une forte influence sur le processus d'extrusion, améliorant considérablement les rendements d'extraction en huile. Néanmoins, à notre connaissance, aucune étude utilisant le séchage des graines en guise de pré-traitement avant extrusion n'avait été rapportée pour le cas de la technologie bi-vis. Sur la base d'une première étude ayant permis une optimisation des profils de vis et de température ainsi qu'une optimisation du taux de remplissage du réacteur bi-vis Clextral BC 21 utilisé, pour laquelle un rendement maximal d'extraction de 47% avait été atteint à partir de graines non séchées (A15), le travail auquel il est ici fait référence a donc consisté en l'étude de l'effet de la teneur en humidité des graines en entrée sur le rendement d'extraction ainsi que sur la qualité de l'huile obtenue (AP1).

La **Figure 14** fait apparaître les résultats obtenus pour les six humidités testées, le rendement R_L correspondant au rendement d'extraction en huile végétale obtenue après centrifugation du filtrat. Pour sa part, le rendement d'extraction R_C est calculé sur la base de la teneur résiduelle en huile du tourteau produit en fin d'extrusion. Il est clair que la réduction de la teneur en humidité des graines a un effet positif sur la libération de l'huile végétale par pressage mécanique en extrudeur bi-vis. L'augmentation du rendement R_C (de 47 à 68%) est la conséquence directe d'une diminution progressive de la teneur résiduelle en huile du tourteau (de 16,5 à 11,3% de sa masse sèche). Elle est due à une rigidité accrue de la graine pré-séchée, ce qui entraîne une intensification de la friction à l'intérieur du fourreau, notamment dans la zone de pressage, l'eau agissant au cours du pressage comme un lubrifiant lorsqu'elle est présente (Singh et Bargale, 1990). En outre, l'humidité augmentant la plasticité de la matière (Singh et al., 2002), une diminution de sa teneur favorise à l'inverse une meilleure compression du mélange dans la zone de pressage, conduisant à une meilleure efficacité de la séparation liquide/solide. Cela est également démontré par les mesures de température faites à la fois sur le filtrat et sur le tourteau, et qui toutes deux augmentent en raison du niveau élevé de friction généré par la diminution de l'humidité de la graine : de 46 à 58 °C et de 74 à 122 °C, respectivement (AP1).

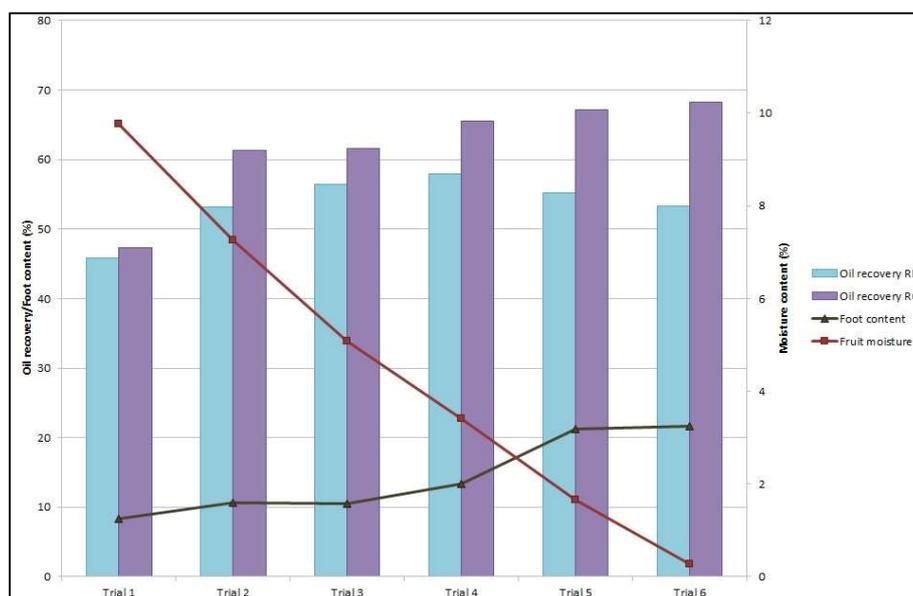


Figure 14

Rendements d'extraction (R_L et R_C) en huile végétale de coriandre obtenue par pressage mécanique des graines en extrudeur bi-vis Clextral BC 21, et teneur en pied du filtrat selon l'humidité des graines en entrée (AP1).

Alors que le meilleur essai pour ce qui est du rendement R_C (68%) est représenté par l'essai n° 6 pour lequel les graines présentaient la plus faible teneur en humidité (0,3%), l'essai n° 4, mené avec

des graines ayant une teneur en humidité médiane (3,4%), génère une quantité d'huile exprimée plus élevée, conduisant à un rendement R_L plus favorable (58% au lieu de 53% pour l'essai n° 6). L'écart entre ces deux rendements s'explique par la teneur en pied du filtrat, plus élevée pour l'essai n° 6. En effet, lorsque l'on regarde la **Figure 14**, une augmentation de cette teneur s'accompagne d'une augmentation de l'écart entre les deux rendements en huile, R_L et R_C . Une réduction du niveau d'entraînement du pied au filtrat pourrait être obtenue par utilisation d'une grille filtrante faite de trous de plus petit diamètre. Néanmoins, la grille de 500 μm utilisée pour cette étude était la grille la plus fine dont nous disposions.

En raison de l'augmentation importante de la teneur en pied du filtrat pour les graines les plus sèches (jusqu'à 22% pour une humidité de seulement 0,3%), le rendement R_L présente donc un optimum (58%) (+ 26% par rapport à l'essai de référence mené à partir de graines non séchées), obtenu pour une teneur en humidité intermédiaire (3,4%) et associé à une teneur résiduelle en lipides du tourteau de 11,9%. Puisque la teneur résiduelle en lipides du tourteau fait apparaître une valeur minimale (11,3%) pour la plus faible teneur en humidité des graines, correspondant logiquement à la valeur maximale (68%) du rendement R_C , l'efficacité du pressage continue d'augmenter jusqu'aux plus faibles valeurs de l'humidité des graines. Néanmoins, l'effet de la teneur en pied du filtrat devenant alors trop important, cela entraîne une perte substantielle d'huile lors de la centrifugation du filtrat et donc une diminution notable du rendement R_L .

L'amélioration progressive de l'efficacité du pressage des graines avec la diminution de leur humidité peut être illustrée par les augmentations, progressives elles aussi, du couple moteur (de 48 à 57%) et de l'énergie mécanique spécifique (de 111 à 182 W.h/kg de graines traitées, correspondant à une énergie mécanique spécifique de 1082 W.h/kg d'huile exprimée pour le cas de l'essai n° 6). Cependant, comme indiqué précédemment, l'essai n° 4 présente une situation plus favorable avec une teneur en pied nettement réduite (13%) et, par voie de conséquence, avec un rendement R_L d'extraction en huile plus élevé. En outre, cet essai optimal a conduit à une consommation énergétique bien inférieure (915 W.h/kg d'huile exprimée), conduisant à un procédé d'extraction non seulement plus efficace mais également plus économique. Enfin, toutes les huiles végétales obtenues au cours de cette étude ont présenté une qualité parfaitement satisfaisante, notamment avec une richesse en acide pétrosélinique de 73-74% (**API**). Lorsqu'un séchage intensif de la graine est pratiqué avant extrusion, des différences importantes de couleur sont toutefois observées pour l'huile de pressage ainsi que pour le tourteau. Un brunissement notable de l'huile produite a ainsi été constaté pour des humidités de la graine de coriandre inférieures à 5%.

En conclusion, même si une plus forte siccité de la graine de coriandre en entrée (96,6%) est favorable à une meilleure expression de son huile végétale, le rendement optimal R_L (58%) n'en demeure pas moins plus faible que pour le tournesol (73%) (**A3, TD**), le jatropha (71%) (**A10**) et le neem (63%) (Faye, 2010). Ceci est la conséquence d'une plus faible teneur en lipides dans la graine de coriandre : 28,0% de sa masse sèche au lieu de 49,7% pour le tournesol, 33,7% pour le jatropha et 32,2% pour le neem. Au cours de mes différents travaux relatifs à l'expression de l'huile de graines oléagineuses par pressage mécanique en réacteur bi-vis, une corrélation claire a ainsi pu être mise en évidence entre la teneur en huile de la graine traitée (L_S) et le rendement optimal d'extraction en lipides (R_L), le second augmentant avec la première (**Tableau 4**). En effet, moins la graine oléagineuse traitée est riche en huile (cas de la coriandre), plus il est difficile de l'extraire en fortes proportions par simple pressage mécanique, une partie de cette huile ayant toujours tendance à rester emprisonnée à l'intérieur du squelette cellulaire malgré l'effet de compression exercé sur la graine triturée dans la zone de pressage (bouchon dynamique au niveau des contre-filets).

Tableau 4

Influence de la teneur en huile de la graine oléagineuse traitée sur le rendement optimal d'extraction en lipides par pressage mécanique en réacteur bi-vis.

Matière première	Tournesol	Jatropha	Neem	Coriandre
Référence(s)	A3, TD	A10	Faye, 2010	AP1
Réacteur bi-vis	Clextral BC 45	Clextral BC 21	Clextral BC 21	Clextral BC 21
L_S (% de MS)	$49,7 \pm 0,2$	$33,7 \pm 0,3$	$32,2 \pm 0,7$	$28,0 \pm 0,5$
L_C (% de MS)	$14,3 \pm 0,1$	$7,7 \pm 0,0$	$14,6 \pm 0,3$	$11,9 \pm 0,2$
R_L (%)	72,9	70,6	63,4	57,9
R_C (%)	82,4	85,0	67,0	65,5

L_S , teneur en lipides de la graine ; L_C , teneur résiduelle en lipides du tourteau ; R_L , rendement en huile exprimée, calculé par rapport à l'huile que la graine contient ; R_C , rendement en huile exprimée, calculé par rapport à l'huile résiduelle contenue dans le tourteau.

MS, matière sèche.

5. Utilisations potentielles des huiles végétales obtenues par pressage :

Selon qu'elles contiennent ou non un (des) agent(s) toxique(s), les utilisations des huiles végétales obtenues par pressage mécanique en extrudeur bi-vis seront différentes :

■ En l'absence de toxicité (cas des huiles de tournesol et de coriandre), l'huile comestible ainsi obtenue sera bien évidemment utilisée en priorité par l'industrie agroalimentaire (assaisonnement des salades et fabrication de margarine et de mayonnaise pour le tournesol ; complément alimentaire ou produit nutraceutique pour la coriandre), même si des utilisations non alimentaires, pour des applications en industrie cosmétique par exemple, pourront également être envisagées (**A15**). Le plus souvent, une étape de raffinage de ces huiles sera toutefois nécessaire avant utilisation.

■ À l'opposé, lorsque les huiles de pressage contiennent des agents toxiques les rendant impropres à la consommation humaine (cas des huiles de neem et de jatropha), c'est exclusivement vers des valorisations non alimentaires que le choix s'orientera.

a. Le raffinage des huiles végétales obtenues par pressage :

Avant toute opération de raffinage, les huiles obtenues par pressage en extrudeur bi-vis doivent tout d'abord être traitées par centrifugation afin d'éliminer les particules solides entraînées au filtrat lors de la séparation liquide/solide. Ces particules en suspension constituent le pied, et le taux de pied dans le filtrat dépend de divers critères tels que le profil de vis utilisé et les conditions opératoires mises en œuvre (vitesse de rotation des vis, débit entrant de graine oléagineuse, température de la zone de pressage, etc.). Dans le cadre des travaux que j'ai conduits au LCA, la teneur massique en pied du filtrat était de 31-42% pour le jatropha (**A10**), de 8-17% pour la coriandre (**A15**) et de seulement 7% pour le tournesol (**A3**). Pour le neem, elle s'élevait à 14-25% (Faye, 2010).

Outre l'optimisation du profil de vis et des conditions opératoires, l'utilisation d'une grille de filtration percée de trous coniques de plus petit diamètre (idéalement moins de 500 μm) devrait favoriser pour de futures études la diminution de la quantité de particules solides entraînées au filtrat, sans que cela n'empêche l'huile de s'écouler librement lors du procédé d'extrusion. Parce que le pied est généralement recyclé en tête de procédé lors d'opérations commerciales, l'abaissement de la teneur en pied du filtrat permettrait également de réduire la quantité de matière recyclée, minimisant ainsi l'impact sur le débit entrant (**A10**).

Puis, un raffinage des huiles devenues limpides après centrifugation pourra être effectué en cas de besoin même si je n'ai pas directement été amené à travailler sur cette problématique au cours de mes travaux de recherche au LCA. Rappelons tout de même ici que, largement décrit dans la littérature

puisqu'ayant fait l'objet d'une multitude d'adaptations depuis une trentaine d'années, le raffinage consiste en une succession de cinq étapes de purification, chacune d'elles visant à éliminer divers composés susceptibles d'altérer la qualité des huiles pour une utilisation ultérieure, notamment dans le domaine alimentaire (TD) :

■ Les **composés phosphorés** (jusqu'à 1,5 % de phospholipides dans l'huile brute de tournesol par exemple), les glycolipides ainsi que les sucres libres et les protéines à l'état de traces ; responsables des troubles de l'huile, de mauvais goûts et de phénomènes d'oxydation, ces composés sont isolés par le biais d'une opération dite de **dégommage** (ou démuçilage).

■ Les **produits d'hydrolyse** (acides gras libres, glycérides partiels dont la présence est traduite par l'indice de saponification de l'huile brute : de 180 à 200 mg de KOH/g d'huile de tournesol par exemple) ; responsables de l'acidité de l'huile, et de la formation d'émulsions ou de mousses, ces composés sont isolés par le biais d'une opération dite de **neutralisation** (ou désacidification) puis d'un séchage.

■ Les **produits colorés** (carotène, chlorophylle) ; responsables de la coloration des huiles et de réactions d'oxydation conduisant à leur brunissement, ces composés sont isolés par le biais d'une opération dite de **décoloration** (adsorption sur terre, charbons actifs ou silice).

■ Les **cires** (moins de 0,5 % dans l'huile de tournesol brute) ; susceptibles de précipiter lors du stockage des huiles, ces composés sont isolés par le biais d'une opération dite de **décirage**.

■ Les **produits d'oxydation** (aldéhydes volatils, cétones, hydrocarbures) ; responsables de mauvais goûts et odeurs de l'huile, ces composés sont isolés par le biais d'une opération dite de **désodorisation**.

En fin de raffinage, l'huile obtenue répondra alors à des critères de pureté en triglycérides, d'absence de toxicité, de neutralité de goût, d'odeur et de couleur, permettant ainsi son usage pour de multiples applications, notamment dans le domaine agroalimentaire.

b. Estimation de la qualité des huiles végétales obtenues par pressage :

Afin de juger de l'utilité d'une étape de raffinage, la qualité des huiles vierges obtenues par pressage mécanique en extrudeur bi-vis a été étudiée pour le jatropha (A10) et la coriandre (A15). **Et, il est apparu que ces huiles étaient toutes les deux d'excellente qualité, facilitant ainsi considérablement leur raffinage en vue de leurs utilisations ultérieures.**

■ Pour les huiles de jatropha, même si leur indice d'acide tend à augmenter avec le cisaillement mécanique appliqué à la graine lors du traitement d'extrusion bi-vis (jusqu'à 9 mg de KOH/g d'huile, correspondant à une acidité de 4,5%), l'utilisation d'un profil de vis optimisé pour l'extraction de l'huile par pressage mécanique (jusqu'à 71% de rendement d'expression en huile, pour un tourteau gras contenant moins de 8% de lipides résiduels) permet par la même occasion une minimisation de l'acidité des huiles obtenues : seulement 5 mg de KOH/g d'huile, correspondant à une acidité de seulement 2,5% (A10). Produites en plus grande quantité à l'aide de ce profil optimisé, les huiles sont donc aussi de meilleure qualité. Et, cette valeur d'acidité apparaît comme tout à fait acceptable pour la synthèse ultérieure de biodiesel. En effet, la réaction de transestérification des triglycérides avec de l'alcool, en présence d'un catalyseur, est influencée de façon significative par la présence éventuelle d'acides gras libres dans l'huile (Goodrum, 2002). Par exemple, dans le cas d'une transestérification effectuée en milieu alcalin, les acides gras libres réagissent rapidement avec le catalyseur pour produire des savons qui sont extrêmement difficiles à séparer. La quantité de catalyseur disponible pour la réaction de transestérification se trouve alors réduite, conduisant à une diminution inexorable du rendement de production en biodiesel. Les savons produits peuvent également provoquer une augmentation de la viscosité du milieu et l'apparition de gels, rendant ainsi difficile la séparation du glycérol en fin de

réaction (Qian et al., 2008). Une faible teneur en acides gras libre dans l'huile (moins de 3%) est donc requise pour la transestérification des triglycérides en catalyse alcaline (Canakci et Gerpen, 2001).

En parallèle, la teneur en phospholipides des huiles de jatropha pressées à l'aide du profil de vis optimisé est comprise entre 3,4 et 4,5 g/kg d'huile, soit moins de 0,5% (A10). Et, si une augmentation de la vitesse de rotation des vis augmente la co-extraction des phospholipides en raison d'un cisaillement plus intense, c'est surtout l'augmentation de la température de pressage qui favorise l'entraînement de ces composés phosphorés. En augmentant, la température de pressage provoque un séchage plus prononcé des graines qui, en raison de leur élasticité réduite, sont alors plus finement broyées par les vis à pas inverse (éléments CF2C). De la rupture intensifiée des parois cellulaires, il résulte alors une plus forte co-extraction des phospholipides membranaires, la température maximale testée (120 °C) conduisant à la plus forte teneur en phospholipides dans l'huile de pressage (0,5%). Un tel phénomène avait déjà été observé au LCA lors d'études précédentes consacrées au pressage de l'huile de tournesol en extrudeur bi-vis (Lacaze-Dufaure, 1998 ; Dufaure et al., 1999a ; Amalia Kartika, 2005 ; Amalia Kartika et al., 2005, 2006). Avant transestérification de l'huile de jatropha pour la production d'EMHV, ces phospholipides pourront toujours être éliminés si cela est nécessaire, par le biais par exemple d'un procédé de dégomme combinant deux étapes, l'une en présence d'eau et l'autre en milieu acide, suivi d'une opération de filtration membranaire (Liu et al., 2012).

■ Dans le cas de la coriandre, la qualité des huiles a dans un premier temps été étudiée au travers de leur teneur en acide pétrosélinique. Et, cette dernière a été considérée comme étant indépendante des conditions opératoires testées lors de l'extrusion bi-vis, à savoir le profil de vis, la température de pressage et la siccité de la graine oléagineuse en entrée. En effet, toutes les huiles de pressage analysées révèlent une teneur élevée en acide pétrosélinique, comprise entre 72,7 et 74,8%, et très proche de celle de l'huile extraite au Soxhlet à l'aide du *n*-hexane (72,6%) (A15, AP1). L'indice d'acide a également été mesuré. Compris entre 2,8 et 3,4 mg de KOH/g d'huile, correspondant à une acidité de seulement 1,4-1,7%, il est lui aussi indépendant du profil de vis utilisé et de la température de pressage mise en œuvre (A15), mais également de la siccité de la graine en entrée (AP1). Par ailleurs, l'indice de peroxyde s'est avéré quasi-nul immédiatement après le traitement d'extrusion (AP1 ; Uitterhaegen, 2018). De plus, lorsque les huiles de coriandre sont soigneusement stockées (conditionnement sous azote et dans des récipients opaques et parfaitement hermétiques), cet indice n'évolue pas au cours du temps, confirmant qu'il est possible de bloquer durablement tout processus d'oxydation qui, s'il devait se produire, pourrait conférer à l'huile un mauvais goût ou une mauvaise odeur.

Les huiles végétales de coriandre obtenues par pressage mécanique en extrudeur bi-vis sont donc toutes d'excellente qualité, confirmant par la même occasion leur caractère d'huiles vierges. **Ainsi, aucune opération de neutralisation et/ou de désodorisation ne sera nécessaire avant leur utilisation comme complément alimentaire ou produit nutraceutique.** En outre, l'huile essentielle contenue initialement dans la graine de coriandre étant partiellement co-extraite lors du traitement d'extrusion bi-vis (jusqu'à 60% de sa teneur initiale), cela contribue à rendre les huiles végétales produites agréablement parfumées, leur conférant un intérêt supplémentaire indéniable (A15 ; AP1 ; Uitterhaegen, 2018). Cette odeur agréable a pu être confirmée au travers d'une analyse fine des composés volatils émis par l'huile végétale *via* la technique d'extraction par sorption dans l'espace de tête (SPME HeadSpace), couplée à un chromatographe en phase gazeuse (GC-MS). Parmi les composés volatils ayant ainsi été identifiés, il est possible de citer, par ordre décroissant de leurs teneurs, le linalool, l' α -pinène, le γ -terpinène, le limonène, le p-cymène, etc. Composé majoritaire parmi les volatils émis, la quantification du linalool présent dans l'huile de pressage a pu être effectuée. Sa concentration a ainsi été estimée à environ 25,3 mg/g d'huile végétale. Il s'agit précisément du composé majoritaire (71,7%) contenu dans l'huile essentielle de coriandre (A15), obtenue classiquement par hydrodistillation du fruit, confirmant du même coup de façon certaine la co-extraction des deux huiles évoquée précédemment. Sur la base de cette teneur moyenne de 71,7% en linalool dans l'huile essentielle, cela représente une concentration

en volatils d'environ 35,3 mg/g d'huile végétale, soit tout de même 3,5% du poids de l'huile de pressage. Par ailleurs, signalons ici que ce phénomène de co-extraction est favorisé par l'action de pressage mécanique, l'analyse selon le même protocole d'une huile végétale extraite au *n*-hexane ayant révélé pour le linalool un pic quatre fois moins important.

Une caractérisation plus exhaustive de l'huile végétale de coriandre d'origine française a également été effectuée à partir d'un extrait au *n*-hexane, obtenu à l'aide d'un extracteur de type Soxhlet (A24). Signalons tout d'abord que les valeurs de l'acidité (1,8%) et de la teneur en acide pétrosélinique (73%) mesurées sur cette huile sont parfaitement comparables aux résultats obtenus à partir des huiles vierges produites par pressage mécanique en extrudeur bi-vis. Par ailleurs, l'huile végétale de coriandre apparaît comme une huile au potentiel industriel élevé, s'expliquant par sa richesse en composés bioactifs. Elle est en effet caractérisée par une teneur élevée en composés insaponifiables, comprenant notamment une quantité importante de phytostérols (670 mg/100 g). Présentant un bénéfice certain pour la santé humaine, les principaux stérols ayant été identifiés sont le β -sitostérol (35% des stérols totaux), le stigmastérol (24%) et le Δ^7 -stigmastérol (18%). Par ailleurs, une quantité non négligeable de tocols a également été mise en évidence (500 mg/kg), se composant principalement de tocotriénols (95%) dont le γ -tocotriénol en guise de composé majeur. À ce titre, il est raisonnable d'affirmer que l'huile végétale de coriandre dispose d'une forte activité antioxydante. L'huile végétale d'origine française dispose également d'une quantité non négligeable de chlorophylle (environ 11 mg/kg) mais d'une teneur en phospholipides particulièrement faible (0,3%), comprenant notamment l'acide phosphatidique (33%), la phosphatidylcholine (25%), le phosphatidylinositol (17%) et la phosphatidyléthanolamine (17%). Près de la moitié de ces phospholipides étant non hydratables, cela pourrait poser un problème pour un dégommeage ultérieur, l'élimination des phospholipides non hydratables exigeant des processus plus complexes avec l'utilisation d'acide phosphorique ou d'acide citrique (Zufarov et al., 2008). Néanmoins, la teneur en phospholipides de l'huile végétale de coriandre reste faible. Par ailleurs, le développement récent de procédés de dégommeage enzymatique a abouti à une alternative écologique qui réduit l'utilisation de produits chimiques (Sampaio et al., 2015).

c. Les utilisations non alimentaires des huiles végétales obtenues par pressage :

Outre les utilisations alimentaires des huiles végétales lorsque celles-ci sont comestibles (cas du tournesol et de la coriandre), les huiles obtenues par pressage mécanique de graines oléagineuses en extrudeur bi-vis pourront trouver de nouvelles valorisations. En effet, ces dernières années ont vu le développement d'applications non alimentaires pour les huiles végétales, notamment en lipochimie ou pour la production de biocarburants, de biolubrifiants, de biosolvants et de biotensioactifs. Plusieurs laboratoires ont ainsi orientés leur développement vers ce type de recherche, notamment le LCA au travers de son équipe de recherche « *Lipochimie et Réactivité Chimique des Agromolécules* », dirigée par M. Zéphirin Mouloungui (Directeur de Recherche INRA), et l'Université de Gand (Belgique) au travers de SynBioC (Department of Sustainable Organic Chemistry and Technology), dirigé par le Pr. Chris Stevens.

Parmi les utilisations non alimentaires des huiles végétales, la production de **biocarburant** occupe une place de choix. La demande de substitution des carburants d'origine fossile par des biocarburants renouvelables et économes en émission de CO₂ en est la raison principale. L'obtention de biocarburants de première génération par transestérification des triglycérides contenus dans les huiles végétales, à l'aide de méthanol ou d'éthanol pour la production d'EMHV ou d'EEHV, respectivement, répond parfaitement à cette demande. Néanmoins, dans un contexte de pénurie de surface cultivée, cette demande en biodiesel est depuis longtemps supérieure à la capacité de production agricole des matières

premières classiquement utilisées en France pour le produire (colza, tournesol). De plus, elle se heurte à la concurrence du marché de l'agroalimentaire.

■ Dans ce contexte, utiliser l'huile de jatropha pour la production de biodiesel apparaît comme judicieux, celle-ci n'étant pas comestible. En effet, la présence dans cette huile de l'ester de phorbol, toxique pour l'homme, obligerait à une étape de détoxification délicate et onéreuse. Réalisés en collaboration avec l'Institut Pertanian Bogor (Indonésie), les travaux de pressage mécanique de la graine de jatropha par extrusion bi-vis ont confirmé qu'il était possible de produire en continu une huile vierge d'excellente qualité, un rendement optimisé de 71% ayant été atteint en une seule étape (A10). Mais, c'est surtout la faible acidité de cette huile (2,5%) qui la rend particulièrement intéressante, celle-ci pouvant être directement transformée en biodiesel, c'est-à-dire sans la moindre étape de raffinage avant sa transestérification (Canakci et Gerpen, 2001).

■ En complément de ces travaux, la collaboration avec l'Institut Pertanian Bogor a également permis le développement d'un nouveau procédé qui permet l'obtention de biodiesel en milieu alcalin directement à partir des graines de jatropha, simplement broyées. L'extraction au *n*-hexane de l'huile de jatropha et la transestérification *in situ* de ses triglycérides en esters méthyliques sont réalisées en une seule étape. Dans un premier temps, pour un ratio *n*-hexane/graine fixé à 1/1, les effets de cinq conditions opératoires différentes (le ratio méthanol/graine, la concentration en potasse dans le méthanol, la vitesse d'agitation du mélange à l'intérieur du réacteur, la température et le temps de réaction) sur le rendement de production en biodiesel et sur sa qualité ont été étudiés. Bien que cette technologie novatrice ne mette pas en jeu l'extrusion bi-vis, les résultats prometteurs obtenus ont justifié leur publication dans le journal *Fuel* (A8). En effet, des rendements en biodiesel particulièrement élevés (87%) peuvent être obtenus à partir de conditions opératoires optimisées. La pureté dudit biodiesel en esters méthyliques s'élève alors à 99,7%, le rendant ainsi conforme à la norme indonésienne SNI 04-7182-2006 relative aux qualités requises pour une utilisation du biodiesel dans ce pays.

■ Sur la base de ces premiers résultats, une deuxième étude a consisté en l'utilisation de ratios *n*-hexane/graine plus élevés (jusqu'à 3/1). Et, l'optimisation des conditions opératoires a alors permis d'atteindre un rendement en biodiesel encore plus élevé que précédemment (92%), obtenu pour un ratio *n*-hexane/graine de 2/1. Par ailleurs, sa pureté en esters méthyliques étant supérieure à 98%, le biodiesel obtenu à partir de ces conditions opératoires optimisées satisfait lui aussi les recommandations de la norme SNI 04-7182-2006 mais également celles des normes ASTM D 6751 et EN 14214. Meilleurs encore que les précédents pour ce qui est du rendement atteint, ces travaux ont eux aussi fait l'objet d'une publication dans le journal *Fuel* (A21). Dans cette même publication, signalons qu'une utilisation du raffinat solide est également proposée pour l'obtention par thermopressage de panneaux de particules auto-liés, satisfaisant ainsi l'un des principes de la bioraffinerie (ou raffinerie du végétal), à savoir la valorisation globale de la biomasse sans production d'aucun déchet.

Outre les biocarburants dont il vient d'être question, la **lipochimie** constitue un autre exemple prometteur de valorisation non alimentaire des huiles végétales. D'ailleurs, l'huile végétale de coriandre constitue une matière première de choix pour une telle application. En effet, qu'elle soit extraite au solvant ou pressée mécaniquement en extrudeur bi-vis, elle présente un profil d'acide gras spécifique, révélant une teneur en acide pétrosélinique (ou acide (*Z*)-octadéc-6-énoïque) particulièrement élevée (73%) (A15). L'acide pétrosélinique est un isomère rare de l'acide oléique, présent en quantités importantes dans un nombre limité d'huiles végétales, tout particulièrement celles des graines oléagineuses issues de la famille des Apiacées dont la coriandre fait partie. À ce titre, l'acide pétrosélinique constitue une molécule d'intérêt en lipochimie. En effet, il devrait permettre la synthèse

d'un grand nombre d'intermédiaires réactionnels qui pourraient, à l'avenir, trouver des applications pour les industries alimentaire, cosmétique et pharmaceutique.

En 2014, lors de la seconde moitié de son stage de Master qui a précédé sa Thèse de Doctorat au LCA, Mlle Uitterhaegen a ainsi pu confirmer lors de travaux préliminaires menés à l'Université de Gand, sous la responsabilité du Pr. Stevens (laboratoire SynBioC), toutes les potentialités de l'acide pétrosélinique dans ce domaine (Uitterhaegen, 2014). Dans un premier temps, une huile végétale de coriandre extraite au solvant a été hydrolysée en milieu alcalin. Puis, une étape de chromatographie *flash* suivie d'une cristallisation à -20 °C dans l'éthanol absolu ont conduit à l'obtention d'un acide pétrosélinique de haute pureté. Ce dernier a ensuite été estérifié avec succès en milieu acide grâce à un processus respectueux de l'environnement, permettant d'atteindre un rendement élevé (96-98%) en ester méthylique d'acide pétrosélinique. À partir de cet ester, différents intermédiaires réactionnels pourraient être développés. Et, même si les travaux de Mlle Uitterhaegen lors de son stage de Master ne furent que partiels, ils ont montré que la bromisation et l'époxydation de la double liaison présente le long de la chaîne grasse étaient toutes les deux possibles, s'accompagnant par ailleurs de rendements élevés (78% et 91%, respectivement). Ces deux nouveaux intermédiaires réactionnels présentent l'intérêt d'améliorer significativement la réactivité de l'ester méthylique d'acide pétrosélinique. Par la suite, la substitution de ces dérivés bromés et époxydés par ajout de groupes phosphonates pourrait ouvrir le champ vers de nouvelles applications industrielles.

Une autre utilisation de l'acide pétrosélinique est la synthèse d'un dérivé O-acyl de chitosane afin d'en améliorer ses propriétés antimicrobiennes, antifongiques et insecticides (Badawy et al., 2005). Ce développement a fait l'objet pour Mlle Uitterhaegen d'une quatrième année de thèse doctorale qu'elle a effectuée au sein du laboratoire SynBioC, toujours sous la responsabilité du Pr. Stevens, ce qui lui a d'ailleurs permis d'obtenir son diplôme en cotutelle. En outre, cette quatrième année de thèse doctorale a permis de formaliser une collaboration scientifique entre le LCA et l'Université de Gand, contribuant au rayonnement à l'international du laboratoire.

Rappelons ici que le chitosane est un polyoside biodégradable et biocompatible produit à partir de la chitine, le composant de l'exosquelette des crustacés ou de la paroi des champignons. Bien connu pour ses propriétés adhésives (Mati-Baouche et al., 2014a), le chitosane est un liant naturel qui a par exemple été récemment utilisé pour la conception d'isolants thermiques à base de broyats de tige de tournesol (Mati Baouche et al., 2014b, 2015 ; Mati-Baouche, 2015). Comme précédemment mis en évidence pour d'autres acides gras (Badawy et al., 2005), le dérivé O-acyl de chitosane, obtenu par greffage chimique de l'acide pétrosélinique (réaction d'estérification sur le groupement hydroxyle du chitosane en C6), a révélé des propriétés antimicrobiennes, antifongiques et insecticides améliorées par comparaison à celles du chitosane lui-même.

Deux de ces caractéristiques (résistance aux champignons et aux insectes) sont particulièrement importantes pour les matériaux d'isolation thermique. Utilisé en tant que nouveau liant naturel pour la fabrication de blocs isolants biosourcés par moulage par compression (**A16**), le dérivé O-acyl de chitosane ainsi développé devrait donc mieux satisfaire aux exigences de l'industrie du bâtiment. Par ailleurs, l'activité antimicrobienne également constatée de ce dérivé O-acyl de chitosane devrait pouvoir le rendre valorisable dans les domaines de l'agriculture et de l'alimentation, notamment sous la forme d'un film biodégradable destiné (i) à l'enrobage des graines de culture, les protégeant ainsi contre les champignons et augmentant leur rendement de récolte, ou (ii) à l'emballage des fruits et des légumes, prolongeant leur durée de conservation en raison des propriétés antimicrobiennes du film et de la création d'une atmosphère protégée (Badawy et al., 2005). Non encore publiés, ces résultats le seront dans les prochains mois.

6. L'extrudeur bi-vis utilisé pour l'extraction aqueuse des huiles végétales :

Au cours de mes travaux de recherche, l'extrudeur bi-vis a également été utilisé pour l'extraction des huiles végétales au solvant (**Figure 15** et **Figure 16**). Et, c'est vers l'eau que le choix du solvant s'est naturellement porté. Ce choix n'est pas innocent puisqu'il conduit à un procédé non seulement continu mais également plus respectueux de l'environnement, répondant ainsi à l'un des critères du concept de la bioraffinerie. Par ailleurs, les ratios liquide/solide mis en jeu en extrusion bi-vis sont particulièrement limités par comparaison aux procédés discontinus (en réacteur batch) classiquement utilisés pour ce genre d'opération. Les travaux auxquels il est ici fait référence ont été menés essentiellement à partir du tournesol, qu'il s'agisse des graines (**A2, TD**), de tourteaux gras issus d'un premier étage de pressage mécanique des graines (**A3, TD**) ou de la plante entière (**A5, A22, B1, TD**).

Pour une telle configuration, il est tout de même à noter que l'ajout de ce tiers solvant s'accompagne d'une diminution de la consistance du mélange dans la zone de pressage, rendant donc la séparation liquide/solide plus délicate voire même quasiment impossible dans le cas des graines et des tourteaux gras. Afin de garantir un meilleur essorage, il est alors nécessaire d'ajouter des fibres en amont du module de filtration (**Figure 15**). Et, dans ce cas, un extrait liquide et un raffinat solide sont bien obtenus séparément. Au cours de mes travaux, deux fibres ont été testées avec succès : la paille de blé et l'écorce de la tige de tournesol. À l'inverse, pour la plante entière, sa fraction fibreuse en provenance de la tige et du capitule permet une séparation liquide/solide satisfaisante sans qu'il ne soit nécessaire d'ajouter le moindre résidu lignocellulosique en amont du filtre (**Figure 16**). Le procédé d'extrusion bi-vis s'en trouve ainsi facilité.

■ Lors de mes travaux, c'est donc dans un premier temps la seule graine qui a été utilisée comme matière première (**A2, TD**). Et, comme déjà mentionné ci-dessus, l'introduction d'un résidu fibreux en amont du module de filtration a été nécessaire afin de garantir une séparation liquide/solide efficace (**Figure 15**). Lors de cette étude, l'influence des conditions opératoires sur le rendement d'extraction en huile a été étudiée. Ces conditions incluaient le profil de vis, la vitesse de rotation des vis, les débits entrants de graines et d'eau, et la nature du résidu lignocellulosique ajouté pour faciliter l'essorage du mélange ainsi que son débit entrant. Le meilleur rendement en huile obtenu représentait 54,5% des lipides contenus dans la graine, correspondant à une teneur en lipides résiduels dans le tourteau de 32,8% de sa masse sèche contre 49,7% pour la graine au départ.

Par ailleurs, au cours du procédé d'extraction aqueuse, il a été mis en évidence que l'huile était extraite sous la forme d'une émulsion huile/eau particulièrement stable, les gouttelettes lipidiques présentant un diamètre moyen d'environ 3 μm après homogénéisation à haute pression. Leur stabilité est assurée par la présence à l'interface d'agents tensioactifs naturels, les phospholipides et les protéines (notamment les albumines), co-extraits lors du processus d'extraction aqueuse. Néanmoins, une démixtion de ces émulsions est parfaitement envisageable par extraction alcoolique, l'éthanol utilisé ayant alors à la fois une action de dénaturation sur les protéines et de solvatation des lipides. Cette opération permet ainsi d'isoler l'huile extraite à l'eau. Elle conduit également à la production d'un extrait protéique aux propriétés tensioactives ou émulsifiantes.

L'efficacité de l'extraction aqueuse de l'huile de tournesol à partir des graines n'en demeure pas moins limitée, s'expliquant non seulement par une lyse cellulaire incomplète à l'intérieur de la graine mais également par les limites technologiques du réacteur bi-vis qui, même pour les débits de fibre ajoutée les plus élevés, ne permet pas une séparation complète des fractions liquide et solide. L'expression directe de l'huile des graines dans le réacteur bi-vis, menée par simple pressage mécanique et donc sans injection de solvant, étant plus efficace (rendement de pressage proche de 70%) que l'extraction aqueuse, il est apparu qu'un procédé en deux étapes, le premier utilisé pour le pressage

mécanique de l'huile des graines et le second pour l'extraction aqueuse des lipides résiduels contenus dans le tourteau gras, permettrait vraisemblablement d'améliorer le rendement global d'extraction en huile. Ces deux étages pourraient être mis en œuvre dans deux appareils successifs voire même dans le même réacteur bi-vis.

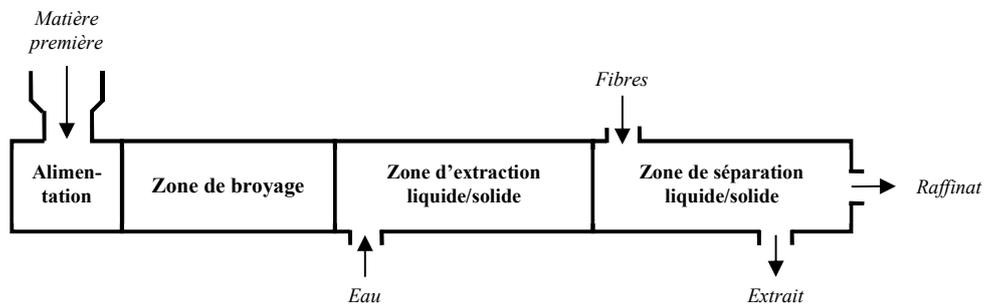


Figure 15

Configuration d'un extrudeur bi-vis mis en œuvre pour l'extraction aqueuse d'huile végétale de graines oléagineuses ou de tourteaux gras.

■ Dans un deuxième temps, c'est donc l'extraction en deux étages de l'huile de tournesol (pressage mécanique puis extraction aqueuse des lipides résiduels) qui a été envisagée (A3, TD). Deux configurations différentes ont ainsi été testées : l'utilisation de deux appareils successifs ou la réalisation des deux étages d'extraction dans le même extrudeur bi-vis. Concernant l'étage d'extraction aqueuse de l'huile résiduelle contenue dans les tourteaux gras, il est apparu comme pour le cas des graines que le rendement en huile dépendait des conditions du fractionnement liquide/solide, à savoir la vitesse de rotation des vis, le profil de vis, et les débits entrants du tourteau gras et de l'eau. De la même manière, l'ajout de paille de blé en amont de la zone de filtration est nécessaire pour permettre une séparation liquide/solide. Néanmoins, même pour un débit entrant de ce résidu fibreux maximal, représentant environ 20% du débit total d'entrée en matière solide, l'essorage reste limité, se traduisant par l'obtention de tourteaux relativement humides (humidité en sortie de réacteur bi-vis au moins égale à 57%). C'est pour la configuration mettant en œuvre le même extrudeur bi-vis pour les deux étages, de pressage mécanique d'abord et d'extraction aqueuse ensuite, que le rendement global en huile a été le plus élevé. Pour tous les essais effectués à l'aide d'une telle configuration, la teneur résiduelle en lipides du tourteau produit en sortie de machine n'est jamais supérieure à 10% de sa masse sèche (5,7% dans le meilleur des cas), illustrant un bien meilleur appauvrissement du raffinat solide en huile qu'avec la configuration précédente pour laquelle l'extraction aqueuse était appliquée directement sur les graines. Par ailleurs, dans les meilleures conditions de fonctionnement, le rendement global en huile est de 78%. Néanmoins, la contribution de l'étage d'extraction aqueuse est extrêmement limitée, ne représentant jamais plus de 5% des lipides en provenance de la graine. Ce faible rendement d'extraction aqueuse s'explique par trois raisons :

- D'une part, malgré une réduction importante de la taille des particules solides, l'action thermo-mécanique appliquée à la matière n'a pas permis une lyse complète des parois des cellules de cotylédon.
- D'autre part, le ratio eau/tourteau gras dans l'étage d'extraction aqueuse ne peut être supérieur à 2,5 au risque d'altérer la qualité de la séparation liquide/solide malgré l'ajout de paille de blé. Ce qui réduit du même coup l'efficacité de l'extraction de l'huile résiduelle par l'eau !
- Enfin, l'étage initial de pressage mécanique conduit à une dénaturation thermo-mécanique (au moins partielle) des protéines, les albumines en particulier, mise en évidence par

analyse DSC, réduisant du même coup leur solubilité dans l'eau ainsi que leur capacité émulsifiante et, par voie de conséquence, leur aptitude à l'entraînement des lipides. C'est la raison pour laquelle la teneur en protéines dans ces émulsions huile/eau est bien plus faible que dans celles générées à partir des graines, ces mêmes émulsions présentant par ailleurs une stabilité au cours du temps relativement limitée.

En conclusion, lorsque deux étages de pressage mécanique et d'extraction aqueuse des lipides se succèdent, la contribution du second étage à l'extraction de l'huile reste modeste, n'étant jamais supérieure à 5%. Par ailleurs, l'émulsion huile/eau ainsi générée dispose d'une stabilité dans le temps limitée, hypothéquant du même coup ses chances de pouvoir être utilisée en l'état. C'est la raison pour laquelle un nouveau substrat a été testé en suivant, et ce dans un seul étage d'extraction aqueuse : la plante entière de tournesol.

■ La plante entière de tournesol étant naturellement riche en fibres, en provenance non seulement du capitule mais surtout de la tige, elle constitue une matière première de choix pour l'extraction aqueuse des lipides. En effet, lors du procédé d'extrusion bi-vis, l'obtention séparée d'un extrait liquide et d'un raffinat solide est possible sans qu'il ne soit nécessaire d'ajouter le moindre résidu fibreux en amont du module de filtration (**Figure 16**). C'est donc tout naturellement vers cette matière première que ce sont ensuite orientés mes travaux relatifs à l'extraction aqueuse de l'huile de tournesol, le procédé d'extrusion bi-vis s'en trouvant ainsi facilité (**A5, A22, B1, TD**). **En outre, une valorisation de la plante entière peut alors être envisagée, satisfaisant ainsi parfaitement au concept de bioraffinerie (A22)**. En particulier, une telle configuration permet une utilisation des tiges et des capitules qui ont pour habitude de ne pas être récoltés au champ en même temps que les graines. Et, comme pour les deux cas précédents (ceux des graines et des tourteaux gras), la mise en œuvre du réacteur bi-vis pour l'extraction aqueuse du tournesol plante entière permet bien de réaliser, en continu et dans un seul appareil, les trois premières étapes de tout procédé de fractionnement du végétal : le broyage, l'extraction liquide/solide et la séparation liquide/solide (**Figure 16**). Elle conduit à deux fractions distinctes :

- Un **extrait liquide** qui contient non seulement l'huile de tournesol extraite (sous la forme de deux émulsions huile/eau distinctes) et une phase hydrophile, mais aussi des particules solides entraînées à travers le module de filtration (pied).

- Un **raffinat solide** qui, outre les constituants insolubles (fibres, protéines insolubles, lipides non entraînés), contient une partie non négligeable du milieu liquide d'extraction, non séparé lors du pressage dans la zone du fourreau permettant la séparation liquide/solide.

Les rendements d'extraction des lipides sous la forme d'émulsions huile/eau sont donc la résultante :

- de l'efficacité de la mise en contact du solide et de l'eau dans la zone d'extraction et de la formation des émulsions huile/eau, stabilisées par les protéines co-extraites.

- de l'efficacité du pressage du mélange dans la zone de séparation liquide/solide, traduite par les taux d'humidité et de lipides résiduels du solide extrudé (tourteau).

- de l'efficacité de la séparation liquide/solide sur le module de filtration, traduite par le taux de particules solides entraînées au filtrat (pied) et par la perte en lipides dans ce pied.

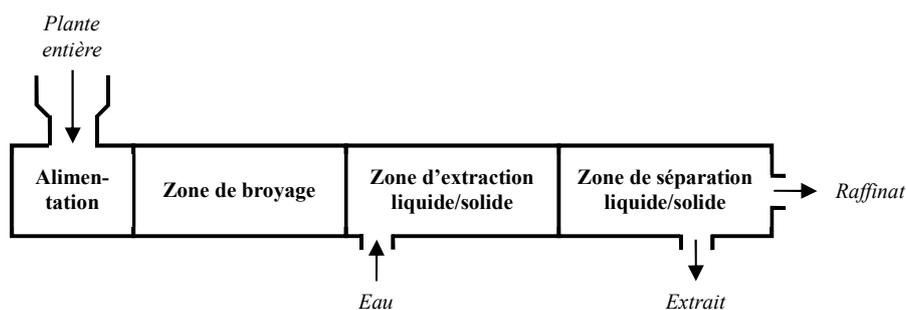


Figure 16

Configuration d'un extrudeur bi-vis mis en œuvre pour l'extraction aqueuse d'huile végétale de plantes entières.

C'est la raison pour laquelle une première étape de mes travaux portant sur le fractionnement aqueux de la plante entière a consisté en l'optimisation du profil de vis, tout particulièrement au travers de l'étude de son influence sur l'efficacité de la séparation liquide/solide. Puis, à partir d'un profil de vis préalablement optimisé, c'est l'influence des conditions opératoires (vitesse de rotation des vis, débit entrant de plante entière, débit entrant d'eau) sur l'efficacité de l'extraction aqueuse de l'huile qui a été étudiée.

a. Influence du profil de vis sur la séparation liquide/solide :

Pour cette partie du travail effectuée sur un réacteur bi-vis de type Clextral (France) BC 45, constitué de sept modules d'une longueur unitaire de 20 cm, cinq profils de vis distincts ont été comparés (**Figure 17**). Pour chacun d'eux, la **zone de broyage** est constituée d'une série de disques malaxeurs monolobes (DM) montés à 45° et d'une première série de disques malaxeurs bilobes (BB). Puis, après injection de l'eau, une deuxième série de disques malaxeurs bilobes, montés en quinconce, est mise en place afin de favoriser la dispersion du liquide dans le solide, préambule à l'étape d'**extraction liquide/solide**. Concernant la **zone de pressage**, et comme dans le cas de l'expression d'huile de tournesol (Amalia Kartika, 2005 ; Amalia Kartika et al., 2005, 2006, 2010), les cinq profils de vis testés diffèrent uniquement par le nombre de contre-filets (de un à trois) destinés à augmenter l'effet de pressage, par leur agencement entre eux et par la distance du premier contre-filet au filtre (**P2, TD**).

En aval immédiat du module de filtration, le choix de la première restriction s'est porté systématiquement sur un ensemble original à simple filet (**Figure 18**), constitué d'une vis de convoyage rainurée (C1Fr 15) et d'un contre-filet rainuré (CF1Cr -15). Précédemment mis en œuvre avec succès pour la déstructuration thermo-mécanique de la pulpe de betterave (Rouilly, 2002), l'élément rainuré à pas direct C1Fr favorise l'augmentation de la pression au sein du mélange, s'expliquant par la valeur peu élevée (15 mm) de son pas de vis. Il constitue à ce titre le début de la zone de séparation liquide/solide (**P2, TD**). Quant au contre-filet rainuré CF1Cr positionné en suivant, son faible pas (15 mm là encore) le rend particulièrement restrictif. Pour juger de l'effet du seul profil de vis, les essais ont tout naturellement été réalisés dans les mêmes conditions opératoires : 60 rpm pour la vitesse de rotation des vis, environ 6,0 kg/h pour le débit entrant de plante entière, environ 20,0 kg/h pour le débit entrant d'eau et 80 °C pour la température le long du profil de vis, notamment dans la zone de pressage.

Profil n° 1	1		2			3		4		5		6		7			
	T2F 66	C2F 50	DM 10×10 (45°)	C2F 25	BB 5×5 (45°)	C2F 33	C1F 33	BB 5×5 (90°)	C1F 33	C1F 33	C1F 25	C1Fr 15	CF1Cr-15	C1F 25	CF1C-25	C1F 25	CF1C-25
Profil n° 2	1		2			3		4		5		6		7			
	T2F 66	C2F 50	DM 10×10 (45°)	C2F 25	BB 5×5 (45°)	C1F 33	C1F 33	BB 5×5 (90°)	C1F 33	C1F 33	C1F 25	C1Fr 15	CF1Cr-15	C1F 25	CF1C-25	CF1C-25	C1F 25
Profil n° 3	1		2			3		4		5		6		7			
	T2F 66	C2F 50	DM 10×10 (45°)	C2F 25	BB 5×5 (45°)	C1F 33	C1F 33	BB 5×5 (90°)	C1F 33	C1F 33	C1F 25	C1Fr 15	CF1Cr-15	C1F 25	CF1C-25	C1F 25	CF1C-25
Profil n° 4	1		2			3		4		5		6		7			
	T2F 66	C2F 50	DM 10×10 (45°)	C2F 25	BB 5×5 (45°)	C2F 33	C1F 33	C1F 33	BB 5×5 (90°)	C1F 33	C1F 33	C1F 25	C1Fr 15	CF1Cr-15	C1F 25	CF1C-25	CF1C-25
Profil n° 5	1		2		3		4		5		6		7				
	T2F 66	C2F 50	C2F 33	DM 10×10 (45°)	C2F 25	BB 5×5 (90°)	C2F 33	C1F 33	C1F 25	BB 5×5 (90°)	C1F 33	C1F 33	C1F 33	C1F 25	C1Fr 15	CF1Cr-15	C1F 25

Figure 17

Profils de vis testés lors de l'étude de leur influence sur la séparation liquide/solide au cours du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol (**P2**, **TD**).

T2F, vis trapézoïdale à pas direct et à double filet ; C2F, vis conjuguée à pas direct et à double filet ; DM, disque malaxeur monolobe ; BB, disque malaxeur bilobe ; C1F, vis conjuguée à pas direct et à simple filet ; C1Fr, vis conjuguée rainurée, à pas direct et à simple filet ; CF1Cr, vis conjuguée rainurée, à pas inverse et à simple filet ; CF1C, vis conjuguée à pas inverse et à simple filet. Les nombres suivant le type de vis correspondent au pas (en mm) des vis T2F, C2F, C1F, C1Fr, CF1Cr et CF1C, et au nombre de disques malaxeurs monolobes (DM) et bilobes (BB).

Eau injectée en début de module 3 pour les profils n° 1 à 4 et en début de module 4 pour le profil n° 5. – Module de filtration en cinquième position pour les profils n° 1 à 4 et en sixième position pour le profil n° 5.

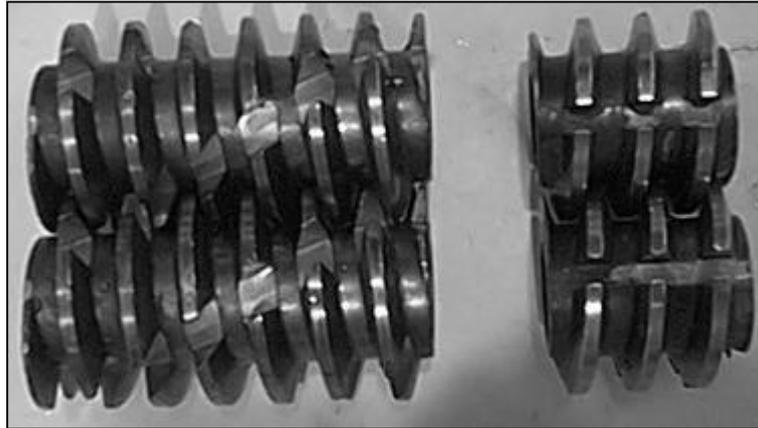


Figure 18

Vue de l'ensemble original constitué d'une vis de convoyage rainurée (C1Fr 15) et d'un contre-filet rainuré (CF1Cr -15) (TD).

Les résultats expérimentaux obtenus à l'aide de ces cinq configurations sont mentionnés dans le **Tableau 5**. Ils ont été complétés d'une mesure expérimentale des temps de séjour moyens de la phase liquide (τ_L) et de la phase solide (τ_S), une fois le régime stationnaire du réacteur bi-vis atteint. D'autre part, après arrêt de l'appareil et ouverture du fourreau, le solide a été recueilli dans chaque élément de vis afin d'estimer la répartition des taux d'humidité d'une part, et le taux de remplissage en matière sèche du volume libre de chaque élément de vis d'autre part. Ces résultats permettent de tirer les conclusions suivantes :

■ L'agencement des vis dans la zone de pressage ne semble pas avoir d'influence sur la **zone de broyage** : pour les cinq profils de vis testés, les taux de remplissage en solide restent voisins dans les disques malaxeurs monolobes (DM) et dans la première série de disques malaxeurs bilobes (BB). La matière est donc convoyée vers la zone d'extraction liquide/solide dans un état granulométrique assez voisin.

■ Comme précédemment, l'agencement des vis dans la zone de pressage n'influe pas non plus sur la **zone d'extraction liquide/solide**.

■ La mise en œuvre d'une seconde ou d'une troisième séquence de compression et de détente dans la **zone de pressage** de la matière n'améliore pas significativement la séparation liquide/solide.

■ Par contre, l'éloignement de la **zone de pressage**, et surtout de la vis rainurée à pas direct (C1Fr) en amont du premier contre-filet, permet de limiter l'entraînement de particules solides au filtrat (**Tableau 6**) et d'améliorer par la même occasion l'efficacité de la **séparation liquide/solide**.

Pour le profil de vis n° 5 notamment, le bon pressage du mélange est illustré par une chute rapide de l'humidité du solide dans la vis rainurée C1Fr (de 80,4 à 58,9%) d'une part (**Figure 19**), et par un remplissage élevé des éléments rainurés (0,45 et 0,50 pour la densité apparente du solide sec dans les éléments C1Fr et CF1Cr, respectivement) d'autre part (**Figure 20**).

Tableau 5

Résultats expérimentaux obtenus lors du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol en réacteur bi-vis Cleextral BC 45 à l'aide des profils de vis n° 1 à 5 (**P2, TD**).

N° du profil	1	2	3	4	5 ¹
Conditions opératoires					
S _S (rpm)	60	61	60	60	60
Q _{PE} (kg/h)	6,3	5,9	5,5	5,8	5,0
Q _E (kg/h)	19,9	20,0	19,8	19,9	20,3
Filtrat					
Q _F (kg/h)	16,3	13,1	13,9	14,5	15,8
T _P (%)	18,3	10,5	9,4	8,2	6,5
Tourteau					
Q _T (kg/h)	9,9	12,8	11,5	11,2	9,6
H _T (%)	59,74 ± 0,08	67,64 ± 0,25	66,62 ± 0,20	63,99 ± 0,13	65,75 ± 0,11
L _T (% de MS)	15,49 ± 0,13	19,89 ± 0,05	16,45 ± 0,05	18,60 ± 0,01	13,15 ± 0,04
P _T (% de MS)	7,14 ± 0,12	7,87 ± 0,03	7,65 ± 0,03	7,38 ± 0,02	6,72 ± 0,08
Rendements d'extraction en lipides (%)					
R _T	60,5	43,5	54,2	47,8	64,9
R _T '	27,0	28,7	38,6	35,0	53,2
Rendements d'extraction en protéines (%)					
R _{PT}	54,1	43,7	46,4	47,8	54,9
R _{PT} '	28,5	32,0	35,2	37,0	46,3
Consommation énergétique					
I (A)	32,2	21,0	21,3	27,9	14,8
EMS (W.h/kg)	223,4	158,6	167,0	210,9	128,5
Distribution des temps de séjour					
τ _L (sec)	146	146	140	158	147
τ _S (sec)	329	317	296	419	261

S_S, vitesse de rotation des vis ; Q_{PE}, débit entrant de plante entière ; Q_E, débit d'eau injectée ; Q_F, débit de filtrat ; T_P, taux de pied dans le filtrat ; Q_T, débit de tourteau ; H_T, teneur en humidité du tourteau ; L_T, teneur résiduelle en lipides du tourteau ; P_T, teneur résiduelle en protéines du tourteau ; R_T, rendement en huile extraite, calculé par rapport à l'huile résiduelle contenue dans le tourteau ; R_T', rendement en huile extraite, calculé par rapport à l'huile que la plante entière contient ; R_{PT}, rendement en protéines extraites, calculé par rapport aux protéines résiduelles contenues dans le tourteau ; R_{PT}', rendement en protéines extraites, calculé par rapport aux protéines que la plante entière contient ; I, intensité du courant consommé par le moteur de l'extrudeur bi-vis ; EMS, énergie mécanique spécifique (par kg de plante entière traitée) ; τ_L et τ_S, temps de séjour moyens de la phase liquide et de la phase solide.

Les modules 3, 4, 6 et 7 étaient chauffés à une consigne de température de 80 °C pour les profils n° 1 à 4 ; les modules 3, 4, 5 et 7 étaient chauffés à une consigne de température de 80 °C pour le profil n° 5 ; MS, matière sèche.

¹ Températures relevées en sortie d'extrudeur bi-vis pour le filtrat (θ_F) et pour le tourteau (θ_T) : θ_F = 40,0 °C et θ_T = 63,4 °C.

Tableau 6

Influence de la distance (d) séparant les grilles du module de filtration de la vis rainurée à pas direct (C1Fr) sur la teneur en pied du filtrat (T_P), sur son débit massique de matière sèche et sur la part correspondante de la matière sèche introduite (**P2, TD**).

d (cm)	-5	0	0	5	5
N° du profil	1	2	3	4	5
Nombre de contre-filets	3	2 ¹	3	2 ¹	1
T _P (%)	18,3	10,5	9,4	8,2	6,5
Débit massique de matière dans le pied (kg/h)	1,0	0,5	0,4	0,4	0,3
Part de la matière sèche introduite (%)	17,8	8,7	8,7	7,8	7,1

¹ Pour les profils n° 2 et 4, les contre-filets CF1C -25 sont tous les deux accolés l'un à l'autre.

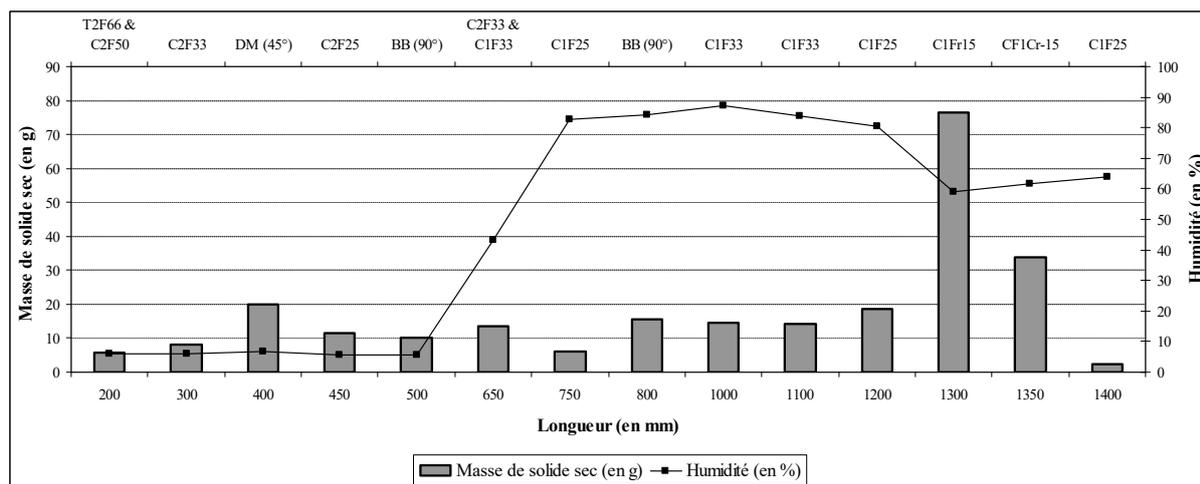


Figure 19

Répartition de la masse de solide sec et évolution de l'humidité des fractions prélevées le long du réacteur bi-vis mis en œuvre à l'aide du profil de vis n° 5 (TD).

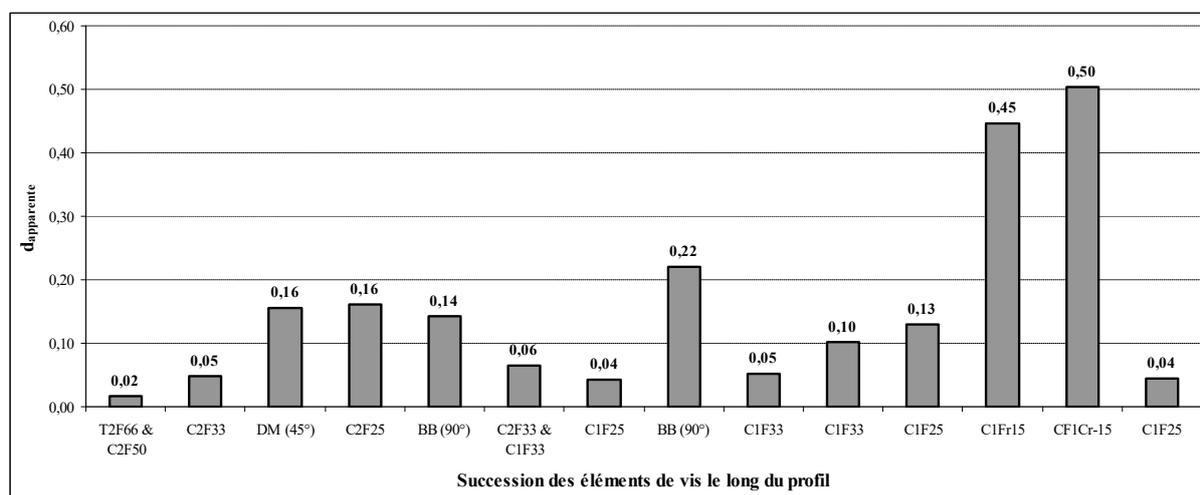


Figure 20

Densité apparente du solide sec le long du réacteur bi-vis mis en œuvre à l'aide du profil de vis n° 5 (TD).

Une seule séquence de compression et de détente (profil n° 5, **Figure 17**) permet donc l'obtention de rendements d'extraction plus élevés en lipides (53,2%) et en protéines (46,3%). Et, malgré un temps de séjour moyen de la phase solide plutôt faible (261 sec), ce profil de vis a logiquement été considéré comme le profil optimisé pour le fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol en réacteur bi-vis Cleextral BC 45, conduisant par la même occasion à une diminution notable de la consommation énergétique.

L'étape suivante de mon travail a alors consisté en la modélisation du remplissage du réacteur bi-vis à partir de cette configuration optimisée. En effet, trois variables opératoires sont susceptibles de le modifier, pouvant induire un impact sur l'efficacité du procédé de fractionnement du tournesol plante entière par extraction aqueuse : la vitesse de rotation des vis (S_s), et les débits d'alimentation en plante entière (Q_{PE}) et en eau (Q_E).

b. Modélisation du remplissage du réacteur bi-vis :

À partir de l'étude des conditions d'extraction des hémicelluloses de bois de peuplier par la soude en extrudeur bi-vis (N'Diaye, 1996), Prat avait développé un modèle permettant de représenter les phénomènes de transfert d'un mélange biphasique liquide/solide dans le fourreau d'un réacteur bi-vis, à travers la distribution des temps de séjour du liquide et du solide dans les différents éléments de vis (Prat, 1998, Prat et al., 2002). Au cours de ma Thèse de Doctorat, j'ai pu adapter ce modèle de remplissage afin de mieux décrire le fonctionnement du réacteur bi-vis Clextral BC 45 pour le fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol (**TD**). Ici, l'objectif de ce travail était double, à savoir optimiser simultanément l'efficacité des deux étages d'extraction et de séparation liquide/solide, ceci afin d'augmenter les rendements d'extraction aqueuse en huile et en des biopolymères tels que les protéines et les substances pectiques. Il a fait l'objet d'une communication lors de l'édition 2009 de l'International Congress on Green Process Engineering (GPE) à Venise (**P7**). Dans un deuxième temps, ce modèle a été adapté pour l'extraction aqueuse de l'huile et de l'azadirachtine de graines de neem (Faye, 2010).

Pour le cas du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol, mené à l'aide du profil de vis optimisé (profil n° 5, **Figure 17**), trois types d'éléments de vis ont été distingués le long de ce profil (**Tableau 7**) : les éléments non remplis, les éléments partiellement remplis et les éléments pleins (**P7**, **TD**). Tous ont été considérés comme indépendants les uns des autres. Les temps de séjour moyens de la phase liquide (τ_L) et de la phase solide (τ_S) s'expriment alors comme la somme des contributions de chaque élément du profil de vis, dans la direction de l'axe de l'extrudeur. Quatre coefficients ajustables ont ainsi été introduits afin d'exprimer les temps de séjour dans chaque type d'éléments de vis. Ils sont définis comme suit (**Tableau 7**) :

■ Pour les éléments non remplis (vis de convoyage), le **coefficient α** se définit comme le coefficient de glissement de la matière végétale sur les vis. Ce coefficient traduit l'existence de frottements entre la matière et les vis d'une part, et entre la matière et le fourreau d'autre part. Il peut aussi prendre en compte les phénomènes qui interviennent dans la zone de pénétration entre les deux vis.

■ Pour les éléments partiellement remplis (éléments DM, C2F et BB de la zone de broyage), le **coefficient β** traduit le taux de vide de la matière dans ces éléments.

■ Pour les éléments pleins pour lesquels la phase solide et la phase liquide sont toutes les deux présentes (éléments BB de la zone d'extraction liquide/solide), le **coefficient δ** se définit comme la vitesse de glissement du solide par rapport au liquide. Rapport de la vitesse de la phase solide sur celle de la phase liquide, ce coefficient s'exprime également comme le rapport du temps de séjour du liquide sur celui du solide.

■ Pour les éléments pleins pour lesquels seule la phase solide est présente, le solide étant alors imprégné de liquide (éléments C1F, C1Fr et CF1Cr de la zone de séparation liquide/solide), le **coefficient ε** traduit la porosité locale du solide dans la zone de pressage. Bien entendu, en raison de la compression du solide dans cette zone du profil de vis, cette porosité est nécessairement inférieure à celle du broyat de plante entière (ε_{PE}), mesurée expérimentalement (0,65 correspondant à une masse volumique nette de 650,0 kg/m³).

Tableau 7

Liste des trois types d'éléments de vis distingués le long du profil optimisé et coefficients ajustables associés (**P7, TD**).

Type d'éléments de vis	Éléments du profil de vis	Coefficient ajustable
Éléments non remplis	Vis de convoyage	α (<i>coefficient de glissement de la matière végétale sur les vis</i>)
Éléments partiellement remplis	Zone de broyage (DM - C2F - BB)	β (<i>taux de vide de la matière végétale dans les éléments partiellement remplis</i>)
Éléments pleins (<i>phase liquide + phase solide</i>)	Zone d'extraction liquide/solide (BB)	δ (<i>vitesse de glissement du solide par rapport au liquide</i>)
Éléments pleins (<i>phase solide imprégnée de liquide</i>)	Zone de séparation liquide/solide (CIF - CIFr - CFICr)	ε (<i>porosité locale du solide dans la zone de pressage</i>)

Afin de permettre une identification de ces coefficients ajustables, trois essais (de 1 à 3) ont été réalisés, pour des conditions opératoires différentes (**Tableau 8**). Par ailleurs, pour chacun d'eux, la répartition du solide dans les éléments de vis a été déterminée et la distribution des temps de séjour du liquide et du solide a été mesurée expérimentalement. Les quatre coefficients ajustables du modèle (α , β , ε , δ) ont alors été déterminés à partir de ces résultats, par minimisation du critère η (**Équation 1**), pour le liquide et pour le solide :

$$\eta = \frac{1}{3} \times \sum_{i=1}^3 \frac{2 \times |\tau_{i \text{ exp}} - \tau_{i \text{ mod}}|}{(\tau_{i \text{ exp}} + \tau_{i \text{ mod}})} \quad \text{Équation 1}$$

Les deux critères (η_L pour le liquide et η_S pour le solide) ont permis la comparaison des temps de séjour moyens expérimentaux ($\tau_{i \text{ exp}}$) et calculés ($\tau_{i \text{ mod}}$), pour la phase liquide et pour la phase solide. Leur minimisation a donné pour les quatre coefficients ajustables les valeurs mentionnées dans le **Tableau 9**. Par ailleurs, pour ces trois manipulations, la comparaison des temps de séjour moyens expérimentaux et calculés de la phase liquide et de la phase solide (**Figure 21**) a montré que l'identification des coefficients ajustables était parfaitement satisfaisante. Le calcul des temps de séjour moyens de la phase liquide et de la phase solide permet donc de prévoir le remplissage de l'extrudeur bi-vis, dans chaque élément de vis. En suivant, la prédiction de la répartition du solide sec le long du réacteur a été comparée aux résultats obtenus pour trois nouveaux essais (de 4 à 6), pour lesquels les manœuvres d'ouverture du fourreau ont été pratiquées, après arrêt de l'appareil. Là encore, la correspondance entre les courbes expérimentales et celles issues du modèle est apparue satisfaisante (**Figure 22** pour l'essai n° 4), confirmant par la même occasion et de façon incontestable la validité du modèle de remplissage développé.

Tableau 8

Résultats expérimentaux obtenus pour les trois essais effectués pour l'identification des coefficients ajustables du modèle de remplissage du réacteur bi-vis Clextral BC 45 (essais n° 1 à 3), et pour les trois essais supplémentaires ayant permis sa validation (essais n° 4 à 6) (P7, TD).

N° d'essai	1	2	3	4	5	6
Conditions opératoires						
S _S (rpm)	75	60	75	75	91	75
Q _{PE} (kg/h)	7,4	7,1	8,7	7,5	6,9	8,5
Q _E (kg/h)	24,4	24,5	29,9	19,2	24,4	24,6
Filtrat						
Q _F (kg/h)	17,6	18,6	22,4	11,5	17,3	16,3
T _P (%)	9,6	11,0	9,5	14,5	9,3	12,7
Tourteau						
Q _T (kg/h)	14,2	13,0	16,2	15,2	14,0	16,8
H _T (%)	64,40 ± 0,07	63,71 ± 0,00	64,07 ± 0,17	64,15 ± 0,12	66,14 ± 0,09	64,71 ± 0,04
L _T (% de MS)	16,18 ± 0,05	14,46 ± 0,00	15,40 ± 0,02	18,04 ± 0,21	16,55 ± 0,13	16,12 ± 0,02
P _T (% de MS)	8,79 ± 0,02	8,02 ± 0,01	8,19 ± 0,01	9,54 ± 0,07	8,93 ± 0,01	8,66 ± 0,01
Rendements d'extraction en lipides (%)						
R _T	53,5	59,7	56,7	45,2	52,2	53,0
R _T '	36,2	35,4	40,1	27,2	36,3	33,8
Rendements d'extraction en protéines (%)						
R _{PT}	40,6	47,4	45,9	31,8	39,3	40,5
R _{PT} '	29,9	29,9	36,1	21,1	30,4	30,1
Consommation énergétique						
I (A)	13,3	15,9	14,6	12,1	10,9	13,5
EMS (W.h/kg)	98,2	97,9	91,8	87,4	104,1	86,8
Distribution des temps de séjour						
τ _L (sec)	98	121	100	n.d. ¹	n.d. ¹	n.d. ¹
τ _S (sec)	160	200	151	n.d. ¹	n.d. ¹	n.d. ¹

S_S, vitesse de rotation des vis ; Q_{PE}, débit entrant de plante entière ; Q_E, débit d'eau injectée ; Q_F, débit de filtrat ; T_P, taux de pied dans le filtrat ; Q_T, débit de tourteau ; H_T, teneur en humidité du tourteau ; L_T, teneur résiduelle en lipides du tourteau ; P_T, teneur résiduelle en protéines du tourteau ; R_T, rendement en huile extraite, calculé par rapport à l'huile résiduelle contenue dans le tourteau ; R_T', rendement en huile extraite, calculé par rapport à l'huile que la plante entière contient ; R_{PT}, rendement en protéines extraites, calculé par rapport aux protéines résiduelles contenues dans le tourteau ; R_{PT}', rendement en protéines extraites, calculé par rapport aux protéines que la plante entière contient ; I, intensité du courant consommé par le moteur de l'extrudeur bi-vis ; EMS, énergie mécanique spécifique (par kg de plante entière traitée) ; τ_L et τ_S, temps de séjour moyens de la phase liquide et de la phase solide.

Les modules 3, 4, 5 et 7 étaient chauffés à une consigne de température de 80 °C ; MS, matière sèche.

¹ n.d., non déterminé.

Tableau 9

Valeur des quatre coefficients ajustables et des critères η du modèle de remplissage développé pour le réacteur bi-vis Clextral BC 45, pour le fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol (**P7, TD**) ainsi que pour l'extraction aqueuse de l'huile et de l'azadirachtine de graines de neem (Faye, 2010).

Coefficient ajustable	Fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol (P7, TD)	Extraction aqueuse de l'huile et de l'azadirachtine de graines de neem (Faye, 2010)
α	0,46	0,63
β	0,24	0,26
δ	5,79	3,00
ε	0,28 ¹	0,34 ²
η_L	0,056	0,083
η_S	0,050	0,054

¹ 0,65 pour la porosité du broyat de plante entière (ε_{PE}).

² 0,53 pour la porosité du broyat de graines de neem (ε_G).

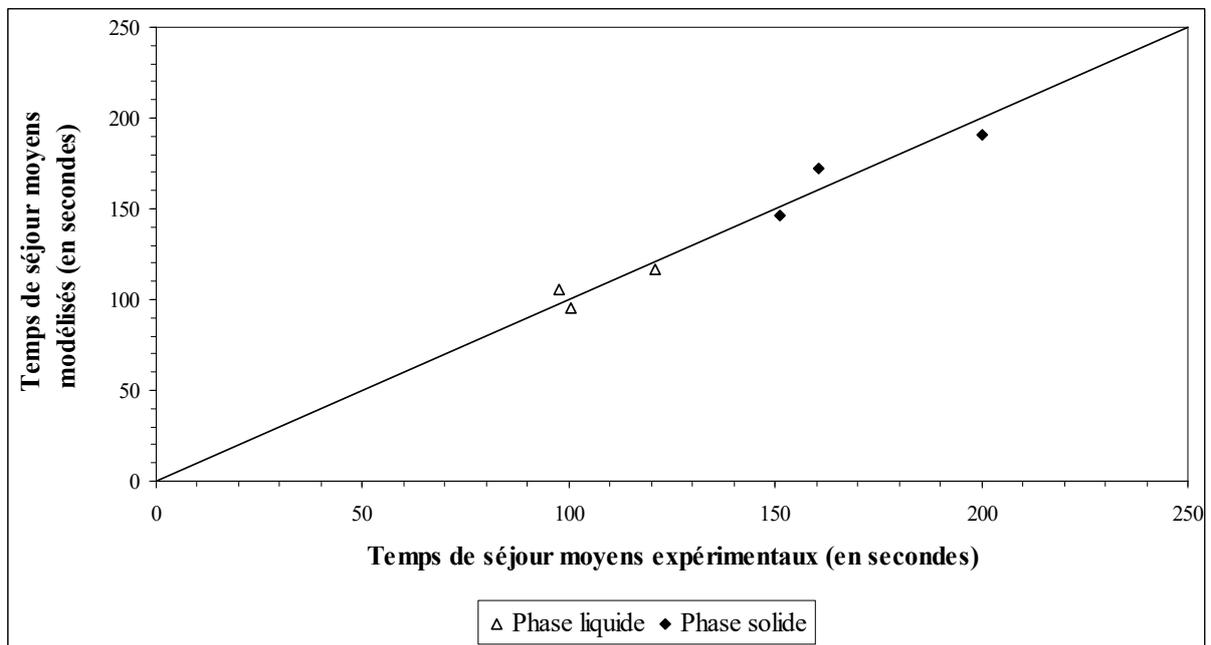


Figure 21

Comparaison des temps de séjour moyens expérimentaux et modélisés de la phase liquide et de la phase solide, pour les manipulations n° 1 à 3 (**P7, TD**).

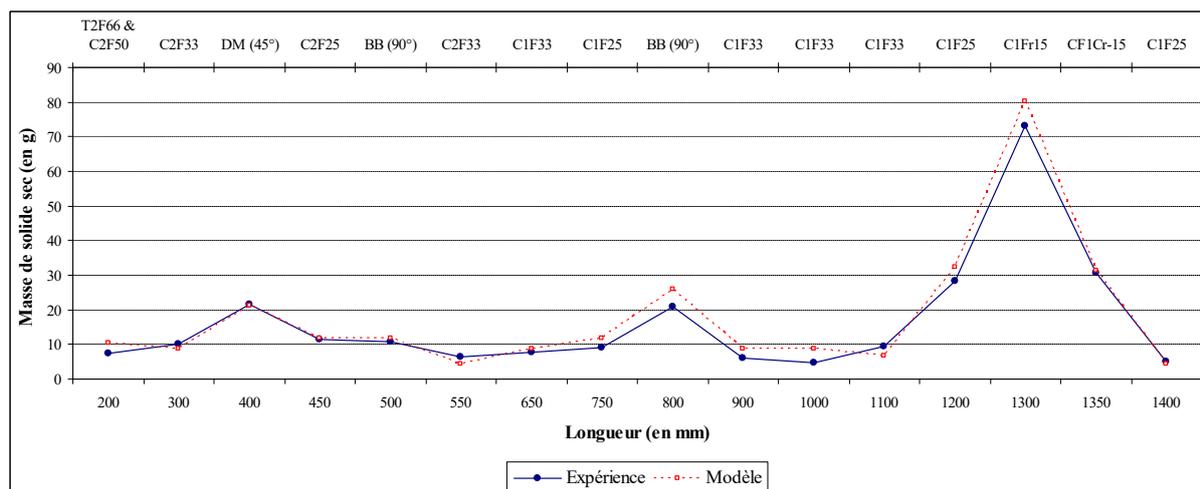


Figure 22

Comparaison de la masse de solide sec prélevée le long du réacteur bi-vis avec celle calculée par le modèle pour l'essai n° 4 (P7, TD).

En conclusion, pour le fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol, les valeurs obtenues pour les quatre coefficients ajustables (**Tableau 9**) ont permis d'en déduire les points suivants (P7, TD) :

- Un phénomène de glissement de la matière végétale dans les éléments de convoyage non remplis existe bien, que la phase solide soit imprégnée ou non de liquide. Ce phénomène se traduit par le quasi-doublement du temps de séjour moyen du solide dans ces éléments de vis ($\alpha = 0,46$).

- Le taux de vide moyen du broyat de plante entière dans les disques malaxeurs monolobes et bilobes de la zone de trituration et dans la vis de convoyage C2F située entre ces deux séries d'éléments restrictifs est d'environ 24% ($\beta = 0,24$).

- Située dans la zone d'extraction liquide/solide, la deuxième série de disques malaxeurs bilobes permet le mélange intime de la phase liquide et de la phase solide. Ce phénomène se traduit par une vitesse bien plus importante pour la phase solide. Ainsi, dans cet élément de vis, le temps de séjour moyen de la phase liquide est presque six fois plus élevé que celui de la phase solide ($\delta = 5,79$).

- La porosité du solide dans la zone de pressage est bien inférieure à celle mesurée pour le broyat de plante entière ($\varepsilon = 0,28$ contre 0,65 pour le broyat de plante entière). Ceci s'explique à la fois par la taille plus réduite des particules solides et par la forte compression de la phase solide imprégnée de liquide dans ces éléments de vis entièrement remplis.

Par ailleurs, l'analyse de la répartition des temps de séjour moyens de la phase liquide et de la phase solide dans les différents éléments du profil de vis a clairement fait apparaître les deux points suivants (P7, TD) :

- La seconde série de disques malaxeurs bilobes (BB) à une contribution élevée au temps de séjour moyen du liquide.

- La zone de pressage représente jusqu'à 60% du temps passé par le solide dans l'appareil.

Le réacteur bi-vis Cleextral BC 45 peut donc être considéré comme la succession de trois appareils : un **broyeur**, un **mélangeur** (extracteur) et un **séparateur**. Et, pour les trois zones ainsi définies (**broyage**, **extraction liquide/solide** et **séparation liquide/solide**), il est alors possible de tracer les courbes traduisant l'évolution des temps de séjour du solide et du liquide en fonction de la vitesse de rotation des vis (S_s), du débit de plante entière broyée (Q_{PE}) et du débit d'eau injectée (Q_E). Ces courbes ont été d'une aide précieuse afin de prédire les conditions opératoires à mettre en œuvre pour permettre un meilleur appauvrissement en lipides et en protéines des tourteaux, conduisant

naturellement à des rendements d'extraction plus élevés. Ainsi, une diminution de S_S et de Q_{PE} , simultanément à une augmentation de Q_E , contribuent aux deux phénomènes suivants, tous deux favorables à l'obtention de rendements globaux en lipides et en protéines plus élevés :

- Une augmentation du ratio liquide/solide dans le **mélangeur**, favorable à l'extraction des composés hydrosolubles de la plante entière, en particulier les protéines, et à l'entraînement des lipides.

- Une augmentation du temps de séjour du solide (τ_s) dans la **zone de pressage**, favorable à la séparation liquide/solide.

De telles conditions opératoires (60 rpm pour la vitesse de rotation des vis, 5,0 kg/h pour le débit de plante entière et 20,3 kg/h pour le débit d'eau) ont ainsi été testées. Elles ont conduit à une teneur résiduelle en lipides dans le tourteau de seulement 13,1% (**Tableau 5**). D'autre part, l'analyse de la distribution des temps de séjour et des masses de solide et de liquide dans le réacteur bi-vis (**Figure 19**, **Figure 20** et **Figure 23**) a bien montré que ces conditions opératoires correspondaient à des valeurs élevées du ratio liquide/solide dans la zone d'extraction et du temps de séjour du solide dans la zone de pressage (**Tableau 10**). Dans ces conditions, les rendements d'extraction en lipides (53%) et en protéines (46%) sont maximisés. Ainsi, ces conditions ont logiquement été considérées comme les conditions optimales du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol dans le réacteur bi-vis Clextral BC 45. Néanmoins, elles correspondent à une productivité limitée, liée au faible débit de plante entière introduite (5,0 kg/h). Dans l'optique de l'exploitation de ce bioprocédé à une échelle industrielle, le scale-up du fractionnement aqueux de la plante entière à l'aide d'un réacteur bi-vis de plus haute capacité semble donc indispensable. Il a été envisagé sur le réacteur bi-vis Clextral Evolum HT 53 présent au sein de la plateforme AGROMAT. Les résultats de ce transfert seront présentés de façon plus exhaustive dans le paragraphe suivant.

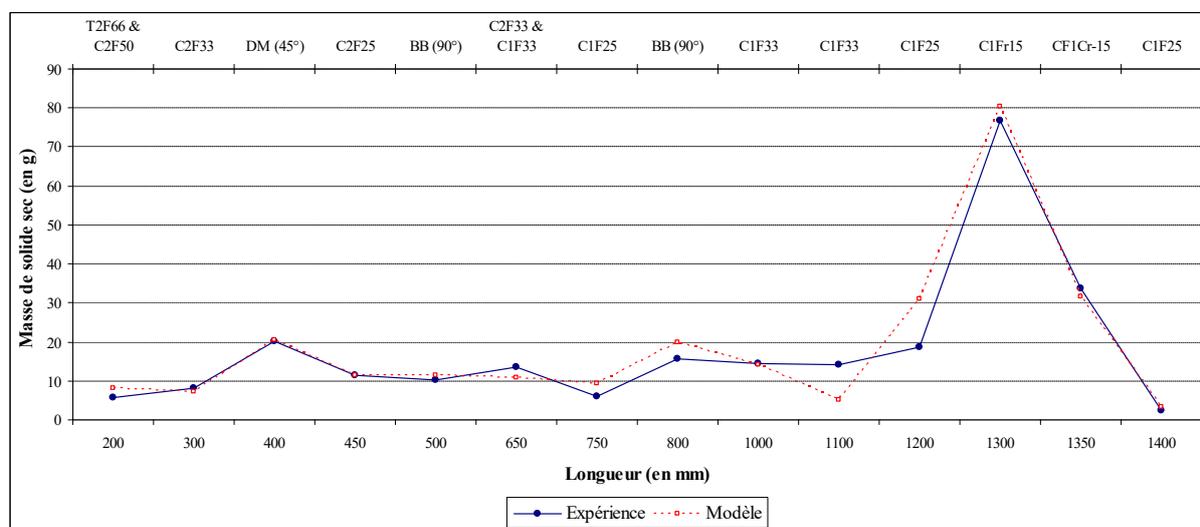


Figure 23

Comparaison de la masse de solide sec prélevée le long du réacteur bi-vis avec celle calculée par le modèle, pour les conditions opératoires suivantes : profil de vis optimisé (profil n° 5, **Figure 17**), 60 rpm pour la vitesse de rotation des vis, 5,0 kg/h pour le débit de plante entière broyée et 20,3 kg/h pour le débit d'eau injectée (**P7, TD**).

Tableau 10

Temps de séjour dans les zones d'extraction et de séparation du réacteur bi-vis, pour les conditions opératoires suivantes : profil de vis optimisé (profil n° 5, **Figure 17**), 60 rpm pour la vitesse de rotation des vis, 5,0 kg/h pour le débit de plante entière broyée et 20,3 kg/h pour le débit d'eau injectée (**P7, TD**).

S _s (rpm)	Q _{PE} (kg/h)	Q _E (kg/h)	Zone d'extraction			Zone de séparation	
			τ _S (sec)	τ _L (sec)	(τ _L × Q _E) / (τ _S × Q _{PE})	τ _S (secondes)	L _T (% de MS)
60	5,0	20,3	43,7	88,5	8,2	156,4	13,1

S_s, vitesse de rotation des vis ; Q_{PE}, débit entrant de plante entière ; Q_E, débit d'eau injectée ; τ_S et τ_L, temps de séjour de la phase solide et de la phase liquide ; L_T, teneur résiduelle en lipides du tourteau.

Dans un deuxième temps, le modèle de remplissage du réacteur bi-vis Cleutral BC 45 d'abord développé pour le fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol a été adapté avec succès au cas de l'extraction aqueuse de l'huile et de l'azadirachtine de graines de neem, à partir d'un profil de vis là encore préalablement optimisé (**Figure 24**) et mettant en jeu les trois mêmes appareils unitaires successifs : un **broyeur**, un **extracteur** et un **séparateur** (Faye, 2010). Les valeurs obtenues pour les quatre coefficients ajustables (α, β, δ et ε) sont elles aussi mentionnées dans le **Tableau 9**. Et, au regard de la comparaison des temps de séjour moyens expérimentaux et calculés de la phase liquide et de la phase solide (**Figure 25**), l'identification de ces coefficients a été jugée là encore parfaitement satisfaisante. Sur le même principe que pour le fractionnement aqueux du tournesol plante entière, le modèle de remplissage a dans un deuxième temps facilité le choix des conditions opératoires à mettre en œuvre (100 rpm pour la vitesse de rotation des vis, 20 kg/h pour le débit de graines et 40 kg/h pour le débit d'eau) pour optimiser les rendements en huile (55%) et en azadirachtine (48%), extraits sous forme d'émulsion. Enfin, à partir de ces conditions optimisées, la validité de ce modèle a été une nouvelle fois confirmée grâce à la comparaison de la masse de solide sec prélevée le long du réacteur bi-vis après son arrêt d'urgence avec celle calculée par le modèle (**Figure 26**), malgré une légère surestimation de cette masse dans les éléments de vis en amont des disques malaxeurs bilobes.

1		2			3		4			5		6		7	
T2F 66	C2F 50	C2F 33	C2F 33	C2F 25	DM 10×10 (45°)	C1F 33	C1F 33	C1F 25	BB 10×10 (90°)	C1F 33	C1F 33	C1F 25	CF1C -25	C1F 25	

Figure 24

Profil de vis optimisé pour l'extraction aqueuse de l'huile et de l'azadirachtine de graines de neem en réacteur bi-vis Cleutral BC 45 (Faye, 2010).

T2F, vis trapézoïdale à pas direct et à double filet ; C2F, vis conjuguée à pas direct et à double filet ; DM, disque malaxeur monolobe ; C1F, vis conjuguée à pas direct et à simple filet ; BB, disque malaxeur bilobe ; CF1C, vis conjuguée à pas inverse et à simple filet. Les nombres suivant le type de vis correspondent au pas (en mm) des vis T2F, C2F, C1F et CF1C, et au nombre de disques malaxeurs monolobes (DM) et bilobes (BB).

Eau injectée en début de module 4 ; module de filtration en sixième position ; 60 °C le long du profil de vis.

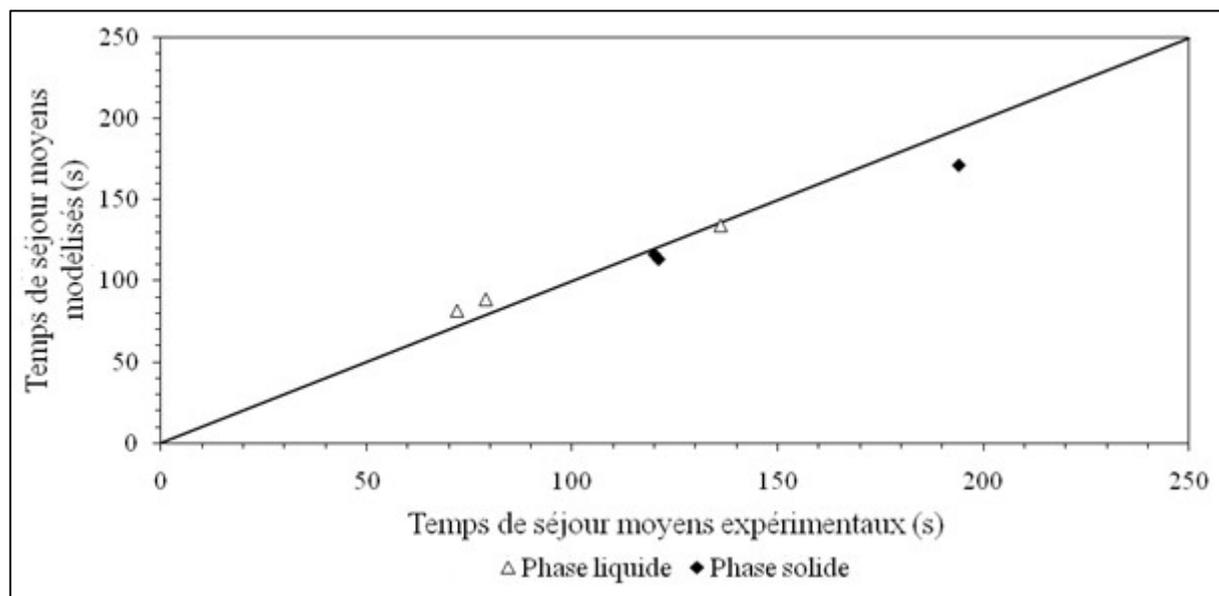


Figure 25

Comparaison des temps de séjour moyens expérimentaux et modélisés de la phase liquide et de la phase solide, pour les trois manipulations effectuées (Faye, 2010).

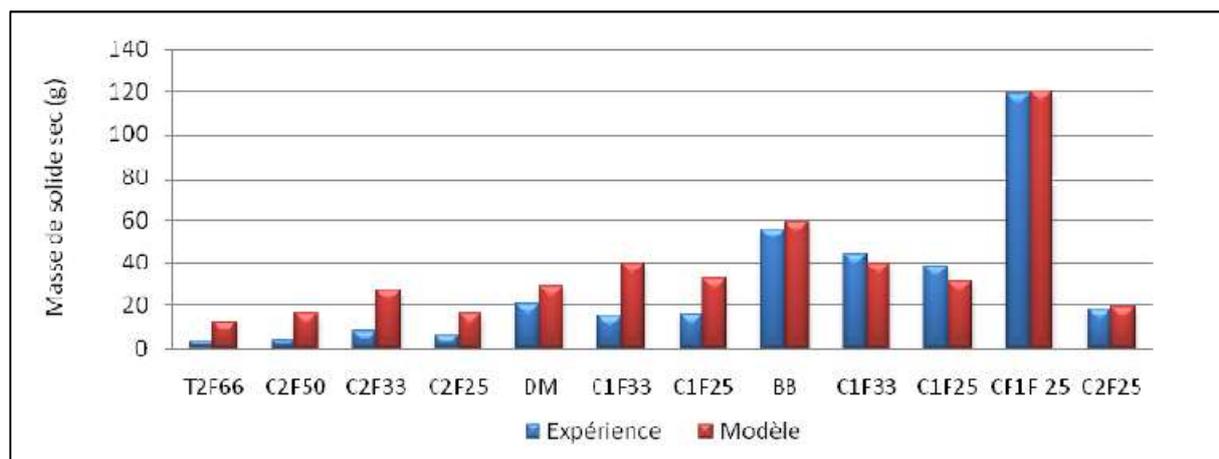


Figure 26

Comparaison de la masse de solide sec prélevée le long du réacteur bi-vis avec celle calculée par le modèle, pour les conditions opératoires suivantes : profil de vis optimisé (**Figure 24**), 100 rpm pour la vitesse de rotation des vis, 20 kg/h pour le débit de graines de neem et 40 kg/h pour le débit d'eau injectée (Faye, 2010).

Pour conclure, à partir de profils de vis préalablement optimisés, le modèle de remplissage du réacteur bi-vis Clextral BC 45 que j'ai pu développer au cours de mes travaux de recherche a permis de prédire les conditions opératoires à mettre en œuvre pour une optimisation de l'extraction aqueuse de l'huile de deux matières oléagineuses bien différentes : la plante entière de tournesol d'une part (**P7**, **TD**), et la graine de neem d'autre part (Faye, 2010). À ce titre, il constituera à l'avenir une aide précieuse pour la conduite d'installations pilotes. Signalons également ici que le développement de ce modèle fera prochainement l'objet d'une publication dans un journal international à comité de lecture (**AP3**). Celle-ci est en cours de préparation et sera soumise au journal *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification* dans les mois à venir.

c. Scale-up du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol en bi-vis :

Une fois le fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol optimisé en réacteur bi-vis Clextral BC 45, le scale-up de ce fractionnement a tout naturellement été envisagé sur un extrudeur bi-vis de plus haute capacité (Clextral Evolum HT 53). Signalons d'ailleurs ici que les résultats de ce travail ont fait l'objet d'une communication lors de l'édition 2015 du congrès BFFM à Montpellier (**P25**).

Présent au sein de la plateforme AGROMAT, le réacteur bi-vis Clextral Evolum HT 53 dispose d'un ensemble fourreau-vis d'une longueur totale de 1,9 m. Il a été mis en œuvre à l'aide d'un profil de vis (**Figure 27**) tout naturellement inspiré du profil optimisé précédent (profil n° 5, **Figure 17**) :

- L'introduction de la plante entière se fait au niveau du premier module de l'appareil, d'une longueur doublée (42 cm) par rapport aux sept modules suivants (21 cm) afin de favoriser l'avalement du solide.

- Le solide est ensuite trituré dans les deuxième et troisième modules, grâce à la succession d'une série de disques malaxeurs monolobes (BL20-BL02), montés à pas direct (45°), et d'une série de disques malaxeurs bilobes (BL22), montés en quinconce (90°).

- Puis, l'eau déminéralisée est ajoutée en fin de quatrième module, le mélange intime du liquide et du solide étant facilité par le positionnement d'une deuxième série de disques malaxeurs bilobes (BL22), montés en quinconce (90°), et situés en fin de cinquième module et en tout début de sixième module.

- L'extrait est collecté au niveau du module de filtration. Constitué de six coquilles demi-sphériques, percées par des orifices coniques de 1 mm de diamètre d'entrée et 2 mm de diamètre de sortie, ce dernier est situé en septième position le long du fourreau.

- La zone de filtration est suivie de la zone de pressage (ensemble rainuré à simple filet constitué de vis de convoyage C1Fr et de contre-filets CF1Cr), éloignée du filtre d'environ 3 cm, et d'une zone de convoyage, en huitième position, qui permet l'évacuation du tourteau hors de l'extrudeur.

Comme pour les travaux menés sur l'extrudeur bi-vis Clextral BC 45, le chauffage du fourreau a également été fixé à 80 °C pour les modules 2, 3, 4, 5, 6 et 8. D'autre part, le fractionnement a été réalisé à l'aide des débits entrants suivants : 54 kg/h pour la plante entière de tournesol et 183 kg/h pour l'eau, correspondant à un ratio liquide/solide (3,4) voisin de celui utilisé en réacteur bi-vis Clextral BC 45. L'utilisation d'un réacteur de haute capacité (Clextral Evolum HT 53) a ainsi permis de multiplier par onze le débit entrant de solide, rendant du même coup le scale-up particulièrement important. Enfin, afin d'estimer l'influence du remplissage du réacteur bi-vis sur l'efficacité du fractionnement aqueux, la vitesse de rotation des vis (S_s) a été modifiée, de 249 à 124 rpm, correspondant à un coefficient de remplissage de la machine (C_F), défini comme le rapport entre le débit entrant de solide et la vitesse de rotation des vis, compris entre 217 et 436 g/h.rpm.

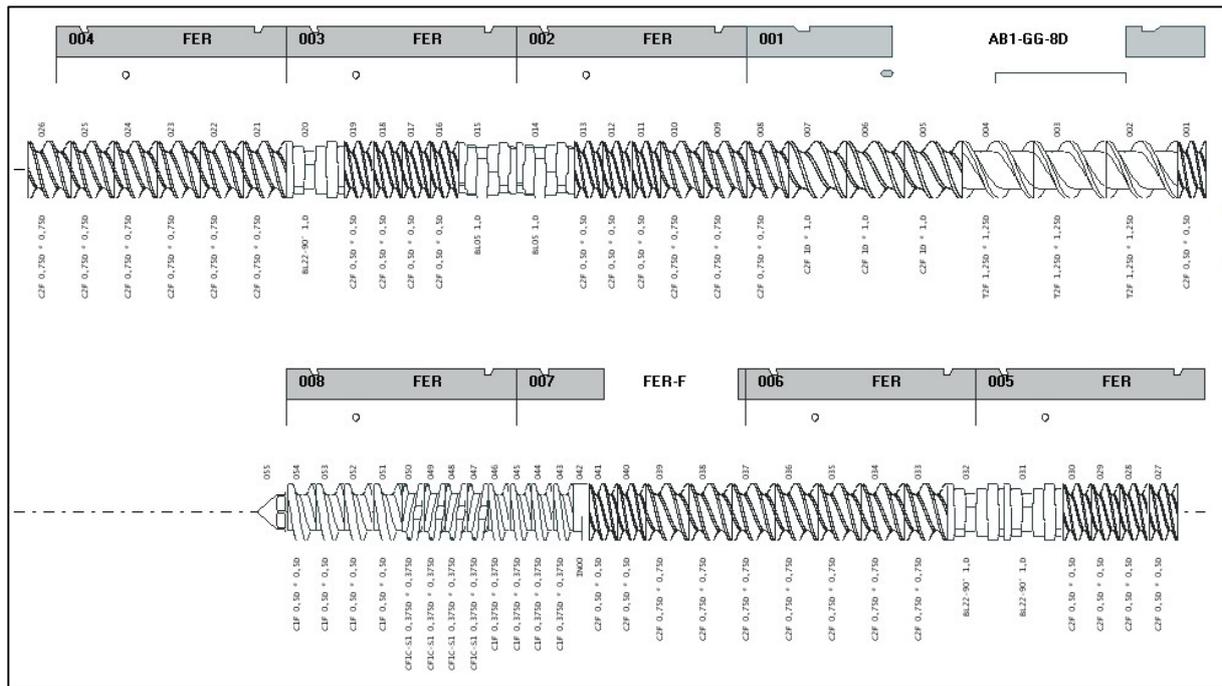


Figure 27

Configuration et profil de vis utilisé en réacteur bi-vis Clextral Evolum HT 53 pour le scale-up du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol (P25).

C2F, vis conjuguée à pas direct et à double filet ; T2F, vis trapézoïdale à pas direct et à double filet ; BL20 & BL02, disques malaxeurs monolobes ; BL22, disque malaxeur bilobe ; INO, élément de liaison entre une vis à double filet et une vis à simple filet ; CF1C, vis conjuguée rainurée, à pas direct et à simple filet ; CF1C, vis conjuguée rainurée, à pas inverse et à simple filet.

Et, comme déjà mis en évidence avec le réacteur bi-vis Clextral BC 45, il a également été montré que le coefficient de remplissage du réacteur bi-vis de haute capacité (Clextral Evolum HT 53) affectait directement l'efficacité de la séparation liquide/solide. Celle-ci a été estimée à partir des données expérimentales suivantes :

- Les débits sortants de tourteau (Q_C) et de filtrat (Q_F) (**Figure 28**).
- La teneur en humidité du tourteau (H_C) (**Figure 29a**).
- Les teneurs résiduelles en lipides et en composés hydrosolubles du tourteau (**Figure 29b**).
- Les rendements d'extraction en matières sèches, en lipides et en composés hydrosolubles (**Figure 29c**).

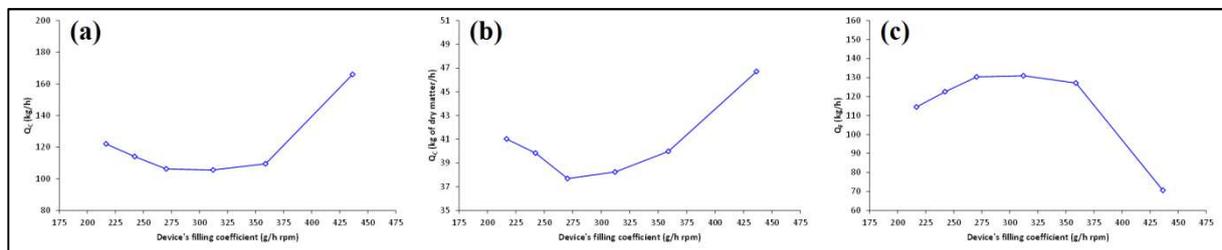


Figure 28

Évolution des débits sortants de tourteau (débit humide et débit sec) (a et b) et de filtrat (c) avec le coefficient de remplissage du réacteur bi-vis Clextral Evolum HT 53 (P25).

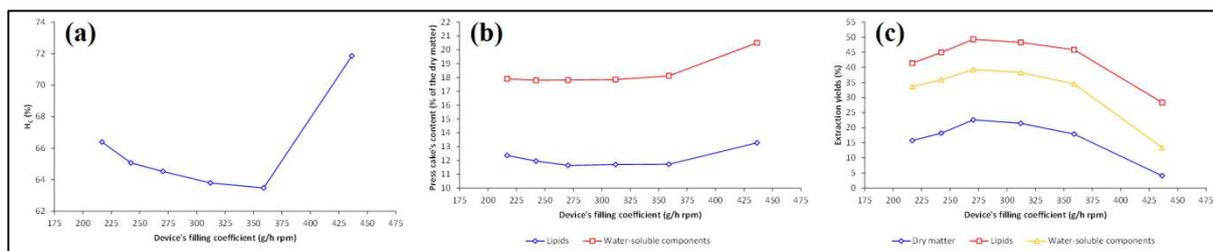


Figure 29

Évolution de la teneur en humidité du tourteau (a), de ses teneurs résiduelles en lipides et en composés hydrosolubles (b) et des rendements d'extraction en matières sèches, en lipides et en composés hydrosolubles (c) avec le coefficient de remplissage du réacteur bi-vis Clextral Evolum HT 53 (P25).

Pour les faibles valeurs du coefficient de remplissage (vitesse de rotation des vis trop élevée), la compression du mélange liquide/solide dans l'ensemble rainuré à simple filet est insuffisante, ne permettant pas une séparation liquide/solide satisfaisante. À l'inverse, pour des remplissages trop élevés (vitesse de rotation des vis trop faible), les particules solides s'accumulent davantage en amont de la zone de pressage, obstruant une partie des grilles de filtration et réduisant du même coup la surface filtrante. Une séparation liquide/solide moins efficace est alors de nouveau observée.

À partir de l'évolution des différentes données expérimentales étudiées, le coefficient de remplissage optimal du réacteur bi-vis a ainsi été estimé à l'aide d'une régression polynomiale du second degré à 297 ± 9 g/h.rpm, correspondant à une vitesse de rotation des vis de 182 ± 6 rpm. Les rendements d'extraction en matières sèches, en lipides et en composants hydrosolubles associés sont alors de 22%, 49% et 40%, respectivement (Figure 29c). Aussi, même si l'utilisation d'un réacteur bi-vis de haute capacité permet bien une augmentation importante (+980%) du débit entrant de solide, cela s'accompagne également d'une moindre efficacité du fractionnement aqueux, une diminution de près de 25% du rendement d'extraction en lipides (R_T) ayant été constatée par comparaison aux essais précédents menés à l'aide du réacteur bi-vis Clextral BC 45 (49% au lieu de 65%). Néanmoins, l'utilisation d'un réacteur bi-vis de plus haute capacité s'accompagne également d'une diminution substantielle (-20%) de l'énergie mécanique spécifique associée : 103 W.h/kg de plante entière traitée (Figure 30) au lieu de 128 W.h/kg avec le réacteur bi-vis Clextral BC 45. Aussi, bien que la quantité d'huile extraite à l'eau soit diminuée, les émulsions huile/eau obtenues à grande échelle sont produites à un coût à peine supérieur (+6%).

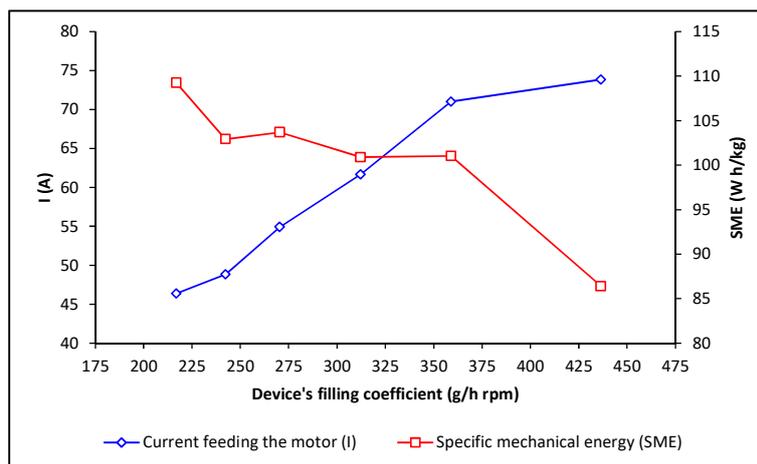


Figure 30

Évolution du courant (I) consommé par le moteur du réacteur bi-vis Clextral Evolum HT 53 et de l'énergie mécanique spécifique (SME) associée avec le coefficient de remplissage (P25).

d. Bilan du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol en bi-vis :

En conclusion, le fractionnement thermo-mécano-chimique de la plante entière de tournesol en réacteur bi-vis (A22) permet aux trois opérations nécessaires à tout procédé de fractionnement de la matière végétale, à savoir son **broyage**, l'**extraction liquide/solide** et la **séparation liquide/solide**, d'être effectuées successivement et dans le même appareil (Figure 31). Un extrait liquide, le **filtrat**, et un raffinat solide, le **tourteau**, sont alors produits simultanément et en continu. L'extrait liquide est ensuite traité, cette opération consistant en trois étapes successives : une **filtration-pressage**, une **homogénéisation à haute pression** et une **centrifugation** (Figure 32). Cela permet alors sa réorganisation en quatre phases distinctes (de la moins dense à la plus dense) : la **phase hydrophobe supérieure** (Figure 33a), la **phase hydrophile** (Figure 33b), la **phase hydrophobe inférieure** et le **pied**, à savoir les petites particules solides entraînées à travers le filtre et qui pourront être ajoutées au tourteau (Figure 33c).

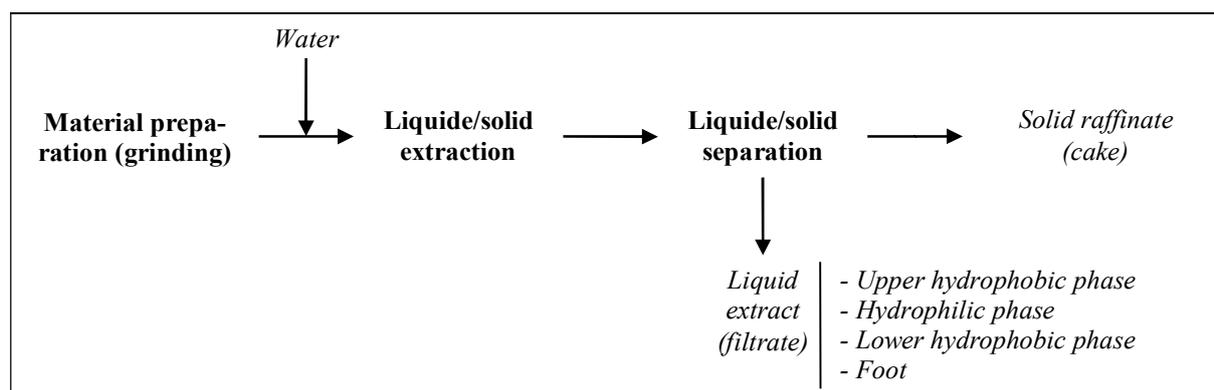


Figure 31

Schéma simplifié du fractionnement thermo-mécano-chimique de la plante entière de tournesol en réacteur bi-vis (A22, TD).

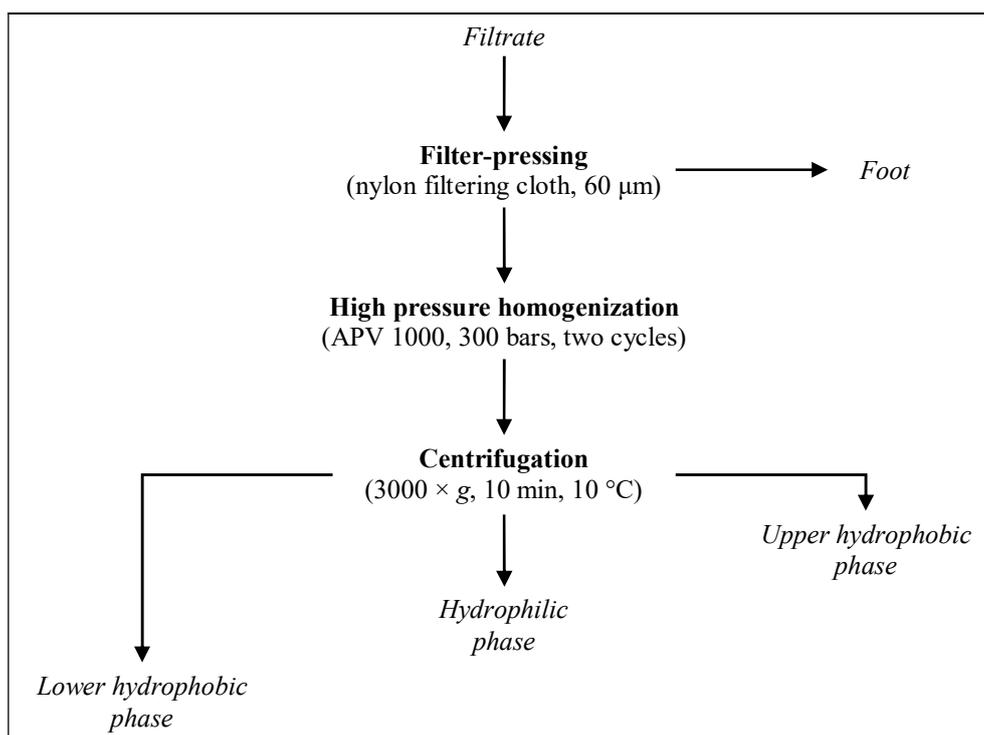


Figure 32

Représentation schématique du traitement du filtrat généré lors du fractionnement thermo-mécano-chimique de la plante entière de tournesol en réacteur bi-vis (A22, TD).



Figure 33

Photographies de la phase hydrophobe supérieure (a), de la phase hydrophile (b) et du tourteau (c) produits lors du fractionnement thermo-mécano-chimique de la plante entière de tournesol en réacteur bi-vis (A22, TD).

Un premier bilan de matière du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol en réacteur bi-vis Cleutral BC 45 à partir des conditions opératoires optimisées (profil de vis optimisé, 80 °C pour la température, 60 rpm pour la vitesse de rotation des vis, 5,0 kg/h pour le débit entrant de plante entière et 20,3 kg/h pour le débit entrant d'eau) est donné en **Figure 34**. Pour de telles conditions opératoires, les teneurs résiduelles en lipides et en protéines dans le tourteau sont de seulement 13,1% et 6,7% de sa masse sèche, respectivement (**Tableau 11**). Ceci correspond à des rendements d'extraction en huile et en protéines de 65% et 55%, respectivement. La séparation liquide/solide en fin de réacteur bi-vis aboutit à une teneur en pied dans le filtrat ne représentant que 7,1% de la matière sèche en entrée, et comprenant 11,8% des lipides et 8,5% des protéines de la plante entière. Les compositions chimiques des trois phases liquides isolées à partir du filtrat sont mentionnées dans le **Tableau 12**.

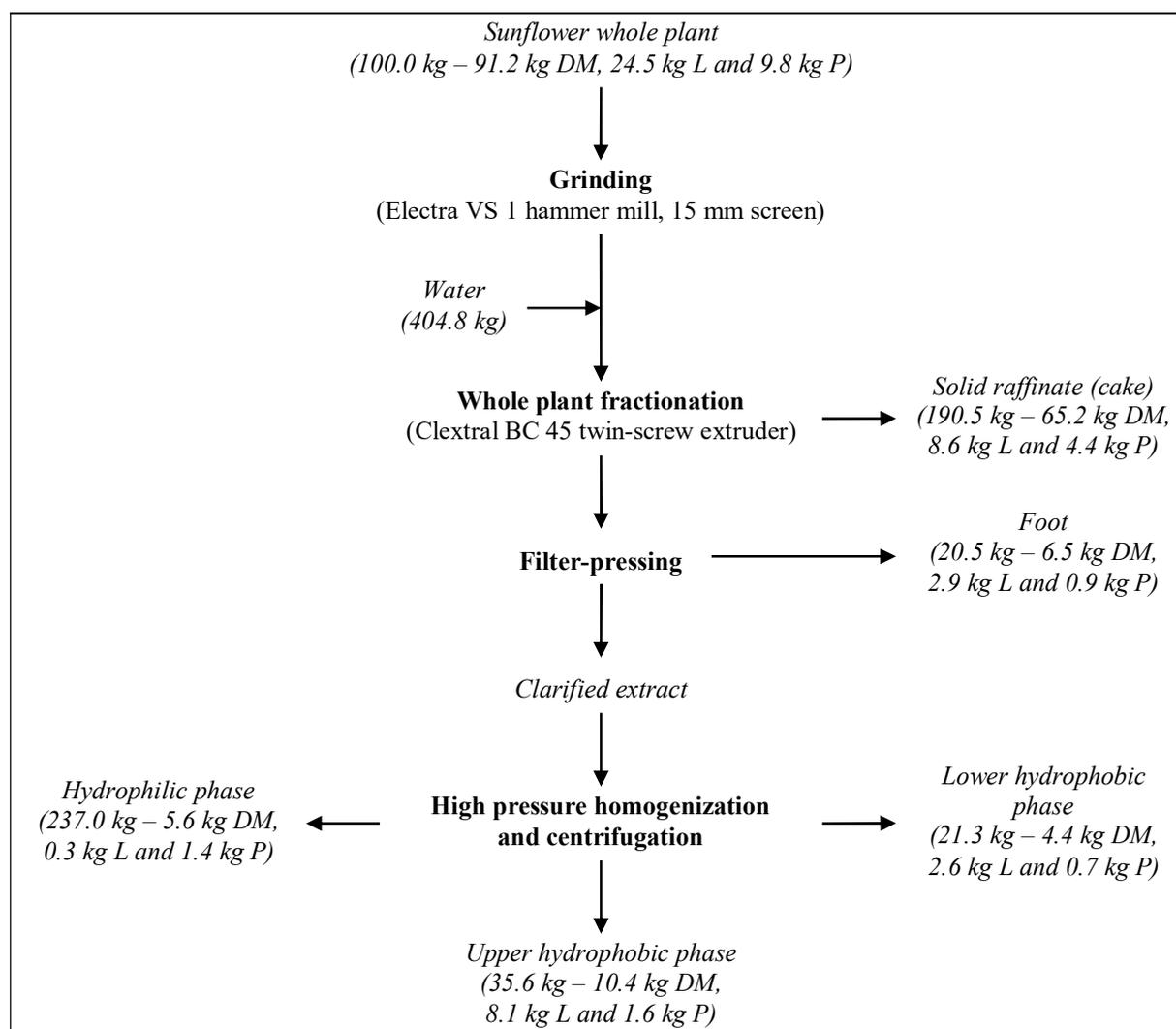


Figure 34

Bilan de matière pour le fractionnement de la plante entière de tournesol en réacteur thermo-mécano-chimique bi-vis à partir des conditions opératoires optimisées (A22, TD).

DM, matière sèche ; L, lipides ; P, protéines.

■ La phase hydrophile constitue la fraction majoritaire de l'extrait liquide (75%). En plus des minéraux qui représentent 20,6% de sa masse sèche, sa teneur en protéines est plutôt élevée (23,3%). À l'inverse, sa teneur en lipides est relativement faible (seulement 5,3%), ce qui indique une bonne séparation entre la phase hydrophile et les deux phases hydrophobes. Par ailleurs, elle ne révèle aucune turbidité (**Figure 33b**). Représentant 57% de l'eau injectée, elle contient 6,1% de la masse sèche de la plante entière dont 13,4% des protéines initiales et environ 11% des substances pectiques. Bien que les pectines soient connues pour leur aptitude à la gélification, une étude de marché a révélé le faible intérêt des pectines de tournesol contenues dans la phase hydrophile pour une utilisation comme agents gélifiants. Par ailleurs, la phase hydrophile constitue une phase très diluée. Ainsi, sa valorisation serait non seulement délicate mais surtout coûteuse. Néanmoins, elle pourra être recyclée en tête de réacteur bi-vis, permettant ainsi une réduction significative de la consommation d'eau par le procédé (**Figure 35**).

■ La phase hydrophobe supérieure représente 11,3% du poids du filtrat. Sa matière sèche contient 77,3% de lipides et 15,0% de protéines.

■ La phase hydrophobe inférieure représente quant à elle 6,6% du poids du filtrat. Sa matière sèche contient 60,2% de lipides, 15,0% de protéines, 9,7% de substances pectiques et 8,7% de sucres non pectiques.

Tableau 11

Composition chimique de la plante entière de tournesol et du tourteau produit à partir des conditions opératoires optimisées (profil de vis optimisé, 80 °C pour la température, 60 rpm pour la vitesse de rotation des vis, 5,0 kg/h pour le débit entrant de plante entière et 20,3 kg/h pour le débit entrant d'eau) (en % de matière sèche) (A22, TD).

	Norme utilisée	Plante entière de tournesol	Tourteau optimisé
Matières minérales	NF V 03-922	6,5 ± 0,2	4,4 ± 0,1
Lipides	NF V 03-908	26,8 ± 0,4	13,1 ± 0,0
Protéines	NF V 18-100	10,7 ± 0,2	6,7 ± 0,1
Cellulose	Méthode de Van Soest et Wine (1967, 1968)	23,9 ± 0,6	33,1 ± 0,5
Hémicelluloses	Méthode de Van Soest et Wine (1967, 1968)	7,8 ± 0,1	13,1 ± 0,2
Lignines	Méthode de Van Soest et Wine (1967, 1968)	9,1 ± 0,0	12,5 ± 0,2
Substances pectiques	Méthode de Blumenkrantz et Asboe-Hansen (1973)	7,0 ± 0,2	n.d. ¹
Composés hydrosolubles	1 h dans l'eau bouillante	n.d.	n.d. ¹

¹ n.d., non déterminé.

Tableau 12

Répartition massique, densité et composition chimique des trois phases liquides issues du filtrat (A22, TD).

	Norme utilisée	Phase hydrophobe supérieure	Phase hydrophile	Phase hydrophobe inférieure
Répartition massique (en %)	-	11,3	75,4	6,6
Densité	-	0,972 ± 0,000	1,008 ± 0,000	1,030 ± 0,000
Composition chimique				
Humidité (en %)	NF V 03-903	70,8 ± 0,1	97,6 ± 0,0	79,6 ± 0,1
Minéraux (en % de matière sèche)	NF V 03-922	1,9 ± 0,1	20,6 ± 0,1	6,5 ± 0,1
Lipides (en % de matière sèche)	Démixtion à l'aide d'un mélange éthanol/éther (3/1) (Mechling, 2002) ¹ Méthode de Bligh et Dyer (1959) ²	77,3 ± 0,1	5,3 ± 0,5	60,2 ± 0,4
Protéines (en % de matière sèche)	NF V 18-100	15,0 ± 0,1	23,3 ± 0,0	15,0 ± 0,0
Substances pectiques (en % de matière sèche)	Méthode de Blumenkrantz et Asboe-Hansen (1973)	0,6 ± 0,1	12,3 ± 0,3	9,7 ± 0,4
Sucres non pectiques (en % de matière sèche)	Méthode colorimétrique de Dubois et al. (1956)	0,7 ± 0,0	8,7 ± 0,3	8,7 ± 0,2

¹ La démixtion à l'aide d'un mélange éthanol/éther (3/1) a été utilisée pour les phases hydrophobes supérieure et inférieure.

² La méthode de Bligh et Dyer a été utilisée pour la phase hydrophile.

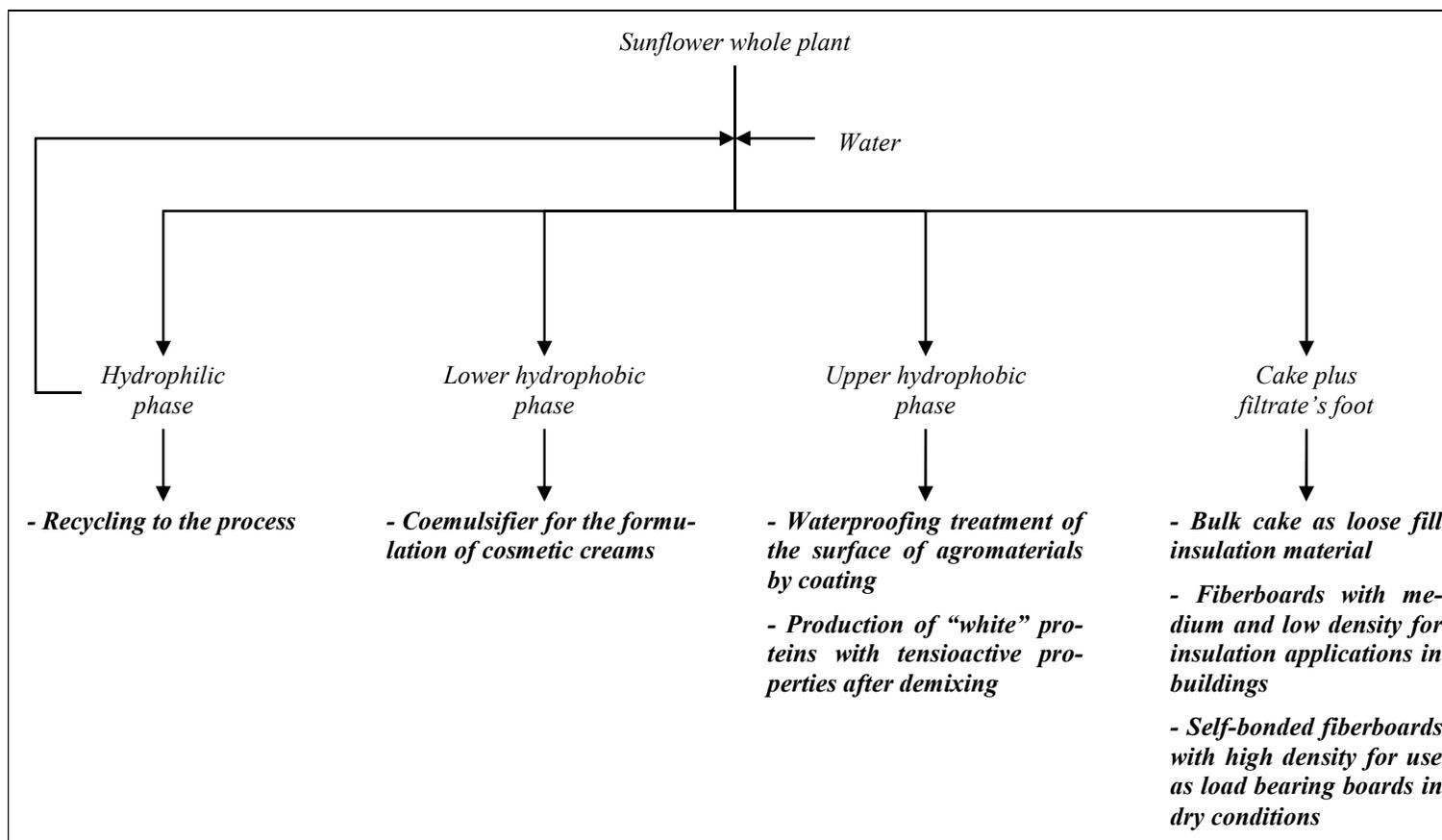


Figure 35

Schéma de valorisation proposé pour chaque fraction issue du procédé de bioraffinage de la plante entière de tournesol en réacteur thermo-mécano-chimique bi-vis (A22, TD).

En conséquence, parmi les lipides extraits (44,5%), 43,2% sont présents dans les deux phases hydrophobes (à savoir 32,8% pour la phase hydrophobe supérieure et 10,5% pour la phase hydrophobe inférieure). La perte en lipides dans la phase hydrophile est ainsi limitée à seulement 1,2%. En outre, l'émulsion huile/eau supérieure contient également la plus grande partie des protéines extraites (16,0% parmi 36,1%). Dans le même temps, 13,4% des protéines issues de la plante entière sont contenues dans la phase hydrophile et 6,6% dans la phase hydrophobe inférieure. En parallèle, le tourteau (**Figure 33c**), qui représente 71,5% de la masse sèche de la plante entière, contient non seulement des lipides et des protéines mais également 58,7% de fibres (**Tableau 11**). Mélangé avec le pied du filtrat, il a ensuite été séché afin de faciliter sa conservation. Par ailleurs, l'énergie mécanique spécifique consommée par le moteur du réacteur bi-vis lors du fractionnement aqueux du tournesol a été estimée à 128,5 W.h/kg de plante entière traitée, correspondant à une valeur de 1,2 kW.h/kg d'huile extraite (**A22, TD**).

7. Utilisations potentielles des émulsions huile/eau générées par extraction aqueuse :

Sur la base du bilan de matière présenté en **Figure 34**, les phases hydrophobes supérieure et inférieure générées lors du fractionnement aqueux en réacteur bi-vis de la plante entière de tournesol contiennent 32,8% et 10,5%, respectivement, des lipides de la plante entière. De même, leurs teneurs en protéines correspondent à 16,0% et 6,6%, respectivement, des protéines de départ. L'observation au microscope optique de ces deux phases hydrophobes a montré que toutes deux avaient la forme d'émulsions huile/eau. Leur stabilité est assurée par la présence à l'interface d'agents tensioactifs naturels co-extraits par l'eau lors du processus d'extraction aqueuse, à savoir des phospholipides et des protéines mais également des substances pectiques et des sucres non pectiques dans le cas de la phase hydrophobe inférieure (**Tableau 12**). Lorsqu'elles sont observées au microscope optique, les gouttelettes lipidiques dispersées dans l'eau révèlent un diamètre légèrement plus faible à l'intérieur de la phase hydrophobe supérieure qu'à l'intérieur de la phase hydrophobe inférieure. Et, cette même tendance a pu être confirmée grâce à l'analyse de ces deux émulsions huile/eau à l'aide d'un granulomètre laser (**Tableau 13**). En outre, les courbes de distribution en volume des particules contenues dans les deux phases hydrophobes ont permis de mettre en évidence la présence d'une seconde population, en plus des gouttelettes lipidiques. Cette nouvelle population est constituée de particules ayant un diamètre moyen compris entre 10 et 15 μm pour la phase hydrophobe supérieure, et compris entre 30 et 35 μm pour la phase hydrophobe inférieure (**TD**). Représentant moins de 0,30% et moins de 0,15%, respectivement, du nombre de particules présentes à l'intérieur de ces deux émulsions huile/eau, il pourrait s'agir de débris cellulaires issus du fractionnement thermo-mécano-chimique de la plante entière dans l'extrudeur bi-vis, et qui auraient été mal séparés du pied du filtrat lors de l'étape de centrifugation.

Tableau 13

Diamètre moyen des gouttelettes d'huile dispersées dans l'eau pour les deux phases hydrophobes (**A22**).

	Microscope optique (Nikon Eclipse E 600) ¹	Granulomètre laser (Malvern Mastersizer 2000)
Phase hydrophobe supérieure (μm)	1,12 \pm 0,26	1,10 \pm 0,58
Phase hydrophobe inférieure (μm)	1,40 \pm 0,31	1,20 \pm 0,81

¹ Valeurs moyennes déterminées par mesure manuelle des diamètres de l'ensemble des gouttelettes lipidiques présentes sur les clichés de microscopie optique.

Le comportement rhéologique des deux phases hydrophobes a ensuite été étudié à l'aide d'un rhéomètre à contrainte imposée, muni d'une géométrie de type cône tronqué/plan. Pour ces deux émulsions huile/eau, il est apparu que leur comportement rhéologique pouvait être modélisé à l'aide du modèle de Herschel-Bulkley. L'existence d'un seuil d'écoulement a ainsi été mise en évidence, correspondant à une valeur de la contrainte de cisaillement appliquée en-dessous de laquelle la viscosité est trop forte pour que la phase hydrophobe ne s'écoule. Ce dernier a pu être estimé plus précisément sous faible contrainte : seulement 0,5 Pa pour la phase hydrophobe supérieure, et entre 31 et 32 Pa pour la phase hydrophobe inférieure. Dans le même temps, la viscosité de la phase hydrophobe inférieure est apparue nettement plus élevée que celle de l'émulsion supérieure (**Figure 36**), s'expliquant par les propriétés gélifiantes et épaississantes des pectines de tournesol (Maréchal et Rigal, 1999). En second lieu, la résistance du film situé à l'interface huile/eau a été évaluée par l'intermédiaire de la concentration en protéines à l'interface. Celle-ci a été estimée à 34 mg/m² pour la phase hydrophobe supérieure, atteignant une valeur de 54 mg/m² pour la phase hydrophobe inférieure. Enfin, la stabilité des deux émulsions a été étudiée sur une période de trois mois, ceci en suivant non seulement l'évolution de la taille moyenne des gouttelettes d'huile dispersées dans l'eau au cours du temps mais également la résistance à l'écoulement des deux phases hydrophobes sous contrainte imposée. Ce suivi a montré une bonne stabilité dans le temps des deux émulsions huile/eau lorsqu'elles sont stockées dans un réfrigérateur, aucun phénomène de coalescence des gouttelettes lipidiques n'ayant été mis en évidence, même après trois mois.

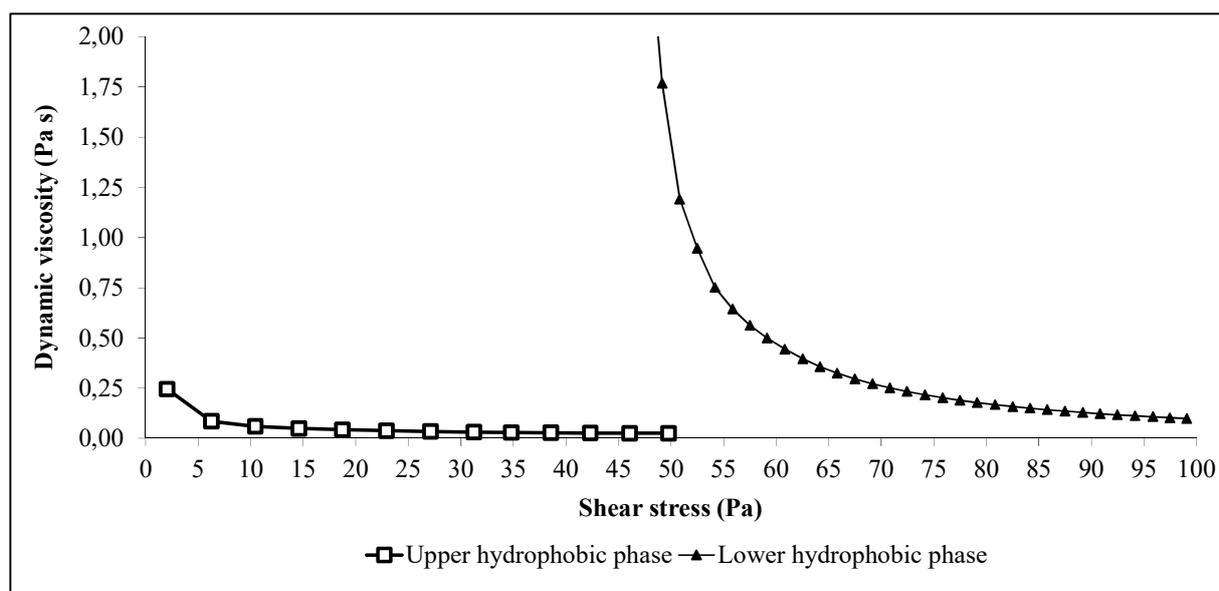


Figure 36

Évolution de la viscosité dynamique des phases hydrophobes supérieure et inférieure en fonction de la contrainte de cisaillement appliquée (rhéomètre TA Instruments AR 2000ex, 25 °C) (A22).

En parallèle, une étude de marché a révélé l'intérêt potentiel de ces deux émulsions huile/eau pour une utilisation dans l'industrie cosmétique. En conséquence, ces deux phases hydrophobes ont été évaluées pour une telle application industrielle qui, en outre, favoriserait leur valorisation économique (de 10 à 50 €/kg). Et, même si les essais effectués à l'aide de la phase hydrophobe supérieure (l'émulsion la plus fluide) n'ont pas donné de résultat satisfaisant, il a été démontré que la phase hydrophobe inférieure (l'émulsion la plus visqueuse) pourrait être utilisée comme co-émulsifiant (jusqu'à une teneur massique d'environ 10%) pour la formulation de crèmes de nuit hautement pénétrantes et présentant un caractère émoullissant élevé (**Figure 35**). Sur la base de ces premiers résultats, d'autres applications

cosmétiques ont également été considérées pour la phase hydrophobe inférieure parmi lesquelles des gels à haute capacité filmogène, des gels de douche, des huiles de douche, etc. Néanmoins, sa teinte grisâtre persistante pourrait devenir à terme un problème pour son utilisation dans les produits cosmétiques. En effet, lors de ce travail prospectif, cette couleur a non seulement résisté au blanchiment à l'argile mais elle a également nécessité une très grande quantité de dioxyde de titane (TiO₂) pour disparaître. Pour de futurs travaux, il sera donc nécessaire d'identifier les composés qui pourraient être responsables de cette couleur naturelle (chlorophylle, xanthophylle, etc.). Par ailleurs, un ajustement du pH de la phase hydrophobe inférieure pourrait aider à estomper voire même à éliminer totalement cette couleur. Dans le même temps, l'ajustement du pH à des valeurs comprises entre 4,0 et 4,5 devrait faciliter la conservation de l'émulsion au cours du temps. Il pourrait se faire en ajoutant de l'acide citrique, une substance naturelle sans toxicité pour l'homme ni pour l'environnement, et qui agirait également comme un bactéricide et un fongicide. Enfin, l'absence d'allergènes devra également être confirmée à l'avenir.

Concernant la phase hydrophobe supérieure pour laquelle les essais de formulation de crèmes cosmétiques n'avaient pas donné satisfaction, deux applications industrielles possibles ont été identifiées (**Figure 35**). En premier lieu, elle pourrait être utilisée pour l'enduction de la surface des agromatériaux, ceci afin de les rendre moins sensibles à l'eau et donc plus durables. Cela a été confirmé avec succès dans le cas de panneaux de fibres auto-liés et de haute densité, produits par thermopressage du tourteau généré lors du bioraffinage de la plante entière de tournesol en réacteur bi-vis (**TD**). En second lieu, la démixtion de la phase hydrophobe supérieure peut être obtenue en traitant cette émulsion huile/eau à l'aide d'un mélange éthanol/éther diéthylique (3/1) ou d'éthanol absolu (**A5 ; TD ;** Mechling, 2002). Après rupture du film interfacial, une étape de centrifugation conduit à l'obtention séparée d'un surnageant et d'un culot solide. D'une part, l'évaporation du mélange éthanol/éther ou de l'éthanol dans le surnageant permet l'obtention d'une huile végétale de haute pureté. D'autre part, le culot de centrifugation se présente sous la forme d'une poudre de couleur claire, les protéines (principalement des albumines) représentant les deux tiers de son poids sec. Leur analyse DSC a révélé la présence d'un pic endothermique à une température de transition de 155 °C environ, indiquant que les protéines contenues dans l'émulsion huile/eau supérieure n'avaient été que faiblement dénaturées lors du fractionnement thermo-mécano-chimique en réacteur bi-vis (**A5, TD**). Aussi, jusqu'à présent pénalisées par leur couleur sombre, l'obtention de ces protéines « blanches » de tournesol au caractère tensioactif pourrait offrir de nouvelles opportunités, en particulier pour des applications dans le domaine alimentaire (Canella et al., 1985).

8. Valorisation des tourteaux pour la fabrication d'agromatériaux :

Afin de satisfaire au concept de raffinerie du végétal qui prévoit une valorisation de l'ensemble des fractions issues de ce type de procédé, ceci afin de limiter autant que faire se peut la production de déchets, une valorisation des tourteaux a été envisagée, en plus de celle des extraits lipidiques dont il a été largement question précédemment.

Qu'ils aient été générés lors de l'expression et/ou lors de l'extraction aqueuse de l'huile végétale de matières oléagineuses (graines ou plantes entières), les différents tourteaux issus du traitement bi-vis présentent tous une teneur résiduelle en lipides correspondant à l'huile n'ayant pu être exprimée et/ou extraite. Rappelons ici brièvement que celle-ci pourra toujours être extraite au solvant avant toute valorisation du tourteau. Tous les tourteaux révèlent également la présence dans des proportions variables de matières minérales, de composés hydrosolubles, de protéines et de fibres végétales (comprenant la cellulose, les hémicelluloses et les lignines) (**Tableau 14**). Sur la base de ces compositions chimiques, et même si l'huile résiduelle des tourteaux pourrait être un inconvénient pour leur utilisation directe, diverses valorisations pourront être envisagées pour ces raffinats solides :

■ Même si aucun test de digestibilité n'a pu être effectué au cours mes différents travaux, l'**alimentation animale** pourra être un axe de valorisation important pour ces différents tourteaux (en vrac ou sous forme de granulés), d'autant plus qu'aucun d'eux n'a été en contact avec le moindre solvant. Cette possible valorisation s'explique par la richesse de ces tourteaux à la fois en fibres lignocellulosiques et en protéines (**Tableau 14**). Signalons tout de même que le tourteau de jatropa ne pourra être valorisé de la sorte, en raison de la présence d'une toxalbumine, la **curcine**, qui présente une forte toxicité (Gubiz et al., 1999 ; Haas et Mittlebach, 2000).

■ Les tourteaux pourront également être utilisés pour la **production d'énergie** par combustion en chaudière à granulés, par gazéification ou par pyrolyse (Yorgun et al., 2001 ; Gerçel, 2002).

■ Dans le cas des tourteaux de coriandre, trois autres valorisations potentielles ont également été identifiées lors des travaux de Mlle Uitterhaegen :

● Les tourteaux de coriandre contiennent une partie de l'huile essentielle présente initialement dans la graine, ne représentant toutefois jamais plus de 0,3% de leur masse sèche. Ainsi, l'huile essentielle résiduelle de ces tourteaux pourra être extraite par hydrodistillation (**A15** ; Uitterhaegen, 2018). En raison de son parfum frais et fleuri s'expliquant par sa teneur élevée en linalool (jusqu'à 77%), elle pourra être utilisée dans l'industrie cosmétique pour la fabrication de parfums, de shampoings ou de savons voire même de détergents ménagers (Lapczynski et al., 2008), ou comme répulsif contre les moustiques (Müller et al., 2009). Néanmoins, en raison de la faible quantité d'huile essentielle présente dans les tourteaux de coriandre, il pourra aussi être plus judicieux de la laisser dans d'autres produits finis tels que des agromatériaux, leur fournissant ainsi une valeur ajoutée.

● Les tourteaux de coriandre contiennent également certains antioxydants naturels qu'il sera possible d'isoler par extraction méthanolique, ceux-ci étant potentiellement intéressants en raison de leur impact bénéfique sur la santé (Sriti et al., 2014 ; **A15**).

● Enfin, les tourteaux de coriandre présentent une teneur non négligeable en pentosanes, comprise entre 8,9 et 11,5% de leur masse sèche selon les conditions de pressage mécanique mises en œuvre en réacteur bi-vis (Uitterhaegen, 2018). À ce titre, ils pourront être utilisés comme adjuvants en panification, pour la mise au point de produits sans gluten par exemple, ce qui pourrait à terme intéresser les industriels de la meunerie et autres fabricants de biscuits.

Outre les premières valorisations envisagées ci-dessus, il est à noter que tous ces tourteaux présentent non seulement une forte teneur en fibres lignocellulosiques mais également une teneur non négligeable en protéines (**Tableau 14**), partiellement dénaturées lors du traitement d'extrusion bi-vis comme a pu le révéler leur analyse DSC (**A2, A3, A4, TD**), permettant ainsi de les utiliser comme des liants naturels sous contrainte thermo-mécanique. Cette spécificité particulièrement intéressante justifie le fait que les tourteaux puissent être considérés comme des composites naturels. Aussi, leur valorisation comme base de mise en forme en agromatériaux, tout particulièrement par thermopressage ou par thermomoulage, constitue une voie originale pour leur utilisation :

■ Le **thermopressage**, qui consiste en un pressage à chaud de la matière entre les deux plateaux d'une presse hydraulique, et qui ne nécessite pas nécessairement de pression élevée, permettrait de mettre en forme les tourteaux pour la fabrication de plaques ou de panneaux (de fibres ou de particules), qui trouveront des utilisations variées dans des domaines tels que ceux de l'ameublement, du bâtiment ou des industries du stockage et des transports.

■ Lorsque le thermopressage est effectué dans un moule, l'objet prend la forme de l'empreinte : on parle alors de **thermomoulage**. Cette technique permettrait de mettre en forme les tourteaux pour la fabrication de contenants (écuelles pour animaux domestiques, bacs à litières, etc.).

C'est donc vers cette technologie de thermocompression que se sont focalisés la plupart de mes travaux visant à valoriser les tourteaux générés à l'issue du traitement bi-vis. Leurs résultats seront

décrits de façon exhaustive dans les paragraphes suivants. En outre, la richesse en fibres végétales de ces raffinats solides témoigne du fait qu'ils pourraient aussi être intéressants pour l'industrie des biocomposites. En effet, ils pourraient être incorporés *via* une étape de compoundage bi-vis dans des polymères thermoplastiques, notamment des polymères compostables tels que l'acide polylactique (PLA) (**A9**) et la polycaprolactone (PCL) (Diebel et al., 2012), où ils pourraient agir comme des charges de renforcement. Les granulés composites ainsi formulés pourraient alors être utilisés pour la fabrication de diverses pièces, moulées par injection thermoplastique ou extrudées (pièces d'usage éphémère, barquettes alimentaires, films, profilés, etc.). Mes travaux déjà effectués sur ce sujet (**A9**, **A18**, **A23**, **A31**) seront également décrits en suivant. Par ailleurs, une étude allant elle aussi dans ce sens a été réalisée plus récemment dans le cadre de la Thèse de Doctorat de Mlle Uitterhaegen (Quevedo, 2016 ; **A37**).

Tableau 14

Quelques exemples de composition chimique de tourteaux générés par extrusion bi-vis, selon la nature de la matière première traitée, le mode d'obtention (expression ou extraction aqueuse de l'huile végétale) et l'éventuel post-traitement de délipidation à l'extracteur de type Soxhlet avant leur transformation en agromatériaux par thermopressage.

Matière première	Tournesol (plante entière)		Neem (graines)	Jatropha (graines)	Coriandre (graines)		Fenouil (graines)
Référence(s)	A4, A5, A6, A11, A13, A16, AC12, TD		Faye, 2010	A12	A19 ; A25 ; Uitterhaegen, 2018		Sayed Ahmad, 2018
Mode d'obtention	Extraction aqueuse		Extraction aqueuse	Expression	Expression		Expression
Délipidation	Non	Oui	Non	Non	Non	Oui	Non
Composition chimique (en % de matière sèche)							
Minéraux	5,4-7,1	8,0	2,3-5,3	4,9-5,9	6,2	6,7	7,1
Lipides	13,1-17,6	0,9	17,1-20,9	5,9-19,1	17,2	0,9	18,0
Protéines	6,7-9,2	11,3	7,8-8,9	18,9-23,8	18,2	26,7	29,1
Cellulose	30,8-32,0	38,8	n.d. ¹	40,8-47,2	26,6	34,7	23,3
Hémicelluloses	5,2-14,8	5,9	n.d. ¹	5,4-16,7	22,2	36,9	30,6
Lignines	10,7-15,6	19,4	n.d. ¹	2,2-4,1	5,0	1,0	6,4
Composés hydrosolubles	12,1-18,7	14,4	n.d. ¹	13,3-16,6	16,0	15,6	n.d. ¹

¹ n.d., non déterminé.

a. Méthodologie expérimentale pour l'obtention de panneaux de fibres et/ou de particules par thermopressage :

Pour la fabrication des agromatériaux par thermopressage, les protéines à l'intérieur des tourteaux ont été utilisées comme des liants naturels. Grâce au comportement thermoplastique de ces polymères amorphes, le processus de thermopressage permet la fabrication de matériaux fibreux sans ajout de colle. On parle alors d'**auto-adhésion**. Au cours de mes nombreux travaux sur le sujet, des panneaux de fibres et/ou de particules d'origines variées ont ainsi pu être obtenus avec succès, aucun polymère exogène, synthétique ou d'origine naturelle, n'ayant été ajouté lors de la mise en œuvre de ces matériaux :

■ À partir de tourteaux de tournesol issus de la plante entière (**A4, A5, A6, A11, AC12, B1, TD**).

■ À partir de tourteaux de jatropha (**A12**).

■ À partir de tourteaux de coriandre (**A19, A25, A30, AC17, P35, P43**).

Les panneaux ainsi obtenus n'en demeurent pas moins cohésifs. En plus des protéines, signalons tout de même ici que certains autres constituants des tourteaux, notamment certains composés des fibres lignocellulosiques, les hémicelluloses voire même les lignines, peuvent également avoir des propriétés adhésives, contribuant ainsi pour partie à la cohésion des matériaux produits (Tajuddin et al., 2016).

Dans le cas des tourteaux de jatropha, leur analyse enthalpique différentielle (DSC) a été réalisée sur des matières délipidées, après conditionnement en enceinte climatique (60% HR, 25 °C) pendant trois semaines, correspondant à une teneur en humidité de 6-7% (**A12**). Elle a permis de mettre en évidence un phénomène significatif de transition vitreuse, et ce pour les cinq tourteaux testés (**Figure 37**). Il a été attribué à la transition vitreuse des protéines, observée à une température comprise entre 179 et 181 °C, même si d'autres constituants mineurs tels que les hémicelluloses pourraient aussi révéler ce même type de changement de phase (Manolas et al., 1994 ; Rigal et al., 1998 ; Gabriellii et al., 2000 ; Rouilly et Rigal, 2002). Cette transition de phase a aussi pu être mise en évidence au cours d'autres travaux, pour les protéines contenues dans les tourteaux issus de la plante entière de tournesol (**A4, TD**) et pour celles de tourteaux de coriandre (**A19, A25**).

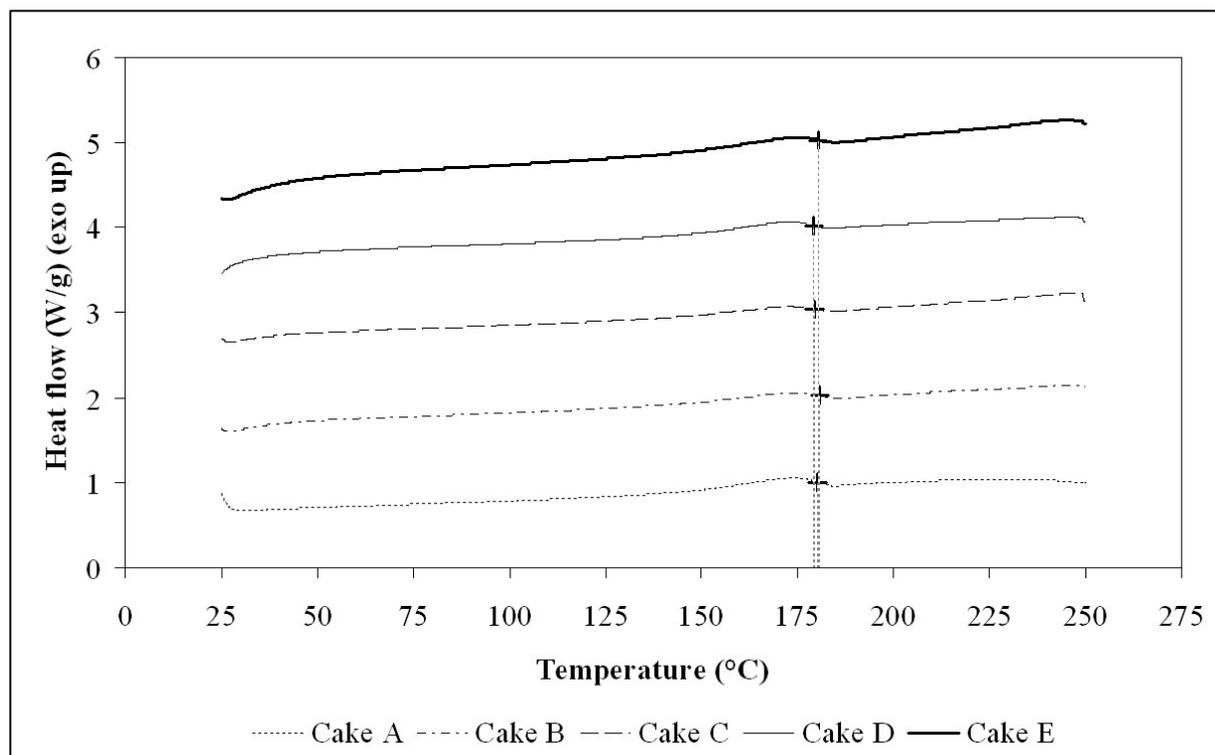


Figure 37

Thermogrammes DSC obtenus dans des capsules hermétiques pour des tourteaux de jatropha, délipidés et équilibrés en enceinte climatique (60% HR, 25 °C) pendant trois semaines avant analyse (A12).

Lorsque ces tourteaux de jatropha sont séchés dans une étuve ventilée (60 °C, 12 h) avant analyse DSC, conduisant à une teneur en humidité de seulement 2% environ, une légère augmentation de la température de transition vitreuse des protéines est systématiquement observée (de 180 °C en moyenne à 185-186 °C). Ceci est caractéristique de l'effet plastifiant joué par l'eau sur les protéines de jatropha, et cette tendance avait été précédemment observée pour les protéines de tournesol (Rouilly et al., 2001, 2003), pour le gluten de blé (Lim et al., 1993 ; Pouplin et al., 1999), pour la zéine de maïs (Di Gioia, 1998) ainsi que pour les protéines de soja (Morales et Kokini, 1997). En effet, les protéines végétales contiennent, comme la plupart des autres familles de biopolymères (amidon, pectines, hémicelluloses et autres polysaccharides), des fonctions polaires (fonctions amides) qui sont capables de se lier à des molécules d'eau par le biais de liaisons hydrogène. La présence d'eau sépare les protéines et facilite leur mouvement, ce qui améliore leurs propriétés thermoplastiques (Rouilly et Rigal, 2002). Les propriétés thermiques et rhéologiques des protéines sont donc fortement dépendantes de la quantité d'eau qu'elles contiennent, ce qui entraîne des variations de leur température de transition vitreuse en fonction de leur niveau d'hydratation.

L'effet plastifiant de l'eau sur les protéines a été largement étudié au LCA, notamment sur un isolat protéique de tournesol, extrait d'un tourteau industriel à partir de conditions dénaturantes (Rouilly et al., 2001). Ce travail a permis de confirmer qu'une diminution de la température de transition vitreuse des protéines, tout particulièrement les globulines, était observée avec l'augmentation de leur teneur en humidité : de 180,8 °C pour des protéines totalement sèches à -7,0 °C pour une humidité maximale de 50% (Figure 38). Cette diminution, caractéristique de l'effet plastifiant de l'eau pour les protéines, s'accompagne par la même occasion d'une diminution de leur rhéologie lorsqu'elles sont dans un état caoutchoutique visqueux. Ce qui facilite leur écoulement sous contrainte thermo-mécanique, rendant par voie de conséquence leur moulage par injection thermoplastique envisageable. Des pots biodégradables de repiquage pour plantes ont ainsi pu être produits par injection thermoplastique de

tourteaux industriels de tournesol, préalablement déstructurés par voie thermo-mécano-chimique en extrudeur bi-vis (Geneau, 2006 ; Humbert, 2008). Pour ce cas de figure, la teneur en protéines du tourteau industriel était de l'ordre de 35 à 40% de sa masse sèche, et l'humidité du tourteau était d'environ 20% au moment du moulage, ceci afin de fluidifier le mélange fondu et de faciliter ainsi le remplissage de l'empreinte du moule. Lors de la Thèse de Doctorat de Julien Humbert (2008), j'ai pu assister ce dernier à l'optimisation du moulage par injection de ces pots de repiquage (AT1).

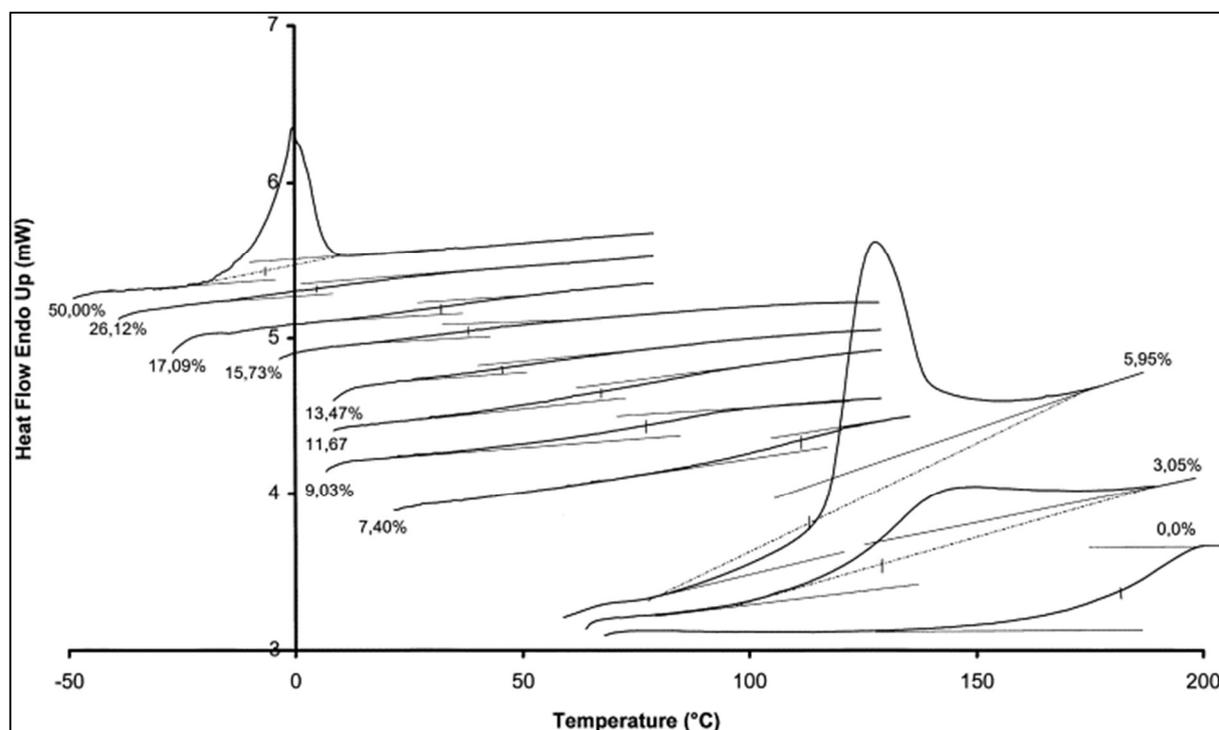


Figure 38

Évolution de la température de transition vitreuse des protéines de tournesol, déterminée à partir de thermogrammes DSC, avec leur teneur en humidité (Rouilly et al., 2001).

Dans le cas des tourteaux issus de plantes ou de graines oléagineuses, qu'ils aient été produits par pressage mécanique ou par extraction aqueuse puis éventuellement délipidés au solvant (cyclohexane) à l'aide d'un extracteur de type Soxhlet, la teneur en protéines (**Tableau 14**) est bien inférieure aux cas évoqués juste au-dessus, rendant impossible leur moulage par injection en raison de la viscosité trop élevée du mélange fondu. C'est donc tout naturellement vers le **thermopressage** et le **thermomoulage** que le choix de la technique de mise en forme s'est porté, les protéines agissant alors plus comme un liant naturel que comme une matrice thermoplastique. Néanmoins, lors du moulage à chaud sous pression, une teneur en humidité du tourteau trop élevée (> 10%) peut présenter le risque de générer des défauts (cloques, fissures, etc.) à l'intérieur des matériaux obtenus, diminuant ainsi drastiquement leur tenue mécanique. En effet, dans le cas de l'injection, le démoulage de la pièce hors de l'empreinte du moule se fait toujours après son refroidissement à température ambiante, l'eau contenue dans la pièce injectée étant alors revenue à l'état liquide. À l'inverse, dans le cas du thermopressage, c'est à chaud (à l'aide d'une température allant au-delà de 100 °C pour permettre une plastification des biopolymères, les protéines en particulier) que les panneaux thermopressés sont mis en forme, et donc également retirés du moule en fin de cycle après ouverture de la presse hydraulique. Encore à l'état de vapeur, l'eau emprisonnée à l'intérieur du matériau dense déjà fabriqué cherche alors à s'en échapper, le plus souvent sans succès, formant ainsi les cloques et autres fissures évoquées ci-

dessus. Lors de l'ouverture de la presse, une détente trop brutale peut même conduire à l'explosion pure et simple du matériau.

Au cours de mes travaux, des solutions d'ordre technologique ont ainsi été proposées, avec succès, pour pallier à ce problème. Elles sont listées ci-dessous :

- Une entrouverture du moule en début de cycle.
- Une diminution de la vitesse d'ouverture des plateaux en fin de cycle.
- Un refroidissement du moule avant son ouverture.

■ Un pressage de la matière en deux cycles successifs, le premier à chaud pour donner au matériau la forme désirée, et le second à froid pour remettre en forme l'objet de façon définitive tout en profitant de la chaleur accumulée lors du premier cycle.

Néanmoins, ces solutions présentent toutes l'inconvénient d'augmenter les temps de cycle, la dernière d'entre elles nécessitant par ailleurs l'acquisition de deux presses hydrauliques pour permettre une production en continu des matériaux thermopressés. Aussi, elles s'accompagneront inexorablement d'une augmentation du prix de revient des panneaux. À titre d'exemple, la solution consistant à refroidir le moule avant son ouverture a été testée avec succès dans le cas d'un mélange composé (i) de paille de riz extrudée en guise de renfort fibreux et (ii) d'une lignine commerciale, préalablement extraite de la paille de blé *via* un procédé de type *organosolv*, en guise de liant naturel (A38). Cette solution a permis d'accéder à des propriétés en flexion particulièrement élevées pour les panneaux de fibres obtenus : jusqu'à 50 MPa pour la résistance en flexion et jusqu'à 6 GPa pour le module élastique. En effet, en démoulant à seulement 60 °C, c'est-à-dire à une température nettement inférieure à 100 °C, tout phénomène de détente brutale est évité, l'eau étant à l'état liquide à son retour à la pression atmosphérique. D'ailleurs, grâce à cette méthodologie, il est possible également de mouler avec davantage d'eau que celle naturellement contenue dans la matière à thermopresser (jusqu'à 20% d'eau ajoutée avant pressage à chaud lors de cette étude), permettant ainsi de mieux utiliser son effet plastifiant vis-à-vis de la lignine. Néanmoins, la presse utilisée au laboratoire pour cette étude (presse à plateaux chauffants de la halle AGROMAT, d'une capacité de 400 tonnes) disposant d'un système de refroidissement des plateaux par simple circulation d'eau froide, cette étape s'est avérée extrêmement longue (de l'ordre de 20-25 min), représentant à elle seule près des trois-quarts de la durée totale du cycle de pressage à chaud (environ 30 min). La mise en œuvre d'un moule à induction électromagnétique devrait rendre nettement plus rapide la diminution de la température dans le moule de thermopressage en fin de cycle. De plus, outre le gain attendu en termes de temps de cycle, une telle technologie devrait également favoriser une meilleure répartition de la contrainte thermique sur la totalité de la surface du matériau fibreux lors du moulage, favorisant du même coup l'obtention de panneaux plus homogènes d'un point de vue mécanique. Bien que n'ayant pas pu être mise en œuvre au cours de mes travaux, l'acquisition d'une telle technique de moulage est prévue dans un futur proche au sein du laboratoire. Il en sera davantage question un peu plus loin, dans la partie consacrée à mon projet de recherche.

Une ultime solution, moins coûteuse, a donc été envisagée. Elle consiste en une diminution, par le biais d'un séchage modéré en étuve ventilée (60 °C, 12 h), de la quantité d'eau contenue dans les tourteaux avant thermopressage (jusqu'à environ 2% d'humidité). Et, les résultats ainsi obtenus ont été particulièrement prometteurs (A4, A5, A6, A11, A12, A19, A25, AC12, B1, TD). Pourtant, en procédant de la sorte, la teneur en humidité des protéines étant alors plus faible, cela se traduit par une augmentation de leur température de transition vitreuse : pour le cas des protéines de tournesol par exemple, de 80 °C environ à leur humidité naturelle (8-10%) à 150 °C environ pour une humidité de seulement 2% (Figure 38). C'est la raison pour laquelle le choix de la température de thermopressage est alors particulièrement important. En effet, afin de s'assurer du passage des protéines dans un état caoutchoutique visqueux lors de la mise en forme sous pression, la température de la presse doit au moins être égale à leur température de transition vitreuse. C'est seulement à cette condition qu'un

mouillage de la surface des fibres par les protéines peut se produire, leur permettant ainsi de bien jouer leur rôle de liant naturel à l'intérieur de l'agromatériau thermopressé.

Afin d'illustrer ce dernier point, revenons aux tourteaux de jatropha. Dans ce cas, l'obtention de panneaux de particules a été réalisée à partir de matières premières présentant une humidité d'environ 2%, correspondant à une température de transition vitreuse des protéines de l'ordre de 185 °C (A12). La température de thermopressage présentait alors une valeur minimale de 160 °C et une valeur maximale de 200 °C. À seulement 160 °C, la transition vitreuse des protéines n'ayant pas été atteinte lors du moulage, les panneaux obtenus ont été simplement densifiés (1,16 pour la densité), révélant une tenue mécanique en flexion particulièrement faible : 0,6 MPa pour la résistance en flexion, 0,1 GPa pour le module élastique et 31° pour la dureté de surface Shore D. À l'inverse, pour une température de 200 °C, des matériaux bien plus résistants ont pu être fabriqués : jusqu'à 1,28 pour la densité, 7,5 MPa pour la résistance en flexion, 2,3 GPa pour le module élastique et 72° pour la dureté de surface Shore D. Ainsi, pour une température conduisant à la transition vitreuse des protéines (200 °C), le mouillage des fibres par la résine protéique, qui se trouve alors dans un état caoutchoutique visqueux, est effectif, leur rôle de liant garantissant alors l'obtention de matériaux nettement plus résistants mécaniquement.

Si la température de la presse doit donc dépasser une valeur minimale lors de la mise en forme, elle ne devra pas, à l'inverse, aller au-delà d'une certaine limite. Cette précaution a pour objectif de limiter tout phénomène de dégradation (décomposition thermique) des constituants organiques du tourteau lors du moulage, les protéines en particulier. Si une telle dégradation devait se produire, l'aptitude de liant naturel des protéines serait nécessairement altérée, et les gaz de combustion alors générés à l'intérieur du matériau pourraient également contribuer à l'apparition de défauts supplémentaires. La décomposition thermique des tourteaux a été étudiée par ATG, d'abord pour le cas d'un tourteau de tournesol issu de la plante entière (A6). Puis, les résultats obtenus ont été confirmés pour le cas de deux autres tourteaux, l'un issu du jatropha (A10) et l'autre de la coriandre (A19).

Pour le tourteau de tournesol plante entière, les résultats de son analyse thermogravimétrique sous air apparaissent en **Figure 39**. Une première perte de masse est observée à 100 °C, correspondant à l'évaporation de l'eau. La teneur en humidité du tourteau de tournesol analysé étant d'environ 7%, la perte de masse observée sur la courbe ATG correspond bien approximativement au même pourcentage massique. Puis, la décomposition thermique des composés organiques se produit essentiellement en une étape (entre 225 et 375 °C), conduisant à la perte de plus de 55% de la masse sèche de l'échantillon. Un autre phénomène de décomposition thermique est également observé, autour de 425 °C, même s'il est à associer à une perte de masse nettement inférieure, ne dépassant pas 10% de la masse sèche de l'échantillon.

Considérant les données relatives à la décomposition thermique des fibres végétales mentionnées dans la littérature, les hémicelluloses seraient les premières à se dégrader, autour de 270 à 330 °C, puis la cellulose, autour de 320 à 380 °C, et enfin les lignines, aux environs de 420 °C (Schaffer, 1973 ; Beaumont, 1981 ; Lalou, 1995 ; Hatakeyama et Hatakeyama, 2004). La décomposition thermique des protéines de tournesol, déjà étudiée à partir d'un tourteau industriel, a également été observée, au-dessus de 250 °C et en-dessous de 350 °C (Geneau, 2006). Enfin, le point de fumée de l'huile de tournesol raffinée, associé au début de sa décomposition thermique, est de 232 °C.

Par conséquent, il est raisonnable de penser que la principale étape de la décomposition thermique des constituants du tourteau (225-375 °C) pourrait être associée aux dégradations simultanées des lipides, des composés hydrosolubles, des protéines, des hémicelluloses et de la cellulose. La seconde, située à environ 425 °C, pourrait alors correspondre à la décomposition thermique des lignines uniquement. Néanmoins, l'analyse ATG du tourteau étant effectuée sous air, il n'est pas non plus à exclure que cette deuxième étape corresponde également à l'oxydation de certains des produits de dégradation issus de l'étape précédente (A19).

En fin de mesure, la masse résiduelle de l'échantillon représente dans ce cas environ 23% de la prise d'essai. Cela signifie que les composés qui ne se sont pas dégradés au cours de l'analyse ne sont pas uniquement les matières minérales (6% de la masse sèche de ce tourteau) comme on pouvait s'y attendre au départ, mais qu'ils peuvent également correspondre à certaines molécules organiques présentes initialement dans l'échantillon analysé. Ceci est vraisemblablement la conséquence d'un gradient de montée en température trop élevé (10 °C/min), ce qui aurait donné lieu à une décomposition thermique seulement partielle des composés organiques à l'intérieur de l'échantillon analysé.

Il n'en demeure pas moins que la décomposition thermique des constituants organiques du tourteau de tournesol se produit seulement à partir de 225 °C environ (A6). Il en fut de même pour les tourteaux de jatropha (A10) et de coriandre (A19). Une température maximale de moulage de 200 °C environ semble donc parfaitement appropriée. Elle a été systématiquement choisie pour l'obtention des panneaux par thermopressage de ces tourteaux.

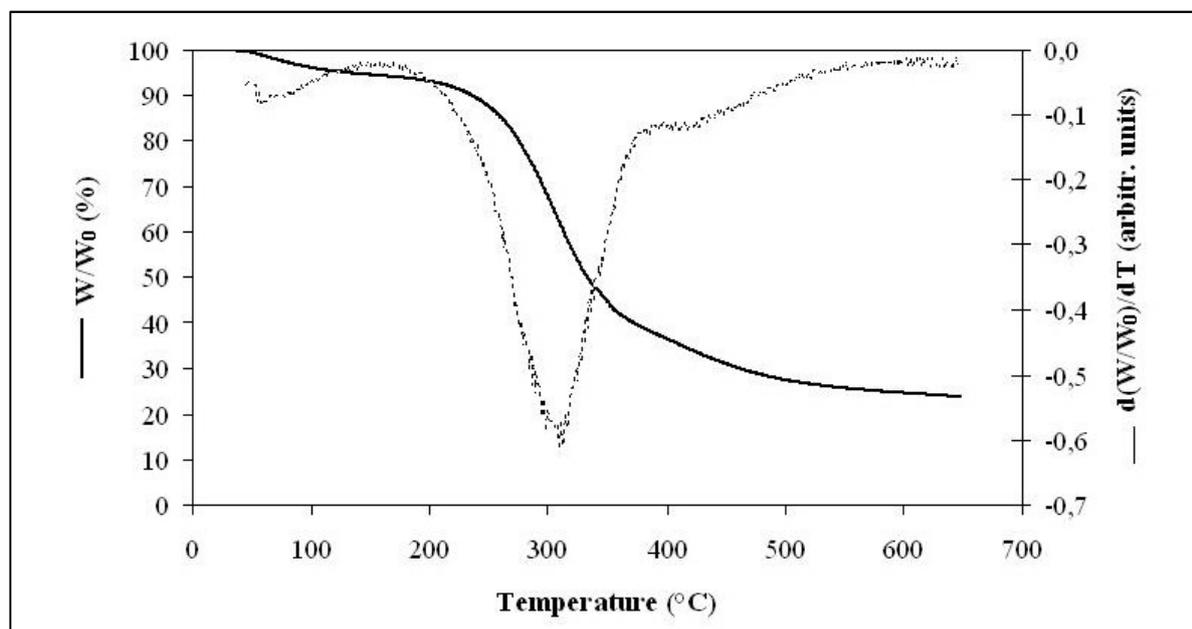


Figure 39

Courbes ATG et DTG relatives à la décomposition thermique d'un tourteau de tournesol issu de la plante entière, sous air et à 10 °C/min (A6).

b. Effet des conditions du thermopressage sur les propriétés des panneaux :

Lors de la fabrication de panneaux de fibres et/ou de particules par thermopressage, mes travaux ont notamment consisté à étudier l'influence des conditions du moulage sur les propriétés mécaniques et de durabilité des matériaux obtenus. L'influence des quatre paramètres du pressage à chaud que sont la **température du moule** (en °C), la **pression appliquée** (en MPa), le **temps de pressage** (en s) et la **quantité de matière** (en mg/cm²) a ainsi été étudiée.

■ Tout d'abord, un premier travail mené à partir d'un tourteau de tournesol issu de la plante entière et contenant 17,6% de lipides résiduels au moulage a consisté en l'étude de l'influence des trois paramètres suivants : la **pression appliquée**, le **temps de pressage** et la **quantité de tourteau** (AC12). Pour ce faire, un plan d'expériences a été réalisé, construit à partir d'une matrice de Doehlert (matrice expérimentale à trois variables, la première disposant de trois niveaux, la seconde de cinq niveaux et la troisième de sept niveaux). Son domaine expérimental est rapporté dans le **Tableau 15**, le **Tableau 16** rassemblant les différentes conditions testées lors du thermopressage. Pour sa part, la température du

moule a été fixée pour l'ensemble de cette étude à 200 °C, cette température ayant déjà été identifiée comme largement suffisante afin de garantir la transition vitreuse des protéines lors du moulage (**TD**). L'épaisseur, la densité et les propriétés en flexion des seize panneaux ainsi obtenus sont reportées dans le **Tableau 17**. Les coefficients des modèles polynomiaux du second degré reliant les différentes réponses expérimentales aux trois variables indépendantes codées ont ensuite été calculés grâce au logiciel NEMROD par la méthode des moindres carrés (**Tableau 18**).

Tableau 15

Domaine expérimental pour l'étude de l'influence de la pression appliquée, du temps de pressage et de la quantité de tourteau de tournesol sur les propriétés des panneaux de fibres obtenus par thermopressage (**AC12**).

Variable	Centre d'intérêt (U_i^0)	Pas de variation (ΔU_i)	Domaine
U_1 Pression appliquée (MPa)	36,8	12,2	24,5 - 49,0
U_2 Temps de pressage (s)	180	120	60 - 300
U_3 Quantité de tourteau (mg/cm ²)	900	300	600 - 1200

Tableau 16

Conditions opératoires utilisées au thermopressage pour la fabrication des seize panneaux de fibres (matrice expérimentale de Doehlert) (200 °C pour la température du moule) (**AC12**).

Essai	X_1	Pression appliquée (MPa)	X_2	Temps de pressage (s)	X_3	Quantité de tourteau (mg/cm ²)
1	1,000	49,0	0,000	180	0,000	900
2	-1,000	24,5	0,000	180	0,000	900
3	0,500	42,9	0,866	284	0,000	900
4	-0,500	30,6	-0,866	76	0,000	900
5	0,500	42,9	-0,866	76	0,000	900
6	-0,500	30,6	0,866	284	0,000	900
7	0,500	42,9	0,289	215	0,816	1145
8	-0,500	30,6	-0,289	145	-0,816	655
9	0,500	42,9	-0,289	145	-0,816	655
10	0,000	36,8	0,577	249	-0,816	655
11	-0,500	30,6	0,289	215	0,816	1145
12	0,000	36,8	-0,577	111	0,816	1145
13	0,000	36,8	0,000	180	0,000	900
14	0,000	36,8	0,000	180	0,000	900
15	0,000	36,8	0,000	180	0,000	900
16	0,000	36,8	0,000	180	0,000	900

X_1 , variable codée pour la pression appliquée ; X_2 , variable codée pour le temps de pressage ; X_3 , variable codée pour la quantité de tourteau.

Tableau 17

Épaisseur, densité et propriétés en flexion des seize panneaux de fibres obtenus par thermopressage (AC12).

Essai	t (mm)	d	F (N)	σ_f (MPa)	E_f (MPa)
1	7,64 ± 0,56	1,16 ± 0,02	87,8 ± 1,3	7,5 ± 0,1	1006 ± 6
2	7,55 ± 0,40	1,15 ± 0,02	107,6 ± 1,6	9,4 ± 0,1	1261 ± 17
3	7,11 ± 0,40	1,22 ± 0,02	93,6 ± 4,2	9,3 ± 0,4	1494 ± 74
4	8,30 ± 0,42	1,08 ± 0,04	46,9 ± 13,2	3,4 ± 1,0	370 ± 140
5	8,48 ± 0,48	1,05 ± 0,04	49,8 ± 16,6	3,5 ± 1,2	378 ± 61
6	7,30 ± 0,38	1,18 ± 0,01	102,6 ± 6,3	9,6 ± 0,6	1294 ± 53
7	9,60 ± 0,57	1,14 ± 0,02	109,3 ± 8,6	5,9 ± 0,5	644 ± 48
8	5,95 ± 0,43	1,13 ± 0,02	33,9 ± 8,4	4,8 ± 1,2	464 ± 120
9	5,66 ± 0,44	1,15 ± 0,03	34,9 ± 4,0	5,4 ± 0,6	783 ± 209
10	5,26 ± 0,44	1,21 ± 0,01	40,5 ± 4,7	7,3 ± 0,9	1437 ± 77
11	9,55 ± 0,39	1,11 ± 0,03	73,1 ± 14,0	4,0 ± 0,8	347 ± 137
12	10,36 ± 0,43	1,04 ± 0,02	40,4 ± 5,8	1,9 ± 0,3	166 ± 24
13	7,56 ± 0,36	1,16 ± 0,01	85,1 ± 12,1	7,5 ± 1,1	1014 ± 125
14	7,58 ± 0,27	1,15 ± 0,02	86,2 ± 2,6	7,5 ± 0,2	1024 ± 82
15	7,22 ± 0,52	1,18 ± 0,01	81,5 ± 7,9	7,8 ± 0,8	1234 ± 22
16	7,29 ± 0,46	1,18 ± 0,01	81,3 ± 6,4	7,6 ± 0,6	1221 ± 96

t, épaisseur ; *d*, densité ; *F*, force de rupture (pour une distance entre les appuis de 100 mm et une largeur de l'éprouvette de 30 mm) ; σ_f , résistance à la rupture en flexion (ou résistance en flexion) ; E_f , module élastique (ou module d'élasticité en flexion).

L'analyse des résultats obtenus montre clairement que la densité des panneaux de fibres, préalablement équilibrés en enceinte climatique, est influencée par les conditions utilisées lors du thermopressage, celle-ci augmentant avec une augmentation de la pression appliquée et du temps de pressage ou avec une diminution de la quantité de tourteau. Pour le modèle polynomial associé, ceci est illustré par les valeurs positives des coefficients a_1 et surtout a_2 , et par la valeur négative du coefficient a_3 , respectivement (**Tableau 18**). Par conséquent, une augmentation de la pression appliquée et surtout du temps de pressage conduit logiquement à des panneaux de fibres de plus forte densité. À l'opposé, une augmentation de la quantité de tourteau se traduit par une moindre densification des panneaux. De la même manière, les propriétés en flexion des panneaux de fibres sont elles aussi clairement influencées par les conditions du thermopressage. Et, si une augmentation de la pression appliquée et surtout du temps de pressage permet l'obtention de panneaux plus résistants mécaniquement, une augmentation de la quantité de tourteau se traduit par l'effet inverse. Signalons également ici qu'une corrélation claire a été établie entre la densité des panneaux de fibres et leurs propriétés en flexion. En effet, plus la densité du panneau est élevée, meilleurs sont ses propriétés mécaniques (**Tableau 17**). C'est ainsi que le panneau le moins dense (1039 kg/m³), issu de l'essai n° 12, est le plus fragile de l'étude (1,9 MPa pour la résistance en flexion et seulement 0,2 GPa pour le module élastique). À l'opposé, le panneau le plus dense (1221 kg/m³), issu de l'essai n° 3, est parmi les plus résistants mécaniquement (9,3 MPa et 1,5 GPa, respectivement).

Tableau 18

Coefficients du modèle polynomial du second degré pour chacune des caractéristiques étudiées des panneaux de fibres, et coefficient de corrélation (R^2) associé (**AC12**).

Coefficient	t (mm)	d	σ_f (MPa)	E_f (MPa)
a ₀	7,41	1,17	7,60	1123,2
a ₁	-0,01	0,01	-0,19	39,1
a ₂	-0,70	0,08	3,36	606,8
a ₃	2,58	-0,04	-1,17	-312,2
a ₁₂	-0,22	0,04	-0,24	110,8
a ₁₃	0,29	-0,01	0,86	-52,1
a ₂₃	-0,08	0,00	-0,33	-460,0
a ₁₁	0,18	-0,01	0,88	10,4
a ₂₂	0,45	-0,04	-1,84	-322,5
a ₃₃	0,32	-0,04	-3,83	-647,0
R^2	1,00	0,97	0,96	0,94

t, épaisseur ; d, densité ; σ_f , résistance à la rupture en flexion (ou résistance en flexion) ; E_f , module élastique (ou module d'élasticité en flexion).

■ Une deuxième étude, menée cette fois-ci à partir d'un tourteau de tournesol préalablement déshuilé au cyclohexane, a permis de confirmer les effets de la **pression appliquée** et du **temps de pressage** déjà mis en évidence lors de l'étude précédente (**A13**). En outre, elle fut également l'occasion d'étudier de façon exhaustive l'effet de la **température du moule** sur les propriétés des panneaux de fibres obtenus. Là encore, cette deuxième étude a été effectuée sous la forme d'un plan d'expériences, toujours construit à partir d'une matrice de Doehlert dans le domaine expérimental rapporté dans le **Tableau 19**. Le **Tableau 20** rassemble l'ensemble des conditions opératoires mises en œuvre. Pour cette étude, la quantité de tourteau déshuilé utilisée pour chaque condition testée a quant à elle été volontairement choisie à une valeur basse de l'étude précédente (667 mg/cm²), permettant l'obtention de panneaux d'une épaisseur toujours comprise entre 5 et 6 mm, plus favorable pour ses propriétés en flexion (**AC12**). Quatorze panneaux de fibres ont ainsi été fabriqués par thermopressage puis testés. Leurs propriétés sont mentionnées dans le **Tableau 21**, et le **Tableau 22** présente les valeurs obtenues grâce au logiciel NEMROD pour les coefficients des modèles polynomiaux du second degré reliant les différentes réponses expérimentales aux trois variables codées.

Tableau 19

Domaine expérimental pour l'étude de l'influence de la pression appliquée, du temps de pressage et de la température du moule sur les propriétés des panneaux de fibres obtenus par thermopressage du tourteau de tournesol déshuilé (**A13**).

Variable	Centre d'intérêt (U_i^0)	Pas de variation (ΔU_i)	Domaine
U ₁ Pression appliquée (MPa)	36,8	12,2	24,5 - 49,0
U ₂ Temps de pressage (s)	180	120	60 - 300
U ₃ Température du moule (°C)	180	25	155 - 205

Tableau 20

Conditions opératoires utilisées au thermopressage pour la fabrication des quatorze panneaux de fibres (matrice expérimentale de Doehlert) (A13).

Essai	X_1	Pression appliquée (MPa)	X_2	Temps de pressage (s)	X_3	Température du moule (°C)
1	1,000	49,0	0,000	180	0,000	180
2	-1,000	24,5	0,000	180	0,000	180
3	0,500	42,9	0,866	284	0,000	180
4	-0,500	30,6	-0,866	76	0,000	180
5	0,500	42,9	-0,866	76	0,000	180
6	-0,500	30,6	0,866	284	0,000	180
7	0,500	42,9	0,289	215	0,816	200
8	-0,500	30,6	-0,289	145	-0,816	160
9	0,500	42,9	-0,289	145	-0,816	160
10	0,000	36,8	0,577	249	-0,816	160
11	-0,500	30,6	0,289	215	0,816	200
12	0,000	36,8	-0,577	111	0,816	200
13	0,000	36,8	0,000	180	0,000	180
14	0,000	36,8	0,000	180	0,000	180

X_1 , variable codée pour la pression appliquée ; X_2 , variable codée pour le temps de pressage ; X_3 , variable codée pour la température du moule.

Tableau 21

Épaisseur, densité, propriétés mécaniques, gonflement en épaisseur et absorption d'eau des quatorze panneaux de fibres obtenus par thermopressage (A13).

N° du panneau	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14
Propriétés mécaniques en flexion (norme française NF EN 310)														
H _{FB} (%)	7,71±0,11	7,44±0,06	7,06±0,04	7,46±0,03	7,25±0,01	6,96±0,00	6,94±0,05	8,00±0,02	7,92±0,09	7,37±0,10	6,66±0,01	6,84±0,07	6,96±0,04	6,98±0,12
t (mm)	5,18±0,28	5,63±0,21	5,22±0,22	5,71±0,24	5,41±0,20	5,27±0,21	4,98±0,20	5,80±0,25	5,54±0,24	5,49±0,25	5,12±0,23	5,24±0,12	5,32±0,19	5,30±0,26
d (kg/m ³)	1299±33	1200±38	1287±50	1182±37	1247±34	1280±43	1324±17	1162±39	1215±44	1234±28	1299±40	1280±12	1257±20	1275±31
E (mJ)	210±8	174±16	201±15	160±24	193±14	207±14	183±13	132±17	143±11	172±12	164±20	181±21	184±9	171±12
F (N)	136±3	114±7	134±12	104±8	118±8	142±9	137±8	82±7	92±7	103±7	134±5	131±10	112±2	122±4
σ _f (MPa)	25,4±0,6	18,0±2,1	24,6±2,2	15,9±1,1	20,1±1,4	25,6±1,6	27,7±3,1	12,2±1,1	15,0±1,0	17,0±1,2	25,5±0,9	23,8±1,9	19,8±0,4	21,7±0,7
E _f (MPa)	4505±452	3177±151	4220±323	2717±75	3316±284	4262±209	5244±461	2183±226	2673±270	2911±121	4978±248	4212±312	3258±283	3719±258
Résistance au choc Charpy (sur éprouvettes non entaillées) (norme française NF EN ISO 179)														
W (mJ)	147±11	147±10	164±10	164±12	152±16	169±17	146±12	158±14	145±17	166±15	153±10	172±10	168±11	161±18
K (kJ/m ²)	2,84±0,21	2,61±0,17	3,15±0,19	2,87±0,22	2,81±0,30	3,21±0,33	2,94±0,24	2,73±0,25	2,62±0,31	3,03±0,26	2,98±0,19	3,28±0,38	3,15±0,21	3,03±0,17
Dureté de surface (norme française NF EN ISO 868)														
Shore D (°)	73,7±1,6	71,4±2,8	77,1±2,1	71,3±3,2	72,9±3,3	76,2±2,6	79,0±1,7	69,6±2,7	70,6±3,1	72,0±2,4	77,8±1,7	76,4±2,4	74,2±3,5	74,9±2,6
Résistance à l'eau (après immersion dans l'eau pendant 24 h) (norme française NF EN 317)														
TS (%)	138±15	180±7	130±8	202±17	188±12	129±9	72±6	235±15	232±16	228±7	61±5	100±7	147±7	142±14
WA (%)	96±10	146±17	98±11	208±25	151±16	89±9	52±5	260±15	238±15	213±15	43±4	69±6	109±9	100±8

H_{FB}, teneur en humidité du panneau de fibres après équilibrage en enceinte climatique (60% d'humidité relative, 25 °C) pendant trois semaines ; t, épaisseur ; d, densité ; E, énergie de rupture ; F, force de rupture (pour une distance entre les appuis de 100 mm et une largeur de l'éprouvette de 30 mm) ; σ_f, résistance à la rupture en flexion (ou résistance en flexion) ; E_f, module élastique (ou module d'élasticité en flexion) ; W, énergie absorbée (pour une distance entre les appuis de 25 mm et une largeur de l'éprouvette de 10 mm) ; K, résilience transversale ; TS, gonflement en épaisseur après 24 h d'immersion dans l'eau ; WA, absorption d'eau après 24 h d'immersion dans l'eau.

Tableau 22

Coefficients du modèle polynomial du second degré pour chacune des caractéristiques étudiées des panneaux de fibres, et coefficient de corrélation (R^2) associé (A13).

Coefficient	a_0	a_1	a_2	a_3	a_{12}	a_{13}	a_{23}	a_{11}	a_{22}	a_{33}	R^2
Propriétés mécaniques en flexion (norme française NF EN 310)											
d (kg/m ³)	1265,9	43,7	40,9	59,5	-33,4	-5,3	-10,1	-16,3	-17,1	-11,9	0,99
E (mJ)	177,4	16,2	15,8	16,4	-22,6	12,3	-30,6	14,8	12,1	-29,0	0,99
F (N)	116,9	7,9	14,6	25,6	-12,7	0,6	-8,3	8,2	7,1	-9,5	0,98
σ_f (MPa)	20,7	2,9	3,9	6,7	-3,0	0,7	-0,6	1,0	0,8	-1,3	0,98
E_f (MPa)	3488,7	496,0	729,7	1361,0	-370,0	-6,7	194,2	352,1	69,3	211,7	0,98
Résistance au choc Charpy (sur éprouvettes non entaillées) (norme française NF EN ISO 179)											
K (kJ/m ²)	3,1	0,0	0,2	0,2	0,0	0,0	-0,3	-0,4	0,0	-0,2	0,89
Dureté de surface (norme française NF EN ISO 868)											
Shore D (°)	74,5	1,2	2,5	4,3	-0,4	0,2	0,9	-2,0	0,4	-0,1	1,00
Résistance à l'eau (après immersion dans l'eau pendant 24 h) (norme française NF EN 317)											
TS (%)	144,8	-11,2	-34,2	-94,6	8,7	5,6	-18,3	14,1	18,7	6,4	0,99
WA (%)	104,6	-20,3	-45,5	-111,6	38,0	5,4	17,7	16,3	37,3	48,4	0,99

d , densité ; E , énergie de rupture ; F , force de rupture (pour une distance entre les appuis de 100 mm et une largeur de l'éprouvette de 30 mm) ; σ_f , résistance à la rupture en flexion (ou résistance en flexion) ; E_f , module élastique (ou module d'élasticité en flexion) ; K , résilience transversale ; TS , gonflement en épaisseur après 24 h d'immersion dans l'eau ; WA , absorption d'eau après 24 h d'immersion dans l'eau.

Comme pour l'étude précédente, les conditions du thermopressage ont une forte influence sur la densité des panneaux de fibres obtenus. Celle-ci est d'autant plus élevée que les conditions mises en œuvre au thermopressage sont contraignantes (**Tableau 21**), comme illustré par les valeurs positives des coefficients a_1 , a_2 et a_3 du modèle polynomial associé (**Tableau 22**). Dans le même temps, bien qu'étant négatifs, les coefficients a_{ij} du modèle présentent tous des valeurs absolues bien plus faibles que les coefficients a_i . Par conséquent, une augmentation de la pression appliquée et/ou du temps de pressage conduit logiquement à des panneaux de fibres de plus forte densité. Mais, c'est bien la **température du moule** qui affecte le plus la densité des panneaux, comme le montre le coefficient a_3 dont la valeur (59,5) est bien supérieure à celle des coefficients a_1 et a_2 (43,7 et 40,9, respectivement). Une telle évolution explique d'ailleurs la moindre teneur en humidité des panneaux de fibres obtenus pour les valeurs les plus élevées de la pression appliquée, du temps de pressage et surtout de la température du moule (**Tableau 21**). En effet, pendant leur conditionnement en enceinte climatique, l'absorption d'eau par les panneaux de fibres est défavorisée pour les panneaux les plus denses, s'expliquant par leur plus faible porosité interne.

Les propriétés en flexion des panneaux de fibres sont également clairement influencées par les conditions du thermopressage. Et, là encore, c'est la température du moule qui affecte le plus l'énergie de rupture et surtout la charge de rupture, la résistance en flexion et le module élastique (**Tableau 21** et **Tableau 22**). De plus, plus la densité des panneaux est élevée, plus leurs propriétés en flexion le sont également. C'est ainsi que le panneau le plus résistant mécaniquement (27,7 MPa pour la résistance en flexion et 5,2 GPa pour le module élastique), obtenu pour les conditions opératoires de l'essai n° 7, est également le panneau le plus dense (1324 kg/m³). Le logiciel d'analyse NEMROD a permis le tracé des courbes d'isoreponse pour la résistance en flexion (**Figure 40**) ainsi que pour le module élastique (**Figure 41**). Et, celles-ci illustrent parfaitement l'augmentation des propriétés en flexion des panneaux de fibres avec les conditions du thermopressage, tout particulièrement la température du moule. De même, la dureté de surface Shore D est légèrement augmentée avec l'augmentation des conditions du thermopressage (**Tableau 21** et **Tableau 22**). Inversement, la résistance au choc Charpy reste faible, quelles que soient les conditions utilisées lors du moulage. Une telle fragilité s'explique par la grande rigidité des panneaux fabriqués (**Tableau 21** et **Tableau 22**).

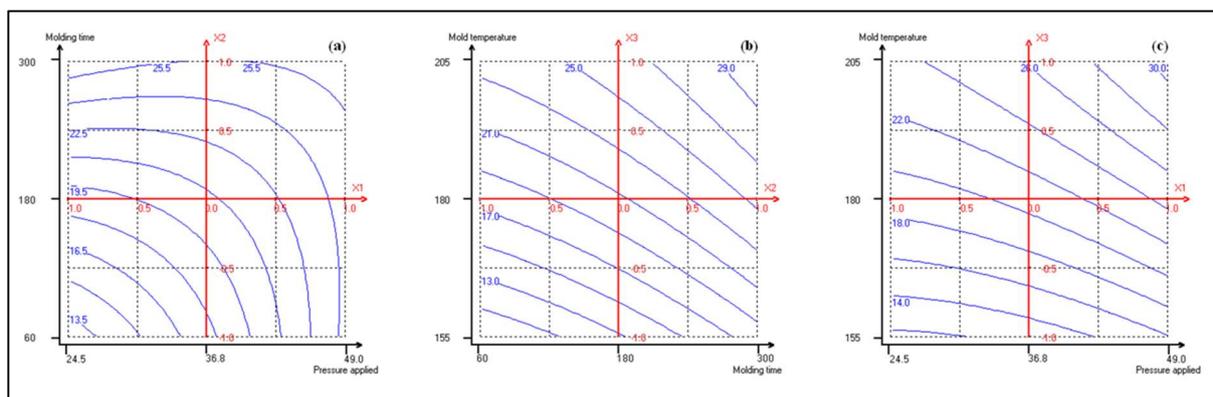


Figure 40

Courbes d'isoreponse pour la résistance en flexion (σ_f) des panneaux de fibres moulés à une température de 180 °C (a), à une pression de 36,8 MPa (b) et pour un temps de pressage de 180 s (c) (**A13**).

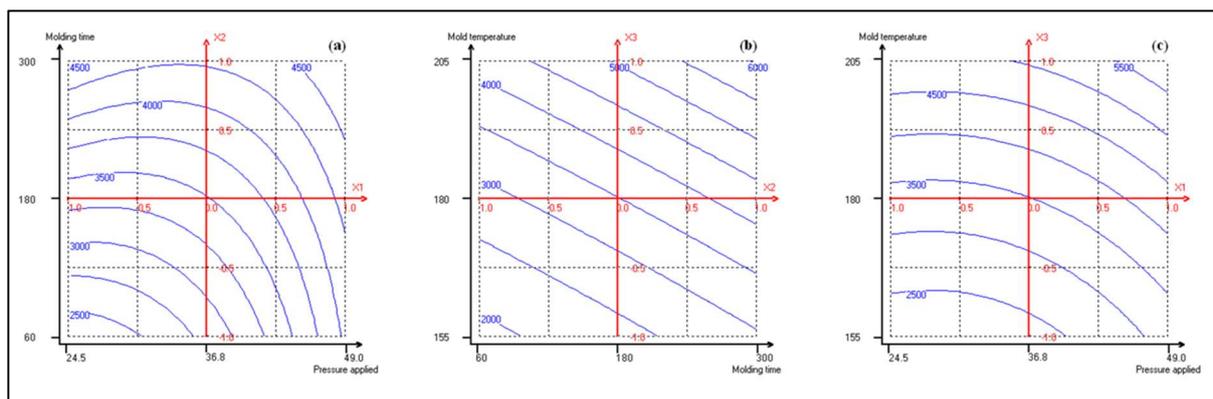


Figure 41

Courbes d'isoreponse pour le module élastique (E_f) des panneaux de fibres moulés à une température de 180 °C (a), à une pression de 36,8 MPa (b) et pour un temps de pressage de 180 s (c) (A13).

Avant thermopressage, et comme évoqué précédemment, le tourteau déshuilé a d'abord été séché dans une étuve ventilée (60 °C, 12 h). Avec une teneur en humidité de seulement 2,8% au moulage, ceci permet de minimiser la génération de vapeur au cours du thermopressage, réduisant ainsi le risque de voir apparaître des défauts comme des cloques à l'intérieur des panneaux de fibres. Sur la base des travaux de Rouilly et al. (2001), avec une humidité de seulement 2,8%, la température de transition vitreuse des protéines contenues dans le tourteau déshuilé a été estimée par extrapolation à 145 °C environ. Pour cette étude, la température du moule a été choisie comprise entre 155 et 205 °C (Tableau 19), la plus faible température testée (155 °C) étant donc légèrement supérieure à la température de transition vitreuse des protéines. À l'opposé, aucune température supérieure à 205 °C n'a été testée. La décomposition thermique de la plupart des composés organiques du tourteau se produisant dans une plage de température située entre 225 et 375 °C (Figure 39), il est raisonnable de penser qu'aucun phénomène de dégradation ne se produira lors du thermopressage, y compris pour la température du moule la plus élevée.

Revenons maintenant plus en détail à l'effet réel de la température du moule, la plus influente des trois variables opératoires testées, sur les propriétés des panneaux de fibres obtenus. La température du moule étant toujours supérieure à la température de transition vitreuse des protéines, cette transition de phase se produit donc toujours au cours du moulage et les protéines sont systématiquement dans un état caoutchoutique visqueux lorsque la pression est appliquée. Néanmoins, la matrice protéique devenant de plus en plus fluide avec l'augmentation de la température, le mouillage des fibres est alors progressivement amélioré. C'est la raison la plus vraisemblable pour laquelle les propriétés mécaniques des panneaux de fibres augmentent en même temps que la température du moule, une température de 200 °C permettant logiquement de produire les panneaux de fibres les plus résistants de l'étude (Tableau 21).

Après immersion dans l'eau pendant 24 h, le gonflement en épaisseur (TS) et l'absorption d'eau (WA) par les panneaux de fibres sont également apparus comme fortement dépendants des conditions du thermopressage, diminuant avec leurs augmentations (Tableau 21). Mais, comme déjà observé pour la densité et les propriétés mécaniques, c'est bien la température du moule qui présente l'effet le plus significatif (Tableau 22), les panneaux produits à 200 °C étant les moins sensibles à l'eau. À une telle température, les grandeurs TS et WA sont seulement de 61-100% et 43-69%, respectivement (Tableau 21). En outre, comme précédemment observé pour les propriétés en flexion, le gonflement en épaisseur et l'absorption d'eau sont parfaitement corrélables à la densité du panneau. En effet, une augmentation de la densité du panneau entraîne une réduction de sa porosité interne, ce qui contribue à le rendre moins sensible à l'eau. Les grandeurs TS et WA tendent alors à diminuer.

L'effet de la température du moule sur les propriétés thermo-mécaniques des panneaux de fibres a également été évalué par une analyse DMTA, réalisée sur les panneaux issus des essais n° 8, 14 et 7 (**Figure 42**). Rappelons ici que ces panneaux avaient été moulés à 160 °C, 180 °C et 200 °C, respectivement. Et, plus la température du moule est élevée, plus le module de conservation (E') l'est également. Ceci confirme que la cohésion interne des panneaux de fibres augmente avec la température du moule, comme déjà observé pour les propriétés en flexion. En outre, aucune transition significative ne se produit entre 0 °C et 118 °C pour le panneau n° 8, jusqu'à 129 °C pour le panneau n° 14 et 140 °C pour le panneau n° 7. Ainsi, aucun changement de phase n'a lieu à l'intérieur des panneaux dans ces gammes de température, les protéines continuant donc d'assurer la cohésion de l'agrocomposé dans ces trois cas de figure. Puis, une diminution rapide du module de conservation (E') est observée, un pic apparaissant simultanément le long de la courbe du module de perte (E'') (**Figure 42**). Cette transition a été associée à la transition vitreuse de la protéine, et la température correspondante a été estimée à environ 120 °C pour le panneau n° 8, 131 °C pour le panneau n° 14 et 142 °C pour le panneau n° 7. Ces différences peuvent être expliquées par la diminution de la teneur en humidité des panneaux de fibres équilibrés en enceinte climatique avec l'augmentation de la température de moulage (**Tableau 21**), illustrant à nouveau l'effet plastifiant de l'eau pour les protéines que Rouilly et al. (2001) avaient mis en évidence. Puis, pour des températures plus élevées, les modules de conservation deviennent rapidement négligeables, la cohésion du panneau de fibre n'étant plus assurée par la résine protéique au-delà de sa température de transition vitreuse.

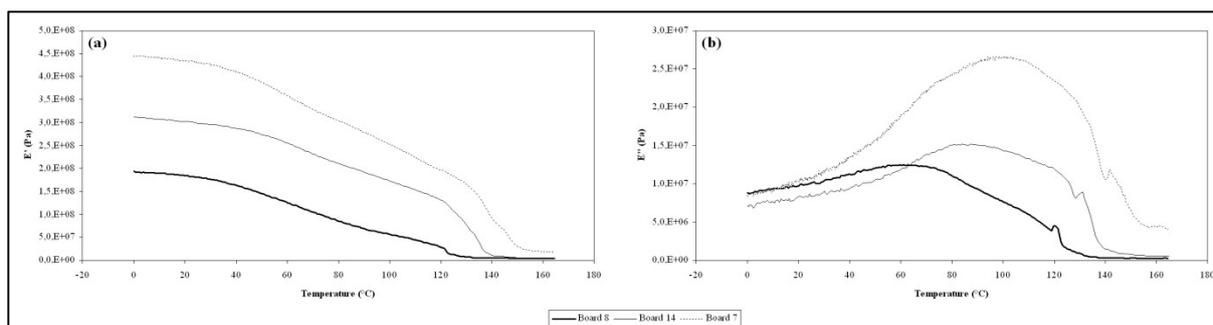


Figure 42

Courbes obtenues par analyse DMTA des panneaux de fibres issus des essais n° 8, 14 et 7 : module de conservation (E') (a) et module de perte (E'') (b) (A13).

Pour cette étude, les modèles polynomiaux ont naturellement été utilisés pour déterminer les réponses optimales pour chaque caractéristique analysée, à savoir les propriétés en flexion du panneau, sa résistance au choc Charpy, sa dureté de surface Shore D, son gonflement en épaisseur et son absorption d'eau (A13). Les conditions appropriées du thermopressage ont été identifiées par la même occasion. Et, pour chaque caractéristique, la réponse optimale est toujours associée à une valeur codée X3 égale à 1, correspondant à une température du moule de 204 °C. Ce résultat confirme une nouvelle fois que la température du moule est bien la condition opératoire affectant le plus les propriétés des panneaux de fibres. D'autre part, l'analyse statistique a également révélée que les valeurs optimales de la résistance en flexion (31,9 MPa) et du module élastique (6,5 GPa), calculées à partir des modèles polynomiaux associés, sont toutes les deux obtenues à partir des mêmes conditions opératoires, à savoir 49,0 MPa pour la pression appliquée, 300 s pour le temps de pressage et 204 °C pour la température du moule. Associées à une consommation énergétique de 122,6 kW.h/m² de panneau de fibres, ces conditions opératoires ont logiquement été considérées comme les conditions optimales du thermopressage pour cette étude (A13).

En conclusion, pour le cas des tourteaux de tournesol issus du bioraffinage de la plante entière en extrudeur bi-vis, si une augmentation de la quantité de matière thermopressée, se traduisant par l'obtention de panneaux de plus forte épaisseur, s'accompagne d'une diminution de la densité du panneau et de ses propriétés en flexion, les trois autres paramètres opératoires étudiés (température du moule, pression appliquée et temps de pressage) ont à l'inverse un effet positif sur ces différentes caractéristiques (A13, AC12). Aussi, il paraît parfaitement envisageable d'ajuster la densité des matériaux produits et, par voie de conséquence, leurs propriétés mécaniques et de durabilité par utilisation de conditions opératoires adaptées lors du moulage. À titre d'exemple, pour le cas du tourteau de tournesol préalablement déshuilé, une large gamme de densités a été obtenue (entre 1122 et 1324 kg/m³), représentant un large éventail de propriétés d'usage (A13). Précisons également ici que trois autres études, conduites à partir de tourteaux gras de jatropha (A12) et de coriandre (A19) ou à partir d'un tourteau de coriandre préalablement déshuilé (A25), ont elles aussi montré l'effet positif d'une augmentation de la température du moule et, dans une moindre mesure, de la pression appliquée et du temps de pressage sur les propriétés des panneaux de particules obtenus.

c. Le thermopressage, une opportunité pour l'expression de l'huile résiduelle :

En raison de la pression appliquée à la matière solide lors du thermopressage, la mise en forme des tourteaux gras en panneaux de fibres ou en panneaux de particules se traduit systématiquement par l'écoulement d'une partie de l'huile résiduelle qu'ils contiennent à travers des événements, situés sur les parois latérales d'un moule spécialement conçu à cet effet. Un tel phénomène a ainsi été observé à partir de plusieurs tourteaux de tournesol issus du bioraffinage de la plante entière (A6, A13, AC12, B1, TD) mais également à partir de tourteaux gras de jatropha (A12) et de coriandre (A19). Et, pour ces différents tourteaux, il a été observé une augmentation de la quantité d'huile exprimée lors du moulage en même temps que les conditions du thermopressage (température du moule, pression appliquée et temps de pressage) étaient augmentées. Ainsi, une diminution de la teneur résiduelle en huile des panneaux est observée (dans le cas du jatropha par exemple, jusqu'à 2,8% de la masse sèche du panneau au lieu de 13,3% pour le tourteau gras utilisé pour sa mise en forme). Ce qui, par voie de conséquence, se traduit par une augmentation du rendement total en huile exprimée (extrusion bi-vis plus thermopressage) : jusqu'à 95% (A12). Bien que moins élevés, les rendements totaux en huile ont tout de même atteint 79% et 81%, respectivement, pour le tourteau de tournesol issu de la plante entière (A6) et pour le tourteau gras de coriandre (A19).

Les huiles exprimées lors du thermopressage peuvent facilement être collectées. Leur filtration permettra tout d'abord d'éliminer les petites particules solides entraînées par les événements du moule lors de la mise en forme. Puis, un raffinage pourra être effectué lorsque cela sera nécessaire. Néanmoins, pour le cas des huiles a priori comestibles (cas du tournesol et de la coriandre), dans la mesure où elles sont de qualité nettement inférieure à celle des huiles pressées en continu par extrusion bi-vis, s'expliquant par les fortes contraintes thermo-mécaniques subies lors du pressage à chaud, leur utilisation directe pour l'alimentation humaine sera délicate. À l'inverse, des valorisations non alimentaires seront parfaitement envisageables pour l'ensemble de ces huiles. Parmi elles, il est possible de citer :

- Leur utilisation comme **biolubrifiants**.
- Leur transformation en **biodiesel** par transestérification des triglycérides.
- Pour l'huile de coriandre uniquement, son utilisation en **lipochimie** en raison de sa haute teneur en acide pétrosélinique (73%), permettant ainsi la synthèse d'un grand nombre de nouveaux intermédiaires réactionnels.

d. L'extraction au solvant de l'huile résiduelle des tourteaux avant pressage à chaud, une opportunité pour améliorer les propriétés des panneaux obtenus :

Même si le thermopressage direct des tourteaux permet à la fois l'obtention de matériaux cohésifs et l'expression d'une partie des lipides résiduels, il est raisonnable de penser que cela puisse réduire la résistance mécanique des panneaux ainsi obtenus, s'expliquant par l'apparition de défauts à l'intérieur du matériau lors de l'écoulement de l'huile (canaux d'évacuation). Aussi, une optimisation du processus de thermopressage a consisté en l'utilisation d'un tourteau préalablement déshuilé au solvant.

Cette technique d'extraction au solvant est particulièrement bien maîtrisée, y compris pour des applications à l'échelle industrielle. Dans le cas du tournesol par exemple, les tourteaux gras générés en fin de pressage mécanique des graines en presse mono-vis continue présentent généralement une teneur en huile comprise entre 15 et 25%. Cette huile résiduelle est alors extraite au solvant, le plus souvent l'hexane, de façon à appauvrir le tourteau en huile jusqu'à une teneur comprise entre 0,5 et 1,5% en sortie d'extracteur (Campbell, 1983).

Les extracteurs continus utilisés sont des appareils adaptés à des capacités de traitement élevées, fonctionnant à une température comprise entre 50 et 60 °C. Le tourteau gras s'y déplace à contre-courant sur un tapis et une percolation de l'hexane sur ce lit de particules solides permet alors de l'enrichir progressivement en huile au fur et à mesure de son recyclage (jusqu'à 30 % d'huile dans le « *miscella* », constitué d'un mélange de solvant et d'huile végétale). En fin d'extraction, le tourteau appauvri contient entre 25 et 30% d'hexane qu'il convient d'éliminer pour être ensuite recyclé en tête de procédé (Campbell, 1983). Sa récupération est effectuée par entraînement à la vapeur (80 °C) lors d'une étape de désolvantation, à l'intérieur d'un désolvanteur-toasteur.

De qualité alimentaire, l'hexane présente l'avantage d'être totalement miscible avec l'huile et immiscible avec l'eau. Des rendements d'extraction en huile supérieurs à 95% peuvent ainsi facilement être atteints (Rosenthal et al., 1996). D'autre part, il ne dissout que peu de mucilages (phospholipides), de gommes et de pigments, facilitant le raffinage ultérieur de l'huile extraite. Néanmoins, l'hexane étant très inflammable, des règles de sécurité très strictes sont indispensables à l'intérieur des installations industrielles, un environnement antidéflagrant spécifique étant exigé.

Lors de mes travaux de recherche menés au laboratoire sur un tourteau de tournesol issu du bioraffinage de la plante entière (**A13**) et sur un tourteau gras de coriandre (**A25** ; Uitterhaegen, 2018), le cyclohexane a été préféré à l'hexane, et l'extraction de l'huile résiduelle de ces tourteaux a été pratiquée à l'aide d'un appareil de type Soxhlet, ramenant leurs teneurs en lipides à une valeur bien inférieure à 1% de leur masse sèche au moment du thermopressage.

À l'aide de ces tourteaux déshuilés, des panneaux ont été fabriqués par thermopressage dans des conditions opératoires (masse de tourteau, température du moule, pression appliquée et temps de pressage) parfaitement maîtrisées et préalablement optimisées (**A13**, **A25** ; Uitterhaegen, 2018). Et, leurs propriétés mécaniques (tenue en flexion et dureté de surface) et de résistance à l'eau se sont révélées être nettement supérieures à celles des panneaux obtenus dans les mêmes conditions de moulage à chaud mais à partir de tourteaux pour lesquels l'huile résiduelle n'avait pas été extraite au préalable (**Tableau 23**). Ces résultats confirment le fait que l'expression d'une partie de l'huile résiduelle au thermopressage génère des défauts internes qui contribuent à fragiliser le matériau.

Tableau 23

Influence de la présence ou non de lipides résiduels dans les tourteaux sur les propriétés mécaniques en flexion, la dureté de surface Shore D et la résistance à l'eau des panneaux thermopressés obtenus.

Nature du tourteau	Tourteau de tournesol issu de la plante entière (A13)		Tourteau gras de coriandre (Uitterhaegen, 2018)	
	Non déshuilé	Déshuilé	Non déshuilé	Déshuilé
Conditions du thermopressage				
Température du moule (°C)		204		200
Pression appliquée (MPa)		49,0		36,8
Temps de pressage (s)		300		180
Propriétés mécaniques en flexion (norme française NF EN 310)				
d (kg/m ³)	1154 ± 13	1267 ± 25	1293 ± 7	1295 ± 30
F (N)	43,5 ± 3,0	149,0 ± 9,0	37,2 ± 3,0	197,2 ± 20,9
σ_f (MPa)	10,1 ± 0,7	30,3 ± 2,6	4,7 ± 0,4	26,9 ± 2,8
E_f (MPa)	2163 ± 153	5946 ± 272	1548 ± 61	4773 ± 377
Dureté de surface (norme française NF EN ISO 868)				
Shore D (°)	67,5 ± 3,1	81,5 ± 0,8	64,1 ± 4,4	82,2 ± 1,6
Résistance à l'eau (norme française NF EN 317)				
TS (%)	53,8 ± 4,3	29,8 ± 4,6	76,7 ± 5,2	20,7 ± 1,8
WA (%)	44,6 ± 5,5	23,2 ± 2,3	66,8 ± 4,0	17,7 ± 0,8

d , densité ; F , force de rupture (pour une distance entre les appuis de 100 mm et une largeur de l'éprouvette de 30 mm) ; σ_f , résistance à la rupture en flexion (ou résistance en flexion) ; E_f , module élastique (ou module d'élasticité en flexion) ; TS, gonflement en épaisseur après 24 h d'immersion dans l'eau ; WA, absorption d'eau après 24 h d'immersion dans l'eau.

En conclusion, bien qu'elle ne soit pas neutre en termes de coût pour le procédé mais néanmoins bien maîtrisée à l'échelle industrielle, une étape supplémentaire d'extraction au solvant de l'huile résiduelle des tourteaux avant thermopressage permet l'obtention de panneaux nettement plus résistants, tant mécaniquement qu'à l'eau (**Figure 43**). D'autre part, au regard de la norme française NF EN 312 relative aux exigences requises pour les panneaux de particules à usage commercial, ceux-ci pourraient être mis en œuvre comme des panneaux travaillants utilisés en milieu sec (panneaux de type P4) : sous-couches pour les sols, cloisons intérieures de maisons, meubles, etc. En effet, les recommandations de la norme NF EN 312 concernant les propriétés en flexion (16 MPa pour la résistance en flexion et 2200 MPa pour le module élastique, dans le cas de panneaux ayant une épaisseur comprise entre 4 et 6 mm) sont largement atteintes dans les deux cas. Il en est de même pour la cohésion interne : par exemple 0,68 MPa dans le cas d'un panneau de particules issu d'un tourteau de coriandre déshuilé au lieu de 0,40 MPa minimum selon les recommandations de la norme NF EN 312 (**A25**). Enfin, concernant la résistance à l'eau, la recommandation d'un gonflement en épaisseur ne devant pas dépasser 21% après 24 h d'immersion dans l'eau est satisfaite dans le cas du panneau issu du tourteau déshuilé de coriandre. À l'inverse, elle ne l'est pas tout à fait dans le cas du panneau fabriqué à partir du tourteau déshuilé issu de la plante entière de tournesol (30%). Dans ce cas, un processus supplémentaire de cuisson du panneau ou de traitement de sa surface (de nature chimique ou à l'aide de vapeur) devrait très vraisemblablement améliorer ce paramètre de stabilité dimensionnelle (**TD** ; Halvarsson et al, 2009 ; Okuda et al., 2006 ; Saadaoui et al, 2013 ; **A25** ; Widyorini et al, 2005).



Figure 43

Photographie d'échantillons de panneaux de fibres obtenus par thermopressage dans des conditions opératoires optimisées (204 °C pour la température du moule, 49,0 MPa pour la pression appliquée et 300 s pour le temps de pressage) d'un tourteau de tournesol issu de la plante entière et préalablement déshuilé (A13).

Par ailleurs, lorsque l'on compare ces panneaux à la plupart des panneaux conventionnels (contreplaqués, agglomérés, OSB, MDF, HDF, panneaux de fibres de bois durs, etc.), il n'est pas nécessaire dans notre cas d'ajouter un liant externe tel qu'une résine thermodurcissable (résines UF ou PF, résines époxydes, isocyanates, etc.) pour obtenir un panneau cohésif. En effet, dans les deux cas, c'est bien l'aptitude à l'auto-adhésion des protéines contenues dans les tourteaux qui assure cette cohésion. À l'inverse, comme signalé en 2013 par le FCBA dans une étude bibliographique rendue publique depuis, l'industrie des bois collés est forte utilisatrice de résines UF ou PF, conduisant à l'émission de formaldéhyde par les panneaux au cours de leur utilisation (FCBA, 2013). Or, dans un contexte réglementaire de plus en plus exigeant, la tendance pour les années à venir est à la diminution des émissions de COV, le formaldéhyde en particulier, par les produits de construction. Rappelons ici que le formaldéhyde a été classé par le CIRC comme cancérigène pour l'homme (produit CMR du groupe 1). En effet, en plus de provoquer des allergies ainsi que des irritations oculaires et des voies respiratoires, le formaldéhyde peut provoquer des cancers du nasopharynx. D'autre part, aujourd'hui de 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ dans la plupart des établissements recevant du public (enseignement, accueil d'enfants de moins de six ans, établissements sanitaires et sociaux disposant d'une capacité d'hébergement, établissements sportifs couverts, etc.), la moyenne hebdomadaire de concentration des polluants dans l'air intérieur de ces espaces clos sera réduite à 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à compter du 1^{er} Janvier 2022 (cf. décret n° 2011-1727 du 2 Décembre 2011 relatif aux valeurs-guides pour l'air intérieur pour le formaldéhyde et le benzène). Le risque sanitaire lié à ces émissions serait ainsi réduit voire éliminé grâce à l'utilisation de liants naturels, les liants protéiques en particulier, améliorant par la même occasion le profil environnemental du matériau. Les panneaux développés lors de mes travaux répondent parfaitement à cette exigence. En effet, parce qu'ils sont auto-liés par la matrice protéique naturellement contenue dans les tourteaux, ils ne seront pas émetteurs de formaldéhyde, les rendant donc plus respectueux de

l'environnement et de la santé humaine que les panneaux conventionnels (Tajuddin et al., 2016 ; **A21**). Rappelons également ici qu'ils sont non seulement totalement biosourcés mais aussi biodégradables.

En outre, pour le cas du tournesol, les fibres lignocellulosiques présentes dans le tourteau déshuilé ont révélé une capacité prometteuse de renforcement mécanique, illustrée par une valeur élevée du module élastique (5946 MPa) pour les conditions optimisées du thermopressage (**Tableau 23**). Provenant essentiellement des sous-produits de la culture du tournesol, à savoir les tiges et les capitules, ces fibres ne sont pas actuellement disponibles sur le marché, la récolte du tournesol ne concernant pour le moment que les graines. Ainsi, cette aptitude au renfort mécanique des sous-produits de la culture du tournesol pourrait à terme justifier leur récolte au champ, fournissant ainsi aux agriculteurs un revenu supplémentaire.

En dernier lieu, il convient ici de préciser que les panneaux auto-liés développés au cours de mes travaux de recherche disposent tout de même de densités nettement plus élevées (1250-1300 kg/m³) que les panneaux conventionnels listés ci-dessous :

- De l'ordre de 1 000 kg/m³ pour les panneaux de fibres de bois durs (Isorel, Unalit, etc.).
- Environ 800 kg/m³ pour les panneaux HDF.
- 600-750 kg/m³ pour les agglomérés de même que les panneaux OSB et MDF.
- 450-600 kg/m³ pour les contreplaqués, selon l'essence du bois utilisé (peuplier, pin maritime, etc.).

Ces valeurs élevées de densité sont avant tout la conséquence du procédé de moulage utilisé (Tajuddin et al., 2016). En effet, dans la mesure où aucune résine thermodurcissable n'est ici ajoutée avant moulage, la mobilisation du liant interne lors du thermopressage oblige à travailler sous des valeurs élevées de température et de pression, conduisant à une densification importante du matériau. C'est ainsi que d'autres panneaux auto-liés expérimentaux, obtenus à partir de quatre sous-produits lignocellulosiques différents du palmier (fibrille, feuille, rachis et gaine foliaire) selon le même procédé de pressage à chaud, ont eux aussi révélé des densités élevées (> 1000 kg/m³) (Saadaoui et al., 2013). Par opposition, pour le cas des panneaux conventionnels, la cohésion est assurée par l'ajout de résines thermodurcissables, le plus souvent liquides avant réticulation, et les pressions alors mises en jeu au moulage pour leur réticulation sont bien plus raisonnables. Les panneaux auto-liés à base de tournesol (**A13**) et de coriandre (Uitterhaegen, 2018) développés lors mes travaux de recherche disposent ainsi d'une densité environ deux fois plus élevée que les panneaux commerciaux de moyenne densité que sont par exemple les agglomérés, les panneaux OSB et les panneaux MDF. Afin de faciliter leur manipulation ultérieure (transport, manipulation avant découpe, pose, etc.), il conviendra donc de les distribuer à des dimensions raisonnables de manière à ne pas trop les alourdir. À titre d'exemple, pour des panneaux de même épaisseur (6 mm environ), afin de ne pas dépasser le poids d'un panneau conventionnel de moyenne densité et de 1 m² (de l'ordre de 4 kg), les panneaux auto-liés développés au cours de mes travaux devront idéalement être découpés sous la forme de carrés de 70 cm de côté.

e. L'obtention de matériaux isolants pour la construction, une voie originale de valorisation des tourteaux de tournesol issus de la plante entière :

Outre la fabrication de panneaux de fibres de haute densité, décrite de façon exhaustive dans les paragraphes précédents, le tourteau de tournesol issu de la plante entière peut aussi parfaitement trouver des applications d'isolation thermique dans le domaine du Génie Civil. En effet, une utilisation industrielle fréquente des panneaux de fibres issus de ressources renouvelables est l'isolation thermique des bâtiments (murs et plafonds), où les principaux avantages de la fibre végétale sont l'abondance, son faible coût (la majorité sont des résidus agricoles), un faible impact environnemental, une indépendance vis-à-vis des ressources fossiles et leur capacité naturelle à l'isolation thermique (Saiah et al., 2010).

Avant de décrire plus en détail les travaux que j'ai pu mener pour la fabrication de matériaux isolants à partir du tourteau de tournesol issu de la plante entière, il convient ici de rappeler quelques données issues de la bibliographie. En effet, la littérature mentionne les cas de nombreux panneaux isolants d'origine renouvelable, notamment ceux fabriqués à partir des fibres végétales suivantes :

- De la rafle de maïs (Paiva et al., 2012 ; Pinto et al., 2011 ; Sampathrajan et al., 1992).
- De la fibre de coco (Alavez-Ramirez et al., 2012 ; Khedari et al., 2003, 2004 ; Panyakaew et Fotios, 2011).
- De la cellulose (Nicolajsen, 2005).
- Des déchets issus de la fabrication du papier de soie (Lertsutthiwong et al., 2008).
- De la fibre de kéraf (Ardente et al., 2008).
- Des fibres de lin et de chanvre (Benfratello et al., 2013 ; Korjenic et al., 2011 ; Kymäläinen et Sjöberg, 2008).
- Des fibres issues des tiges de coton (Zhou et al., 2010).
- De la fibre de jute (Korjenic et al., 2011).
- De la moelle de tournesol (Vandenbossche et al., 2012).
- Des fibres issues du palmier dattier (Chikhi et al., 2013), etc.

La conductivité thermique des panneaux d'isolation est alors le plus souvent influencée par leurs densités (Benfratello et al., 2013 ; Chikhi et al., 2013 ; Khedari et al., 2003, 2004 ; Lertsutthiwong et al., 2008 ; Panyakaew et Fotios, 2011 ; Vandenbossche et al., 2012 ; Zhou et al., 2010), les matériaux de plus faible densité présentant les plus faibles valeurs de conductivité. À titre d'exemple, la conductivité thermique d'un panneau isolant de moelle de tournesol présentant une densité de 36 kg/m³ est de seulement 38,5 mW/m.K à 25 °C (Vandenbossche et al., 2012). Une telle conductivité thermique est d'ailleurs parfaitement comparable à celles de matériaux isolants conventionnels comme le polystyrène expansé (37,4 mW/m.K pour une densité de 50 kg/m³), la laine de roche (35,6 mW/m.K pour une densité de 115 kg/m³) ou la laine de verre (35,4 mW/m.K pour une densité de 26 kg/m³). En contrepartie, la conductivité thermique devient plus élevée pour les panneaux de fibres de densité moyenne :

- 46-68 mW/m.K à la température ambiante pour des panneaux isolants à base de fibres de coco et présentant des densités comprises entre 250 et 350 kg/m³ (Panyakaew et Fotios, 2011).
- 81,5 mW/m.K pour un panneau isolant de fibres issues des tiges de coton et présentant une densité de 450 kg/m³ (Zhou et al., 2010).
- De 89,9 à 107,9 mW/m.K pour des panneaux isolants en fibres de chanvre et présentant des densités allant de 369 à 475 kg/m³ (Benfratello et al., 2013).
- 103,6 mW/m.K pour un panneau isolant à base de fibres de coco et présentant une densité de 540 kg/m³ (Khedari et al., 2003).
- 150 mW/m.K pour un panneau isolant fabriqué à partir de fibres issues du palmier dattier et ayant une densité de 754 kg/m³ (Chikhi et al., 2013).

De tels panneaux isolants n'en demeurent pas moins des options viables pour une utilisation en tant qu'isolants des bâtiments (murs et plafonds). En raison de sa richesse naturelle en fibres lignocellulosiques (52-59% de la masse sèche du tourteau pour la cellulose, les hémicelluloses et les lignines réunies) (A6, A11, A16), le tourteau issu du fractionnement thermo-mécano-chimique en extrudeur bi-vis de la plante entière de tournesol m'est donc apparu comme un candidat prometteur pour la fabrication de matériaux isolants. Deux stratégies différentes ont ainsi été envisagées dans le cadre de mes travaux pour l'obtention de ce type de matériau :

- La production de panneaux isolants de densité moyenne par **thermopressage** dans des conditions douces de température, de pression et de temps de pressage, ceci afin de produire des panneaux isolants, auto-liés par les protéines contenues dans le tourteau (A6, A11).

■ La production de blocs isolants de faible densité par **moulage par compression** d'un mélange constitué dudit tourteau et d'une colle naturelle préalablement dissoute dans l'eau, puis par **séchage** en étuve ventilée (**A16**).

Pour le cas des panneaux auto-liés produits par **thermopressage**, des consignes modérées ont été volontairement choisies pour la pression appliquée ainsi que pour le temps de pressage (de 14,7 à 24,5 MPa et de 40 à 76 s, respectivement), ceci afin de favoriser l'obtention de panneaux moyennement denses (de 500 à 858 kg/m³) (**A11**). De telles conditions opératoires, en particulier la pression appliquée, n'étant pas suffisantes pour provoquer l'expression d'une partie de l'huile résiduelle du tourteau lors du moulage, cela évite par la même occasion toute délipidation préalable. En parallèle, la température du moule a été choisie au moins égale à la température de transition vitreuse des protéines (environ 140 °C) de façon à ce que ce changement de phase se produise systématiquement lors du moulage à chaud. Tous les panneaux de fibres obtenus étaient ainsi des mélanges cohésifs associant protéines et fibres lignocellulosiques, les premières assurant un rôle de liant à l'intérieur du matériau isolant et les secondes une fonction de renfort mécanique. L'étude a également permis de montrer que les conditions du thermopressage influençaient de façon notable les caractéristiques des matériaux isolants produits, tout particulièrement leurs densités, leurs propriétés mécaniques (**Tableau 24**) et leurs capacités à l'isolation thermique (**Figure 44**). Tout d'abord, une augmentation progressive de la densité des panneaux isolants a été observée avec l'augmentation de chacune des trois conditions du moulage (de 500 kg/m³ pour les conditions les plus douces jusqu'à 858 kg/m³ pour celles les plus contraignantes), s'accompagnant dans le même temps d'une augmentation progressive des propriétés mécaniques (de 52 à 660 kPa pour la résistance à la rupture en flexion, de 5,9 à 49,4 MPa pour le module d'élasticité en flexion, de 0,5 à 7,7 kJ/m² pour la résilience au choc Charpy, et de 19,2 à 47,1° pour la dureté de surface de type Shore D) (**Tableau 24**). Inversement, les propriétés d'isolation thermique ont été améliorées par diminution de la densité du panneau isolant (**Figure 44**). La conductivité thermique la plus faible (88,5 mW/m.K à 25 °C) a ainsi été obtenue avec le panneau de fibres le moins dense (500 kg/m³), ce dernier ayant été produit à une température de 140 °C et pour une pression de seulement 14,7 MPa, appliquée pendant un temps court (40 s). De telles conditions opératoires sont associées à une consommation énergétique de seulement 10,0 kW.h/m² de panneau isolant.

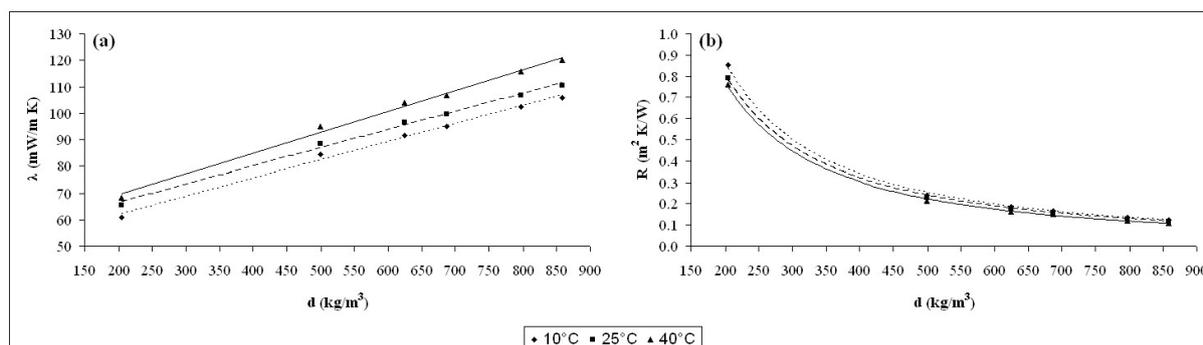
Aussi, c'est une température de thermopressage médiane (160 °C) qui a permis d'obtenir le meilleur compromis entre propriétés mécaniques (272 kPa pour la résistance à la rupture en flexion, 26,3 MPa pour le module d'élasticité en flexion, 3,2 kJ/m² pour la résilience au choc Charpy et 37,3° pour la dureté de surface Shore D) et propriétés thermiques (99,5 mW/m.K pour la conductivité thermique et 0,16 m².K/W pour la résistance thermique), la densité du panneau isolant correspondant étant de 687 kg/m³. Par ailleurs, ces conditions opératoires correspondent à une consommation énergétique plus élevée, estimée à 22,7 kW.h/m² de panneau isolant.

Tableau 24

Influence des conditions du thermopressage sur la densité, les propriétés mécaniques en flexion, la résistance au choc Charpy et la dureté de surface Shore D des panneaux isolants obtenus (A11).

N° du panneau isolant	1	2	3	4	5
Conditions du thermopressage					
Température du moule (°C)	140	140	160	180	200
Pression appliquée (MPa)	14,7	24,5	24,5	24,5	24,5
Temps de pressage (s)	40	76	76	76	76
Propriétés mécaniques en flexion (norme française NF EN 310)					
t (mm)	20,2 ± 0,6	17,1 ± 0,8	16,0 ± 0,6	13,9 ± 0,5	13,0 ± 0,5
d (kg/m ³)	500 ± 23	625 ± 11	687 ± 13	797 ± 27	858 ± 20
E (mJ)	3,2 ± 0,4	6,7 ± 0,6	15,3 ± 1,4	22,5 ± 1,5	44,4 ± 3,9
F (N)	3,5 ± 0,4	7,7 ± 0,3	11,6 ± 0,9	14,1 ± 0,6	18,7 ± 1,0
σ _f (kPa)	51,8 ± 6,1	157,5 ± 5,3	272,0 ± 21,0	441,7 ± 19,5	659,9 ± 36,1
E _f (MPa)	5,9 ± 0,5	22,1 ± 2,4	26,3 ± 2,2	44,5 ± 3,7	49,4 ± 4,9
Résistance au choc Charpy (norme française NF EN ISO 179)					
W (J)	0,15 ± 0,02	0,30 ± 0,04	0,78 ± 0,09	0,96 ± 0,10	1,51 ± 0,13
K (kJ/m ²)	0,5 ± 0,1	1,2 ± 0,1	3,2 ± 0,4	4,6 ± 0,5	7,7 ± 0,7
Dureté de surface (norme française NF EN ISO 868)					
Shore D (°)	19,2 ± 2,5	29,6 ± 3,0	37,3 ± 3,2	45,8 ± 3,7	47,1 ± 4,4

t, épaisseur ; d, densité ; E, énergie de rupture (pour une distance entre les appuis de 120 mm et une largeur de l'éprouvette de 30 mm) ; F, force de rupture ; σ_f, résistance à la rupture en flexion (ou résistance en flexion) ; E_f, module élastique (ou module d'élasticité en flexion) ; W, énergie absorbée (pour une distance entre les appuis de 25 mm et une largeur de l'éprouvette de 15 mm) ; K, résilience.

**Figure 44**

Évolution de la conductivité thermique (a) et de la résistance thermique (b) du tourteau en vrac et des panneaux isolants fabriqués par thermopressage en fonction de leur densité, à trois températures (10 °C, 25 °C et 40 °C) (A11).

Sur la base de ces premiers résultats, il est tout de même clairement apparu qu'une cohésion suffisante des panneaux isolants ainsi produits ne pouvait être obtenue que par auto-adhésion des protéines, obligeant donc à travailler à une température de thermopressage au moins égale à leur température de transition vitreuse. Par ailleurs, afin de garantir un mouillage suffisant de la surface des fibres par ledit liant protéique, une pression d'au moins 15 MPa doit être appliquée, conduisant à une densité du matériau isolant jamais inférieure à 500 kg/m³. Afin d'améliorer de manière significative les propriétés d'isolation thermique de ces panneaux de fibres, la solution envisagée dans un deuxième temps a donc consisté en l'utilisation de colles naturelles, d'abord solubilisées dans l'eau puis mélangées au tourteau (A16). Le mélange ainsi obtenu est alors moulé à température ambiante par compression, à une pression inférieure à 0,1 MPa de façon à produire un matériau isolant le moins dense possible, puis séché en étuve ventilée. Sous de telles conditions opératoires, l'énergie consommée lors du moulage est

particulièrement faible, estimée à seulement 1,0 kW.h/m² de panneau isolant. Là encore, une délipidation préalable du tourteau n'est pas nécessaire, la très faible pression appliquée étant largement insuffisante pour provoquer l'expression, même partielle, de son huile résiduelle. Disponibles commercialement, trois colles naturelles ont ainsi été sélectionnées, la première à base d'amidon, la seconde à base de caséine et la troisième à base de gélatine. Il s'agit de liants à prise physique, la cohésion du matériau isolant ainsi moulé n'étant obtenue qu'après évaporation de l'eau. Il en résulte alors l'apparition de liaisons, généralement de type hydrogène, entre le biopolymère constitutif de la colle (amidon, caséine ou gélatine) et ceux contenus dans le tourteau (protéines, cellulose, hémicelluloses, etc.). L'utilisation de ces liants externes d'origine naturelle a ainsi permis d'obtenir de nouveaux blocs isolants, présentant non seulement une bonne cohésion mais également de plus faibles densités (439 kg/m³ au maximum), améliorant du même coup leur capacité d'isolation thermique. L'influence de la nature du liant et de sa teneur massique au sein du mélange (de 10 à 25%) sur la densité du bloc isolant ainsi que sur ses propriétés mécaniques et d'isolation thermique a été étudiée au cours de ce travail (**Figure 45** et **Figure 46**). Et, il est apparu que ces deux conditions du moulage influençaient de manière significative la densité du matériau, celle-ci variant de 255 à 439 kg/m³. Par ailleurs, une diminution de cette densité s'est avérée favorable à une amélioration des propriétés thermiques du bloc isolant (**Figure 46**). Présentant une densité égale à seulement 358 kg/m³ et une épaisseur de 39 mm, le bloc contenant 20% d'une colle amylicée s'est avéré être le meilleur compromis entre propriétés mécaniques (347 kPa pour la résistance à la rupture en flexion, 9,5 MPa pour le module d'élasticité en flexion et 18,9° pour la dureté de surface Shore D) et propriétés thermiques (77,6 mW/m.K pour la conductivité et 0,50 m².K/W pour la résistance à 25 °C). Par ailleurs, sa tenue mécanique a été jugée suffisante pour lui permettre d'être transporté et manipulé sans risque de le casser. Elle autorise également son usinage par découpe, facilitant du même coup sa pose.

En raison de leurs propriétés d'isolation thermique prometteuses, de tels matériaux isolants (panneaux de fibres obtenus par thermopressage ou blocs moulés à l'ambient par compression) pourraient être positionnés dans les murs et aux plafonds pour l'isolation thermique des bâtiments (**A11**, **A16**). Signalons ici que les tourteaux utilisés en vrac ont également révélé de très faibles valeurs de conductivité thermique (seulement 62-66 mW/m.K à 25 °C) ainsi qu'une résistance thermique élevée (0,79-0,84 m².K/W), s'expliquant par leurs très faibles densités apparentes (204-215 kg/m³). Ils pourraient donc eux aussi être utilisés en l'état comme isolants, c'est-à-dire sans mise en forme préalable, pour le remplissage en vrac des greniers des maisons par exemple.

Un travail complémentaire d'optimisation sera toutefois nécessaire pour rendre ces différents matériaux isolants (panneaux de fibres cohésifs et tourteau en vrac) utilisables pour des applications commerciales (**A22**). En effet, pour satisfaire aux exigences de l'industrie du bâtiment, diverses caractéristiques sont importantes pour les matériaux d'isolation thermique :

- Une absence d'odeur.
- Une résistance à l'humidité.
- Une résistance aux insectes, aux rongeurs et autres animaux nuisibles.
- Une résistance aux champignons et à la prolifération bactérienne.
- Une résistance au feu.

Ce dernier point pourra être amélioré par addition d'un additif tel que le borax (sel de bore), bien connu pour le traitement ignifuge d'isolants biosourcés commerciaux tels que la ouate de cellulose.

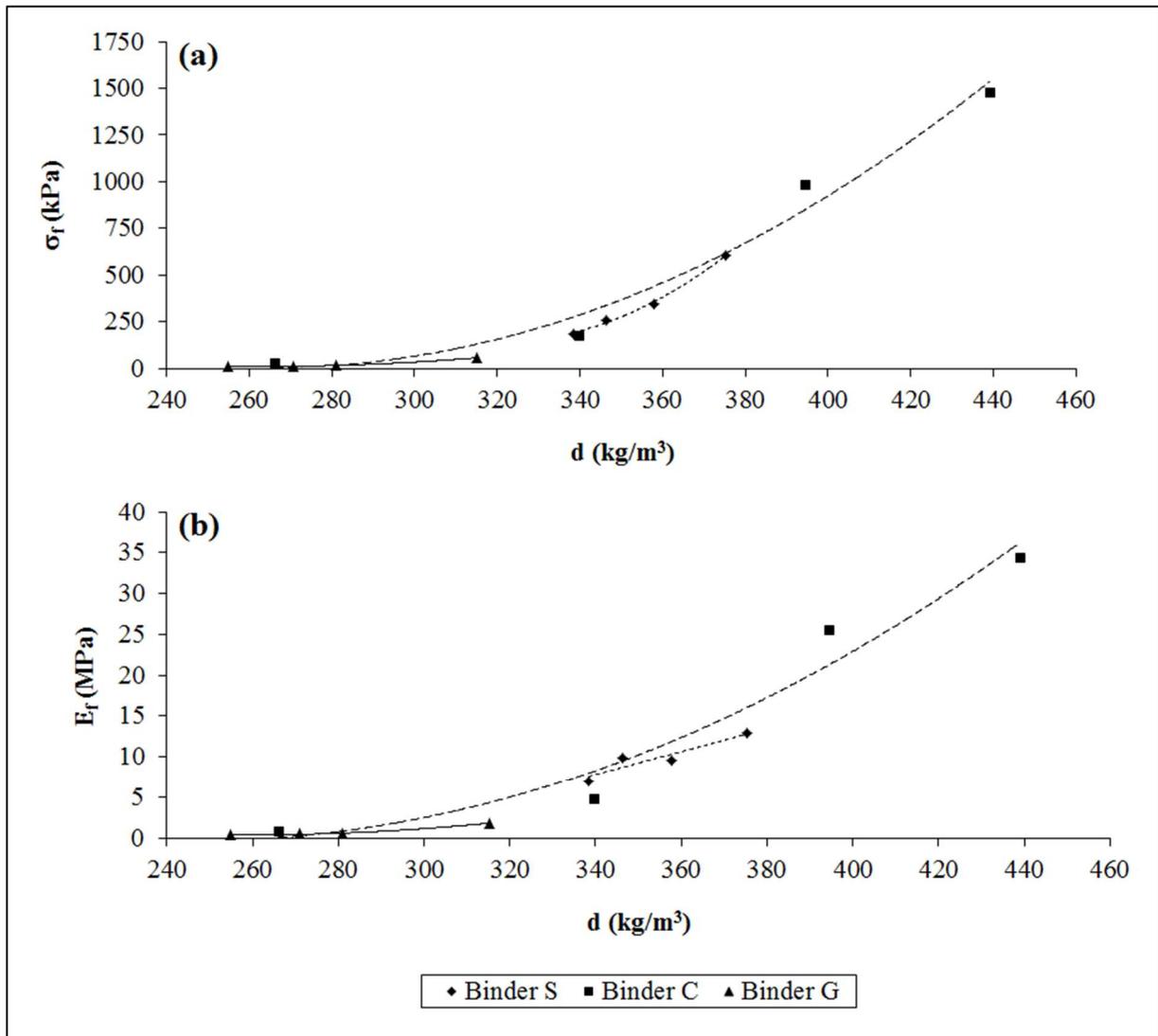


Figure 45

Évolution de la résistance à la rupture en flexion (a) et du module d'élasticité en flexion (b) des douze blocs isolants fabriqués par moulage par compression en fonction de leur densité (S, colle amyliacée ; C, caséine ; G, gélatine) (A16).

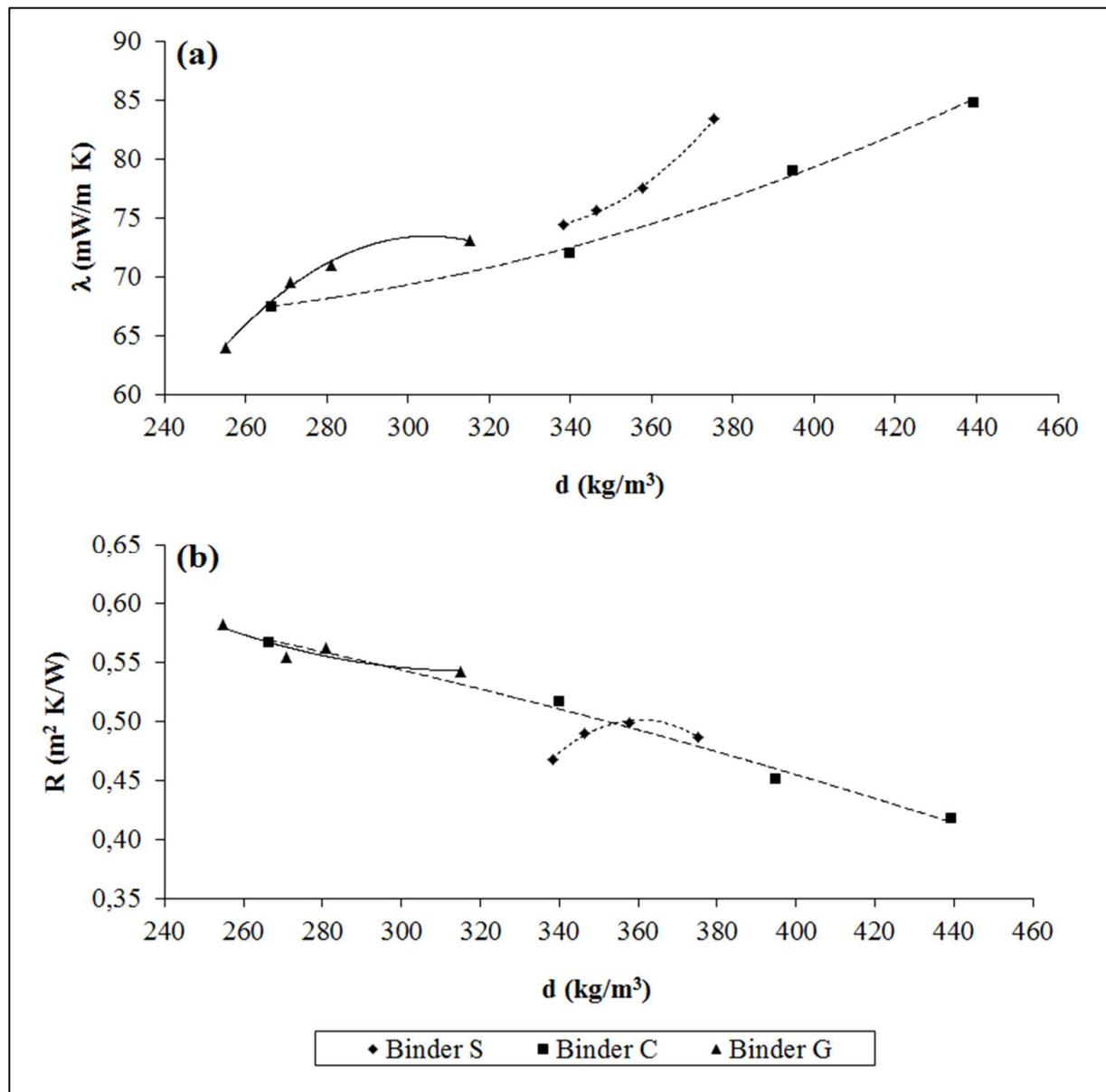


Figure 46

Évolution de la conductivité thermique (a) et de la résistance thermique (b) à 25 °C des douze blocs isolants fabriqués par moulage par compression en fonction de leur densité (A16).

f. Le compoundage bi-vis pour le moulage de pièces d'usage par injection ou par extrusion, un autre mode d'obtention d'agromatériaux :

S'il m'a été donné l'occasion d'utiliser les fibres lignocellulosiques présentes dans les tourteaux de tournesol plante entière (A4, A5, A6, A11, A13, A16, AC12, B1, TD), de jatropha (A12) et de coriandre (A19 ; A25 ; A30 ; AC17 ; P35 ; P43 ; Uitterhaegen, 2018) comme une source de renfort mécanique à l'intérieur de matériaux thermopressés ou moulés par compression, ces fibres auraient parfaitement pu être utilisées pour cette même aptitude à l'intérieur de composites thermoplastiques moulables par injection ou par extrusion. Mes travaux menés sur ce sujet l'ont été à partir de deux autres sources fibreuses, toutes deux d'origine renouvelable :

■ Des fibres de miscanthus et de bambou pour le cas des composites injectables (Gamon, 2013 ; A9).

■ Des biopolymères isolés à partir de composts industriels issus de déchets ménagers et des résidus de plants de tomate après récolte pour le cas des composites extrudables (A18, A23, A31).

Avant d'évoquer plus en détail ces travaux, il convient ici de rappeler d'abord quelques éléments issus de la littérature, et qui permettront de mieux les situer dans le contexte général de la plasturgie. En effet, les préoccupations environnementales ont conduit au cours des dernières années au développement de nouvelles solutions pour les plastiques. Ces travaux sur les « composites plastiques verts », c'est-à-dire plus respectueux de l'environnement, ont été motivés par deux objectifs spécifiques :

■ Réduire la dépendance de la production de plastiques à la fourniture de pétrole dont les réserves s'amenuisent de manière inexorable avec le temps.

■ Développer des solutions permettant de lutter contre l'accumulation des déchets plastiques.

Pour ce qui est de la matrice thermoplastique, le développement des polymères biosourcés et biodégradables est une approche intéressante puisqu'elle vise non seulement à utiliser des ressources renouvelables en lieu et place des polymères d'origine fossile mais elle permet également de limiter la génération de déchets. L'amidon thermoplastique, les polyhydroxyalcanoates (PHAs), les polylactides et leurs mélanges ont été identifiés comme des candidats prometteurs pour ce remplacement. C'est la raison pour laquelle ils font l'objet encore aujourd'hui de nombreuses recherches. L'acide polylactique (PLA) a été étudié de façon exhaustive au cours des dernières années. Ce polyester biodégradable, qui est disponible sur le marché à un prix somme toute raisonnable aujourd'hui (< 2 €/kg) et qui peut être utilisé dans de nombreuses applications, de l'emballage jusqu'aux matériaux biocompatibles, a un comportement thermoplastique combiné à de bonnes propriétés mécaniques, une bonne apparence et une faible toxicité (Jamshidian et al., 2010).

Par ailleurs, concernant le renfort, adjoindre aux polyoléfines de même qu'aux polyesters des fibres naturelles est une façon de réduire les coûts de production tout en préservant voire même en augmentant les propriétés de la matrice (Mohanty et al., 2000 ; Faruk et al., 2012). En effet, outre leur caractère renouvelable, les fibres végétales présentent l'avantage par rapport aux fibres de verre ou de carbone d'être abondantes et bon marché. De surcroît, elles présentent un rapport ténacité/densité élevé de même que de bonnes propriétés thermiques du point de vue de l'isolation (Kymäläinen et Sjöberg, 2008 ; Saiah et al., 2010), comme déjà longuement évoqué dans le paragraphe précédent pour les fibres de la tige de tournesol. Malgré ces divers avantages, la fibre végétale présente un comportement hydrophile qui peut être une source d'incompatibilité avec la matrice et qui peut également accroître la sensibilité à l'eau du biocomposite.

Pour les travaux menés au laboratoire sur les biocomposites injectables par Gamon (Gamon, 2013 ; A9) dans le cadre du projet VEGECOMP (PR2), et dont j'assurais le co-encadrement (Thèse de Doctorat CIFRE avec la société Vegeplast), c'est le PLA qui a été choisi comme matrice thermoplastique. Rappelons ici que le poly(acide lactique), ou PLA pour *Poly(lactic acid)*, est un polyester aliphatique linéaire, biodégradable et issu de ressources renouvelables, le plus souvent de l'amidon, obtenu par polymérisation de l'acide lactique.

Avant ces travaux, les biocomposites à base de PLA avaient déjà été largement étudiés, différentes fibres végétales ayant été incorporées à l'intérieur de cette matrice polyester comme en atteste la revue de Faruk et al. (2012). Ainsi, des fibres de bois (Huda et al., 2006 ; Sykacek et al., 2010), de lin (Oksman et al., 2003), de chanvre (Masirek et al., 2007), de kenaf (Ogbomo et al., 2009) et de jute (Plackett, 2004) avaient notamment déjà été testées. Lezak et al. (2008) et Nyambo et al. (2010) avaient également étudié l'incorporation de divers résidus agricoles. De ces études, il est apparu que la nature de la fibre avait une réelle importance sur les performances du biocomposite. Toutes ont également mis en évidence le manque d'interactions entre le PLA et la fibre végétale, conduisant à une

interface fragile et donc le plus souvent incapable de transférer efficacement le « stress » subi par la matrice à la fibre de renfort lors d'une sollicitation mécanique. Sans compatibilisation physique ou chimique, permettant d'améliorer la qualité de l'interface matrice/fibre, il en résulte alors une diminution de la résistance mécanique de la matrice PLA.

Quant aux fibres de renfort utilisées par Gamon au cours de sa Thèse de Doctorat, ce sont le miscanthus (*Miscanthus giganteus*) et le bambou (*Thyrsostachys Oliveri*) qui ont été choisis (Gamon, 2013 ; A9). Il s'agit de cultures pérennes, toutes deux caractérisées par des rendements élevés et déjà identifiées pour leur aptitude au renforcement des biocomposites. En effet, Bourmaud et Pimbert (2008) avaient précédemment mesuré le module élastique de la fibre de miscanthus par nanoindentation (9,5 GPa), montrant que ce dernier était parfaitement comparable à ceux du sisal (8,5 GPa) et du chanvre (12,1 GPa). Par ailleurs, ils avaient pu montrer que son incorporation dans du PLA mais aussi du polypropylène (PP) avait révélé une aptitude au renfort mécanique comparable à celles d'autres fibres. D'autre part, la fibre de bambou avait été précédemment étudiée en mélange dans du PLA par Tokoro et al. (2008). Ces auteurs avaient ainsi montré que, selon le mode de préparation de la fibre de bambou, celle-ci pouvait ou non renforcer la résistance en flexion du matériau. En effet, des faisceaux courts (215 µm en longueur et 39 µm en diamètre) se sont avérés être moins efficaces que des fibres plus longues, extraites d'une pulpe explosée à la vapeur (1740 µm en longueur et 24 µm en diamètre), les contraintes respectives des biocomposites ayant été estimées à 80 MPa et 115 MPa, respectivement.

D'une manière générale, le procédé utilisé pour la production des biocomposites a également une grande importance. Une bonne dispersion des fibres est nécessaire afin d'obtenir une bonne performance des matériaux. L'orientation des fibres à l'intérieur du composite joue également un rôle important, celles-ci renforçant davantage le matériau dans le sens longitudinal (Joseph et al., 1999). En outre, de nombreux modèles ont mis en évidence l'importance du facteur de forme de la fibre, défini par le rapport de sa longueur (L) sur son diamètre (d), sur les propriétés mécaniques du composite. En effet, disposer d'une fibre présentant un facteur de forme élevé apporte plus de rigidité au biocomposite. Enfin, le cisaillement appliqué pendant les processus de dispersion de la fibre dans la matrice, par compoundage bi-vis par exemple, d'une part et de moulage du biocomposite par injection d'autre part provoque des ruptures de fibres. Notons tout de même que les fibres naturelles, souvent reliées entre elles en faisceaux par des substances pectiques, ont la capacité de se séparer sous cisaillement, ce qui permet de réduire leur diamètre final.

L'extrusion bi-vis étant un processus générant un cisaillement élevé, cette technique de compoundage a pour effet de favoriser une bonne dispersion des fibres dans la matrice thermoplastique (Bledzki et al., 2005). C'est donc tout logiquement vers cette technologie bi-vis que nous nous sommes orientés pour disperser les fibres de miscanthus et de bambou dans le PLA (Gamon, 2013 ; A9). Néanmoins, l'extrusion conduit à de nombreuses ruptures de faisceaux de fibres, leur longueur et leur diamètre diminuant de façon plus ou moins importante selon :

- La nature de la matrice utilisée et sa rhéologie (Tokoro et al., 2008 ; Wollerdorfer et Bader, 1998).
- Le taux d'incorporation de fibres dans la matrice (Wollerdorfer et Bader, 1998).
- L'énergie mécanique transmise au mélange matrice/fibre lors de son compoundage dans l'extrudeur bi-vis (Beaugrand et Berzin, 2013).
- La température mise en œuvre le long du profil de vis (Beaugrand et Berzin, 2013).
- L'humidité de la fibre (Beaugrand et Berzin, 2013).

Enfin, deux études ont montré que la rupture des fibres et leur séparation des faisceaux, conduisant à l'obtention de fibres élémentaires, étaient plus ou moins importantes en fonction de leur origine. Ainsi, parce qu'elles disposent d'une teneur élevée en lignines, il est plus facile de séparer les fibres de lin en fibres élémentaires que les fibres de sisal, qui restent partiellement en faisceaux (Le

Moigne et al., 2011 ; Oksman et al., 2009), et la paille de blé, qui génère à la fois des faisceaux de fibres et de grandes quantités de fines particules (Oksman et al., 2009).

Sur la base de ces différentes données bibliographiques, les travaux conduits au laboratoire par Gamon au cours de sa Thèse de Doctorat ont donc consisté en l'étude de l'influence des paramètres du compoundage bi-vis sur la morphologie des fibres naturelles après dispersion dans le PLA ainsi que sur les propriétés mécaniques et thermiques des pièces composites obtenues (Gamon, 2013 ; **A9**). Pour cela, des fibres de miscanthus ont été dispersées dans un grade commercial de PLA à l'aide d'un extrudeur bi-vis de type Clextral (France) Evolum 25 disposant de dix modules, à différents débits entrants et différentes vitesses de rotation des vis afin de parfaitement contrôler le cisaillement appliqué au mélange. Les profils de vis et de température utilisés pour cette étude avaient quant à eux été préalablement optimisés par l'expérience. Le PLA était introduit dans le premier module de l'extrudeur bi-vis et sa fonte assurée par la mise en place le long du profil, au niveau des troisième et quatrième modules, d'une paire de disques malaxeurs bilobes montés en quinconce et de deux paires d'éléments à pas inverse, toutes les trois accolées l'une à l'autre. L'introduction de la fibre était effectuée via un gaveur latéral au niveau du cinquième module, après la fusion du PLA. Trois zones de mélange distinctes constituées d'éléments malaxeurs bilobes étaient ensuite utilisées au niveau des modules n° 6 à 8 afin de disperser convenablement les fibres dans le PLA fondu. Pour l'une de ces zones (la seconde), les éléments malaxeurs bilobes utilisés étaient montés à pas inverse afin d'augmenter le temps de séjour du mélange à cet endroit. La température était fixée à 190 °C dans la zone de fusion du PLA et à 165 °C dans la zone de dispersion des fibres dans le PLA. En bout de fourreau, le réacteur bi-vis était équipé d'un convergent et d'une filière. Un bac de refroidissement à eau et un couteau granulateur ont ensuite permis l'obtention de granulés homogènes et calibrés en taille. Puis, les biocomposites PLA/miscanthus ont été moulés par injection et caractérisés, non seulement d'un point de vue mécanique mais également en termes de stabilité thermique. La préservation de la taille des fibres lors des étapes de compoundage bi-vis et d'injection-moulage a également été étudiée. Pour cela, différents grades calibrés de fibres de bambou ont été utilisés et comparés à la fibre de miscanthus.

Concernant le premier point de ce travail, relatif à l'étude de l'influence des paramètres du compoundage bi-vis (vitesse de rotation des vis et débit entrant) sur la morphologie des fibres de miscanthus dans le biocomposite PLA/miscanthus ainsi que sur les propriétés des pièces injectées, nous avons pu montrer que l'augmentation de la vitesse des vis (de 100 à 300 rpm), et donc du taux de cisaillement appliqué au mélange, de même que celle en parallèle du débit entrant (jusqu'à 40 kg/h) permettent une meilleure préservation de la longueur des faisceaux de fibres (**Figure 47**). Cette observation a été attribuée au fait que, pour de telles conditions opératoires, le temps de séjour du mélange composite PLA/miscanthus dans la machine est réduit ainsi que sa viscosité. Néanmoins, il est à noter que de telles conditions opératoires conduisent au doublement de l'énergie mécanique spécifique nécessaire à une bonne dispersion des fibres de miscanthus dans la matrice PLA. Par ailleurs, cette plus forte consommation d'énergie est sans effet sur les propriétés mécaniques en traction des composites injectés ainsi obtenus (**Figure 48**), les disparités de morphologie de la fibre à l'intérieur des différents composites PLA/miscanthus ayant été jugées trop faibles. Notons également qu'une meilleure stabilité thermique a été obtenue pour les composites extrudés à faible vitesse de rotation des vis (150 rpm), pour lesquels la dépense énergétique fut aussi amoindrie. Enfin, une vitesse de vis de seulement 100 rpm s'est avérée insuffisante pour une bonne dispersion des fibres dans la matrice, se traduisant par des propriétés en traction inhomogènes (**Figure 48**).

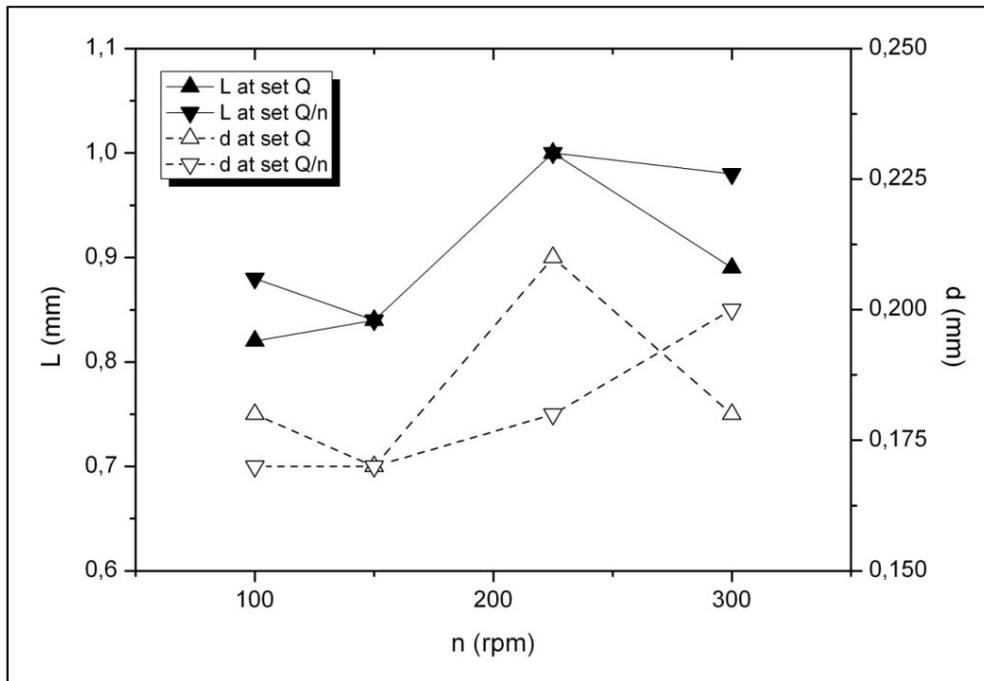


Figure 47

Longueur moyenne (L) et diamètre moyen (d) de la fibre de miscanthus dans les pièces injectées à partir des biocomposites chargés à 20% et extrudés à différentes vitesses de rotation des vis (n), pour un débit entrant (Q) de 20 kg/h ou pour un taux de remplissage de l'extrudeur bi-vis (rapport Q/n) de 0,13 kg/h.rpm (A9).

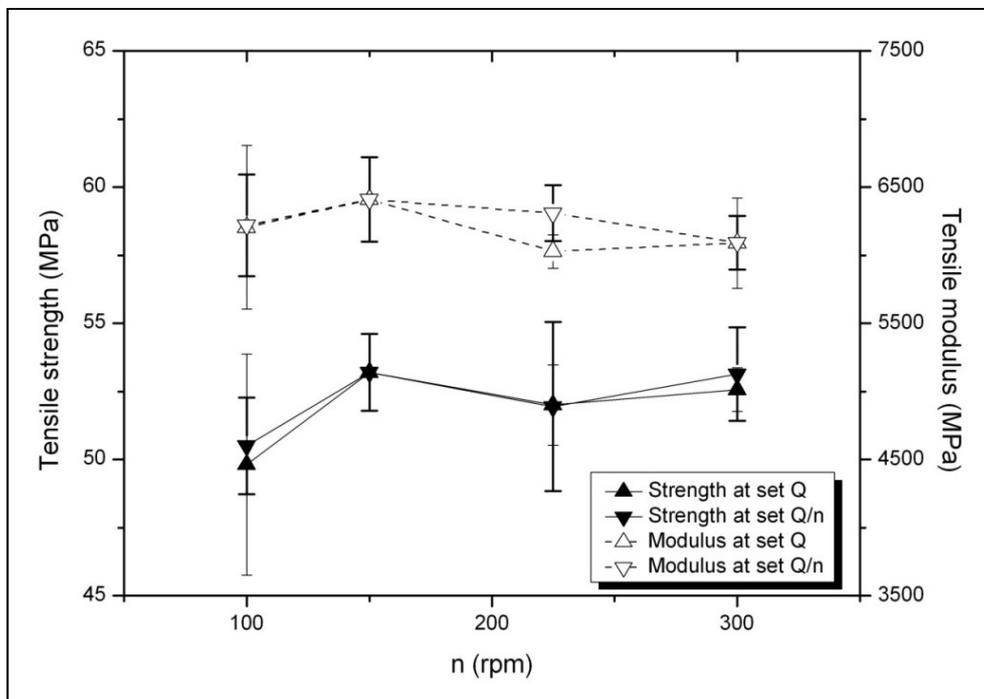


Figure 48

Évolution de la résistance en traction et du module d'élasticité en traction (module d'Young) en fonction de la vitesse de rotation des vis (n), pour un débit entrant (Q) de 20 kg/h ou pour un taux de remplissage de l'extrudeur bi-vis (rapport Q/n) de 0,13 kg/h.rpm, pour le cas des biocomposites chargés de 20% de fibres de miscanthus (A9).

En complément des tests en traction, le comportement thermo-mécanique du PLA pur et des biocomposites PLA/miscanthus a également été étudié en DMTA. Ces analyses ont permis de mettre en évidence le fait que l'incorporation de fibres de miscanthus dans le PLA permettait une amélioration de sa stabilité thermique. En effet, même si les modules de conservation des biocomposites PLA/miscanthus sont tous proches de celui du PLA seul avant sa transition vitreuse (55 °C dans le cas du PLA seul), ils se maintiennent par contre à des niveaux supérieurs lorsque la transition vitreuse est atteinte. Par ailleurs, dans cette gamme de température (> 70 °C), il a été observé que le module de conservation du biocomposite PLA/miscanthus augmentait avec le taux d'incorporation des fibres dans la matrice (**Figure 49**). Des analyses DMTA, il a été conclu qu'un matériau composite chargé de 40% de fibres de miscanthus permettait d'améliorer significativement la stabilité thermique du PLA, s'expliquant par un plus fort encombrement stérique à l'intérieur dudit matériau et donc par une moindre mobilité des chaînes polymères. En effet, c'est pour ce taux d'incorporation du miscanthus dans le PLA que la plus faible déformation du biocomposite a été observée lors des tests de déformation en température, menés en étuve ventilée à 80 °C pendant une heure : seulement 8% contre 34% pour le biocomposite PLA/miscanthus 80/20, 51% pour le biocomposite PLA/miscanthus 90/10 et jusqu'à 58% pour le PLA non chargé (**A9**). Le matériau composite PLA/miscanthus 60/40 conserve ainsi une certaine rigidité au-delà de la transition vitreuse du PLA, rendant possible son utilisation comme emballage alimentaire micro-ondable (**Figure 50**). Rappelons ici qu'une telle utilisation ne serait pas possible pour le cas du PLA seul (Jamshidian et al., 2010).

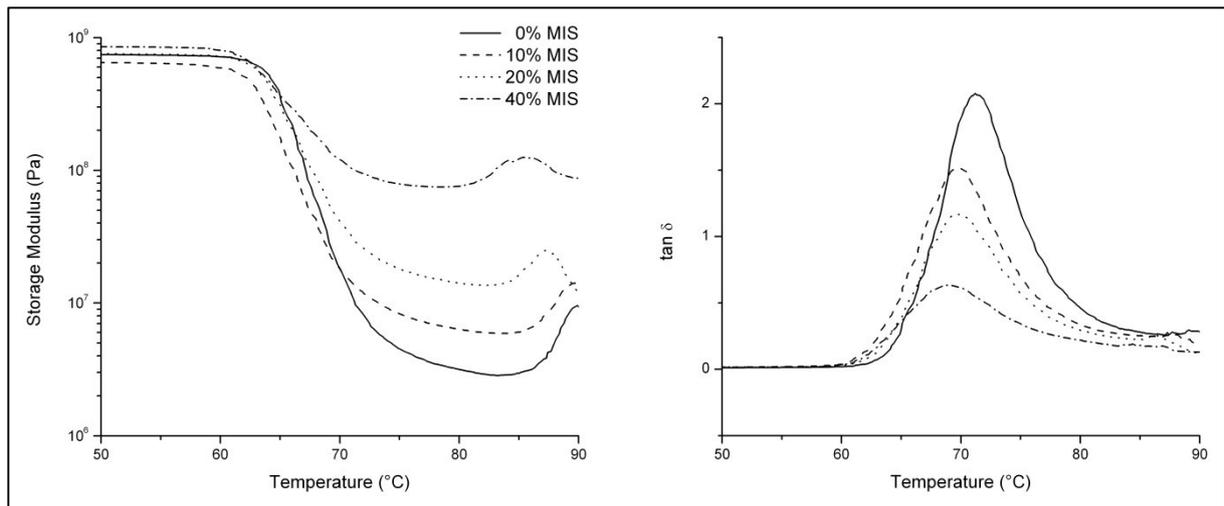


Figure 49

Évolution du module de conservation (à gauche) et du facteur de perte ($\tan \delta$) (à droite) du PLA pur et des composites PLA/miscanthus produits à un débit entrant de 20 kg/h et à une vitesse de rotation des vis de 150 rpm en fonction de la température (**A9**).



Figure 50

Photographie présentant des granulés produits en compoundeur bi-vis et des éprouvettes faites du matériau composite PLA/miscanthus (Gamon, 2013 ; A9), ainsi qu'une barquette alimentaire moulée par injection et issue de ce travail.

Pour ce qui est de la comparaison des quatre grades calibrés de fibres de bambou (de B1 pour les fibres les plus longues à B4 pour les plus courtes) avec le miscanthus, nos travaux ont montré que plus les fibres étaient longues au départ et plus elles étaient susceptibles de se rompre au cours du process, principalement au moment du compoundage en extrudeur bi-vis (comprenant également la granulation en sortie de filière) mais aussi, dans une moindre mesure, lors du moulage par injection. Par ailleurs, pour le cas du miscanthus et des deux grades de bambou les plus longs (B1 et B2), une plus forte réduction de la longueur des fibres a été observée après injection lorsque le taux de fibres à l'intérieur du composite a été augmenté de 20% à 40%. Un tel effet avait déjà été mentionné dans la littérature pour le cas de diverses fibres naturelles (lin, jute, ramie, fibres issues du palmier à huile et fibres de cellulose régénérée) dispersées dans des polymères thermoplastiques biodégradables tels que des polyesters ou de l'amidon plastifié (Wollerdorfer et Bader, 1998).

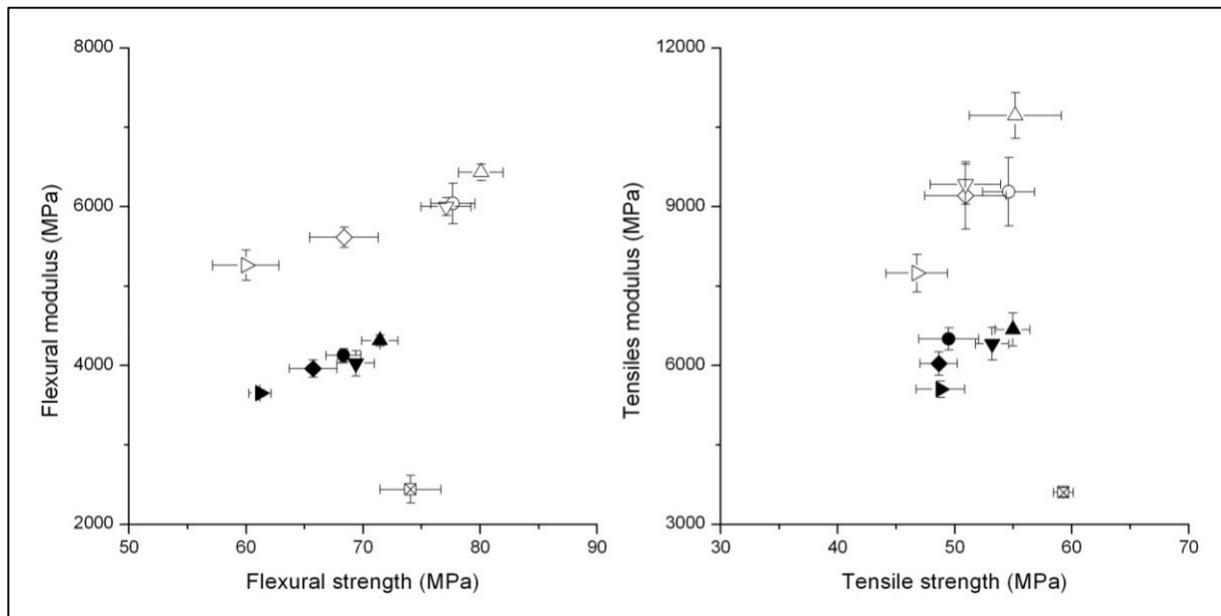
D'un point de vue mécanique, plus les fibres seront longues dans la pièce injectée, plus elles seront bénéfiques pour les propriétés du matériau composite, notamment lors d'une sollicitation en flexion au cours de laquelle il est non seulement observé une augmentation conséquente du module élastique par comparaison au PLA seul, synonyme de renforcement de la matrice par les fibres, mais également dans certains cas (miscanthus, fibres de bambou B1 et surtout B2, toutes trois chargées à 40% dans le PLA) une légère augmentation de la résistance en flexion (**Figure 51**). À titre d'exemple, pour le cas du biocomposite PLA/B2 (60/40), identifié comme le plus résistant mécaniquement, les tests en flexion et en traction ont révélé les deux points suivants :

- Les modules d'élasticité en flexion et en traction sont augmentés de 164% et 197%, respectivement, par rapport au PLA seul.

- La résistance en flexion du biocomposite (80 MPa) est de 8% supérieure à celle de la matrice polyester seule.

Dans ces trois cas de figure, et bien qu'aucun agent de couplage n'ait été ajouté pour compatibiliser l'interface matrice/fibre, il est raisonnable de penser qu'une bonne adhésion de la matrice à la fibre a été obtenue lors du compoundage en extrudeur bi-vis. À l'opposé, les fibres les plus courtes (B3 et surtout B4), toutes deux dispersées en forte proportion dans le PLA (40%), ont pour leur part contribué à une plus forte cristallinité du PLA dans le biocomposite (jusqu'à 13%), conduisant à une amélioration substantielle de la stabilité thermique de la matrice PLA (mobilité des chaînes polymères

entravée), la meilleure de l'ensemble de l'étude : seulement 5% pour la déformation en température estimée par Gamon et al. (A9) en étuve ventilée (80 °C, 1 h).



Des mélanges composites EVOH/SBO ont ainsi été produits par Franzoso par utilisation de ces deux types de charge, incorporée dans l'EVOH à différents taux (**A18**). Puis, ils ont été caractérisés par spectroscopie FTIR, par chromatographie d'exclusion stérique (SEC) et par analyse MALS, et leurs propriétés thermiques, rhéologiques et mécaniques ont également été déterminées. Des différences de comportement entre les différents composites ont ainsi pu être mises en évidence. Et, il a été montré qu'une réaction de condensation se produisait entre l'EVOH et les deux charges SBO testées. En effet, l'analyse FTIR de l'EVOH pur révèle la présence de bandes d'absorption centrées à 1460, 1334, 1140 et 1040 cm^{-1} , résultant des vibrations des liaisons C-C, C-H et C-O-H, respectivement, de sa structure moléculaire (**Figure 52**). De façon très intéressante, dans le cas des mélanges composites EVOH/SBO, il est alors observé une augmentation relative de la bande à 1040 cm^{-1} par rapport à celle à 1140 cm^{-1} , ce phénomène devenant de plus en plus marqué avec l'augmentation progressive du taux de charge dans l'EVOH. Dans la mesure où l'absorption à 1040 cm^{-1} est plutôt négligeable sur les spectres obtenus à partir des deux charges SBO (FORSUD et CVT230) analysées seules, l'augmentation relative de l'intensité de cette absorption à l'intérieur des mélanges composites EVOH/SBO a ainsi suggéré la formation de nouvelles liaisons C-O-C (liaisons de type aralkyl éther), s'expliquant par l'apparition d'une réaction de condensation se produisant entre les groupements hydroxyles de l'EVOH et les groupements phénoliques des deux charges SBO testées. Des molécules à l'intérieur desquelles le biopolymère utilisé en guise de charge est lié par covalence au polymère synthétique sont ainsi générées par un procédé d'extrusion dite réactive, ce qui a pu être confirmé de façon certaine en chromatographie d'exclusion stérique (SEC) par l'apparition de produits présentant des poids moléculaires plus élevés que ceux de l'EVOH et des charges seules.

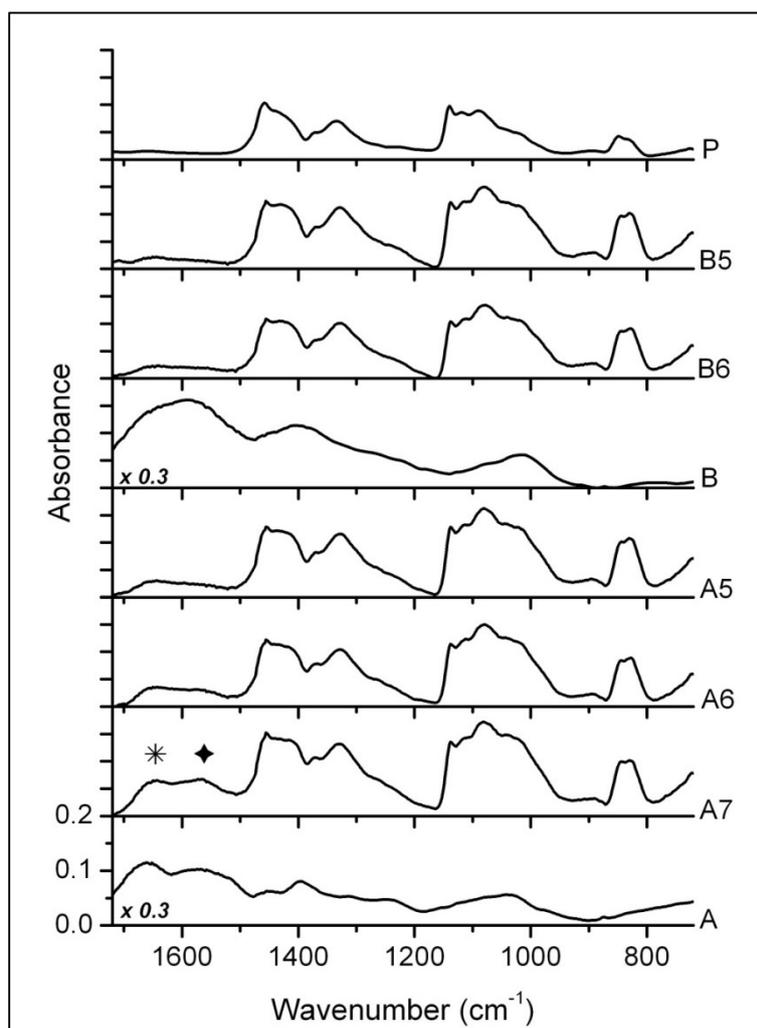


Figure 52

Spectres FTIR en mode ATR de l'EVOH seul (P), du FORSUD seul (A), du CVT230 seul (B), des mélanges composites EVOH/FORSUD contenant 17% (A5), 29% (A6) et 41% (A7) de FORSUD, et des mélanges composites EVOH/CVT230 contenant 17% (B5) et 29% (B6) de CVT230 (A18).

Les symboles en forme d'étoile et de diamant sont associés aux deux principaux signaux émis par les seuls FORSUD et CVT230.

Lors de l'étude menée par Franzoso, les résultats les plus prometteurs ont ainsi été obtenus avec des mélanges contenant jusqu'à 10% de la charge FORSUD, issue pour rappel du digestat de fermentation anaérobie de déchets urbains. Par rapport à l'EVOH pur, ces mélanges composites EVOH/FORSUD présentent une plus faible viscosité en phase fondue mais des propriétés mécaniques parfaitement comparables. Par ailleurs, l'étude a également permis de montrer que les propriétés des mélanges composites EVOH/SBO obtenus dépendaient fortement de la technique de mise en forme utilisée (*solvent casting* ou compoundage par extrusion bi-vis à l'aide du MiniLab). La technique dite de *solvent casting* (ou coulée au solvant) obligeant néanmoins à travailler en milieu liquide par ajout d'un solvant organique particulièrement toxique, en l'occurrence le DMSO, capable de dissoudre l'EVOH mais qu'il est donc ensuite nécessaire d'évaporer pour générer le film composite EVOH/SBO, c'est bien entendu la technique d'extrusion bi-vis qui a été identifiée comme la plus respectueuse de l'environnement mais aussi comme la plus apte à être mise en œuvre à l'échelle industrielle.

Sur la base de ces premiers résultats acquis par Franzoso et al. (A18), de nouveaux mélanges composites EVOH/SBO ont donc été produits par Nisticò (PD2). Mais, c'est cette fois-ci uniquement

la technologie d'extrusion mono-vis qui a été mise en œuvre par utilisation d'une extrudeuse mono-vis de type Scamex (France), d'un diamètre de vis et d'un ratio L/D égaux à 30 mm et 26, respectivement (A23). L'utilisation d'une filière spécifique (filière de type pain-plat, à hauteur de lèvre réglable) en sortie du fourreau a alors permis d'obtenir en une seule étape et de façon continue des films composites EVOH/SBO. Le procédé ainsi développé présente donc l'avantage d'être facilement transposable en industrie.

Pour un taux d'incorporation de SBO ne dépassant pas 5% en masse dans l'EVOH, les caractéristiques physico-chimiques des films composites obtenus ne semblent pas être influencées de manière significative par ce taux, les comportements alors observés étant semblables à ceux de films faits uniquement d'EVOH. Par ailleurs, bien que le temps de séjour du mélange dans la ligne d'extrusion mono-vis ait été fortement diminué par comparaison aux premiers essais menés en micro-compoundeur Thermo Hakke MiniLab (quelques dizaines de secondes contre plusieurs minutes précédemment) (A18), il a été à nouveau confirmé qu'une réaction de condensation entre les groupements hydroxyles de l'EVOH et les groupements phénoliques des deux charges SBO testées se produisait bien là encore lors de l'extrusion mono-vis, conduisant à la formation de nouvelles liaisons de type aralkyl éther (C-O-C) reliant par covalence la matrice à la charge à l'intérieur des films extrudés.

Un ultime développement des mélanges EVOH/SBO ainsi extrudés sous forme de films pourrait consister en l'ajout par compoundage bi-vis dans les formulations d'auxiliaires tels que des plastifiants ou des compatibilisants (agents de couplage), ce qui devrait favoriser une meilleure résistance de l'interface entre la matrice EVOH et la charge SBO. Par ailleurs, une étape de scale-up du compoundage à l'aide d'un extrudeur bi-vis de haute capacité (Clextral Evolum HT 53) reste encore à mener. Il n'en demeure pas moins que les films composites déjà mis au point sont parfaitement utilisables en l'état en tant que films de paillage, notamment pour une utilisation dans des secteurs comme ceux de l'agriculture ou de l'horticulture (A23).

VIII. Bilan et perspectives (projet scientifique) :

1. Bilan :

Sur la base des travaux développés au cours de mes activités de recherche, le réacteur bi-vis a tout d'abord permis de mettre en place une bioraffinerie du tournesol (**A22**), qui a fait l'objet du dépôt d'un brevet d'invention auprès de l'INPI en 2012 (**B1**). Fonctionnant en continu, ce procédé intensifié et innovant permet le fractionnement thermo-mécano-chimique de la plante entière, conduisant à l'extraction aqueuse de l'huile et d'autres biopolymères tels que des protéines, tout particulièrement celles issues de la famille des albumines, des substances pectiques et des sucres non pectiques. Lorsqu'il est positionné en toute fin de fourreau, c'est-à-dire en amont immédiat des éléments à pas inverse, un module de filtration permet la collecte séparée d'un extrait liquide, le **filtrat**, et d'un raffinat solide, le **tourteau**. Et, c'est la teneur en fibres lignocellulosiques naturellement élevée dans la tige qui favorise alors la séparation liquide/solide. L'huile végétale est extraite sous la forme de deux émulsions huile/eau, stabilisées à l'interface par des agents tensioactifs naturels, co-extraits au cours du processus d'extraction aqueuse : les phospholipides et les protéines. Des substances pectiques et des sucres non pectiques complètent la teneur en matière sèche de l'émulsion la plus dense, à savoir la phase hydrophobe inférieure.

Le fractionnement global de la biomasse peut ainsi être envisagé par utilisation de cet équipement commercial, permettant une valorisation complète de la matière entrante, y compris les sous-produits de la culture du tournesol que sont les tiges et les capitules. Par ailleurs, des applications commerciales ont pu être clairement identifiées pour les différentes fractions issues de ce bioraffinage bi-vis (**Figure 35**) :

■ La **phase hydrophobe supérieure** (à savoir l'émulsion huile/eau la moins dense) est un bon candidat pour le traitement de la surface des agromatériaux afin de les rendre moins sensibles à l'eau. En outre, sa démixtion à l'aide d'éthanol absolu ou d'un mélange éthanol/éther diéthylique (3/1) permet la production de protéines tensioactives utilisables pour des applications alimentaires.

■ Pour sa part, la **phase hydrophobe inférieure** pourra être utilisée en tant que co-émulsifiant pour la formulation de crèmes cosmétiques, en particulier des crèmes de nuit hautement pénétrantes et présentant un pouvoir émollient élevé.

■ Contenant une partie des constituants hydrosolubles de la plante entière, principalement des protéines et des substances pectiques, la **phase hydrophile** constitue une phase très diluée. Elle pourra être recyclée en tête de procédé, réduisant ainsi la consommation d'eau en entrée du réacteur bi-vis.

■ Mélangé avec le pied du filtrat (à savoir les particules solides entraînées à travers le filtre lors de la séparation liquide/solide), le **tourteau** est un mélange de fibres lignocellulosiques et de protéines. Ces dernières ayant été dénaturées au niveau des éléments à pas inverse lors du fractionnement thermo-mécano-chimique de la plante entière en réacteur bi-vis, elles peuvent être utilisées en tant que résine naturelle, permettant la production de panneaux de fibres auto-liés par thermopressage. En fonction des conditions utilisées lors du moulage, les caractéristiques des panneaux de fibres ainsi obtenus sont très différentes :

● Les panneaux de haute densité ($> 1150 \text{ kg/m}^3$) sont beaucoup plus résistants mécaniquement et moins sensibles à l'eau. Ils pourront être mis en œuvre comme des panneaux travaillants, utilisés en milieu sec (type P4) : sous-couches pour le sol, cloisons intérieures de maisons, fabrication de meubles, etc.

- À l'inverse, les panneaux de densité moyenne (500-850 kg/m³) ou ceux de faible densité (250-450 kg/m³) sont bien moins résistants mécaniquement. Néanmoins, leurs propriétés d'isolation thermique prometteuses, notamment celles des panneaux de plus faible densité, permettront de les utiliser pour l'isolation des bâtiments, en particulier en les positionnant dans les murs et les plafonds.

- Enfin, le tourteau pourra également être utilisé en tant que matériau d'isolation en vrac, tout particulièrement dans les combles des maisons.

En conclusion, telle que décrite ci-dessus, cette bioraffinerie du tournesol constitue un procédé non seulement efficace mais également respectueux de l'environnement. Par ailleurs, elle permet une valorisation de tous les constituants de la plante, ce qui pourrait à terme générer une source additionnelle de revenus pour les agriculteurs. Un travail d'expérimentation de plus grande envergure est d'ailleurs actuellement en cours sur ce sujet, en collaboration avec la Fondation LUMA d'Arles (lieu d'exposition, d'expérimentation et d'innovation en matière d'art et de prospective culturelle, et qui vise notamment à développer des activités de recherche, de production, d'exposition, et de présentation dans les domaines de l'art, des droits de l'homme et de l'environnement). La mise en culture de plusieurs hectares de tournesol est ainsi effectuée chaque année dans la région d'Arles depuis 2017.

Sur ce même principe, d'autres procédés de bioraffinage mettant également en jeu le fractionnement thermo-mécano-chimique de la biomasse en réacteur bi-vis ont été développés, et ce à partir d'autres plantes oléagineuses, en particulier le neem, le jatropha et la coriandre.

- Là encore, des applications commerciales ont été identifiées pour les différents extraits lipidiques obtenus :

- L'huile de neem pourra être utilisée pour ses propriétés biocides et insecticides, s'expliquant par l'activité biologique de l'azadirachtine, le principal toxique présent dans cette huile végétale, et de ses dérivés (Faye, 2010).

- Impropre à la consommation humaine en raison de la présence d'un agent toxique, l'ester de phorbol, l'huile de jatropha pourra être utilisée comme base de fabrication d'un biodiesel, garantissant ainsi une certaine indépendance énergétique à des pays comme l'Indonésie qui ne disposent d'aucune ressource fossile ou presque (**A7, A8, A10, A21**).

- Enfin, outre sa composition originale en acides gras (richesse en acide pétrosélinique) qui a des vertus reconnues sur la santé humaine, l'huile de coriandre est une huile végétale riche en antioxydants (**A15**) mais également agréablement parfumée, s'expliquant par la co-extraction en réacteur bi-vis des huiles végétale et essentielle contenues dans la graine. La concentration en composés organiques volatils (COV) dans l'huile végétale obtenue par pressage mécanique en réacteur bi-vis a ainsi été estimée à environ 35,3 mg/g dont 25,3 mg/g pour le seul linalool. Parmi les autres constituants identifiés, citons ici l' α -pinène, le limonène, le γ -terpinène, etc., provenant eux aussi de l'huile essentielle de coriandre. Cette huile végétale odorante pourra trouver une utilisation en tant qu'ingrédient ou complément alimentaire, comme base de formulation de crèmes cosmétiques, en nutrition, en pharmacie ou pour la fabrication de nouveaux intermédiaires réactionnels par modification chimique de l'acide pétrosélinique (**A15 ; API ; C13 ; P37 ; Uitterhaegen, 2018**). Notre client Ovalie Innovation envisage ainsi la création d'une unité d'extraction de cette huile d'ici à Août 2020, date de la prochaine récolte. De taille industrielle, cette unité permettra à Ovalie Innovation d'approvisionner ses clients industriels en huile parfumée de coriandre, correspondant à un besoin de 50 à 80 hectares de culture en 2020 et autant en 2021, dont les deux tiers en culture biologique. Néanmoins, en attendant qu'Ovalie Innovation ne dispose de sa propre unité de pressage bi-vis, c'est actuellement la halle AGROMAT qui accompagne l'entreprise à la mise sur le marché de l'huile de coriandre, en produisant pour elle des premiers lots en sous-traitance. Pour finir, signalons

ici que l'huile de coriandre a été récompensée en 2016 lors de la quatrième édition du concours Sud'INNOV de la Région Occitanie. Cette même année, un jury d'experts du domaine des produits alimentaires intermédiaires l'a également primée lors du Salon International de l'ALimentation (SIAL), lui accordant le label « *Sélection SIAL Innovation Paris 2016* ».

■ Quant aux raffinats solides également générés (les tourteaux), leur transformation en panneaux de fibres et/ou de particules par la technique de thermopressage a été validée pour les cas du jatropa (A12) et de la coriandre (A19 ; A25 ; A30 ; AC17 ; C13 ; C16 ; C18 ; P35 ; P37 ; P38 ; P43 ; P44 ; Uitterhaegen, 2018) (Tableau 23 et Figure 53), conduisant à l'obtention de matériaux cohésifs à la fois biosourcés et biodégradables, et susceptibles de trouver des applications dans des domaines tels que ceux de l'ameublement ou du bâtiment. Ces travaux se sont poursuivis dans le cadre de la Thèse de Doctorat de Mlle Bouchra Sayed Ahmad (AT15), cette fois-ci à partir de tourteaux issus du pressage mécanique en presse mono-vis de l'huile de graines de fenouil commun (*Foeniculum vulgare*), une autre plante appartenant à la famille des Apiacées et dont l'huile essentielle est particulièrement riche en anéthol (Sayed Ahmad, 2018).

Par ailleurs, dans le cadre d'un PHC NUSANTARA en collaboration avec l'Institut Pertanian Bogor (Indonésie) (PI14), une étude similaire a également été menée pour la valorisation de tourteaux issus du pressage mécanique puis de l'extraction aqueuse en réacteur bi-vis de l'huile végétale et de la résine contenues dans les graines de *Calophyllum inophyllum*. Dans les meilleures conditions d'extraction, 63% de la fraction lipidique est ainsi extraite en deux réacteurs bi-vis successifs, les tourteaux produits présentant une teneur résiduelle en lipides comprise entre 16,7 et 19,1% de leur masse sèche contre 74,0% initialement dans l'amande de la graine (AP5, AP6).

Une première étude a d'ores et déjà montré que ces tourteaux pouvaient eux aussi être utilisés pour la fabrication de panneaux de fibres auto-liés par thermopression, les fibres lignocellulosiques et les protéines en provenance de l'amande agissant respectivement comme charge de renfort et liant naturel. Des panneaux cohésifs ont ainsi été obtenus à partir des conditions suivantes de thermopressage : 200 °C pour la température du moule, 20 MPa pour la pression appliquée et 300 s pour le temps de pressage.

Et, comme déjà observé pour les cas des tourteaux de tournesol issus de la plante entière (A13) et des tourteaux de coriandre (A25), les meilleures propriétés mécaniques ont été obtenues pour le cas d'un panneau fabriqué à partir d'un tourteau préalablement délipidé au cyclohexane dans un appareil de type Soxhlet (4,3 mm pour son épaisseur) : 1185 kg/m³ pour la densité, 78,8° pour la dureté de surface Shore D (au lieu de 69,5° sans délipidation préalable), 23,7 MPa pour la résistance à la rupture en flexion (au lieu de 15,4 MPa) et 3,1 GPa pour le module d'élasticité (au lieu de 2,0 GPa). En parallèle, le gonflement en épaisseur de ce panneau a également été mesuré après 24 h d'immersion dans l'eau : il était de 43,9%, diminuant jusqu'à 27,6% après traitement thermique (200 °C pendant 10 min).

Selon la norme française NF EN 312 dédiée aux spécifications des panneaux de particules, un tel panneau de fibres serait d'ores et déjà apte à être utilisé comme un panneau de type P7 (panneau travaillant sous contrainte élevée et en milieu humide) pour ses propriétés en flexion (recommandations de 21 MPa et de 3,1 GPa pour la résistance à la rupture en flexion et pour le module d'élasticité, respectivement, pour des panneaux d'une épaisseur comprise entre 4 et 6 mm). Seul le gonflement en épaisseur après immersion dans l'eau devra encore être réduit grâce à un post-traitement supplémentaire (une enduction de la surface du panneau par exemple) pour atteindre la valeur recommandée par la norme pour les panneaux de type P7 (10%). Particulièrement prometteurs, ces premiers résultats ont été présentés lors de la 4th International Conference on Biobased Materials and Composites (ICBMC2017) qui s'est tenue à Nantes (France) en Mars 2017 (C8, P31). Ils feront également l'objet d'une publication dans le *Journal of Renewable Materials*, actuellement en cours de préparation (AP7).

■ Signalons également ici que le fractionnement thermo-mécano-chimique de la graine de coriandre en réacteur bi-vis a permis l'obtention d'une **eau aromatique** en plus de l'**huile de pressage**

(Uitterhaegen, 2018). En effet, il est possible de collecter les vapeurs s'échappant de la sortie solide du réacteur bi-vis, celles-ci étant ensuite condensées par passage dans un réfrigérant. L'analyse du condensat liquide obtenu à la base du réfrigérant a été effectuée comme pour l'huile végétale par échantillonnage de l'espace de tête (HeadSpace), suivi d'une analyse chromatographique (GC-FID/MS). La réponse obtenue a permis de mettre en évidence que ce condensat contenait lui aussi du linalool mais aussi de l' α -pinène, du γ -terpinène, du camphor, de l'acétate de géranyle, etc. (**Figure 54**). Ces volatils sont précisément les composés majoritaires de l'huile essentielle de coriandre lorsque celle-ci est obtenue par un procédé classique d'hydrodistillation, prouvant bien que le condensat contient une partie de cette huile essentielle, comme cela avait déjà été mis en évidence pour l'huile de pressage. Le fractionnement thermo-mécano-chimique de la graine de coriandre en réacteur bi-vis génère donc deux extraits liquides différents en plus du raffinat solide (le tourteau) : une **huile végétale odorante** et un condensat enrichi en huile essentielle (**eau aromatique**) qui devrait selon toute vraisemblance trouver des applications dans le domaine de la parfumerie (**Figure 55**).

■ Pour la coriandre, un schéma de valorisation a également été proposé pour la paille dans le domaine des matériaux (Uitterhaegen, 2018 ; **AP8** ; **AC19** ; **C16** ; **C18** ; **P38** ; **P44**) (**Figure 53**), s'expliquant par sa richesse naturelle en fibres lignocellulosiques (80,1% de sa masse sèche) (**A19**). En effet, représentant de 75 à 85% en masse de la partie aérienne de la plante selon les conditions climatiques, ce déchet de la culture de la coriandre pourra être utilisé :

● pour la fabrication de panneaux de fibres, seul ou en mélange avec le tourteau déshuilé issu du pressage mécanique des graines en extrudeur bi-vis ; les panneaux auto-liés ainsi obtenus sont des panneaux rigides et de haute densité qui pourront trouver une utilisation dans l'industrie du bâtiment (sous-couches pour le sol, cloisons intérieures, dalles de plafond, etc.) ou dans l'ameublement. Une première série d'essais a pu être réalisée dans le cadre de la Thèse de Doctorat de Mlle Uitterhaegen à partir d'une paille de coriandre broyée à 7,5 mm. Et, même s'il est possible d'obtenir des panneaux cohésifs par pressage à chaud à l'aide de la seule paille de coriandre, s'expliquant par la présence à l'intérieur de ce résidu d'une fraction hémicellulosique (15,0%) mais aussi d'une fraction ligneuse (13,6%) (**A19**), l'ajout à cette paille d'un tourteau déshuilé issu du pressage mécanique des graines en réacteur bi-vis (25% de tourteau déshuilé pour 75% de paille de coriandre) permet une nette augmentation des propriétés en flexion du panneau de fibres « 100% coriandre » obtenu à 200 °C et sous une pression de 36,8 MPa, appliquée pendant 180 sec : +89% pour la résistance à la rupture en flexion (de 7,9 à 14,9 MPa) et +73% pour le module d'élasticité en flexion (de 1,9 à 3,3 GPa) (Uitterhaegen, 2018). Un tel phénomène s'explique par le rôle adhésif joué par les protéines du tourteau déshuilé à l'intérieur du matériau (**A19**, **A25**, **A30**, **AC17**, **P35**, **P43**), et conduisant à un meilleur mouillage des fibres de la paille par ce liant protéique. Dans le même temps, une amélioration substantielle de la résistance à l'eau du panneau de fibres a été observée en présence de tourteau déshuilé, malgré des densités parfaitement comparables (1145 kg/m³ environ). Une optimisation de ce panneau de fibres a depuis consisté en l'utilisation d'une paille de coriandre non pas simplement broyée mais ayant subi au préalable un traitement de défibrage thermo-mécanique en réacteur bi-vis et en présence d'eau. En effet, les panneaux de fibres obtenus par thermopressage (205 °C pour la température du moule et 21,6 MPa pour la pression, appliquée pendant 300 sec) après mélange de la paille de coriandre extrudée et du tourteau de coriandre déshuilé se sont avérés être encore plus résistants mécaniquement : 26,7 MPa pour la résistance à la rupture en flexion et 3,9 GPa pour le module d'élasticité en flexion, pour une densité de 1274 kg/m³ (**A30**, **AC17**, **C16**, **C18**, **P35**, **P38**, **P43**, **P44**). Une telle différence entre les panneaux issus de la paille broyée et ceux issus de la paille extrudée s'explique par les caractéristiques morphologiques améliorées des fibres extrudées. En effet, lors de son traitement thermo-mécanique en réacteur bi-vis, le cisaillement mécanique intense appliqué à la paille de coriandre a permis une fibrillation de ses

fibres, générant des fibres de bien plus petit diamètre que par broyage. Le pré-traitement thermomécanique bi-vis conduit alors à des fibres lignocellulosiques disposant d'un facteur de forme moyen bien plus élevé que celles contenues dans le broyat (26,5 au lieu de 4,5), permettant ainsi une meilleure adhésion et un meilleur enchevêtrement des fibres entre elles lors du moulage à chaud et conduisant donc à des panneaux de fibres disposant de propriétés mécaniques nettement améliorées.

● pour la fabrication de panneaux de basse densité par moulage par compression, qu'ils aient été obtenus à partir de la paille broyée ou de la paille extrudée, après ajout d'un liant naturel ; de tels blocs isolants pourront être utilisés pour l'isolation thermique des bâtiments (murs et plafonds). Signalons d'ailleurs ici que la paille broyée à 7,5 mm a d'ores et déjà révélé des aptitudes remarquables en tant qu'isolant thermique, non seulement en vrac (seulement 50,4 mW/m.K pour sa conductivité thermique à 25 °C, s'expliquant par une faible valeur de sa densité tapée, estimée à 81 kg/m³) mais également sous la forme d'un bloc isolant moulé à froid par compression (87 kPa pendant 30 sec), après ajout de 15% d'une colle amyliacée (Uitterhaegen, 2018 ; **AP8** ; **AC19** ; **C16** ; **P38** ; **P44**). Avec une densité de 155 kg/m³, un tel bloc isolant (**Figure 56**, cf. illustration de gauche) présente une conductivité thermique de seulement 55,6 mW/m.K. Pour rappel, le bloc isolant moulé à froid dans les mêmes conditions à partir d'un tourteau issu du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol avait révélé une performance moindre à l'isolation thermique : 75,7 mW/m.K pour la conductivité thermique (**A16**).

● pour la fabrication de matériaux sandwichs de type PF-BI-PF (PF, panneau de fibres auto-lié, rigide et de haute densité ; BI, bloc isolant de basse densité) (**Figure 56**, cf. illustration de droite) ; positionnés dans les cloisons et/ou à l'intérieur des murs des constructions en bois, de tels complexes pourraient agir à la fois comme isolant thermique et comme barrière à la vapeur d'eau (pare-vapeur) (**C16** ; **CO18**, **CO22** ; **P38** ; **P44**).

● pour la fabrication de pièces injectées ou extrudées, après compoundage bi-vis dans une matrice thermoplastique (PE, BioPE, PP, PVC, PLA, recyclé ou non, PHB, PHV, PHBV, etc.) et couplage de l'interface matrice/fibre (**M14**) ; les pièces ainsi obtenues pourront être utilisées pour un très grand nombre d'applications (profilés utilisés comme revêtements techniques, comme planchers, comme plinthes, comme terrasses, comme portes ou comme montants de fenêtres, pièces d'aménagement intérieur pour le secteur automobile, etc.), la paille de coriandre agissant alors comme un renfort mécanique pour la matrice. D'ailleurs, lors du stage de Sara Quevedo (**M14**), la paille broyée à 1 mm a d'ores et déjà révélé une bonne aptitude au renforcement mécanique du polypropylène (Quevedo, 2016). En effet, l'ajout au mélangeur interne Thermo (Allemagne) Rheomix 600p de 25% de paille de coriandre (PC) à cette matrice fossile s'accompagne d'une augmentation de +69% de son module d'élasticité en flexion (de 666 à 1127 MPa). Dans le même temps, la présence d'un agent de couplage (PP-g-MA) à hauteur de 2,5% dans le compound PP/PC, correspondant donc à une fraction massique égale à 10% de la paille ajoutée, favorise une bonne adhésion de l'interface matrice/fibre (**Figure 57**). La contrainte à la rupture en flexion du PP est ainsi légèrement augmentée (+18%) : de 17,7 MPa pour le PP seul à 20,8 MPa pour le compound PP/PC/PP-g-MA (72,5/25,0/2,5). Ces travaux se sont poursuivis avec une seconde stagiaire, Julie Parinet, en provenance de l'ENIT (**M18**). Et, c'est cette fois-ci un extrudeur bi-vis de type Clextral Evolum 25 qui a été utilisé comme outil continu de compoundage, permettant du même coup d'accéder à des taux d'incorporation de PC dans PP bien supérieurs (jusqu'à 50%). Par ailleurs, au cours de ce travail, un bioplastique a également été testé en guise de matrice thermoplastique : il s'agit du BioPE. Les résultats obtenus sont particulièrement prometteurs, une augmentation progressive des modules élastiques mais aussi des contraintes à la rupture ayant été observée avec

L'augmentation du taux d'incorporation en paille de coriandre, tant en traction qu'en flexion, et ce pour les deux bases utilisées. Par ailleurs, l'étude a permis de montrer que ces nouveaux biocomposites pouvaient être recyclés au moins cinq fois sans altération de leurs performances mécaniques. Ils ont également révélé une excellente durabilité grâce à une bonne préservation de ces mêmes performances après vieillissement accéléré (UV et/ou hygrothermique). Ces résultats ont été présentés lors du 3^{ème} séminaire du Groupe de Recherche SYMBIOSE (SYnthons et Matériaux BIOSourcÉs) qui s'est tenu au Printemps 2017 à La Grande Motte (CO18) ainsi qu'au Forum Recherche & Industrie organisé à Paris au début de l'année 2018 par l'Institut Carnot 3BCAR et portant sur les matériaux biosourcés (CO22). Ils ont également fait l'objet d'une publication dans le journal *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* (A37). Enfin, une comparaison de la paille de coriandre avec deux farines commerciales de granulométrie équivalente (200-400 µm) et présentant des compositions chimiques voisines, l'une issue de bois dur (feuillus) et l'autre de bois tendre (essences d'épicéa et de sapin), a montré qu'elle présentait la même aptitude au renforcement mécanique du PP que ces deux produits commerciaux (A37). Il est ainsi maintenant plus facile pour Ovalie Innovation de positionner la paille de coriandre sur le marché des fibres végétales destinées au renfort des composites de type bois/polymère (WPC). Pour la suite, l'incorporation de la paille de coriandre dans une matrice PLA pourra être envisagée, permettant du même coup l'obtention de biocomposites PLA/PC compostables industriellement (selon la norme NF EN 13432). La matrice PLA pourra également être remplacée par un autre polyester, issu par exemple de la famille des PHAs (PHB, PHV, PHBV, etc.) et donc produit directement par des bactéries, qui pourra être utilisé seul ou en mélange avec des biopolymères (amidon plastifié ou protéines dénaturées par exemple). Ce faisant, le(s) mélange(s) thermoplastique(s) composite(s) obtenu(s) serai(en)t plus favorable(s) à un compostage « à la maison » (compostage domestique), pouvant ainsi satisfaire aux exigences du décret n° 2016-1170 en date du 30 Août 2016. Ce décret vise en effet à interdire à partir du 1^{er} Janvier 2020 la mise à disposition de pièces plastiques jetables (gobelets, verres, couverts, barquettes et assiettes jetables, etc.), à l'exception de celles compostables en compostage domestique (selon la norme NF T51-800) et constituées, pour tout ou partie, de matières biosourcées. Pour ces différents mélanges biocomposites, l'ajout d'esters de cellulose voire même de fibres lignocellulosiques modifiées chimiquement en guise d'agents de couplage pourra également être proposé, le contrôle de leur taux de greffage d'une part, et de la longueur de la chaîne grasse greffée d'autre part, devant permettre une optimisation de l'effet attendu de compatibilisation de l'interface matrice/fibre. Mes collègues de l'équipe de recherche « *Lipochimie et Réactivité Chimique des Agromolécules* » travaillant activement sur la réactivité chimique des composés lignocellulosiques seront des partenaires de choix pour la synthèse de tels agents de couplage. Il en sera à nouveau question un peu plus loin, dans la partie consacrée à mon projet de recherche. D'ailleurs, pour répondre à cette question scientifique majeure, nous avons déjà soumis en 2017 avec mes collègues Jérôme Peydecastaing et Guadalupe Vaca-Medina un projet allant dans ce sens, le projet **CompFib-Mat**, dans le cadre de l'appel à projet **InterReg V Sudoe** de l'**Union Européenne** (programme de coopération territoriale de l'Europe du Sud-Ouest). Porté par Toulouse INP, ce travail de recherche n'avait pas été accepté à financement. Il sera redéposé ultérieurement après avoir été amendé.

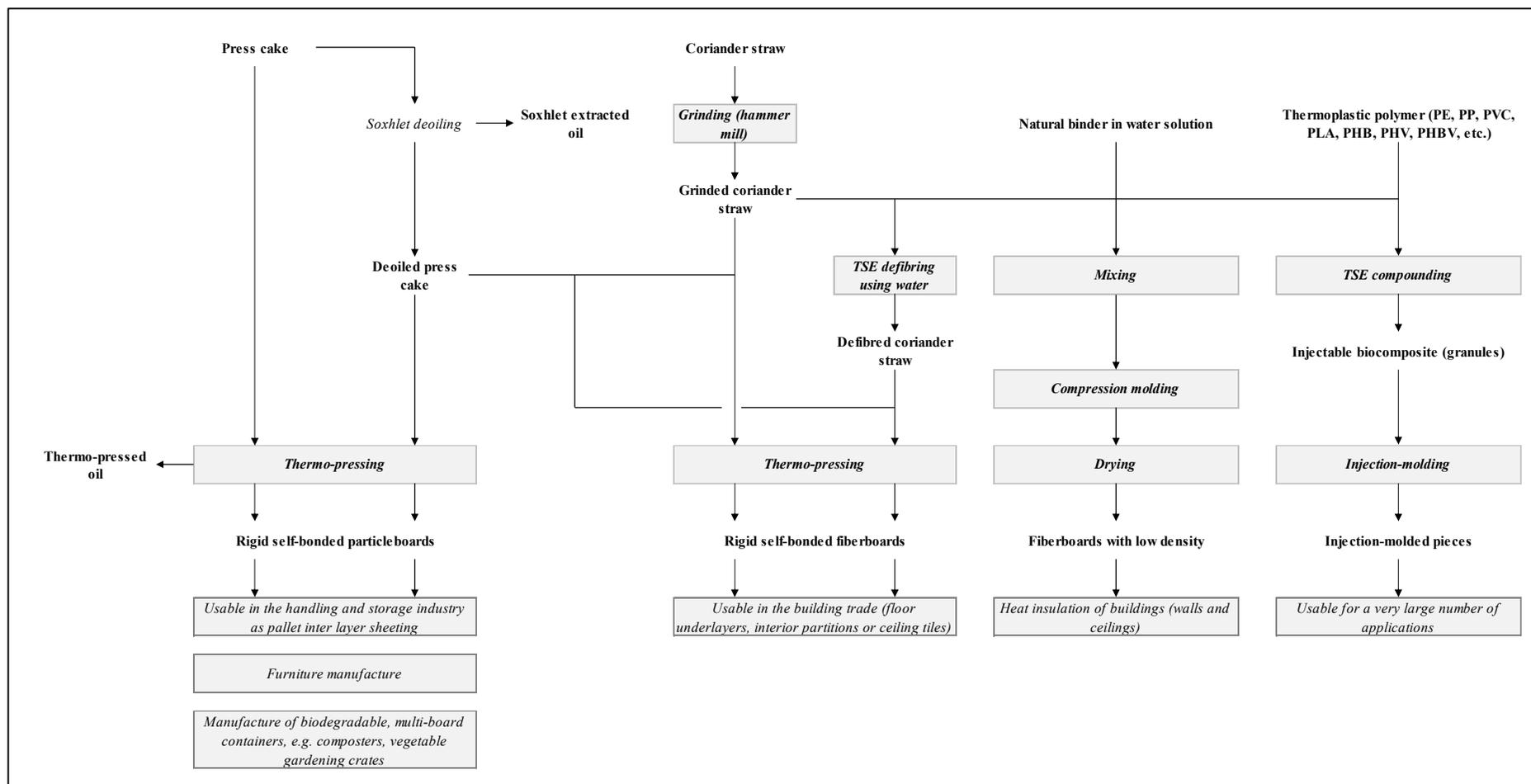


Figure 53

Schéma global de valorisation proposé pour le tourteau de coriandre issu du pressage mécanique des graines en réacteur bi-vis et pour la paille de coriandre dans le domaine des matériaux (Uitterhaegen, 2018 ; AP8 ; AC19 ; C16 ; C18 ; P38 ; P44).

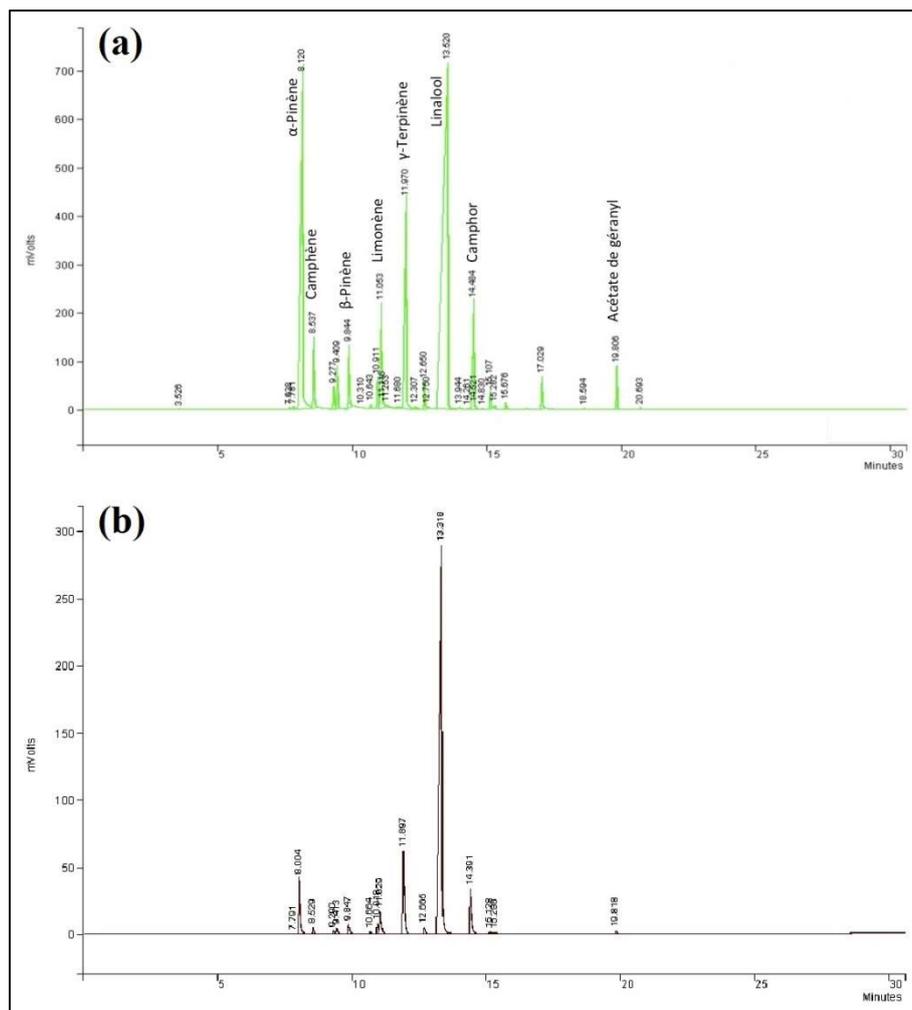


Figure 54
Chromatogrammes obtenus par échantillonnage SPME et analyse GC-FID de l'espace de tête de l'huile végétale de pressage (a) et du condensat (b) des vapeurs s'échappant de la sortie solide du réacteur bi-vis lors du fractionnement thermo-mécano-chimique de la graine de coriandre (Uitterhaegen, 2018).

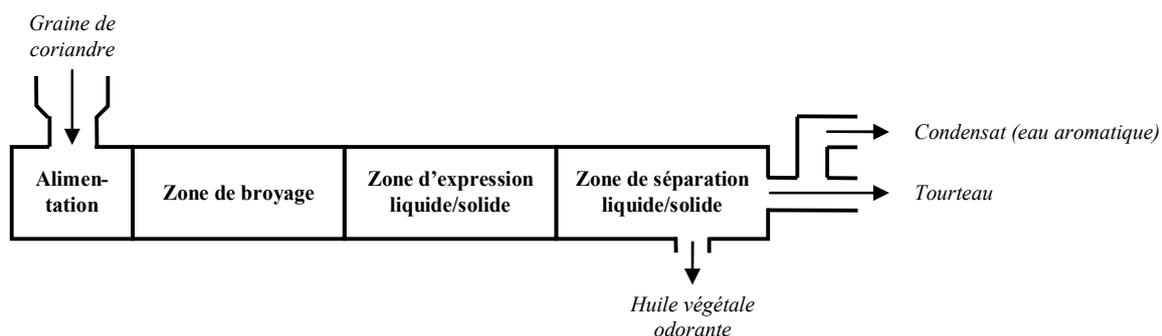


Figure 55
Schéma général du fractionnement thermo-mécano-chimique de la graine de coriandre en réacteur bi-vis, faisant apparaître les trois fractions produites : une huile végétale odorante, un condensat enrichi en huile essentielle (eau aromatique) et un raffinat solide (tourteau) (Uitterhaegen, 2018).

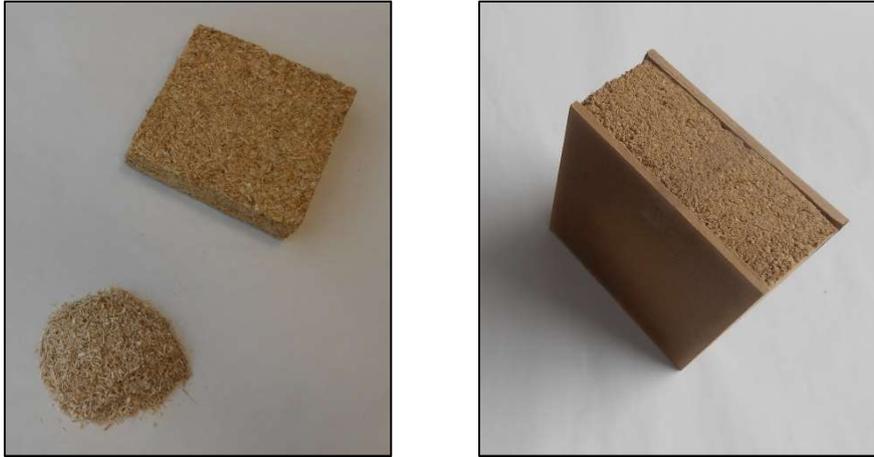


Figure 56

Paille de coriandre broyée à 7,5 mm et bloc isolant issu de cette paille et contenant 15% d'un liant amylicé, obtenu par moulage par compression (illustration de gauche) (Uitterhaegen, 2018 ; **AP8** ; **AC19** ; **C16** ; **P38** ; **P44**) ; matériau sandwich (isolant thermique et pare-vapeur) de type PF-BI-PF (illustration de droite) (**C16** ; **CO18** ; **CO22** ; **P38** ; **P44**).

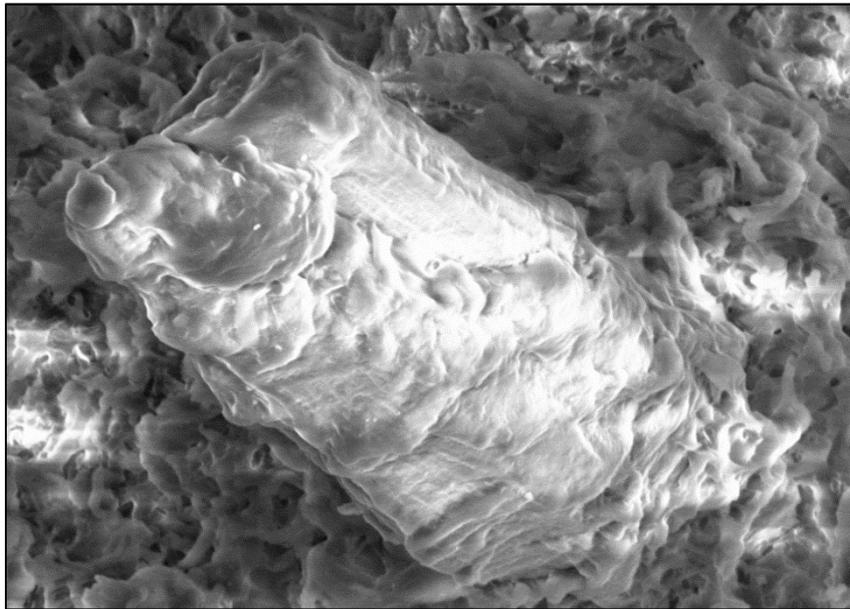


Figure 57

Cliché au microscope électronique à balayage Zeiss (Allemagne) EVO HD 15 LS du faciès de rupture en flexion d'un compound PP/PC/PP-g-MA (72,5/25,0/2,5) ($\times 1500$ pour le grossissement) (Quevedo, 2016).

Signalons également que mes travaux de recherche ont contribué au développement d'un modèle permettant de représenter les phénomènes de transport d'un mélange diphasique liquide/solide dans le fourreau d'un extrudeur bi-vis, à travers la distribution des temps de séjour de chaque phase dans les différents types d'éléments de vis présents le long du profil (**P7** ; **TD** ; Faye, 2010). Trois types d'éléments de vis ont ainsi été distingués, considérés comme indépendants les uns des autres :

- Les éléments non remplis (vis de convoyage).
- Les éléments partiellement remplis (éléments de malaxage monolobes et bilobes).
- Les éléments pleins (éléments à pas inverse ou contre-filets)

Le réacteur bi-vis peut alors être considéré comme la succession de trois appareils distincts : un broyeur, un mélangeur et un séparateur. Les temps de séjour moyens de la phase liquide et de la phase solide s'expriment alors comme la somme des contributions de chaque appareil unitaire, dans la direction de l'axe de l'extrudeur. Tel que développé, le modèle permet ainsi de prédire les conditions opératoires (vitesse de rotation des vis, débit entrant de solide et ratio liquide/solide) qui conduiront aux temps de séjour les plus élevés, tout particulièrement dans le mélangeur, siège de l'extraction liquide/solide, et dans le séparateur, siège de la séparation liquide/solide. En conclusion, l'utilisation de ce modèle permet un meilleur pilotage de l'outil bi-vis, apportant une aide non négligeable à l'opérateur pour le choix de conditions qui contribueront à une augmentation du rendement en lipides extraits à l'eau, synonyme de meilleure efficacité du procédé de bioraffinage. Ce modèle a été utilisé avec succès pour le cas du fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol en réacteur bi-vis (**P7, TD**) puis pour celui de l'extraction aqueuse de l'huile végétale de graines de neem (Faye, 2010).

2. Perspectives (projet scientifique) :

Au regard de mes activités de recherche déjà effectuées au LCA depuis 2004 et décrites de façon détaillée dans le paragraphe précédent et afin d'étendre, pour les années à venir, mes travaux portant (i) sur le fractionnement liquide/solide des plantes entières à l'aide de la technologie bi-vis et (ii) sur la valorisation des fibres lignocellulosiques, notamment celles issues de ce fractionnement, dans le domaine des matériaux, mon projet scientifique s'orientera autour des six axes suivants, les quatre premiers ayant en particulier pour objectif de concrétiser des collaborations directes avec d'autres membres du LCA et ainsi favoriser son rayonnement à l'international :

- La poursuite de mes travaux sur le **fractionnement thermo-mécano-chimique des plantes entières**, en particulier les plantes oléagineuses, en réacteur bi-vis.

- L'utilisation optimisées des **fibres courtes** issues du fractionnement bi-vis des plantes entières dans le domaine des biocomposites.

- L'étude de l'**émission de COV par les agromatériaux**, tout particulièrement les panneaux de fibres et les panneaux de particules auto-liés, obtenus par thermopressage des raffinats générés en extrudeur bi-vis.

- La **modélisation du fonctionnement des extrudeurs bi-vis**, ceci afin de faciliter le transfert des procédés de fractionnement liquide/solide de la matière végétale de la taille « *laboratoire* » (cas des extrudeurs bi-vis Clextral BC 21 & Clextral Evolum 25 présents au LCA) à la taille du « *pilote industriel* » (extrudeur bi-vis de haute capacité Clextral Evolum HT 53 de la plateforme AGROMAT).

- Outre la poursuite de ma participation aux activités d'enseignement auprès des étudiants de l'ENI de Tarbes et de l'IUT de Tarbes d'une part, et à l'encadrement de stagiaires (Master, Thèses de Doctorat, post-doctorats) présents au sein de la plateforme AGROMAT d'autre part, la mise en place de collaborations scientifiques avec les autres entités académiques présentes sur le site universitaire de Tarbes (volonté affichée de la SF SIRYUS), permettant au LCA d'accéder à des domaines de recherche non encore explorés :

- En collaboration avec Pierre Ouagne, Professeur des Universités au LGP-ENIT, la mise en place dans le cadre du CRTCI d'une thématique de recherche visant à produire à partir de **fibres longues et moyennement longues** des fils et des textiles (mats tissés) d'origine renouvelable pour la production de matériaux composites de moyenne et de haute performance : participation à l'achat de matériels (ligne cardée, ligne peignée, etc.), mise en place de projets de recherche communs en collaboration avec le LGP-ENIT, etc.

- En collaboration avec Camille Magniont, Maître de Conférences au Département Génie Civil Construction Durable de l'IUT de Tarbes et coordinatrice des activités de recherche

du LMDC (INSA-UPS) sur le site de Tarbes, le développement de travaux sur les **agro-bétons** par incorporation de granulats végétaux dans des liants minéraux.

Chacun de ces six axes de recherche de mon projet scientifique va maintenant être décrit plus en détail dans les pages suivantes.

a. Extension à d'autres matières premières du fractionnement thermo-mécano-chimique des plantes entières en réacteur bi-vis :

Tout d'abord, en prolongement de mes travaux déjà effectués à partir de la plante entière de tournesol ainsi que des graines de jatropha, de neem et de coriandre, le premier objectif de mon projet de recherche sera d'étendre l'utilisation de l'outil bi-vis au **fractionnement thermo-mécano-chimique de nouvelles matières premières** via un **procédé continu, avec ou sans ajout de solvant**.

Pour les oléagineux, l'extraction de l'huile végétale pourra être effectuée sans ajout de solvant (pressage mécanique), en présence d'eau, en présence d'un solvant aqueux (acide ou basique) ou de solvants polaires comme le bioéthanol ou d'autres alcools, etc. Une qualification exhaustive des extraits obtenus sera effectuée de façon à identifier précisément le(s) secteur(s) industriel(s) (alimentaire, cosmétique, énergétique, biocide, etc.) dans le(s)quel(s) ils pourront trouver une application commerciale :

■ En particulier, l'extraction aqueuse de l'huile végétale permettra de générer des émulsions huile/eau qui, fonction de leur stabilité dans le temps, pourront être utilisées en l'état pour des applications dans le domaine de la **cosmétique**.

■ Pour sa part, d'origine renouvelable, le bioéthanol dispose d'une action solvatante sur les lipides non négligeable (Johnson et Lusas, 1983). Par ailleurs, la phase éthanolique générée en sortie de réacteur bi-vis, qui contiendra les lipides extraits, constituera un milieu propice à la transformation ultérieure des triglycérides extraits du squelette cellulaire en EEHV par transestérification, ouvrant la voie à une valorisation de l'huile végétale dans le **domaine énergétique**, sous la forme d'un biocarburant.

Le fractionnement des agroressources en réacteur bi-vis conduira également à la génération d'un raffinat solide (extrudat), permettant la production de **fibres courtes**. Dans le cadre de mon projet de recherche, l'utilisation de ces fibres courtes sera envisagée pour des applications dans le domaine des matériaux, tout particulièrement des panneaux de fibres et/ou de particules produits par thermopressage et des pièces biocomposites moulables par injection thermoplastique. Ce choix de valorisation de ces fibres courtes s'explique par l'intérêt grandissant, depuis maintenant une quinzaine d'années, des fibres végétales dans le marché des matériaux composites, s'expliquant par (i) leurs origines variées (elles peuvent provenir d'une multitude de ressources agricoles), (ii) leur aptitude au renforcement des pièces composites, (iii) leur abondance, (iv) leurs multiples localisations géographiques partout dans le monde, et (v) leur faible coût (Bourmaud et al., 2018). Les deux questions scientifiques novatrices relatives à de telles utilisations de ces fibres courtes dans le domaine des biocomposites et que je souhaite donc aborder dans le cadre de mon projet, en lien avec d'autres membres du LCA, seront présentées dans le paragraphe suivant.

À ce jour, trois actions en lien avec ce premier axe de mon projet scientifique sont en cours de réalisation ou à l'étude (pour une mise en place de façon effective dans un futur proche) :

■ Tout d'abord, un PHC NUSANTARA a été soumis et accepté en 2016 en collaboration avec l'Institut Pertanian Bogor (Indonésie) afin d'étudier le fractionnement thermo-mécano-chimique des graines de *Calophyllum* (*Calophyllum inophyllum*) en réacteur bi-vis, en vue de les transformer en divers

produits finis tels qu'une huile végétale vierge, un biodiesel, une oléorésine et des panneaux de particules renouvelables (dossier Campus France n° 36742TD) (**PI14**). Ce travail de recherche avec ma collègue indonésienne, Dr. Ika Amalia Kartika, se poursuit aujourd'hui. L'implication dans ce PHC de ma collègue Caroline Sablayrolles, Maître de Conférences au LCA, a également permis de réaliser une ACV du procédé de transformation de la graine de *Calophyllum* en biodiesel et de la comparer à celles d'autres graines oléagineuses déjà utilisées pour la production industrielle de biodiesel en Indonésie, le *Jatropha* notamment (**AP6**).

■ Dans un second temps, une autre plante oléagineuse largement répandue en Asie fera l'objet des mêmes développements, toujours en collaboration avec l'Institut Pertanian Bogor (Indonésie) : il s'agit du Montana (*Pueraria montana*). Le montage d'un projet de recherche sur cette plante avec Ika Amalia Kartika est actuellement en réflexion.

■ Enfin, le travail à partir d'autres plantes entières pourra être envisagé en suivant. C'est notamment le cas de l'amarante (*Amaranthus cruentus*) pour laquelle deux premiers travaux effectués au laboratoire (**M23**, **M25**) ont permis de montrer toutes les potentialités de cette plante pour un futur bioraffinage. Ils se poursuivent aujourd'hui sous la forme d'une prématuration *flash* financée par TTT. En effet, la graine d'amarante présente une fraction lipidique riche en squalène, un triterpène utilisé comme complément alimentaire ou pour des usages en cosmétique (**AS6**) ou dans le domaine médical. Or, le squalène actuellement commercialisé est principalement extrait du foie des requins. La mise sur le marché d'un squalène d'origine végétale présente donc pour l'avenir un intérêt évident. En outre, les graines d'amarante contiennent également des protéines (environ 15%) ainsi qu'une forte teneur en amidon (de l'ordre de 55%) ; leur plastification sous contrainte thermo-mécanique en réacteur bi-vis pourrait donc permettre une valorisation de la graine, une fois débarrassée de son huile végétale, dans le domaine des matériaux injectables et/ou extrudables. Quant à la tige de la plante, elle présente à la fois une écorce, riche en fibres lignocellulosiques, et une moelle de faible densité qui, toutes deux, pourraient être valorisées dans le domaine des matériaux, en particulier ceux destinés au Génie Civil : panneaux de fibres auto-liés (**P48**), matériaux isolants (**P49**), matériaux sandwichs, etc. Une fois la prématuration *flash* menée jusqu'à son terme, la mise en place d'un projet de recherche de plus grande envergure, relatif au bioraffinage de la plante entière d'amarante, sera donc envisagée avec la société Ovalie Innovation. Au cours de ce travail, Ovalie Innovation pourrait en assurer sa culture *via* son réseau d'agriculteurs, sa culture étant parfaitement adaptée aux conditions pédo-climatiques du Sud-Ouest comme déjà validé lors d'essais agronomiques menés à ma demande par Ovalie Innovation dans sa ferme expérimentale au cours de l'été 2018.

b. Mise en œuvre optimisée des fibres courtes dans le domaine des biocomposites :

En deuxième lieu, les **fibres courtes** issues du fractionnement bi-vis des plantes entières seront valorisées en guise de renfort dans le domaine des biocomposites. Au regard de mes travaux passés, deux types différents de matériaux biocomposites peuvent ainsi être obtenus :

■ Des panneaux de fibres et/ou de particules produits par thermopressage, la mobilisation de liants présents naturellement dans les extrudats (protéines, sucres libres, hémicelluloses, lignines, etc.) ou ajoutés lorsque cela est nécessaire permettant de garantir leur cohésion.

■ Des pièces biocomposites injectées, produites par compoundage bi-vis de l'extrudat contenant les fibres courtes dans une matrice polymère de nature plus ou moins hydrophobe (PP, PE, PHAs, PLA, etc.) puis par injection thermoplastique.

Afin d'optimiser la mise en œuvre de ces fibres courtes dans le domaine des biocomposites, deux questions scientifiques distinctes s'imposent. Elles feront partie intégrante de mon projet pour les années à venir et sont décrites succinctement ci-dessous.

■ Tout d'abord, pour ce qui concerne les panneaux produits par thermopressage, le **rôle de l'eau** lors du moulage devra être davantage étudié. Si un étuvage préalable de mes raffinats solides jusqu'à une humidité d'environ 2% a pour le moment été privilégié afin de limiter les phénomènes de dégazage à l'ouverture de la presse à plateaux chauffants, l'eau n'en demeure pas moins un excellent plastifiant des liants naturels mis en œuvre dans le cadre de mes travaux, tout particulièrement les protéines (Rouilly et al., 2001, 2003). Aussi, être en capacité de réaliser un moulage sous pression avec davantage d'eau tout en limitant la génération de défauts (cloques, fissures, etc.) en fin de cycle est un enjeu scientifique de taille qu'il me conviendra de relever pour les années à venir. Cette question est également au centre des réflexions menées actuellement par mon collègue Antoine Rouilly, Maître de Conférences au LCA, concernant l'optimisation du procédé de compression uniaxiale et à très haute pression (100-200 MPa voire même encore davantage au lieu de 50 MPa au maximum dans le cas des panneaux de fibres et/ou de particules issus de mes travaux) sur lequel il travaille depuis maintenant plusieurs années. Afin de répondre à cette question, un moule à chauffage par induction électromagnétique est en cours d'acquisition par le laboratoire ; lors du thermopressage, il va permettre de gérer des cycles de chauffage/refroidissement avec des temps assez courts (seulement quelques minutes voire même quelques dizaines de secondes), ce qui permettra de conserver l'humidité de la matière pendant tout le cycle et donc de mieux utiliser sa capacité à plastifier les liants naturels. Antoine Rouilly et moi-même allons être les deux premiers bénéficiaires de cet investissement. Celui-ci nous obligera très certainement à redéfinir (optimiser) les cycles de mise en forme mais il devrait surtout permettre de nettement améliorer les propriétés d'usage (tenue mécanique, tenue à l'eau) des panneaux de fibres et/ou de particules produits dans le cadre de mes travaux de recherche. En effet, il est attendu de cette méthode de chauffage par induction électromagnétique que les agromatériaux obtenus soient davantage homogènes voire même peut-être isotropes. Par ailleurs, un tel moule permettra vraisemblablement de diminuer la pression nécessaire lors du pressage à chaud, limitant la densité des panneaux obtenus et facilitant par la même occasion le transfert industriel de leur mise en forme.

■ D'autre part, concernant les pièces biocomposites moulables par injection thermoplastique, la question de la **compatibilisation de l'interface matrice/fibre** devra être adressée afin d'optimiser les propriétés mécaniques des pièces injectées obtenues. En effet, les forces reliant la matrice à la fibre doivent permettre de transférer la contrainte de la matrice, plus faible, à la fibre, plus résistante, pour observer un renforcement (Gamon, 2013). Pour ce faire, et même si plusieurs solutions existent (modification chimique et/ou physique de la fibre, action au niveau de la matrice par modification chimique ou changement d'état), c'est au travers de l'ajout dans le mélange biocomposite matrice/fibre d'un composé bifonctionnel, agissant à l'interface comme un agent de couplage amphiphile, que je souhaite orienter mes travaux sur ce sujet de la compatibilisation. Comme déjà brièvement évoqué dans le paragraphe décrivant un peu plus haut le bilan de mes travaux passés, ceux à venir seront menés en collaboration avec mon collègue Jérôme Peydecastaing, Ingénieur de Recherche au sein du laboratoire travaillant dans l'équipe de recherche « *Lipochimie et Réactivité Chimique des Agromolécules* ». Cette partie de mon projet sera ainsi partagée avec une autre des activités de recherche du laboratoire. Jérôme Peydecastaing conduit ses travaux de recherche dans le domaine de la réactivité chimique des composés lignocellulosiques. Ainsi, sa contribution à cette question scientifique consistera en la modification chimique de la fibre courte, de nature hydrophile, par greffage de dérivés d'huiles végétales. Les fibres lignocellulosiques disposent en effet d'un grand nombre de sites réactifs potentiels (plusieurs familles de constituants coexistent au sein du squelette végétal : lignines, hémicelluloses, cellulose, métabolites

secondaires, etc.). Par ailleurs, leur caractère hydrophile favorisera l'imprégnabilité des réactifs lors de leur modification chimique. Il est ainsi attendu de cette modification qu'elle confère à la fibre un caractère amphiphile. Lors du compoundage de la matrice à la fibre non modifiée, l'agent de couplage ainsi synthétisé pourra alors être ajouté sous la forme d'un additif, c'est-à-dire en faible proportion, dans le réacteur bi-vis. Pour ma part, je pourrai ainsi étudier l'influence de divers paramètres (taux de greffage et longueur de la chaîne grasse greffée sur la fibre d'une part, et conditions opératoires du compoundage bi-vis d'autre part) sur la capacité de la fibre modifiée chimiquement à assurer convenablement son rôle d'agent de couplage, à savoir un bon transfert de contrainte de la matrice à la fibre lors des sollicitations mécaniques du matériau biocomposite.

c. Vers une meilleure qualification des agromatériaux au travers de l'étude de leurs émissions de COV :

Le troisième volet de mon projet scientifique consistera en l'étude de l'**émission de COV par les agromatériaux**, tout particulièrement les panneaux de fibres et les panneaux de particules auto-liés. Ce travail sur les émissions de COV par les panneaux auto-liés produits par thermopressage sera effectué en collaboration avec Valérie Simon, Maître de Conférences et responsable de l'équipe de recherche « *Génie Analytique & Devenir Environnemental des Agro-constituants* » du LCA. Il s'agit là d'une véritable question scientifique à laquelle il conviendra de répondre, et qui intéresse également mon collègue Antoine Rouilly concernant les agromatériaux qu'il produit *via* le procédé de moulage à très haute pression qu'il a développé.

Pour les années à venir, mes travaux relatifs à l'étude de l'**émission de COV** par les panneaux de fibres et les panneaux de particules auto-liés s'articuleront autour des deux axes suivants :

■ Comme en cuisson-extrusion, les procédés de moulage par pressage à chaud génèrent des molécules volatiles. La mise en évidence de leurs émissions devrait faciliter l'analyse des transformations chimiques subies par les biopolymères lors de leur mise en forme. Le procédé d'obtention des panneaux auto-liés par thermopressage pourra ainsi être mieux maîtrisé à travers le suivi de ces marqueurs olfactifs.

■ L'analyse des COV émis par les panneaux auto-liés permettra également de les comparer à des matériaux plus classiques et aujourd'hui disponibles dans le commerce, notamment les panneaux de bois collés (contreplaqués, agglomérés, OSB, MDF, HDF, etc.). La diminution des émissions de formaldéhyde (formol) d'une part mais aussi la présence éventuelle de molécules naturelles à activité biologique d'autre part seront analysées.

Concernant tout particulièrement ce deuxième axe, il fait écho à un enjeu sociétal fort. Ces agromatériaux seront en effet le plus souvent destinés à être utilisés dans les bâtiments ou pour l'ameublement. Aussi, de telles émissions pourraient influencer la qualité de l'air intérieur et, par voie de conséquence, avoir un impact négatif sur la santé humaine. Ce qui nécessite à court terme une évaluation qualitative puis quantitative de ces émissions de même qu'une étude des facteurs (température, humidité relative, etc.) susceptibles de les influencer. D'ailleurs, signalons ici que le décret n° 2011-321 paru au Journal Officiel du 25 Mars 2011 oblige depuis maintenant cinq ans à évaluer le taux d'émission des matériaux de construction avant toute commercialisation, dans un objectif de contrôle de la qualité de l'air intérieur.

Afin de commencer à répondre à cette question scientifique stratégique pour le devenir commercial de ces matériaux nouveaux, une pré-étude a déjà été effectuée sur ce sujet avec ma collègue Valérie Simon dans le cadre de la Thèse de Doctorat d'Evelien Uitterhaegen (2018). Le panneau de

particules auto-lié choisi dans le cadre de cette étude était issu du thermopressage d'un tourteau produit lors du pressage mécanique de l'huile de graines de coriandre en extrudeur bi-vis, ce tourteau ayant été en plus délipidé à l'aide du cyclohexane immédiatement avant sa mise en forme. Produit à partir de conditions préalablement optimisées (21,6 MPa pour la pression appliquée, 300 s pour le temps de pressage et 205 °C pour la température du moule), le panneau auto-lié utilisé présentait les caractéristiques suivantes : 1323 kg/m³ pour la densité, 23,1 MPa pour la résistance en flexion, 4,4 GPa pour le module d'élasticité en flexion, 0,68 MPa pour la cohésion interne et 31% pour le gonflement en épaisseur après immersion dans l'eau pendant 24 h (**A25**). Au regard de la norme ISO 16893-1:2008 relative à la classification des panneaux de particules, un tel panneau pourrait être utilisé en milieu sec comme panneau travaillant, notamment pour la fabrication de meubles. En outre, il apparaît comme une alternative respectueuse de l'environnement aux produits commerciaux actuels que sont notamment les contreplaqués, les agglomérés, les panneaux OSB (panneau structural orienté ou panneau de grandes particules orientées), MDF (panneau de fibres à densité moyenne) et HDF (panneau de fibres de haute densité) de même que certains panneaux de particules ou de fibres de bois durs (type Isorel ou Unalit), évitant l'utilisation d'adhésifs chimiques tels que des résines thermodurcissables de type UF ou PF.

Les résultats de cette pré-étude ont fait l'objet de communications sous la forme de posters lors du congrès ISEAC39 (International Conference on Environmental & Food Monitoring) qui s'est tenu à Hamburg (Allemagne) en 2016 (**P30**) puis lors du congrès Euroanalysis 2017 (Europe's Analytical Chemistry Meeting) qui s'est tenu à Stockholm (Suède) en 2017 (**P33**). Ils ont nécessité le développement et la validation d'une méthode d'échantillonnage par concentration des composés organiques volatils (adsorption), associée à une thermodésorption et suivie d'une analyse par GC-FID/MS, l'identification des composés volatils émis par le panneau au début de sa vie ayant été effectuée par comparaison des spectres de masse expérimentaux à ceux de bibliothèques de spectres d'une part et par le calcul des indices de rétention d'autre part. Ainsi, les COV émis par le panneau s'expliquaient principalement par la présence résiduelle d'huile essentielle de coriandre à l'intérieur du tourteau de pressage, le linalool ayant été identifié comme le composé volatil le plus abondant (**Figure 58**). Une émission substantielle du solvant utilisé pour la délipidation du tourteau avant thermopressage (cyclohexane) a également été mise en évidence, ce qui nécessitera à n'en pas douter une meilleure élimination par désolvantation des dernières traces de ce solvant dans le tourteau délipidé avant toute mise sur le marché du panneau. Après échantillonnage actif sur des tubes d'adsorbant Tenax TA[®], l'analyse quantitative des émissions de COV a été effectuée par désorption thermique puis par analyse GC-FID. Mesuré à 25 °C et à 53% d'humidité relative, le taux spécifique d'émission du linalool a ainsi été estimé à 162 µg/m².h, une augmentation de + 200% de ce taux ayant été constatée à 35 °C. Par ailleurs, il a également été mis en évidence le fait que le taux spécifique d'émission du linalool diminuait progressivement au cours du temps, s'expliquant par sa volatilité et ne représentant plus que 12 µg/m².h après un an.

À l'inverse, et même si certaines espèces végétales peuvent naturellement émettre du formaldéhyde (Kesselmeier et Staudt, 1999 ; Böhm et al., 2012), aucune émission significative de formaldéhyde n'a été mise en évidence dans ce cas (**P33**), confirmant le caractère plus durable d'un tel matériau comparativement aux panneaux à base de bois collés (FCBA, 2013). L'ensemble de ces résultats a fait l'objet d'une publication dans le journal *Industrial Crops and Products* (**A36**). Il y est précisé qu'en raison de sa capacité à émettre du linalool, le matériau auto-lié à base de tourteau de coriandre pourrait présenter un réel intérêt, non seulement pour la construction mais aussi en agriculture. En effet, il pourrait contribuer à une meilleure qualité de l'air intérieur de même qu'à une durée de conservation prolongée des produits agricoles ou alimentaires, s'expliquant par les caractéristiques intrinsèques du linalool, ce monoterpène à l'odeur caractéristique disposant d'un effet relaxant et d'une bioactivité avérée (antioxydant, antimicrobien et insectifuge). Un tel matériau émet donc en quelque sorte de façon avantageuse.

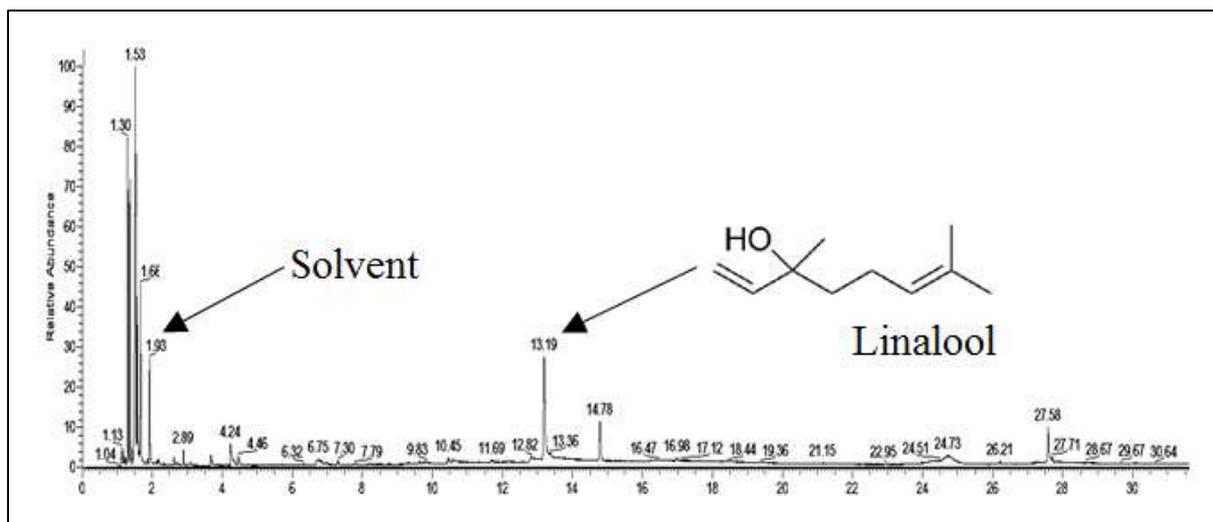


Figure 58

Chromatogramme obtenu par GC-MS des COV émis par le panneau de particules auto-lié fabriqué à partir d'un tourteau de coriandre délipidé (**P30**).

Ces travaux ont depuis été poursuivis (**M22**), ceux-ci s'étant cette fois focalisés sur les seules émissions de composés carbonylés (aldéhydes et cétones), notamment le formaldéhyde et l'acétaldéhyde. Ils ont confirmé l'absence d'émission de formaldéhyde par le panneau de fibres auto-lié « 100% coriandre » associant le tourteau délipidé en guise de liant naturel et la paille extrudée en guise de renfort (**A30**). En effet, les émissions de formaldéhyde étaient pour ce matériau toujours en-dessous de la limite de détection de la méthode analytique utilisée ($0,8 \mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$), et ce, quels que soit le jour d'exposition (jusqu'à J+28) et la température du matériau (de $23 \text{ }^\circ\text{C}$ à $36 \text{ }^\circ\text{C}$). À l'inverse, des émissions de formaldéhyde allant jusqu'à $78 \mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ et $42 \mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ ont pu être observées en début d'exposition pour deux panneaux commerciaux de bois collés : un panneau aggloméré et un panneau MDF, respectivement. Confirmant l'innocuité du panneau « 100% coriandre », ces derniers résultats ont fait l'objet de trois communications sous la forme de posters et de deux communications orales, lors du congrès RRB14 (14th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries) qui s'est tenu à Gand (Belgique) en 2018 (**P39**), lors du congrès ICSAAM 2018 (8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials) qui s'est tenu à Tarbes (France) (**P45**), lors de la journée scientifique du GDR MBS qui s'est tenue à Paris, toujours en 2018 (**C22**, **P47**), et enfin lors du congrès RRB15 (15th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries) qui s'est tenu à Toulouse (France) en 2019 (**C28**). Ils feront également l'objet d'une publication dans le *Journal of Hazardous Materials*, actuellement en cours de préparation (**AP2**). Factuellement, ils favoriseront à n'en pas douter sa mise future sur le marché.

D'une manière plus générale, les panneaux thermopressés issus de mes travaux de recherche utilisant tous des liants naturels plutôt que des résines synthétiques, notamment celles à base de formaldéhyde, il est raisonnable de penser qu'ils seront plutôt favorables du point de vue de leurs émissions, tant pour la santé humaine que pour l'environnement. Encore faut-il en apporter la démonstration ! Ce troisième volet de mon projet de recherche aura donc vocation, dans un premier temps, à atteindre cet objectif.

À terme, mon second apport à cette question scientifique majeure sera également de concevoir et de formuler de nouveaux types de panneaux de fibres et de panneaux de particules, en priorité à partir de matières premières (liant naturel et charge fibreuse) qui auront avant tout été choisies pour leur neutralité du point de vue de leurs émissions de COV (absence de formaldéhyde), tout en garantissant

les propriétés mécaniques et de tenue à l'eau requises pour leurs futurs usages. Seule l'émission de molécules naturelles à activité biologique pourra être recherchée pour des applications bien spécifiques.

d. Modélisation du fonctionnement des extrudeurs bi-vis pour un scale-up facilité des procédés de fractionnement liquide/solide de la matière végétale :

Dans un quatrième temps, une autre question scientifique de mon projet consistera en l'étude de la **modélisation du fonctionnement des extrudeurs bi-vis**, permettant le transfert des procédés de fractionnement liquide/solide de la matière végétale de la taille « *laboratoire* » (cas des extrudeurs bi-vis Clextral BC 21 & Clextral Evolum 25 présents au LCA, tous deux munis de vis d'un diamètre égal à 25 mm) à la taille du « *pilote industriel* » (extrudeur bi-vis Clextral Evolum HT 53 de la plateforme AGROMAT, muni de vis d'un diamètre égal à 53 mm). En effet, ces opérations de scale-up ne sont pas si simples qu'il n'y paraît, y compris lorsque le transfert se fait à l'aide de réacteurs bi-vis en provenance du même fabricant comme c'est pourtant le cas pour les extrudeurs à ma disposition dans le cadre de mes travaux de recherche, la gamme Evolum de Clextral ayant été conçue dans son intégralité pour permettre une extrapolation volumétrique directe grâce à une conception homothétique. À titre d'exemple, pour le fractionnement aqueux de la plante entière de tournesol, une diminution de près de 25% du rendement d'extraction en lipides a été observée entre les essais menés sur un extrudeur bi-vis de type Clextral BC 45 (environ 6 kg/h pour le débit entrant de plante entière) et le transfert à l'échelle du pilote industriel sur un extrudeur bi-vis de haute capacité de type Clextral Evolum HT 53 (54 kg/h en entrée) (**P25, TD**). De la même manière, pour le pressage mécanique de l'huile de graines de coriandre, une diminution conséquente (-36%) du rendement de pressage a également été observée entre les essais menés à l'échelle du laboratoire (jusqu'à 10 kg/h pour le débit entrant de graines dans un extrudeur bi-vis de type Clextral BC 21) et le transfert à plus grande échelle (jusqu'à 100 kg/h en entrée dans un extrudeur bi-vis de type Clextral Evolum HT 53), et ce malgré le choix de débits entrants prenant en compte le facteur d'extrapolation volumétrique entre ces deux machines et de vitesses de rotation des vis conduisant à une même vitesse périphérique (Uitterhaegen, 2018). Le maintien d'une même vitesse périphérique (0,130 m/s) par réduction de la vitesse de rotation des vis (de 103 rpm en BC 21 à 45 rpm en Evolum HT 53) avait pourtant bien permis un doublement du temps de séjour de la matière solide dans la zone de pressage (158,2 s au lieu de 80,5 s) alors même que la distance entre le fond de filet des vis de convoyage situés en amont immédiat des contre-filets et la grille de filtration était doublée (9,5 mm au lieu de 4,5 mm environ). Par ailleurs, bien que des solutions de modélisation des procédés bi-vis existent déjà, celles-ci se sont avérées inopérantes pour ce cas de figure.

D'une part, le modèle de remplissage développé lors de ma Thèse de Doctorat et réutilisé avec succès au cours de celle de Mamadou Faye permet bien d'optimiser le fonctionnement du réacteur bi-vis lorsqu'il est utilisé pour le fractionnement liquide/solide de la matière végétale, à savoir l'extraction aqueuse de l'huile de la plante entière de tournesol (**TD**) et de la graine de neem (Faye, 2010). Il constitue donc une aide non négligeable pour le choix des meilleures conditions opératoires (vitesse de rotation des vis, débits entrants) à mettre en œuvre. Toutefois, il ne permet pas d'envisager le scale-up de ce fractionnement, s'attachant à modéliser le procédé bi-vis pour un seul type de machine (un extrudeur bi-vis de type Clextral BC 45 dans notre cas), d'une longueur donnée (140 cm) et pour une configuration (profils de vis et de température) préétablie.

D'autre part, pourtant dédié aux procédés d'extrusion bi-vis à vis co-rotatives, le logiciel Ludovic[®] de simulation numérique développé par SCCConsultants, en partenariat avec le CEMEF (Mines ParisTech) et l'INRA (Vergnes et al., 1998), permet bien d'envisager la problématique du scale-up. Néanmoins, il est réservé uniquement au cas de l'écoulement de polymères en phase fondue (modèle global basé sur les équations de bilan massique et thermique), c'est-à-dire aux configurations de

compoundage bien connues des compoundeurs en plasturgie mais pour lesquelles ne coexistent pas deux phases solide et liquide distinctes. En effet, les ratios liquide/solide mis en jeu (la matrice et la charge fibreuse sous forme solide et le(s) additif(s), de plastification par exemple, sous forme liquide) pour ce type de transformation sont faibles (le plus souvent inférieurs à 0,5), conduisant à une seule sortie solide, le compound. À l'inverse, lors du fractionnement liquide/solide d'une matière végétale, les ratios liquide/solide mis en jeu sont nettement plus élevés, le plus souvent supérieurs à 2 ou 3, conduisant à l'obtention séparée d'un extrait liquide et d'un raffinat solide. Le mélange biphasique liquide/solide alors transporté le long du fourreau rend donc le logiciel Ludovic® inapproprié pour la modélisation du scale-up d'un fractionnement liquide/solide de la matière végétale en réacteur bi-vis.

C'est la raison pour laquelle un travail sur ce sujet me semble indispensable dans le cadre de mon projet de recherche. Au cours de celui-ci, il conviendra de bien identifier les différents mécanismes mis en jeu afin de limiter les pertes en rendement lors du scale-up des procédés de fractionnement liquide/solide de la matière végétale mais aussi et surtout d'être en mesure de les prédire. Mes premières observations sur le sujet me permettent d'ores et déjà d'évoquer (i) l'influence de la géométrie de la surface filtrante (diamètre et nombre de trous par unité de surface de grille filtrante) ainsi que (ii) les phénomènes de percolation du liquide à extraire à travers un lit de particules solides dont la densité et l'épaisseur seront variables selon la taille de la machine utilisée. **Concernant ce deuxième point, bien que peu évidente à mettre en œuvre d'un point de vue pratique, j'étudie actuellement la possibilité d'instrumenter la zone de séparation liquide/solide des réacteurs bi-vis présents au laboratoire, plus précisément les grilles filtrantes *via* leur usinage, d'une part de capteurs de pression-matière qui permettront d'accéder à des niveaux de densification du lit de particules solides à cet endroit, et d'autre part d'un système d'imagerie qui permettra de visualiser le mode de percolation du liquide à extraire à travers le lit de particules solides. Le cas échéant, un traceur coloré pourrait être ajouté afin de faciliter cette visualisation.**

Une fois ces considérations matérielles réglées et validées d'un point de vue opérationnel, ce travail de modélisation pour un *scale-up* facilité des procédés de fractionnement liquide/solide de la matière végétale se fera selon toute vraisemblance sous la forme d'une Thèse de Doctorat MESR. Aussi, un sujet sera proposé dès 2020 sur ce thème à l'ED SDM. Il sera déposé avec l'aide de mes collègues Pierre-Yves Pontalier et Joël Albet, respectivement Maître de Conférences et Professeur des Universités au LCA, eux-mêmes issus d'une double formation en Génie Chimique et en Génie des Procédés. Leur contact contribuera nécessairement à élargir le champ de mes connaissances. Par ailleurs, ce travail pourrait également être l'occasion de mettre en place des collaborations, tant académiques qu'industrielles. Concernant une éventuelle collaboration académique, il m'a semblé judicieux de me rapprocher de M. Johnny Beaugrand, Directeur de Recherche au sein de l'Unité BIA de l'INRA de Nantes. Rencontré lors de différents congrès scientifiques, il est lui aussi au fait des problématiques de modélisation du fonctionnement des extrudeurs bi-vis lorsque ceux-ci sont utilisés pour la transformation de la matière végétale. Les travaux de Johnny Beaugrand lors du projet DEFIBREX (DÉcohésion optimisée de FIBRes végétales par EXtrusion) financé par l'ANR (2013-2016) ont ainsi permis de modéliser le comportement des fibres végétales dans les procédés de compoundage bi-vis et d'injection (Beaugrand et Berzin, 2013 ; Beaugrand, 2016). Un modèle permettant de prédire la rupture des fibres de chanvre au cours du procédé bi-vis a pu être développé puis il a été validé sur un large éventail de typologie de matières premières fibreuses (lin, sisal, miscanthus, etc.). Ce modèle a depuis été transféré à Ludovic® pour en assurer l'accès aux industriels. Des contacts seront ainsi pris avec M. Beaugrand lors de la rédaction du sujet. Quant aux collaborations industrielles, l'entreprise française Clextral, de laquelle sont issus les quatre extrudeurs bi-vis du LCA sur lesquels l'ensemble de mes travaux de recherche ont été effectués, apparaît bien entendu comme un partenaire naturel de ce projet. Un utilisateur final mériterait d'y être également intégré. Il sera prospecté le moment venu, en priorité parmi les contacts déjà existants du laboratoire. Citons parmi ceux-ci Ovalie Innovation qui a pour projet

à moyen terme (milieu de l'année 2020) la mise en place de sa propre unité d'extraction d'huile végétale odorante de coriandre, obtenue par pressage mécanique des graines en réacteur bi-vis, et qui pourrait donc à terme bénéficier des résultats de ce travail de modélisation lors des phases d'upscaling.

e. Optimisation des procédures d'extraction mécanique à sec des fibres longues et moyennement longues pour des applications textiles :

En cinquième lieu, un Centre de Ressources et de Transfert en Composites Innovants (CRTCI) a vu le jour au début de l'année 2018 sur le site universitaire de Tarbes, et ce grâce à l'apport financier du CPER et de la DRRT de la Région Occitanie. Avec l'ENIT et son laboratoire de recherche, le LGP, le LCA en est l'un de ses membres fondateurs au travers de sa plateforme AGROMAT.

En tant que représentant du LCA pour ce projet, ma contribution consistera à proposer une alternative biosourcée aux fibres classiquement utilisées pour la fabrication des matériaux composites de moyenne ou de haute performance, notamment les fibres de verre et les fibres de carbone. Diverses plantes à fibres parmi lesquelles le chanvre, le lin, le lin oléagineux, l'ortie, la jute, le sisal, le kénaf, le bambou, les pailles de céréales (blé, orge, etc.), les spathes de maïs, etc., ont d'ores et déjà été identifiées comme des candidats potentiels pour la fourniture de **fibres longues et moyennement longues pour des applications textiles**. Toutes issues de ressources renouvelables, certaines de ces fibres disposent en plus d'une possibilité d'approvisionnement en local. C'est le cas notamment de la paille de lin oléagineux ou des spathes de maïs.

Au sein du CRTCI, j'aurai pour le LCA et sa plateforme AGROMAT trois niveaux différents d'implication :

- Sur la base des données de la littérature, choisir la (les) fibre(s) végétale(s) la (les) plus adaptée(s) en fonction des applications visées pour le matériau composite à produire ; ce choix se fera notamment à partir des critères suivants : disponibilité de la ressource, provenance géographique (les fibres locales ou régionales seront, dans la mesure du possible, privilégiées), morphologie, composition chimique (richesse en fibres lignocellulosiques, présence éventuelle de co-constituants au comportement thermoplastique), aptitude au défibrage mécanique, thermo-mécanique ou thermo-mécano-chimique, filabilité, tenue mécanique de la fibre (fibres individualisées et/ou faisceaux de fibres), etc.

- Extraire et préparer la fibre végétale brute *via* les outils à ma disposition au sein de la halle AGROMAT par **traitement mécanique** (broyage en broyeur à marteaux, ouverture de la fibre par défibrage à l'aide de l'ouvreuse Laroche Cadette 1000), **thermo-mécanique** (extrusion bi-vis) ou **thermo-mécano-chimique** (extrusion bi-vis).

- Mettre en forme le matériau composite :

- Pour les composites à **fibre courte** (< 5 mm), par **injection-moulage** ou par **extrusion mono-vis** après compoundage du mélange matrice/fibre en extrudeur bi-vis (**Figure 59**) ; ce cas des composites à fibre courte fait ici le lien avec le second axe de mon projet scientifique déjà longuement évoqué par ailleurs, et relatif aux travaux que je compte mener concernant la compatibilisation de l'interface matrice/fibre à l'intérieur des biocomposites destinés à un moulage par injection thermoplastique par ajout d'agents de couplage amphiphiles.

- Pour les composites à **fibre moyennement longue** (< 5-10 cm), par **thermopressage** après pré-imprégnation de la nappe produite en ouvreuse (non tissé) par un liant externe (liant naturel, matrice thermoplastique ou résine thermodurcissable) (**Figure 60**).

- Pour les composites à **fibre longue** (> 5-10 cm), par **thermopressage** après pré-imprégnation d'un mat papetier, d'un voile cardé ou d'un renfort tissé (ou mat tissé) par un liant externe (**Figure 61**) ; l'**infusion** de résine dans ledit renfort tissé sera quant à elle menée par le LGP-ENIT. Réalisé à partir de fibres locales ou régionales au CRTCI, ce mat tissé aura été

obtenu par le LGP-ENIT à partir d'un fil renouvelable, lui-même issu du non tissé après filature au LGP-ENIT.

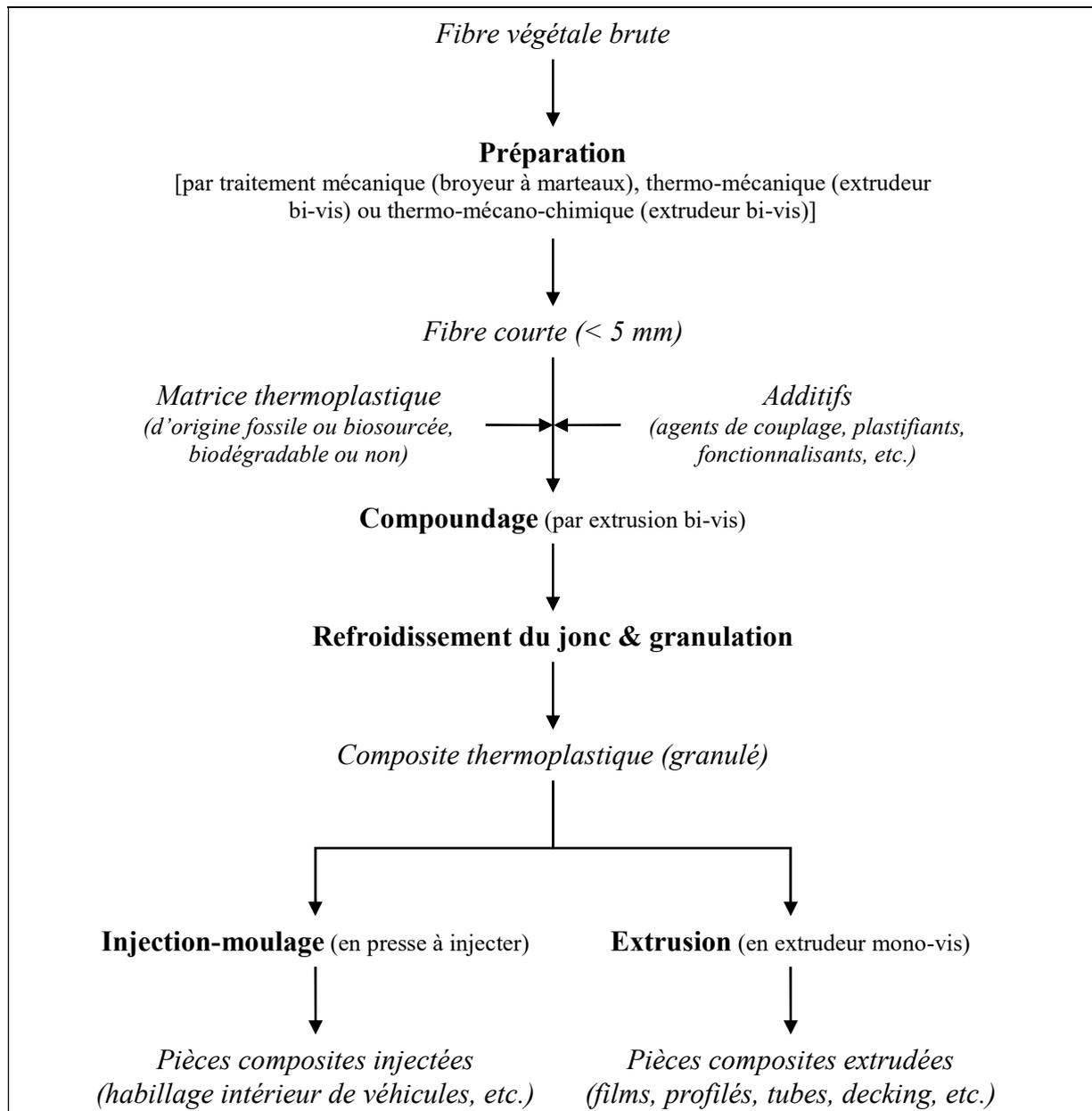


Figure 59

Schéma de principe pour l'obtention des composites à fibre courte (< 5 mm) dans le cadre du CRTCI.

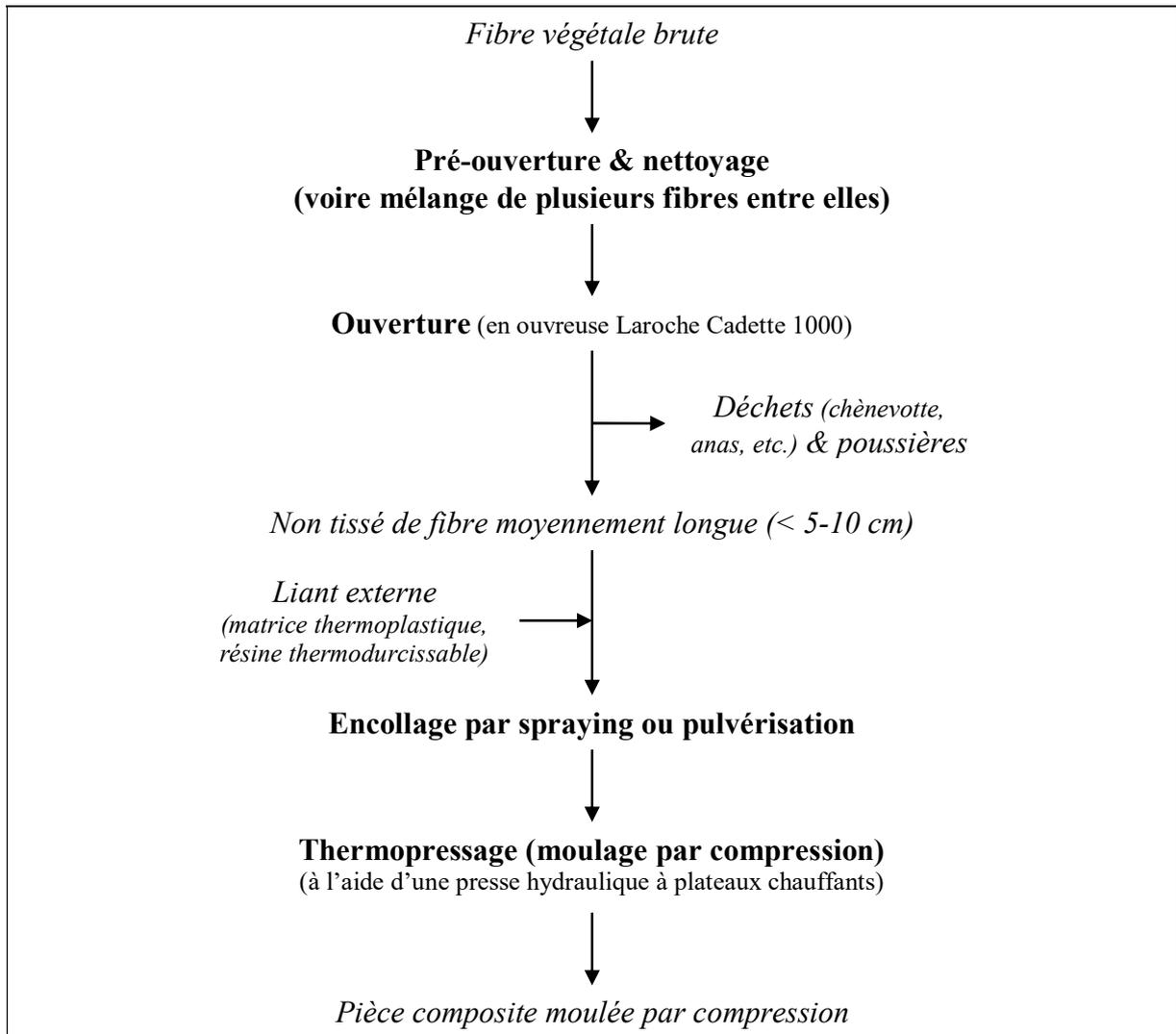


Figure 60

Schéma de principe pour l'obtention des composites à fibre moyennement longue (< 5-10 cm) dans le cadre du CRTCI.

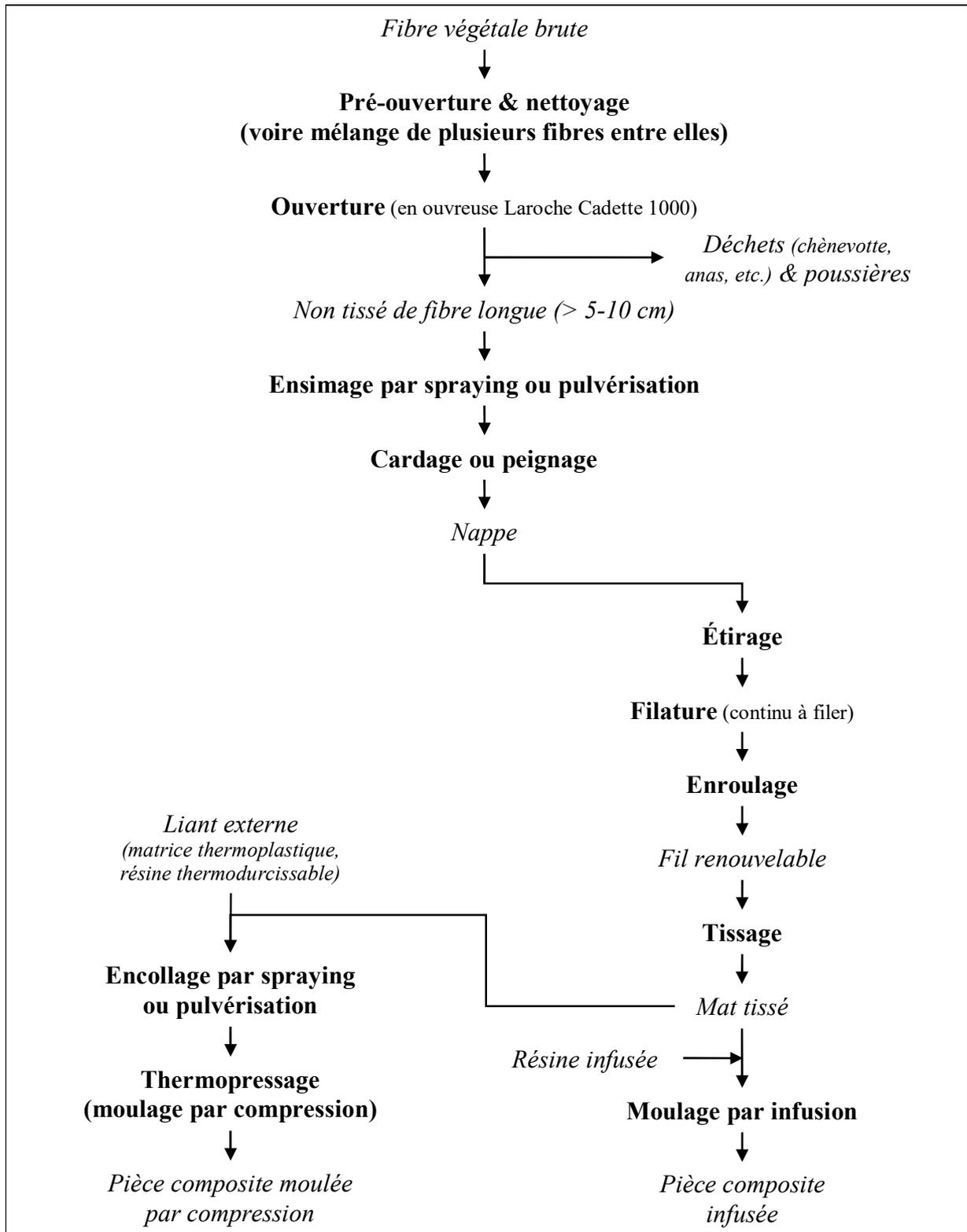


Figure 61
Schéma de principe pour l'obtention des composites à fibre longue (> 5-10 cm) dans le cadre du CRTCI.

En liaison directe avec Pierre Ouagne, Professeur des Universités au LGP-ENIT et responsable du CRTCI, je suis d'ores et déjà impliqué dans l'achat des matériels du centre. Citons notamment l'acquisition de deux lignes textiles, l'une cardée (réservée aux fibres les plus courtes, entre 5 et 10 cm, comme celles de lin oléagineux), et l'autre peignée (réservée aux fibres les plus longues, de plus de 10 cm, comme celles de lin fibre, de chanvre, de jute, d'ortie, etc.), dont l'objectif est qu'elles nous permettent d'accéder, à partir des **fibres longues et moyennement longues** extraites en ouvreuse *via* un **procédé mécanique à sec**, à des fils d'origine renouvelable puis à des textiles (mats tissés) qui seront ensuite utilisés pour la fabrication de matériaux composites semi-structuraux (**Figure 61**). Ce programme a également permis de compléter les outils de la plateforme AGROMAT (gaveur latéral pour l'extrudeur bi-vis de haute capacité, enceinte climatique, formette dynamique, analyseurs de fibres, etc.), pour un investissement cumulé d'environ 200 k€. Suivra ensuite la mise en place de projets de recherche communs, en collaboration avec le LGP-ENIT. En particulier, une utilisation de ces textiles techniques renouvelables sous la forme de géotextiles, permettant notamment la stabilisation des berges des rivières ou des remblais au bord des routes, a d'ores et déjà été identifiée comme une possible voie de valorisation. Quant à elles, les pièces composites semi-structurales faites de ces textiles et obtenues par moulage par compression ou par infusion pourront trouver des applications de moyenne performance, notamment pour une utilisation dans le domaine des transports (automobile, ferroviaire, aéronautique) comme pièces d'aménagement intérieur.

Afin d'initier les travaux communs entre LCA et LGP, Pierre Ouagne et moi-même avons d'ailleurs mis en place une première collaboration dès la fin de l'année 2016. Elle a consisté à choisir la paille de lin oléagineux comme matière fibreuse modèle. À notre connaissance et à la différence du lin fibre, il s'agit d'une variété peu utilisée pour des applications dans le domaine des textiles techniques. Qui plus est, il s'agit également d'une ressource renouvelable de faible coût, la variété oléagineuse de lin étant avant tout cultivée pour ses graines. En premier lieu, l'extraction et l'ouverture de la fibre a été envisagée sous ma responsabilité à l'aide de l'ouvreuse Laroche Cadette 1000 présente au sein de la plateforme AGROMAT. L'influence de divers paramètres opératoires sur la qualité du défibrage a ainsi été étudiée. Parmi ceux-ci, il est possible de citer les grandeurs suivantes :

- Le rouissage ou non de la paille avant ramassage au champ puis mise en balle.
- L'humidité de la fibre en entrée.
- Le nombre de modules successifs de défibrage.
- La vitesse de rotation des tambours (les cylindres à pointes de chaque module).
- Le débit massique entrant.
- La vitesse d'avancement de la matière qui agit directement sur le temps de séjour.

La qualité du défibrage a alors été jugée au travers de trois résultantes :

- La longueur moyenne des fibres contenues dans la bourre (non tissé) obtenue en sortie d'ouvreuse.
 - Leur finesse (diamètre moyen).
 - Le taux massique de pollution de la bourre par les anas.

Puis, dans un deuxième temps, la bourre ainsi générée sera mise en œuvre par le LGP-ENIT sur la ligne cardée acquise dans le cadre du CRTCI. Composée d'une cardé, d'une étireuse, d'un continu à filer et enfin d'un enrouleur, cette ligne permettra à Pierre Ouagne de vérifier s'il est possible ou non d'obtenir un fil renouvelable à partir de cette bourre. Afin de faciliter la filabilité de la fibre de lin oléagineux, l'ajout d'autres fibres (coton, laine, polyester, etc.) pourra également être envisagé si cela s'avère nécessaire.

L'étude du défibrage de la paille de lin oléagineux a été menée par Benjamin Barthod-Malat, un stagiaire en provenance de l'ENSAIT (**M19**). Elle montre qu'une grande proportion de fibres peuvent

être extraites du lin oléagineux à l'aide de l'ouvreuse Laroche Cadette 1000, la fraction massique de bourre pouvant représenter jusqu'à 41% de la matière entrante dans le cas d'un lin oléagineux roui au champ pendant au moins trois semaines avant sa récolte et humidifié jusqu'à 16-18% avant défibrage. Dans une étude antérieure publiée par l'ADEME en 2011, la quantité de fibres extraites de différents lots de lin oléagineux était de seulement 25%. Aussi, les résultats ici obtenus montrent que la quantité globale de fibres extraites est semblable à la quantité de fibres présentes dans le lin fibre, suggérant qu'une valorisation de la paille de lin oléagineux dans le domaine des textiles techniques doit être considérée avec la plus grande attention. La longueur des fibres techniques extraites du lin oléagineux est tout de même plus faible que celle des fibres textiles issues du lin fibre, se situant entre 3 et 6 cm. Cette gamme de longueurs devrait tout de même permettre l'obtention de différentes familles de fils renouvelables, après cardage et filature. Les propriétés en traction de ces fibres techniques ont également été estimées après leur extraction. Elles se situent dans la partie inférieure de la plage des propriétés mécaniques des fibres textiles de lin (Pillin et al., 2011) : de l'ordre de 480 MPa, 17 GPa et 2,7% pour la résistance à la rupture, le module d'Young et l'allongement à la rupture, respectivement. Pour autant, ces résultats suggèrent que les fibres extraites de la paille de lin oléagineux possèdent une longueur moyenne et des propriétés mécaniques les rendant utilisables pour la fabrication de textiles techniques, notamment des géotextiles, ou pour le renforcement de composites semi-structuraux. Ils ont d'ailleurs récemment fait l'objet de communications orales lors de la 3rd International Conference on Natural Fibers (ICNF 2017) (A16), de la 6th Conference on Natural Fibre Composites (NFC 2017) (C12), de la 3^{ème} édition des Journées Jeunes Chercheurs Éco-composites et Composites Bio-sourcés qui s'est tenue à l'ENI de Tarbes en Mars 2018 (C14) et de la 22nd International Conference on Structure and Structural Mechanics of Textiles (STRUTEX) (C26), d'une keynote lors de la 7th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2017) (C11), de trois articles dans les journaux *Procedia Engineering* (A29), *AIP Conference Proceedings* (A35) et *Journal of Composite and Advanced Materials* (A41), et d'un chapitre de livre dans la 2nde édition du *Handbook of Natural Fibres* (CL3).

En parallèle, après leur défibrage thermo-mécanique en réacteur bi-vis et en présence d'eau, les anas issus de l'extraction des fibres de la paille de lin oléagineux en ouvreuse Laroche Cadette 1000 peuvent être transformés en des panneaux durs, auto-liés par thermopressage, leur fraction ligneuse (25,1% de leur masse sèche) étant alors utilisée comme liant interne. Sur la base de leurs caractéristiques mécaniques (11,7 MPa pour la résistance à la rupture en flexion et 0,36 MPa pour la cohésion interne) d'une part, et de la norme française NF EN 312 relative aux spécifications des panneaux de particules d'autre part, de tels panneaux pourraient d'ores et déjà être utilisés comme des panneaux de type P1 (panneaux pour usage général utilisés en milieu sec). Ce travail, complémentaire au précédent, et qui permet d'envisager une valorisation du sous-produit du fractionnement mécanique de la paille de lin oléagineux, répondant ainsi au concept de la raffinerie du végétal, a été présenté lors de la 6th Conference on Natural Fibre Composites (NFC 2017) (C12) puis lors de la 3^{ème} édition des Journées Jeunes Chercheurs Éco-composites et Composites Bio-sourcés (C15). Il a également fait l'objet d'une publication dans le *Journal of Natural Fibers* (A32) et d'une autre dans le *Journal of Composite and Advanced Materials* (A40).

Ce travail préliminaire sur la paille de lin oléagineux sert de base à un programme de bien plus grande ampleur visant à produire des géotextiles à partir de la **fibre longue** extraite via le **procédé mécanique à sec** développé. J'ai ainsi participé activement au dépôt au printemps 2017 du projet GEOFIBNET (MP9) à l'appel à projet READYNOV de la Région Occitanie, conjointement avec le LGP-ENIT (Pierre Ouagne) et cinq autres partenaires industriels. Ce projet a été accepté à financement cette même année. Il a débuté à l'automne 2018 et j'en assure logiquement la coordination pour le compte du LCA. Mes quatre implications y sont les suivantes :

■ En lien avec Ovalie Innovation, l'étude de l'influence des pratiques culturelles (rouissage, mode de ramassage, etc.) sur le procédé global d'obtention des géotextiles.

■ L'optimisation du procédé mécanique d'extraction de la fibre par utilisation de l'extracteur « *toutes fibres* » de la halle AGROMAT (ouvreuse Laroche Cadette 1000) ; ces fibres seront ensuite fournies au LGP-ENIT qui sera chargé de leur transformation en un fil renouvelable par cardage puis filature. L'objectif principal est ici de minimiser l'impact de ce procédé sur les propriétés mécaniques des fibres extraites (C17, C21). Pour cette tâche du projet GEOFIBNET dont j'ai la charge, en plus des paramètres opératoires de l'extracteur « *toutes fibres* » (nombre de modules de défibrage, vitesse de rotation des tambours, débit massique entrant, vitesse d'avancement de la matière, etc.), le **rôle de l'eau** présente dans la matière première au moment de l'extraction mécanique des fibres sera une nouvelle fois étudié en détail. En raison de son effet plastifiant et assouplissant sur les fibres, il est en effet attendu de l'eau qu'elle facilite (i) l'obtention de faisceaux de fibres aux facteurs de forme plus élevés, et (ii) une séparation plus aisée des faisceaux de fibres en fibres élémentaires. En particulier, la manière dont cette eau aura été ajoutée à la matière première entrante avant extraction des fibres textiles (aspersion, brumisation, nébulisation ou conditionnement en enceinte climatique) sera regardée avec beaucoup d'attention.

■ La régulation de la cinétique de dégradation des géotextiles développés ; sera ainsi proposé un traitement par enduction des fils et/ou des tissus obtenus, réalisé (i) à l'aide d'huiles végétales siccatives comme celle de lin pour renforcer leur caractère hydrophobe, ou (ii) à l'aide du chitosane et/ou de ses dérivés O-acyl afin de leur conférer des propriétés antimicrobiennes, antifongiques et insecticides (Uitterhaegen, 2018).

■ Le contrôle de cette dégradation lors d'essais sur sites expérimentaux.

Toujours en collaboration avec Pierre Ouagne, suivra ensuite l'étude de l'extraction d'autres fibres végétales en vue de leur filage ultérieur, comme celle d'ortie (*Urtica dioica* L.) par exemple, initiée lors du stage M2R de Thiébaud Ramaux en 2018 (M23) puis poursuivie dans le cadre d'une sous-traitance de défibrage de tiges d'ortie en extracteur « *toutes fibres* » Laroche Cadette 1000 effectuée pour le compte du laboratoire FEMTO-ST de l'Université de Franche-Comté dans le cadre du projet PHYTOFIBER (AS4, AS7, C27, C29). Financé par l'ADEME (appel à projet GRAINES 2017), ce projet s'est donné pour objectif la valorisation de fibres végétales issues de biomasses produites sur sols contaminés dont l'ortie.

f. Développement d'un référentiel de caractérisation des co-produits agricoles comme sources de granulats végétaux pour les agro-bétons :

Enfin, la création d'un Département Génie Civil Construction Durable à l'IUT de Tarbes en 2014 a favorisé un rapprochement avec ses personnels, notamment Camille Magniont, Maître de Conférences au LMDC (INSA-UPS, Toulouse) et en charge du développement des activités de recherche du LMDC sur le site de Tarbes. Un programme collaboratif visant à développer des **agro-bétons**, par incorporation de granulats végétaux dans des liants minéraux, est rapidement apparu comme une thématique de recherche prometteuse pour nos deux structures. En effet, une réduction de l'impact environnemental des matériaux de construction est depuis plusieurs années une importante préoccupation pour les acteurs de ce secteur d'activité. Parmi les idées retenues, celle qui consiste à substituer le squelette granulaire des bétons par des granulats végétaux renouvelables s'est avérée être particulièrement prometteuse (Magniont, 2010 ; Magniont et al., 2010). Cette solution conduit à l'obtention de matériaux de construction à faible bilan carbone, dénommés sous le terme d'**agro-bétons**. Utilisables pour des applications non structurelles, ceux-ci disposent d'une structure poreuse,

s'expliquant par la présence des granulats végétaux en leur sein et leur conférant donc une aptitude non négligeable à l'isolation thermique. Par ailleurs, ils présentent de bonnes propriétés hygroscopiques, leur permettant d'être de bons régulateurs de l'humidité dans les bâtiments.

Néanmoins, l'incorporation de granulats végétaux dans les liants hydrauliques peut induire un défaut voire même une absence totale de prise et de durcissement de ces liants. Un tel phénomène a été mis en évidence par Diquelou lors de sa Thèse de Doctorat effectuée à l'INRA de Reims et portant sur l'obtention d'agro-bétons de chanvre associant de la chènevotte en guise de granulats végétaux et une matrice minérale à base de ciment et de chaux (Diquelou, 2013). Diquelou a ainsi attribué le retard à la prise du liant à la migration de composés hydrosolubles de la chènevotte vers celui-ci, conduisant à une modification des propriétés finales du matériau, notamment ses propriétés mécaniques.

Sur la base de ces données issues de la littérature, il nous a semblé raisonnable de penser que le retard à la prise et au durcissement des liants hydrauliques pouvait dépendre de la composition chimique du granulats végétaux utilisés. Afin de valider cette hypothèse, une première collaboration avec le LMDC (INSA-UPS, Toulouse) a donc consisté en l'étude du potentiel de la paille de lavande distillée comme granulats végétaux, en association avec un liant pouzzolanique. Elle s'est déroulée lors du premier semestre 2016 sous la forme d'un stage M2R effectué par Sylvain Louvel, étudiant en Master Recherche Génie Civil, Structures et Matériaux à l'UPS (Louvel, 2016). Signalons d'ailleurs ici que ce travail a fait l'objet de deux communications orales, en 2016 lors de la 17^{ème} édition des Journées Scientifiques du Regroupement Francophone pour la Recherche et la Formation sur le Béton ((RF)²B) (AC13) et en 2017 lors de la 2nd International Conference on Bio-based Building Materials (ICBBM ECOGRAFI 2017) (AC14).

Ici, le choix de la paille de lavande n'est pas innocent. D'une part, il s'agit d'un sous-produit de la distillation à la vapeur de la lavande, cultivée pour sa richesse en huile essentielle. D'ailleurs, il n'existe actuellement aucune voie de valorisation pour cette paille dont le gisement annuel a tout de même été estimé à 44 000 tonnes (Lesage-Meessen et al., 2015). D'autre part, la paille de lavande dispose d'une teneur en composés hydrosolubles nettement plus élevée que la chènevotte, précédemment mise en œuvre comme granulats biosourcés par Diquelou (2013) : 22,6% au lieu de 5,8% (AC13, AC14). Une première partie de l'étude a consisté en l'exploration des mécanismes d'interaction entre les hydrosolubles de la paille de lavande et le liant pouzzolanique utilisé, composé de chaux aérienne et de métakaolin (produit par calcination flash de kaolinite à 700 °C). Pour ce faire, des pâtes modèles gâchées avec un jus contenant les hydrosolubles de la paille de lavande ont été produites, et leurs propriétés ont été comparées à celles d'une pâte témoin faite à partir d'eau distillée. Des essais par calorimétrie isotherme ont ainsi révélé un retard important de la prise du liant en présence de lavande (**Figure 62**) ainsi qu'une modification importante de ses mécanismes de prise. Par ailleurs, le suivi du durcissement de la pâte a été réalisé entre 6 h et 49 jours par mesure de la résistance en compression des pâtes modèles. Il a permis de conclure à un ralentissement important de la cinétique de durcissement du liant pouzzolanique en présence d'hydrosolubles de lavande (**Figure 63**), même si ce retard par rapport à la pâte témoin a été comblé à une échéance de 49 jours, les performances en compression des deux types de pâtes devenant alors équivalentes. Aussi, malgré des performances thermohygriques prometteuses, la résistance mécanique de ce composite reste faible, notamment par rapport à celle d'un béton de chanvre (Magniont et al., 2010).

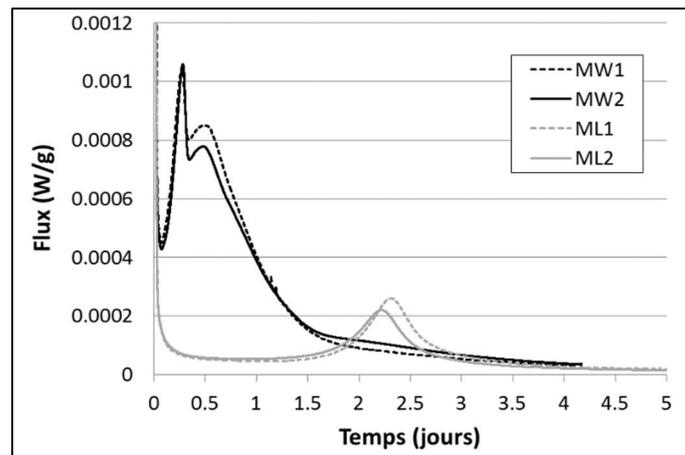


Figure 62

Flux de chaleur enregistrés par calorimétrie isotherme lors de l'hydratation du liant témoin (MW) et du liant gâché avec le jus de lavande (ML) (mesures effectuées en duplicats) (AC13, AC14).

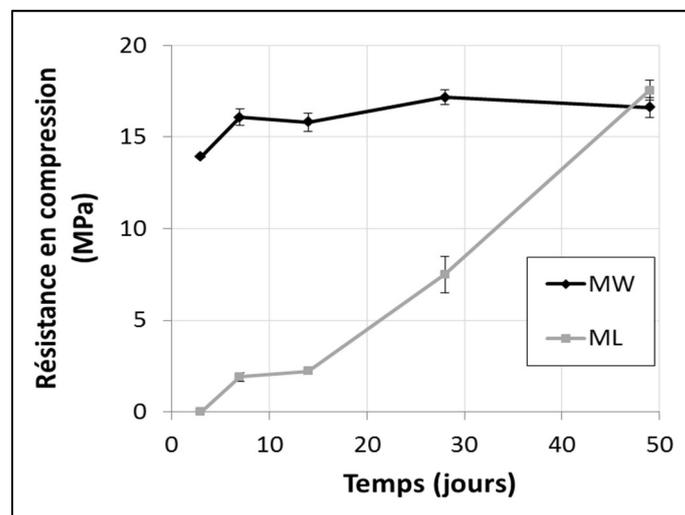


Figure 63

Évolution de la résistance en compression de la pâte témoin (MW) et de celle gâchée avec le jus de lavande (ML) entre 3 et 49 jours (AC13, AC14).

Un deuxième granulat végétal a été testé lors du travail de Louvel (2016). Il s'agit de l'écorce de la tige de tournesol (AS3, AC18, P41), préalablement séparée de la moelle moyennant la mise au point d'un procédé mettant en jeu une première étape de broyage de la tige entière à l'aide d'un broyeur à marteaux puis une deuxième étape consistant en une séparation des deux constituants du broyat (moelle et écorce) par soufflage. Outre le fait qu'il s'agisse là encore d'un sous-produit de la culture du tournesol, présentant une grande disponibilité, en particulier dans le Sud-Ouest, avec un gisement annuel estimé tout de même à 2 à 5 millions de tonnes (Nohazic, 2012), l'intérêt de l'écorce est qu'elle dispose d'une teneur en hydrosolubles comprise entre celles de la chènevotte et de la paille de lavande : 10,5% de sa masse sèche (Louvel, 2016). Et, comme pour la paille de lavande, un retard à la prise du liant pouzzolanique a bien été constaté par calorimétrie isotherme pour l'écorce. Toutefois, il a été estimé à seulement 2 h par rapport au témoin à l'eau au lieu de 3,5 jours pour la lavande. Le retard au durcissement de la pâte a également été estimé grâce à des tests en compression. Ils ont eux aussi révélé des performances mécaniques amoindries par comparaison au témoin pour des échéances antérieures à 49 jours. Néanmoins, celles-ci sont toujours nettement plus élevées que celles mesurées avec la paille

de lavande. Elles sont d'ailleurs parfaitement comparables à celles d'un béton de chanvre développé précédemment par le LMDC pour le compte de la société Agrofibre, filiale du groupe Euralis aujourd'hui disparue (Magniont et al., 2010).

En conclusion, effectué sur deux granulats végétaux bien différents en termes de composition chimique, la paille de lavande d'une part et l'écorce de la tige de tournesol d'autre part, notre premier travail collaboratif mené conjointement avec le LMDC nous a permis de confirmer l'idée avancée par Diquelou (2013) selon laquelle la libération de composés hydrosolubles pouvait être la cause du retard important de la prise des liants minéraux dans les agro-bétons. Par ailleurs, une corrélation entre ce retard et la teneur en hydrosolubles du granulats végétal utilisé a pu être mise en évidence. Sur la base de ces premiers résultats, nous avons pu lancer avec ma collègue Camille Magniont (LMDC, INSA-UPS) une Thèse de Doctorat (PALOMAC pour « *Évaluation du Potentiel de co-produits Agricoles LOcaux valorisables dans le domaine des MATériaux de Construction* ») qui a débuté en Octobre 2018 (**T4**). J'en assure le co-encadrement avec elle. Ce travail ambitieux vise à évaluer le potentiel de co-produits agricoles locaux dans le domaine des agro-bétons. En effet, la rupture de l'approvisionnement local en chènevotte a conduit à l'interruption du développement à l'échelle industrielle du béton de chanvre évoqué juste au-dessus (Magniont et al., 2010), s'expliquant aussi par la forte hausse du coût de transport de la matière première végétale depuis les régions productrices de chanvre telles que l'Aube et la Haute-Saône. Cela a mis en évidence la nécessité d'identifier et de qualifier d'autres co-produits agricoles disponibles dans le Sud-Ouest et pouvant donc se substituer à la chènevotte de chanvre dans les applications de bétons végétaux. Une review sur ce thème est d'ailleurs en cours de révision (**AS5**).

Les principaux objectifs du projet PALOMAC peuvent se résumer comme suit :

■ Identifier les gisements de co-produits ou de sous-produits agricoles disponibles localement, et évaluer leur disponibilité, leur accessibilité, leur coût de transformation, etc. Je suis plus particulièrement impliqué dans cette partie du travail. Et, les gisements d'ores et déjà identifiés après un an de projet sont les suivants : l'écorce de tige de tournesol, les anas de lin oléagineux, la paille de coriandre, la paille de blé, les rafles et les spathes de maïs, les sarments de vigne et les menues pailles.

■ Qualifier ces produits quant à leur potentiel en tant que granulats végétaux pour le bâtiment, du point de vue de leurs performances d'usage mais aussi de leurs performances environnementales. Les performances seront ainsi évaluées (i) à très court terme (notamment les interactions chimiques entre le liant et les particules), (ii) à moyen terme (propriétés des composites du point de vue mécanique, thermique et hygrique), et (iii) à long terme (durabilité, biodégradation, minéralisation, etc.). Le bénéfice environnemental de ces différents co-produits sera également évalué par la réalisation d'une analyse de cycle de vie multicritère, en particulier par l'analyse de leur potentiel de stockage de carbone.

■ Proposer un référentiel de caractérisation des granulats végétaux permettant de valider la conformité des différents co-produits agricoles pour des applications en construction (partie collaborative du projet PALOMAC que je mènerai conjointement avec Camille MAGNIONT).

En complément de PALOMAC, le projet de recherche SAVASCO (**MP7**), déposé conjointement avec le LMDC (INSA-UPS, Toulouse) en Juin 2019, consistera pour sa part, s'il est accepté à financement, à structurer une filière de valorisation transfrontalière (entre la France et l'Espagne) de la tige de tournesol pour la construction. Un référentiel de caractérisation des deux principaux produits issus de la transformation de la tige de tournesol que sont l'écorce et la moelle sera ainsi mis en place. Une solution constructive complète à base de tige de tournesol sera également développée puis caractérisée aux échelles matériau, paroi et bâtiment.

Cette solution constructive innovante se présentera sous la forme d'une couche de béton végétal associée à un complément d'isolation, en remplissage d'une ossature bois porteuse :

■ La phase agro-béton sera chargée des granulats d'écorce de tournesol, utilisés ici pour conférer au béton de bonnes propriétés thermiques et hygriques tout en réduisant son impact environnemental. Afin de limiter la migration des hydrosolubles en provenance de l'écorce vers le liant hydraulique, divers prétraitements de défibrage et de lavage à l'eau (voire à la soude) seront envisagés, notamment par le biais d'un traitement thermo-mécanique (voire thermo-mécano-chimique) en extrudeur bi-vis qui permettra d'épurer en continu le granulat végétal en les composés solubles susceptibles d'altérer les mécanismes de prise et de durcissement. J'assurerai la responsabilité entière de cette partie du travail.

■ Une étude de l'influence de la morphologie du granulat, son facteur de forme notamment, sur les propriétés thermiques, hygriques et mécaniques des agro-bétons sera également envisagée, en lien étroit avec Camille Magniont.

■ Le complément d'isolation thermique sera quant à lui assuré par des panneaux isolants 100% biosourcés issus de la moelle de tournesol. Ils résulteront de l'optimisation des propriétés d'usage de blocs isolants déjà développés au laboratoire. En effet, toujours lors du premier semestre 2016, j'ai pu développer lors du stage M2R d'Abdellahi Ahmed Maaloum, étudiant en Master Recherche Sciences pour l'ingénieur (Ingénierie des matériaux : élaboration, caractérisation et applications) à l'UPPA, un isolant de faible densité (47 kg/m^3) à base de moelle de tournesol, obtenu par moulage par compression après ajout aux particules de moelle d'un liant amylicé (**Figure 64**). Les propriétés thermiques et mécaniques de ce nouveau matériau isolant se sont avérées être proches de celles d'un polystyrène expansé commercial (Ahmed Maaloum, 2016) :

- $40,8 \text{ mW/m.K}$ pour la conductivité thermique à 25 °C (après conditionnement en enceinte climatique à 60% HR) au lieu de $33,2 \text{ mW/m.K}$ pour le polystyrène.
- 117 kPa pour la contrainte en flexion au lieu de 132 kPa pour le polystyrène (-11%).
- $77,5 \text{ kPa}$ pour la contrainte en compression à 10% de déformation au lieu de seulement $69,7 \text{ kPa}$ pour le polystyrène (+11%).



Figure 64

Fractions séparées d'écorce et de moelle obtenues après broyage de la tige de tournesol et séparation par soufflage, et bloc isolant de basse densité à base de moelle, obtenu par moulage par compression après ajout d'un liant amylicé (Ahmed Maaloum, 2016).

Par ailleurs, ce nouveau bloc isolant à base de moelle de tournesol dispose d'une perméabilité à la vapeur d'eau dix fois plus élevée : $5,3 \times 10^{-11}$ kg/m.s.Pa au lieu de $5,1 \times 10^{-12}$ kg/m.s.Pa pour le polystyrène. Il pourra ainsi être valorisé dans la conception de parois perspirantes multicouches, l'hygroscopicité et la perméabilité à la vapeur permettant d'améliorer le confort hygrique des usagers et de limiter les risques de condensation dans la masse et les dommages associés.

Aussi, même si les performances d'usage d'un tel isolant restent perfectibles (optimisation de la formulation et des conditions du moulage par exemple), il dispose de bonnes propriétés thermiques et mécaniques mais aussi de régulation hygrique. Ces résultats ont d'ores et déjà été présentés sous la forme d'une communication orale lors du Congrès National de la Recherche en IUT (CNRIUT2017) (**AC15**) puis de posters lors de la 2nd International Conference on Bio-based Building Materials (ICBBM ECOGRAFI 2017) (**P32**) et lors de la Journée de Rencontre Laboratoires/Entreprises consacrée à la Transition Énergétique et organisée par l'Université Fédérale Toulouse Midi-Pyrénées (**P36**). Un article est également en cours de préparation. Il sera soumis prochainement au *Journal of Building Physics* (**AP4**). Lors du projet SAVASCO, une amélioration des propriétés d'usage de cet isolant à base de moelle de tournesol sera proposée par mes soins. Le bloc isolant ainsi optimisé constituera donc un candidat de choix pour être associé à un béton végétal léger, permettant par la même occasion la valorisation des deux constituants de la tige de tournesol (moelle et écorce) pour la fabrication de ces nouveaux matériaux de construction isolants. Signalons ici que le projet SAVASCO prévoit également la construction sur le site de l'IUT de Tarbes d'une cellule modèle démonstratrice instrumentée. Elle permettra de valider à plus grande échelle les performances des matériaux ainsi développés. Ce faisant, la diffusion de ces nouveaux produits isolants auprès des différents acteurs de la construction biosourcée s'en trouvera nettement facilitée.

Enfin, dans un souci d'élargissement des co-produits agricoles utilisés et sur le même principe que pour le tournesol, le projet SAVASCO prévoit également l'obtention d'un produit de construction à base de tige de maïs, cette plante étant elle aussi largement cultivée à la fois en France et en Espagne, au même titre que le tournesol. Afin d'initier cette partie du travail, Ahmed Ben Rhouma, étudiant en Master Recherche Sciences pour l'ingénieur (Ingénierie des matériaux : élaboration, caractérisation et applications) à l'UPPA, a effectué un stage M2R au premier semestre 2017 (Ben Rhouma, 2017). L'objet de son travail a consisté en le développement d'un procédé de fractionnement de la tige de maïs afin d'obtenir des granulats de moelle et d'écorce. Tout comme ceux issus de la tige de tournesol, ces granulats seront valorisés pour la construction au cours du projet SAVASCO (**AS3, AC18, P41**).

3. Conclusion générale :

Pour conclure, mes travaux de recherche passés et à venir contribuent déjà et contribueront encore à enrichir la Science des Agroressources de nouvelles connaissances, dans le domaine du bioraffinage des plantes entières (notamment les matières oléagineuses) d'une part, et dans celui de la transformation de matières renouvelables en des matériaux biosourcés à moindre impact environnemental d'autre part. Par ailleurs, ils s'intègrent parfaitement dans le schéma directeur du LCA (**Figure 65**), proposé lors de la dernière évaluation du laboratoire par le HCERES à la fin 2019.

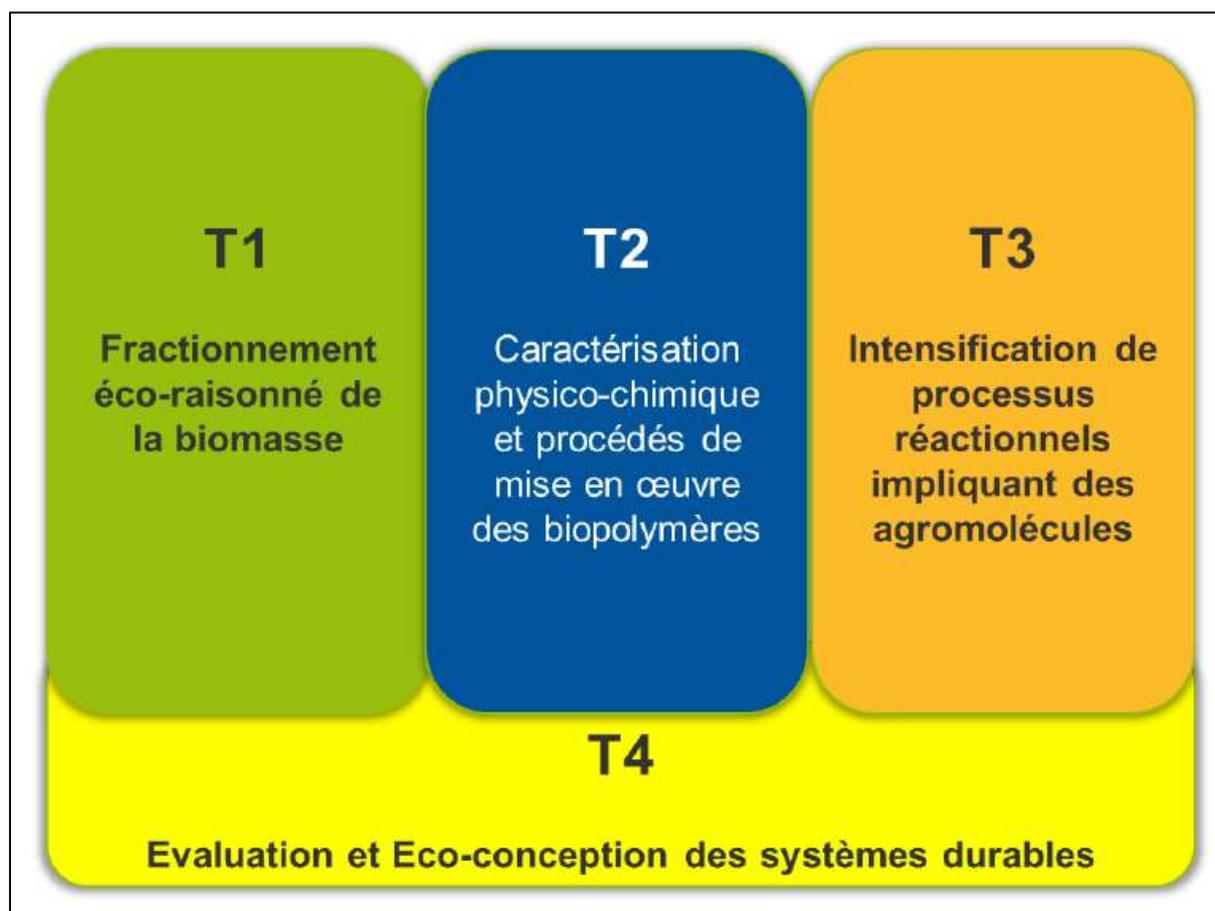


Figure 65

Schéma directeur du LCA en termes de positionnement stratégique pour la période 2019-2024 (quatre thématiques distinctes).

■ Le développement d'une bioraffinerie des plantes entières, notamment les oléagineux, ou de parties de plantes (graines) (**thématique T1**) permettant la production en continu de diverses fractions, des extraits liquides et des raffinats solides, toutes pouvant trouver des applications dans divers secteurs industriels tels que ceux de l'alimentaire, de la cosmétique, de la lipochimie, de l'ameublement, du bâtiment, etc. (**thématique T2**), devrait pouvoir favoriser à moyen terme la mise en place de petites unités de transformation de ces matières agricoles (**thématique T3**), au plus près de la production de la ressource (**thématique T4**), y compris dans des pays autres que la France.

■ Le travail relatif aux émissions de COV par les agromatériaux (**thématique T4**) facilitera leur mise ultérieure sur le marché, au travers d'une étude critique sur leur innocuité.

■ Les deux derniers points relatifs à l'utilisation de la matière végétale pour l'obtention de géotextiles et de composites textiles d'une part, et pour l'obtention d'agro-bétons d'autre part, élargira les domaines d'utilisation de la matière végétale à des secteurs d'activité tels que les transports (pour la production de composites de moyenne voire même de haute performance) et le Génie Civil (pour la production de matériaux de construction isolants et non structurels, présentant de bonnes propriétés hygroscopiques et un faible bilan carbone) (**thématiques T2 et T4**).

Par ailleurs, pour la plateforme AGROMAT du LCA, les divers projets à venir et présentés dans le paragraphe précédent de manière plus exhaustive permettront à n'en pas douter de développer une activité de recherche spécifique au site de Tarbes, non seulement en relation avec mes collègues du LCA basés à Toulouse mais également avec mes partenaires locaux :

- Le LGP-ENIT au travers du CRTCI.
- Le LMDC (INSA-UPS) au travers des travaux menés en collaboration avec le Département Génie Civil Construction Durable de l'IUT de Tarbes.

Enfin, d'un point de vue plus personnel, ces différents projets me donneront l'occasion d'acquérir de nouvelles compétences. Ils me permettront également d'assurer de nouvelles fonctions d'encadrement, tout particulièrement par le biais de la direction de nouvelles Thèses de Doctorat qui se tiendront prioritairement sur le site tarbais du LCA (AGROMAT). Celles-ci contribueront à n'en pas douter à enrichir les savoirs scientifiques dans le domaine de l'utilisation de la matière végétale, notamment les plantes et les graines oléagineuses, pour la production de nouveaux bio-produits, des agromatériaux notamment. Selon les cas, l'acquisition de ces nouvelles connaissances fera l'objet d'une dissémination sous la forme :

- De chapitres ou de publications scientifiques dans des ouvrages ou des journaux internationaux à comité de lecture.
- De communications dans des congrès scientifiques internationaux, sous la forme de présentations orales ou de posters.
- Du dépôt de brevets d'invention, notamment dans le cas de partenariats avec des industriels, au caractère confidentiel.

IX. Références bibliographiques :

■ Ma production scientifique citée dans le manuscrit :

- Ahmed Maaloum, A., Labonne, L., Sabathier, V., Evon, Ph., Magniont, C., Development and characterization of a fully biobased insulation material made of sunflower pith for building applications. *J. Bldg Phys.*, in preparation (AP4).
- Ahmed Maaloum, A., Sabathier, V., Evon, Ph., Magniont, C., Labonne, L., Contribution to the design and the characterization of a fully bio-based insulated panel including sunflower pith. *2nd International Conference on Bio-based Building Materials (ICBBM ECOGRAFI 2017)*, Clermont-Ferrand, France (2017) (P32).
- Ahmed Maaloum, A., Sabathier, V., Evon, Ph., Magniont, C., Labonne, L., Contribution à la formulation et à la caractérisation d'un panneau isolant thermique 100% biosourcé. *Journée de Rencontre Laboratoires/Entreprises consacrée à la Transition Énergétique*, Université Fédérale Toulouse Midi-Pyrénées, Toulouse, France (2017) (P36).
- Amalia Kartika, I., Yani, M., Ariono, D., Evon, Ph., Rigal, L., In situ transesterification of oil-containing *Jatropha curcas* seeds to produce biodiesel fuel. *J. Tek. Kim. Ind.*, **11** (1), 41-49 (2012) (A7).
- Amalia Kartika, I., Ariono, D., Evon, Ph., Rigal, L., Yani, M., Biodiesel production from *Jatropha* seeds: solvent extraction and in situ transesterification in a single step. *Fuel*, **106**, 111-117 (2013) (A8).
- Amalia Kartika, I., Evon, Ph., Cerny, M., Suparno, O., Ariono, D., Hermawan, D., Rigal, L., Simultaneous solvent extraction and transesterification of *jatropha* oil for biodiesel production, and potential application of the obtained cakes for binderless particleboard. *Fuel*, **181**, 870-877 (2016) (A21).
- Amalia Kartika, I., Cerny, M., Vandenbossche, V., Rigal, L., Sablayrolles, C., Vialle, C., Suparno, O., Ariono, D., Evon, Ph., Direct *Calophyllum* oil extraction and resin separation with a binary solvent of *n*-hexane and methanol mixture. *Fuel*, **221**, 159-164 (2018) (A34).
- Amalia Kartika, I., Mujdalipah, S., Vandenbossche, V., Sablayrolles, C., Vialle, C., Evon, Ph., Isolation of vegetable oil and resin from *Calophyllum inophyllum* kernels through mechanical pressing plus water extraction using a twin-screw reactor: feasibility study. *Ind. Crops Prod.*, in preparation (AP5).
- Amalia Kartika, I., Vandenbossche, V., Sablayrolles, C., Vialle, C., Evon, Ph., Production of binderless fiberboards from *Calophyllum inophyllum* twin-screw extrusion cakes through thermopressing. *J. Renew. Mater.*, in preparation (AP7).
- Amalia Kartika, I., Aulya Syamani, F., Vandenbossche, V., Sablayrolles, C., Vialle, C., Evon, Ph., Production of binderless fiberboards from *Calophyllum inophyllum* twin-screw extrusion cakes through thermopressing. *4th International Conference on Biobased Materials and Composites (ICBMC2017)*, Nantes, France (2017) (C8, P31).
- Bourdot, A., Magniont, C., Lagouin, M., Lambaré, G., Labonne, L., Evon, Ph., Evaluation of the potential of corn and sunflower bark particles as bio-aggregates for lightweight concrete. *SynerCrete 2018*, Funchal, Madeira Island, Portugal (2018) (AC18, P41).
- Bourdot, A., Magniont, C., Lagouin, M., Niyigena, C., Evon, Ph., Amziane, S., Impact of bio-aggregates properties on the chemical interactions with mineral binder: application to vegetal concrete. *Journal of Advanced Concrete Technology*, under review (2019) (AS3).
- Burianová, K., Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Evon, Ph., Simon, V., Volatile organic compound emissions from agromaterials resulting from a coriander biorefinery. *39th International Conference on Environmental & Food Monitoring (ISEAC39)*, Hamburg, Germany (2016) (P30).
- Chalot, M., Jeannin, T., Yung, L., Evon, Ph., Labonne, L., Ouagne, P., Lecourt, M., Cazaux, D., Placet, V., Cropping trees and fiber plants at phytomanaged sites. *SETAC Europe 29th Annual Meeting*, Helsinki, Finland (2019) (C27).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Direct extraction of oil from sunflower seeds by twin-screw extruder according to an aqueous extraction process: feasibility study and influence of operating conditions. *Ind. Crops Prod.*, **26** (3), 351-359 (2007) (A2).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Aqueous extraction of residual oil from sunflower press cake using a twin-screw extruder: feasibility study. *Ind. Crops Prod.*, **29** (2-3), 455-465 (2009) (A3).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Thermo-mechanical behaviour of the raffinate resulting from the aqueous extraction of sunflower whole plant in twin-screw extruder: manufacturing of biodegradable agromaterials by thermopressing. *Adv. Mater. Res.*, **112**, 63-72 (2010) (A4).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., The twin-screw extrusion technology, an original and powerful solution for the biorefinery of sunflower whole plant. *Oilseeds and fats, Crops and Lipids*, **17** (6), 404-417 (2010) (A5).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Rigal, L., Manufacturing of renewable and biodegradable fiberboards from cake generated during biorefinery of sunflower whole plant in twin-screw extruder: Influence of thermo-pressing conditions. *Polym. Degrad. Stab.*, **97** (10), 1940-1947 (2012) (A6).
- Evon, Ph., Amalia Kartika, I., Cerny, M., Rigal, L., Extraction of oil from *jatropha* seeds using a twin-screw extruder: Feasibility study. *Ind. Crops Prod.*, **47**, 33-42 (2013) (A10).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L., New thermal insulation fiberboards from cake generated during biorefinery of sunflower whole plant in a twin-screw extruder. *Ind. Crops Prod.*, **52**, 354-362 (2014) (A11).
- Evon, Ph., Amalia Kartika, I., Rigal, L., New renewable and biodegradable particleboards from *jatropha* press cakes. *J. Renew. Mater.*, **2** (1), 52-65 (2014) (A12).
- Evon, Ph., Vinet, J., Labonne, L., Rigal, L., Influence of thermo-pressing conditions on mechanical properties of biodegradable fiberboards made from a deoiled sunflower cake. *Ind. Crops Prod.*, **65**, 117-126 (2015) (A13).
- Evon, Ph., Vinet, J., Rigal, M., Labonne, L., Vandenbossche, V., Rigal, L., New insulation fiberboards from sunflower cake with improved thermal and mechanical properties. *J. Agric. Stud.*, **3** (2), 194-211 (2015) (A16).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Labonne, L., Vinet, J., Pontalier, P.Y., Rigal, L., The thermo-mechano-chemical twin-screw reactor, a new perspective for the biorefinery of sunflower whole plant: aqueous extraction of oil and other biopolymers, and production of biodegradable fiberboards from cake. *Oilseeds and fats, Crops and Lipids*, **23** (5), D505 (2016) (A22).
- Evon, Ph., Barthod-Malat, B., Grégoire, M., Vaca-Medina, G., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Ouagne, P., Production of fiberboards from shives collected after continuous fibre mechanical extraction from oleaginous flax. *J. Nat. Fibers*, <https://doi.org/10.1080/15440478.2017.1423264> (2018) (A32).
- Evon, Ph., Barthod-Malat, B., Grégoire, M., Vaca-Medina, G., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Ouagne, P., Fabrication de panneaux agglomérés de fibres à partir des anas collectés lors de l'extraction mécanique des fibres libériennes de la paille de lin oléagineux. *J. Comp. Adv. Mater.*, **29** (1), 95-105 (2019) (A40).
- Evon, Ph., Faye, M., Rigal, L., Prat, L., Development of a filling model for predicting the efficiency of the aqueous extraction of sunflower and neem vegetable oils using a pilot scale twin-screw extruder. *Chem. Eng. Process.*, in preparation (AP3).

- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L.,** Thermo-pressing of cake meal from sunflower whole plant, one only operation for two actions: expression of residual oil and molding of biodegradable agromaterials. *Proceedings of the 18th International Sunflower Conference*, Mar del Plata, Argentina, pp. 937-942 (2012) (AC12).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L.,** Procédé de fabrication d'un matériau solide à partir d'une plante oléagineuse et matériau solide obtenu (Method for manufacturing a solid material from an oleaginous plant, and resulting solid material). *Brevet FR 2 967 689* (2012) (B1).
- Evon, Ph., Barthod-Malat, B., Grégoire, M., Vaca-Medina, G., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Ouagne, P.,** Fabrication de panneaux agglomérés à partir d'anas collectés après extraction mécanique des fibres situées sur le pourtour des tiges de lin oléagineux. *3^{ème} édition des Journées Jeunes Chercheurs Éco-composites et Composites Bio-sourcés*, ENIT, Tarbes, France (2018) (C15).
- Evon, Ph., Uitterhaegen, E.,** Renewable binderless boards molded using vegetable proteins and lignocellulosic fibers: case studies of sunflower and coriander. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018) (C18).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Candy, L., Pontalier, P.Y., Rouilly, A.,** Twin-screw extrusion: a key technology for the biorefinery. *Biomass extrusion and reaction technologies: principles to practices and future potential*, American Chemical Society, ACS Symposium Series, eBooks, **1304 (2)**, 25-44 (2018) (CL1).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Candy, L., Rouilly, A., Pontalier, P.Y.,** The twin-screw extrusion technology, an innovative technique for the green extraction of food products. *Green Food Processing Techniques: Preservation, Transformation and Extraction*, Elsevier, **10**, 289-314 (2019) (CL2).
- Evon, Ph.,** Renforcement mécanique du PP et du BioPE à l'aide de paille de coriandre (influence du taux de charge, étude de la recyclabilité des composites et de leur comportement après vieillissement UV ou climatique). *Forum Recherche & Industrie « Matériaux Biosourcés »*, Institut Carnot 3BCAR, Paris, France (2018) (CO22).
- Evon, Ph., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L.,** Aqueous extraction of oleic sunflower oil from whole plant by twin-screw extruder: feasibility study, influence of screw configuration and operating conditions. *First International Congress on Green Process Engineering*, Toulouse, France (2007) (P2).
- Evon, Ph., Pontalier, P.Y., Rigal, L., Prat, L.,** Biorefinery of sunflower whole plant by thermo-mechanical fractionation in twin-screw extruder: representation of liquid/solid transport inside the barrel. *Second International Congress on Green Process Engineering*, Venice, Italy (2009) (P7).
- Evon, Ph., Labonne, L., Vandenbossche, V., Pontalier, P.Y., Rigal, L.,** The twin-screw extruder, a continuous liquid/solid extractor and separator during sunflower (*Helianthus annuus* L.) biorefinery. *Biorefinery for Food & Fuels & Materials*, Montpellier SupAgro, France (2015) (P25).
- Evon, Ph., de Langalerie, G., Ramaux, T., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Merah, O., Talou, T., Ouagne, P.,** Amaranth, a model for the future biorefinery of whole plants. *Plant fibres and biopolymers for biobased materials and composites applications, GDR SYMBOISE & FLOWER project*, Nantes, France (2019) (P48).
- Evon, Ph., de Langalerie, G., Labonne, L., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T.,** Innovative low-density blocks from amaranth pith for the thermal insulation of buildings. *15th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Toulouse, France (2018) (P49).
- Evon, Ph.,** Nouveau procédé de bioraffinage du tournesol plante entière par fractionnement thermo-mécano-chimique en extrudeur bi-vis : étude de l'extraction aqueuse des lipides et de la mise en forme du raffinat en agromatériaux par thermopressage. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2008) (TD).
- Franzoso, F., Vaca-Garcia, C., Rouilly, A., Evon, Ph., Montoneri, E., Persico, P., Mendichi, R., Nisticò, R., Francavilla, M.,** Extruded versus Solvent Cast Blends of Poly(vinyl alcohol-co-ethylene) and Biopolymers Isolated from Municipal Biowaste. *J. Appl. Polym. Sci.*, **133 (9)**, 43009 (2016) (A18).
- Gamon, G., Evon, Ph., Rigal, L.,** Twin-screw extrusion impact on natural fibre morphology and material properties in poly(lactic acid) based biocomposites. *Ind. Crops Prod.*, **46**, 173-185 (2013) (A9).
- Grégoire, M., Ouagne, P., Barthod-Malat, B., Evon, Ph., Labonne, L., Placet, V.,** Extraction de fibres de lin oléagineux pour des applications textiles techniques : influence des paramètres de pré-traitement sur le rendement en fibres, la répartition granulométrique et les propriétés mécaniques. *J. Comp. Adv. Mater.*, **29 (1)**, 107-112 (2019) (A41).
- Grégoire, M., Ouagne, P., Barthod-Malat, B., Evon, Ph., Labonne, L., Placet, V.,** L'extraction des fibres du lin oléagineux pour des applications textiles techniques : influence des paramètres de prétraitement et de transformation sur le rendement d'extraction des fibres, la distribution de la taille des fibres et leurs propriétés mécaniques. *3^{ème} édition des Journées Jeunes Chercheurs Éco-composites et Composites Bio-sourcés*, ENIT, Tarbes, France (2018) (C14).
- Jeannin, T., Yung, L., Evon, Ph., Labonne, L., Ouagne, P., Lecourt, M., Cazaux, D., Chalot, M., Placet, V.,** Are nettle fibers produced on metal-contaminated lands suitable for composite applications? *Mater. Today: Proc.*, under review (2019) (AS4).
- Jeannin, T., Yung, L., Evon, Ph., Labonne, L., Ouagne, P., Lecourt, M., Cazaux, D., Chalot, M., Placet, V.,** Native stinging nettle (*Urtica dioica* L.) growing spontaneously under short rotation coppice for phytomanagement of trace element contaminated soils: fibre yield, processability and quality. *Ind. Crops Prod.*, under review (2019) (AS7).
- Jeannin, T., Yung, L., Evon, Ph., Labonne, L., Ouagne, P., Lecourt, M., Cazaux, D., Chalot, M., Placet, V.,** Are nettle fibres produced on metal-contaminated lands suitable for composite applications? *4th International Conference on Natural Fibers (ICNF 2019)*, Porto, Portugal (2019) (C29).
- Magniont, C., Ratiarisoa, R.V., Louvel, S., Correa, G., Sabathier, V., Ginestet, S., Evon, Ph., Labonne, L., Escadeillas, G.,** Potentiel de la paille de lavande distillée comme granulat végétal associé à un liant minéral. *17^{ème} édition des Journées scientifiques du Regroupement Francophone pour la Recherche et la Formation sur le Béton ((RF)²B)*, IFSTTAR, Marne-la-Vallée, France (2016) (AC13).
- Nguyen, Q.H., Talou, T., Cerny, M., Evon, Ph., Merah, O.,** Oil and fatty acid accumulation during coriander (*Coriander sativum* L.) fruit ripening under organic agriculture. *The Crop J.*, **3 (4)**, 266-269 (2015) (A14).
- Nisticò, R., Evon, Ph., Labonne, L., Vaca-Medina, G., Montoneri, E., Nègre, M., Francavilla, M., Vaca-Garcia, C., Magnacca, G., Franzoso, F.,** Extruded Poly(vinyl alcohol-co-ethylene) Composite Films Containing Biopolymers Isolated from Municipal Biowaste. *ChemistrySelect*, **1 (10)**, 2354-2365 (2016) (A23).
- Nisticò, R., Evon, Ph., Labonne, L., Vaca-Medina, G., Montoneri, E., Vaca-Garcia, C., Nègre, M.,** Post-harvest tomato plants and urban food wastes for manufacturing plastic films. *J. Clean. Prod.*, **167**, 68-74 (2017) (A31).
- Ouagne, P., Barthod-Malat, B., Evon, Ph., Labonne, L., Placet, V.,** Fibre extraction from oleaginous flax for technical textile applications: influence of pre-processing parameters on fibre extraction yield, size distribution and mechanical properties. *Procedia Eng.*, **200**, 213-220 (2017) (A29).
- Ouagne, P., Evon, Ph., Placet, V., Soulat, D.,** From fibre extraction to the composite manufacturing processes: Which path to adopt to maximise the mechanical properties of natural fibre based composites? *AIP Conf. Proc.*, **1932**, 020004 (2018) (A35).

- Ouagne, P., Barthod-Malat, B., Evon, Ph., Labonne, L., Placet, V.**, Fibre extraction from oleaginous flax and hemp for technical textile applications: influence of pre-processing and processing parameters on fibre extraction yield, fibre size distribution and fibre mechanical properties. *Proceedings of the 3rd International Conference on Natural Fibers (ICNF 2017)*, Braga, Portugal (2017) (A16).
- Ouagne, P., Evon, Ph., Placet, V.**, From fibre extraction to the composite manufacturing processes: which paths should be considered to maximise the mechanical properties of vegetal fibre based composites? *7th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials*, Bucharest, Romania (2017) (C11).
- Ouagne, P., Evon, Ph., Barthod-Malat, B., Grégoire, M., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T.**, Towards a global valorisation of the linseed flax stems (fibres and shives) for composites and other technical applications: analysis of the technical fibres and shives properties after extraction and manufacture of technical panels using the shives. *6th Conference on Natural Fibre Composites*, Rome, Italy (2017) (C12).
- Ouagne, P., Grégoire, M., Barthod-Malat, B., Gandat, B., Evon, Ph., Labonne, L., Placet, V.**, Impact of extraction of linseed flax and hemp fibre processed by a “all fibre line” and a scutching/hackling unit. *18th European Conference on Composite Materials (ECCM 18)*, Athens, Greece (2018) (C17).
- Ouagne, P., Grégoire, M., Barthod-Malat, B., Labonne, L., Placet, V., Evon, Ph.**, Vegetal fraction extraction and potential of valorisation of linseed flax stems. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018) (C21).
- Ouagne, P., Grégoire, M., Barthod-Malat, B., Evon, Ph., Labonne, L., de Luycker, E., Placet, V.**, Mechanics of biobased fibrous assemblies: from single fiber to composite material. *22nd International Conference on Structure and Structural Mechanics of Textiles (STRUTEX)*, Liberec, Czech Republic (2018) (C26).
- Ouagne, P., Soulat, D., Evon, Ph., Ferreira, M., Labonne, L.**, Use of flax fibres for high challenge technical textile applications: extraction, preparation and requirements for the manufacturing of composite reinforcement fabrics and for geotextiles. *Handbook of Natural Fibers (2nd Edition)*, Elsevier, in press (CL3).
- Ratsimbazafy, H.H., Magniont, C., Evon, Ph., Laborel-Préneron, A.**, Multi-physical characteristics of plant aggregates used in lightweight materials with mineral binder: A review. *Constr. Build. Mater.*, under review (2019) (AS5).
- Rigal, M., Rigal, L., Evon, Ph., Rouilly, A., Vilarem, G., Kervoelen, A., Bourmaud, A., Baley, C., Vandenbossche, V.**, Le défilage thermomécanique en extrudeur bi-vis, une voie de valorisation de biomasses lignocellulosiques dans les composites thermoplastiques via le traitement par une technologie unique. *3^{ème} séminaire du GDR SYMBIOSE*, La Grande Motte, France (2017) (CO17).
- Robillard, A., Uitterhaegen, E., Merah, O., Ballas, S., Véronèse, T., Talou, T., Evon, Ph., Simon, V.**, Building materials, a comparative study of VOC emission rates involving commercial glued wood panels and fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *14th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Ghent, Belgium (2018) (P39).
- Robillard, A., Uitterhaegen, E., Merah, O., Ballas, S., Véronèse, T., Talou, T., Evon, Ph., Simon, V.**, Building materials, a comparative study of VOC emission rates involving commercial glued wood panels and fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018) (P45).
- Robillard, A., Uitterhaegen, E., Merah, O., Ballas, S., Véronèse, T., Talou, T., Evon, Ph., Simon, V.**, Building materials, a comparative study of VOC emission rates involving commercial glued wood panels and fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *Journée scientifique du GDR MBS*, Halle Pajol, Paris, France (2018) (C22, P47).
- Rouilly, A., Evon, Ph., Vandenbossche, V., Rigal, M., Rigal, L.**, Twin-screw extrusion: a versatile tool for the pretreatment of biomass. *253rd ACS National Meeting & Exposition*, ACS, San Francisco, California, USA (2017) (C7).
- Rouilly, A., Vandenbossche, V., Evon, Ph.**, Twin-screw extrusion: a key technology for the biorefinery of renewable resources. *13th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Wroclaw, Poland (2017) (C10).
- Sabathier, V., Louvel, S., Correa, G., Magniont, C., Evon, Ph., Labonne, L.**, Incidence of the water-soluble compounds contained into lavender and sunflower bioaggregates on the hardening process of mineral binders. *Proceedings of the 2nd International Conference on Bio-based Building Materials (ICBBM ECOGRAFI 2017)*, Clermont-Ferrand, France (2017) (A14).
- Sabathier, V., Ahmed Maaloum, A., Magniont, C., Evon, Ph., Labonne, L.**, Développement d'un panneau isolant 100% biosourcé à base de moelle de tournesol (Contribution to the design and the characterization of a fully bio-based insulating panel including sunflower pith). *Congrès National de la Recherche en IUT (CNRIUT2017)*, Auxerre, France (2017) (A15).
- Sayed-Ahmad, B., Urrutigoiti, M., Talou, T., Evon, Ph., Hijazi, A., Saad, Z., Cerny, M., Merah, O.**, Amaranth oilseed as a potential source of phytosqualene for cosmetic applications. *Ind. Crops Prod.*, under review (2019) (AS6).
- Simon, V., Robillard, A., Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Evon, Ph.**, Evaluation of formaldehyde and total volatile organic compounds emissions of fiberboards resulting from a coriander biorefinery versus commercial wood-based building materials. *15th International Conference on Renewable Resources & Biorefineries*, Toulouse, France (2019) (C28).
- Simon, V., Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, Innovant agromaterials from biorefinery of coriander: impact of VOC emissions of particleboards on indoor air quality. *Europe's Analytical Chemistry Meeting (Euroanalysis 2017)*, Stockholm, Sweden (2017) (P33).
- Theng, D., Arbat, G., Delgado-Aguilar, M., Ngo, B., Labonne, L., Evon, Ph., Mutje, P.**, Comparison between two different pretreatment technologies of rice straw fibers prior to fiberboard manufacturing: twin-screw extrusion and digestion plus defibration. *Ind. Crops Prod.*, **107**, 184-197 (2017) (A27).
- Theng, D., Arbat, G., Delgado-Aguilar, M., Ngo, B., Labonne, L., Mutje, P., Evon, Ph.**, Production of fiberboards from rice straw thermo-mechanical extrudates using thermopressing: influence of fiber morphology, water addition and lignin content. *Eur. J. Wood Wood Prod.*, **77** (1), 15-32 (2019) (A38).
- Uitterhaegen, E., Nguyen, Q.H., Sampaio, K.A., Stevens, C.V., Merah, O., Talou, T., Rigal, L., Evon, Ph.**, Extraction of coriander oil using twin-screw extrusion: Feasibility study and potential press cake applications. *J. Am. Oil Chem. Soc.*, **92** (8), 1219-1233 (2015) (A15).
- Uitterhaegen, E., Nguyen, Q.H., Merah, O., Stevens, C.V., Talou, T., Rigal, L., Evon, Ph.**, New renewable and biodegradable fiberboards from a coriander (*Coriandrum sativum* L.) press cake. *J. Renew. Mater.*, **4** (3), 225-238 (2016) (A19).
- Uitterhaegen, E., Sampaio, K.A., Delbeke, E.I.P., De Greyt, W., Cerny, M., Evon, Ph., Merah, O., Talou, T., Stevens, C.V.**, Characterization of French coriander oil as source of petroselinic acid. *Molecules*, **21** (9), 1202 (2016) (A24).
- Uitterhaegen, E., Labonne, L., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, Optimization of thermopressing conditions for the production of binderless boards from a coriander twin-screw extrusion cake. *J. Appl. Polym. Sci.*, **134** (13), 44650 (2017) (A25).
- Uitterhaegen, E., Evon, Ph.**, Twin-screw extrusion technology for vegetable oil extraction: a review. *J. Food Eng.*, **212**, 190-200 (2017) (A28).
- Uitterhaegen, E., Labonne, L., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, Impact of a thermomechanical fiber pre-treatment using twin-screw extrusion on the production and properties of renewable binderless coriander fiberboards. *Int. J. Mol. Sci.*, **18**, 1539 (2017) (A30).
- Uitterhaegen, E., Burianová, K., Ballas, S., Véronèse, T., Merah, O., Talou, T., Stevens, C.V., Evon, Ph., Simon, V.**, Characterization of volatile organic compound emissions from self-bonded boards resulting from a coriander biorefinery. *Ind. Crops Prod.*, **122**, 57-65 (2018) (A36).

- Uitterhaegen, E., Parinet, J., Mérian, T., Ballas, S., Véronèse, T., Merah, O., Talou, T., Labonne, L., Stevens, C.V., Chabert, F., Evon, Ph.**, Performance, durability and recycling of thermoplastic biocomposites reinforced with coriander straw. *Compos. Part A: Appl. Sci. Manuf.*, **113**, 254-263 (A37).
- Uitterhaegen, E., Sampaio, K.A., Merah, O., Talou, T., De Greyt, W., Stevens, C.V., Evon, Ph.**, Influence of moisture content on vegetable oil extraction from coriander fruits by single- and twin-screw extrusion. *Bioresour. Technol.*, in preparation (AP1).
- Uitterhaegen, E., Robillard, A., Ballas, S., Véronèse, T., Merah, O., Talou, T., Stevens, C.V., Evon, Ph., Simon, V.**, Building materials: a comparative study of VOC emission rates involving commercial glued wood panels and fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *J. Hazard. Mater.*, in preparation (AP2).
- Uitterhaegen, E., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Talou, T., Merah, O., Evon, Ph.**, New thermal insulation blocks for building applications made from coriander straw using compression molding. *Eur. J. Environ. Civ. En.*, in preparation (AP8).
- Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, Production and characterization of novel renewable fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *Proceedings of the 6th International Conference on Biobased and Biodegradable Polymers (BIOPOL 2017)*, Mons, Belgium (2017) (AC17, P35).
- Uitterhaegen, E., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, The coriander straw, an original agricultural by-product for the production of building insulation materials. *Proceedings of the 3rd International Conference on Bio-based Building Materials (ICBBM 2019)*, 627-633, Belfast, United Kingdom (2019) (AC19).
- Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Simon, V., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, La technologie bi-vis, un outil polyvalent pour le bioraffinage de la coriandre et l'obtention de bioproduits aux multiples utilisations. *6^{ème} colloque du Réseau Français de Biologie des Graines (GRAINES 2017)*, Montpellier, France (2017) (C13, P37).
- Uitterhaegen, E., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, La paille de coriandre, un résidu agricole original pour l'obtention de matériaux de construction 100% biosourcés. *Journée scientifique du GDR MBS, Ifsttar, Champs sur Marne, France* (2018) (C16, P38).
- Uitterhaegen, E., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, Production and characterization of novel renewable fiberboards resulting from a coriander biorefinery. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018) (P43).
- Uitterhaegen, E., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, The coriander straw, an original agricultural residue for 100% bio-based building materials. *8th International Conference on Structural Analysis of Advanced Materials (ICSAAM 2018)*, Tarbes, France (2018) (P44).
- Uitterhaegen, E., Labonne, L., Merah, O., Talou, T., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph.**, Coriander straw, an original lignocellulosic by-product for the mechanical reinforcement of polypropylene and biobased polyethylene. *3^{ème} séminaire du GDR SYMBIOSE*, La Grande Motte, France (2017) (CO18).
- Vandenbossche, V., Brault, J., Hernandez-Melendez, O., Evon, Ph., Barzana, E., Vilarem, G., Rigal, L.**, Suitability assessment of a continuous process combining thermo-mechano-chemical and bio-catalytic action in a single pilot-scale twin-screw extruder for six different biomass sources. *Bioresour. Technol.*, **211**, 146-153 (2016) (A20).
- Verdier, T., Bertron, A., Magniont, C., Montibus, M., Evon, Ph.**, Monoglycerides to protect bio-based insulation materials from microbial growth. *Final Conference of RILEM TC 253-MCI: Microorganisms-Cementitious Materials Interactions*, Toulouse, France (2018) (P42).
- Verdier, T., Balthazar, L., Montibus, M., Magniont, C., Evon, Ph., Bertron, A.**, Development of sunflower-based insulation materials coated with glycerol esters to prevent microbial growth. *Proceedings of the 3rd International Conference on Bio-based Building Materials (ICBBM 2019)*, 50-56, Belfast, United Kingdom (2019) (AC20).
- Vialle, C., De Vita, I., Evon, Ph., Amalia Kartika, I., Vandenbossche, V., Rigal, L., Sablayrolles, C.**, Innovative extrusion process eco-design for *Calophyllum inophyllum* as feedstock for biofuel production. *Ind. Crops Prod.*, in preparation (AP6).

■ Les autres références bibliographiques citées dans le manuscrit :

- Abdillahi, H., Chabrat, É., Rouilly, A., Rigal, L.**, Influence of citric acid on thermoplastic wheat flour/poly(lactic acid) blends. II. Barrier properties and water vapor sorption isotherms. *Ind. Crops Prod.*, **50**, 104-111 (2013).
- Abdillahi, H.**, Propriétés barrières et mécaniques d'agromatériaux thermoplastiques à base de blé et de polyesters biosourcés et biodégradables. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2014).
- Ahmed Maaloum, A.**, Conception et caractérisation d'un panneau isolant à base de moelle de tournesol totalement biosourcé. *Stage de fin d'études (M2R)*, Master Recherche Sciences pour l'ingénieur (Ingénierie des matériaux : élaboration, caractérisation et applications), Université de Pau et des Pays de l'Adour, Pau, France (2016).
- Alavez-Ramirez, R., Chiñas-Castillo, F., Morales-Dominguez, V.J., Ortiz-Guzman, M.**, Thermal conductivity of coconut fibre filled ferrocement sandwich panels. *Constr. Build. Mater.*, **37**, 425-431 (2012).
- Amalia Kartika, I.**, Nouveau procédé de fractionnement des graines de tournesol : expression et extraction en extrudeur bi-vis, purification par ultrafiltration de l'huile de tournesol. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2005).
- Amalia Kartika, I., Pontalier, P.Y., Rigal, L.**, Oil extraction of oleic sunflower seeds by twin-screw extruder: Influence of screw configuration and operating conditions. *Ind. Crops Prod.*, **22** (3), 207-222 (2005).
- Amalia Kartika, I., Pontalier, P.Y., Rigal, L.**, Extraction of sunflower oil by twin-screw extruder: screw configuration and operating conditions effects. *Bioresour. Technol.*, **97** (18), 2302-2310 (2006).
- Amalia Kartika, I., Pontalier, P.Y., Rigal, L.**, Twin-screw extruder for oil processing of sunflower seeds: Thermo-mechanical pressing and solvent extraction in a single step. *Ind. Crops Prod.*, **32** (3), 297-304 (2010).
- Ardente, F., Beccali, M., Cellura, M., Mistretta, M.**, Building energy performance: A LCA case study of kenaf-fibres insulation board. *Energ. Build.*, **40** (1), 1-10 (2008).
- Badawy, M.E.I., Rabea, E.I., Rogge, T.M., Stevens, C.V., Steurbaut, W., Höfte, M., Smagge, G.**, Fungicidal and insecticidal activity of O-acyl chitosan derivatives. *Polym. Bull.*, **54**, 279-289 (2005).
- Bazus, A.**, Raffinage des agroressources : extraction et caractérisation des glucuronoxylanes des coques de tournesol. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (1991).
- Beaugrand, J., Berzin, F.**, Lignocellulosic fiber reinforced composites: Influence of compounding conditions on defibrization and mechanical properties. *J. Appl. Polym. Sci.*, **128** (2), 1227-1238 (2013).
- Beaugrand, J.**, Dernières avancées dans la modélisation du comportement des fibres végétales dans les procédés d'extrusion et d'injection. *4^{ème} colloque « Fibres naturelles et polymères »*, UTT, Troyes, France (2016).
- Beaumont, O.**, Pyrolyse extractive du bois. *Thèse de Doctorat*, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, Paris, France (1981).
- Ben Rhouma, A.**, Développement d'un procédé de fractionnement de la tige de maïs pour obtenir des granulats de moelle et d'écorce valorisables en construction. *Stage de fin d'études (M2R)*, Master Recherche Sciences pour l'ingénieur (Ingénierie des matériaux : élaboration, caractérisation et applications), Université de Pau et des Pays de l'Adour, Pau, France (2017).

- Benfratello, S., Capitano, C., Peri, G., Rizzo, G., Scaccianoce, G., Sorrentino, G.**, Thermal and structural properties of a hemp-lime biocomposite. *Constr. Build. Mater.*, **48**, 745-754 (2013).
- Bledzki, A.K., Letman, M., Viksne, A., Rence, L.**, A comparison of compounding processes and wood type for wood fibre-PP composites. *Compos. Part A-Appl. S.*, **36**, 789-797 (2005).
- Bligh, E.G., Dyer, W.J.**, A rapid method of total lipid extraction and purification. *Can. J. Biochem. Phys.*, **37**, 911-917 (1959).
- Blumenkrantz, N., Asboe-Hansen, G.**, New method for quantitative determination of uronic acids. *Anal. Biochem.*, **54**, 484-489 (1973).
- Böhm, M., Z.M. Salem, M., Srbaa, J.**, Formaldehyde emission monitoring from a variety of solid wood, plywood, blockboard and flooring products manufactured for building and furnishing materials. *J. Hazard. Mater.*, **221-222**, 68-79 (2012).
- Bourmaud, A., Pimbert, S.**, Investigations on mechanical properties of poly(propylene) and poly(lactic acid) reinforced by miscanthus fibers. *Compos. Part A-Appl. S.*, **39**, 1444-1454 (2008).
- Bourmaud, A., Beaugrand, J., Shah, D.U., Placet, V., Baley, C.**, Towards the design of high-performance plant fibre composites. *Prog. Mater. Sci.*, **97**, 347-408 (2018).
- Bouvier, J.M., Guyomard, P.**, Method and installation for continuous extraction of a liquid contained in a raw material. *PCT/WO97/43113* (1997).
- Bouvier, J.M., Campanella, O.H.**, The Generic Extrusion Process IV: Thermomechanical pretreatment and Solid-Liquid Separation. *Extrusion Processing Technology: Food and Non-Food Biomaterials*, Wiley Online Library, pp. 351-392 (2014).
- Braut, J.**, Développement d'un procédé innovant de dégradation enzymatique des parois végétales pour la production de bioéthanol de seconde génération. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2013).
- Butterworth, J.H., Morgan, E.D.**, Isolation of a substance that suppresses feeding in locusts. *J. Chem. Soc. Chem. Comm.*, 23-24 (1968).
- Campbell, E.J.**, Sunflower oil. *J. Am. Oil Chem. Soc.*, **60**, 387-392 (1983).
- Canakci, M., Gerpen, J.V.**, Biodiesel from oils and fats with high free fatty acids. *Trans. Am. Soc. Agric. Eng.*, **44**, 1429-1436 (2001).
- Canella, M., Castriotta, G., Bernardi, A., Boni, R.**, Functional properties of individual sunflower albumin and globulin. *Lebensm.-Wiss. Technol.*, **18**, 288-292 (1985).
- Celhay, C.**, Fractionnement de co-produits de pin maritime (*Pinus pinaster*) et de peuplier (*Populus tremula*) pour l'obtention d'extraits polyphénoliques à activité antioxydante : procédé d'extraction aqueuse en extracteur bi-vis et étude des conditions subcritiques. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2013).
- Celhay, C., Mathieu, C., Candy, L., Vilarem, G., Rigal, L.**, Aqueous extraction of polyphenols and antiradicals from wood by-products by a twin-screw extractor: Feasibility study. *C. R. Chim.*, **17** (3), 204-211 (2014).
- Chabrat, É.**, Développement de nouvelles formulations d'agromatériaux thermoplastiques par mélange en extrudeur bi-vis de céréales et de polymères issus de ressources renouvelables. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2012).
- Chabrat, É., Abdillahi, H., Rouilly, A., Rigal, L.**, Influence of citric acid and water on thermoplastic wheat flour/poly(lactic acid) blends. I: Thermal, mechanical and morphological properties. *Ind. Crops Prod.*, **37** (1), 238-246 (2012).
- Chikhi, M., Agoudjil, B., Boudenne, A., Gherabli, A.**, Experimental investigation of new biocomposite with low cost for thermal insulation. *Energ. Build.*, **66**, 267-273 (2013).
- Choudhury, G.S., Gogoi, B.K., Oswalt, A.J.**, Twin-screw extrusion of pink salmon muscle and rice flour blends: effects of kneading elements. *J. Aquat. Food Prod. Technol.*, **7**, 69-91 (1998).
- Colas, D.**, Étude de la bioraffinerie des plantes vertes : Application au fractionnement des protéines de luzerne par extrusion bi-vis et chromatographie hydrophobe. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2012).
- Colas, D., Doumeng, C., Pontalier, P.Y., Rigal, L.**, Twin-screw extrusion technology, an original solution for the extraction of proteins from alfalfa (*Medicago sativa*). *Food Bioprod. Process.*, **91** (2), 175-182 (2013a).
- Colas, D., Doumeng, C., Pontalier, P.Y., Rigal, L.**, Green crop fractionation by twin-screw extrusion: Influence of the screw profile on alfalfa (*Medicago sativa*) dehydration and protein extraction. *Chem. Eng. Process.*, **72**, 1-9 (2013b).
- Di Gioia, L.**, Effect of hydrophilic plasticizers on thermomechanical properties of corn gluten meal. *Cereal Chem.*, **75**, 514-519 (1998).
- Diebel, W., Reddy, M.M., Misra, M., Mohanty, A.**, Material property characterization of co-products from biofuel industries: potential uses in value added biocomposites. *Biomass Bioenerg.*, **37**, 88-96 (2012).
- Diedhiou, D.**, Bioraffinage du Neem (*Azadirachta indica* A. Juss.) : valorisation intégrée des constituants de la graine par fractionnement. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2017).
- Diquelou, Y.**, 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*, UMR FARE, INRA, Reims, France (2013).
- Dubois, M., Gilles, K.A., Hamilton, J.K., Rebers, P.A., Smith, F.**, Colorimetric method for determination of sugars and related substances. *Anal. Chem.*, **28**, 350-356 (1956).
- Dufaure, C., Leyris, J., Rigal, L., Mouloungui, Z.**, A twin-screw extruder for oil extraction: I. Direct expression of oleic sunflower seeds. *J. Am. Oil Chem. Soc.*, **76** (9), 1073-1079 (1999a).
- Dufaure, C., Mouloungui, Z., Rigal, L.**, A twin-screw extruder for oil extraction: II. Alcohol extraction of oleic sunflower seeds. *J. Am. Oil Chem. Soc.*, **76** (9), 1081-1086 (1999b).
- European Food Safety Authority (EFSA)**, Scientific opinion on the safety of coriander seed oil as a novel food ingredient. *EFSA J.*, **11** (10), 3422 (2013).
- Évrard, J.**, Développement d'un cuiseur-extrudeur bi-vis adapté à la transformation des oléagineux nouveaux spécialement développés pour des usages non alimentaires. *Rapport AGRICE*, Convention ADEME 9801028 (2000).
- Faruk, O., Bledzki, A.K., Fink, H.P., Sain, M.**, Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000-2010. *Prog. Polym. Sci.*, **37** (11), 1552-1596 (2012).
- Faye, M.**, Nouveau procédé de fractionnement de la graine de Neem (*Azadirachta Indica* A. Juss.) sénégalais : production d'un bio-pesticide, d'huile et de tourteau. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2010).
- FCBA**, Étude bibliographique sur les émissions de formaldéhyde des bois collés. Bordeaux, France (2013).
- Gabrieli, I., Gatenholm, P., Glasser, W.G., Jain, R.K., Kenne, L.**, Separation, characterization and hydrogel-formation of hemicellulose from aspen wood. *Carbohydr. Polym.*, **43**, 367-374 (2000).
- Gamon, G.**, Incorporation de fibres végétales dans des matrices thermoplastiques biosourcées et biodégradables par extrusion bi-vis pour la production de matériaux biocomposites moulés par injection. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2013).
- Gautam, A., Choudhury, G.S.**, Screw configuration effect on residence time distribution and mixing in twin-screw extruder during extrusion of rice flour. *J. Food Process Eng.*, **22**, 263-285 (1999a).
- Gautam, A., Choudhury, G.S.**, Screw configuration effect on starch breakdown during twin-screw extrusion of rice flour. *J. Food Process. Pres.*, **23**, 355-375 (1999b).
- Geneau, C.**, Procédé d'élaboration d'agromatériau composite naturel par extrusion bi-vis et injection-moulage de tourteau de tournesol. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2006).
- Gerçel, H.F.**, The production and evaluation of bio-oils from the pyrolysis of sunflower-oil cake. *Biomass Bioenerg.*, **23**, 307-314 (2002).

- Gogoi, B.K., Choudhury, G.S., Oswalt, A.J.**, Effects of location and spacing of reversed screw and kneading element combination during twin-screw extrusion of starchy and proteinaceous blends. *Food Res. Int.*, **29**, 505-512 (1996).
- Goodrum, J.W.**, Volatility and boiling points of biodiesel from vegetable oils and tallow. *Biomass Bioenerg.*, **22**, 205-211 (2002).
- Gubiz, G.M., Mittelbach, M., Trabi, M.**, Exploitation of the tropical oil seed plant *Jatropha curcas* L. *Bioresour. Technol.*, **67**, 73-82 (1999).
- Guymard, P.**, Étude de faisabilité d'un extrudeur bi-vis en pressage-extrusion de graines oléagineuses. *Thèse de Doctorat*, Université Technologique de Compiègne, Génie des Procédés Industriels, Compiègne, France (1994).
- Haas, W., Mittelbach, M.**, Detoxification experiments with the seed oil from *Jatropha curcas* L. *Ind. Crops Prod.*, **12**, 111-118 (2000).
- Halvarsson, S., Edlund, H., Norgren, M.**, Manufacture of non-resin wheat straw fiberboards. *Ind. Crops Prod.*, **29**, 437-445 (2009).
- Hatakeyama, T., Hatakeyama, H.**, Thermal properties of green polymers and biocomposites. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers (2004).
- Huda, M.S., Drzal, L.T., Misra, M., Mohanty, A.K.**, Wood-fiber-reinforced poly(lactic acid) composites: Evaluation of the physicomechanical and morphological properties. *J. Appl. Polym. Sci.*, **102**, 4856-4869 (2006).
- Humbert, J.**, Conception, élaboration et production d'agrocomposite à partir de tourteau de tournesol : étude du procédé d'extrusion-formulation-granulation et d'injection-moulage. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2008).
- Isobe, S., Zuber, F., Uemura, K., Noguchi, A.**, A new twin-screw press design for oil extraction of dehulled sunflower seed. *J. Am. Oil Chem. Soc.*, **69** (9), 884-889 (1992).
- Jamshidian, M., Tehrani, E.A., Imran, M., Jacquot, M., Desobry, S.**, Poly-Lactic Acid: Production, Applications, Nanocomposites, and Release Studies. *Compr. Rev. Food Sci. F.*, **9**, 552-571 (2010).
- Johnson, L.A., Lusas, E.W.**, Comparison of alternative solvents for oils extraction. *J. Am. Oil Chem. Soc.*, **60** (2), 229-242 (1983).
- Jorda, J.**, Étude du procédé d'extraction alcaline et de purification de pectines de pulpe de betterave : étude des propriétés chimiques et physico-chimiques. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2003).
- Joseph, P.V., Joseph, K., Thomas, S.**, Effect of processing variables on the mechanical properties of sisal-fiber-reinforced polypropylene composites. *Compos. Sci. Technol.*, **59**, 1625-1640 (1999).
- Karaj, S., Müller, J.**, Optimizing mechanical oil extraction of *Jatropha curcas* L. seeds with respect to press capacity, oil recovery and energy efficiency. *Ind. Crops Prod.*, **34**, 1010-1016 (2011).
- Kesselmeier, J., Staudt, M.**, Biogenic Volatile Organic Compounds (VOC): An Overview on Emission, Physiology and Ecology. *J. Atmos. Chem.*, **33**, 23-88 (1999).
- Khedari, J., Charoenvai, S., Hirunlabh, J.**, New insulating particleboards from durian peel and coconut coir. *Build. Environ.*, **38** (3), 435-441 (2003).
- Khedari, J., Nankongnab, N., Hirunlabh, J., Teekasap, S.**, New low-cost insulation particleboards from mixture of durian peel and coconut coir. *Build. Environ.*, **39** (1), 59-65 (2004).
- Korjenic, A., Petránek, V., Zach, J., Hroudová, J.**, Development and performance evaluation of natural thermal-insulation materials composed of renewable resources. *Energ. Build.*, **43** (9), 2518-2523 (2011).
- Kymäläinen, H.R., Sjöberg, A.M.**, Flax and hemp fibres as raw materials for thermal insulations. *Build. Environ.*, **43** (7), 1261-1269 (2008).
- Lacaze-Dufaure, C.**, Fractionnement du tournesol oléique : expression et transformations chimiques des triglycérides de graines en esters lubrifiants et adjuvants en réacteur conventionnel et réacteur bi-vis. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (1998).
- Lalou, A.**, Mise au point d'un procédé d'extraction des hémicelluloses à partir d'un substrat végétal ligno-cellulosique : application au cas des coques de tournesol. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (1995).
- Lapczynski, A., Letizia, C.S., Api, A.M.**, Addendum to fragrance material review on linalool. *Food Chem. Toxicol.*, **46**, 190-192 (2008).
- Le Moigne, N., van den Oever, M., Budtova, T.**, A statistical analysis of fibre size and shape distribution after compounding in composites reinforced by natural fibres. *Compos. Part A-Appl. S.*, **42**, 1542-1550 (2011).
- Lertsutthiwong, P., Khunthon, S., Siralertmukul, K., Noomun, K., Chandkrachang, S.**, New insulating particleboards prepared from mixture of solid wastes from tissue paper manufacturing and corn peel. *Bioresour. Technol.*, **99** (11), 4841-4845 (2008).
- Lesage-Meessen, L., Bou, M., Sigollet, J.C., Faulds, C.B., Lomascolo, A.**, Essential oils and distilled straws of lavender and lavandin: a review of current use and potential application in white biotechnology. *Appl. Microbiol. Biotechnol.*, **99** (8), 3375-3385 (2015).
- Leyris, J.**, Valorisation du tourteau de tournesol : étude, procédé et modélisation de l'extraction des protéines et exploitation de leurs propriétés fonctionnelles en vue de l'obtention d'aromatériaux. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (1998).
- Leyris, J., Silvestre, F., Rigal, L., Gaset, A.**, Procédé de fabrication d'objets à partir de matière première végétale par formage ou thermoformage. *Brevet Français FR 2 784 047* (1998).
- Lezak, E., Kulinski, Z., Masirek, R., Piorkowska, E., Pracella, M., Gadzinowska, K.**, Mechanical and Thermal Properties of Green Polylactide Composites with Natural Fillers. *Macromol. Biosci.*, **8**, 1190-1200 (2008).
- Lim, J.K., Hayashi, N., Matsuo, H., Hayakawa, I., Fujio, Y.**, Plasticization of wheat starch-gluten mixture under an elevated temperature. *J. Fac. Agr. Kyushu Univ.*, **37**, 307-313 (1993).
- Liu, K.T., Gao, S., Chung, T.W., Huang, C.M., Lin, Y.S.**, Effect of process conditions on the removal of phospholipids from *Jatropha curcas* oil during the degumming process. *Chem. Eng. Res. Des.*, **90**, 1381-1386 (2012).
- Louvel, S.**, Étude des interactions entre liant minéral et granulats végétaux : Influence de la nature du liant et de la composition chimique du granulats végétal. *Stage de fin d'études (M2R)*, Master Recherche Génie Civil, Université Paul Sabatier, Toulouse, France (2016).
- Magniont, C.**, Contribution à la formulation et à la caractérisation d'un écomatériau de construction à base d'agroressources. *Thèse de Doctorat*, Université Paul Sabatier, Toulouse, France (2010).
- Magniont, C., Gazagnes, É., Escadeillas, G.**, Matériau composite de construction incorporant de la chènevotte de chanvre. *Brevet Européen EP 2,263,985, Brevet Français FR 2 946 640* (2010).
- Manolas, C.**, Fractionnement du sorgho à fibres : extraction et caractérisation des hémicelluloses de la moelle, étude des matériaux composites. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (1993).
- Manolas, C., Gaset, A., Jamet, J.P., Qiabi, A., Rigal, L., Vilarem, G.**, Production process of soft, solid, biodegradable films and products obtained. *Brevet Européen EP 0,612,789* (1994).
- Manolas, C., Gaset, A., Jamet, J.P., Rigal, L., N'Diaye, S.**, Process for depithing pith containing plants, in particular sorghum. *Brevet Européen EP 0,698,681* (1995).
- Maréchal, V., Rigal, L.**, Characterization of by-products of sunflower culture: commercial applications for stalks and heads. *Ind. Crops Prod.*, **10**, 185-200 (1999).
- Maréchal, P.**, Analyse des principaux facteurs impliqués dans le fractionnement combiné de pailles et de sons de blé en extrudeur bi-vis : obtention d'aromatériaux. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2001).
- Markessini, E., Mouratidis, P., Roffael, E., Rigal, L.**, Method for production of lignocellulosic composite materials. *WO97/38833* (1997).
- Martelli, F.G.**, Twin-screw extruders: a basic understanding. Vans Nostrand Reinhold Company, New York (1983).
- Masirek, R., Kulinski, Z., Chionna, D., Piorkowska, E., Pracella, M.**, Composites of poly(L-lactide) with hemp fibers: Morphology and thermal and mechanical properties. *J. Appl. Polym. Sci.*, **105**, 255-268 (2007).

- Mati-Baouche, N., Elchinger, P.H., de Baynast, H., Pierre, G., Delattre, C., Michaud, P.**, Chitosan as an adhesive. *Eur. Polym. J.*, **60**, 198-212 (2014a).
- Mati-Baouche, N., de Baynast, H., Lebert, A., Sun, S., Lopez-Mingo, C.J.S., Leclaire, P., Michaud, P.**, Mechanical, thermal and acoustical characterizations of an insulating bio-based composite made from sunflower stalks particles and chitosan. *Ind. Crops Prod.*, **58**, 244-250 (2014b).
- Mati-Baouche, N.**, Conception d'isolants thermiques à base de broyats de tiges de tournesol et de liants polysaccharidiques. *Thèse de Doctorat*, Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand, France (2015).
- Mati-Baouche, N., de Baynast, H., Sun, S., Lebert, A., Petit, E., Michaud, P.**, Polysaccharidic binders for the conception of an insulating agro-composite. *Compos. Part A-Appl. S.*, **78**, 152-159 (2015).
- Mechling, É.**, Mise au point d'un réacteur multitâches adapté à la production des composés oléophiles à partir des milieux réactionnels issus des graines oléagineuses. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2002).
- Mohanty, A.K., Misra, M., Hinrichsen, G.**, Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites: An overview. *Macromol. Mater. Eng.*, **276-277**, 1-24 (2000).
- Morales, A., Kokini, J.L.**, Glass transition of soy globulins using differential scanning calorimetry and mechanical spectroscopy. *Biotechnol. Prog.*, **13**, 624-629 (1997).
- Moreau, R., Johnston, D., Hicks, K.**, The influence of moisture content and cooking on the screw pressing and prepressing of corn oil from corn germ. *J. Am. Oil Chem. Soc.*, **82 (11)**, 851-854 (2005).
- Müller, G.C., Junnila, A., Butler, J., Kravchenko, V.D., Revay, E.E., Weiss, R.W., Schlein, Y.**, Efficacy of the botanical repellents geraniol, linalool, and citronella against mosquitoes. *J. Vector Ecol.*, **34**, 2-8 (2009).
- Nguyen, Q.H.**, Étude de la bioaccumulation et de l'extraction séquentielle des huiles végétale et essentielle issues de graines de coriandre (*Coriandrum sativum*) originaires d'Europe et d'Asie. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2015).
- Nicolajsen, A.**, Thermal transmittance of a cellulose loose-fill insulation material. *Build. Environ.*, **40 (7)**, 907-914 (2005).
- Nieddu, M., Vivien, F.D.**, Transitions towards bioeconomy? The case of the biorefinery (Université de Reims Champagne Ardenne, ANR-09-CP2D-01-01 AEP2C2V). *1^{er} Congrès Interdisciplinaire du Développement Durable, Quelle transition pour nos sociétés ?*, pp. 131-149, Namur, Belgium (2013).
- Nozahic, V.**, 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-Ferrand, France (2012).
- Nyambo, C., Mohanty, A.K., Misra, M.**, Poly lactide-Based Renewable Green Composites from Agricultural Residues and Their Hybrids. *Biomacromolecules*, **11**, 1654-1660 (2010).
- N'Diaye, S.**, Fractionnement de la matière végétale : mise au point d'un procédé thermo-mécano-chimique et modélisation du fonctionnement du réacteur bi-vis. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (1996).
- N'Diaye, S., Rigal, L.**, Factors influencing the alkaline extraction of poplar hemicelluloses in a twin-screw reactor: correlation with specific mechanical energy and residence time distribution of the liquid phase. *Bioresour. Technol.*, **75**, 13-18 (2000).
- Ogbomo, S.M., Chapman, K., Webber, C., Bledsoe, R., D'Souza, N.A.**, Benefits of low kenaf loading in biobased composites of poly(L-lactide) and kenaf fiber. *J. Appl. Polym. Sci.*, **112**, 1294-1301 (2009).
- Oksman, K., Skrifvars, M., Selin, J.F.**, Natural fibres as reinforcement in polylactic acid (PLA) composites. *Compos. Sci. Technol.*, **63**, 1317-1324 (2003).
- Oksman, K., Mathew, A.P., Långström, R., Nyström, B., Joseph, K.**, The influence of fibre microstructure on fibre breakage and mechanical properties of natural fibre reinforced polypropylene. *Compos. Sci. Technol.*, **69**, 1847-1853 (2009).
- Okuda, N., Hori, K., Sato, M.**, Chemical changes of kenaf core binderless boards during hot pressing. I: Influence of the pressing temperature condition. *J. Wood Sci.*, **52**, 244-248 (2006).
- Paiva, A., Pereira, S., Sá, A., Cruz, D., Varum, H., Pinto, J.**, A contribution to the thermal insulation performance characterization of corn cob particleboards. *Energ. Build.*, **45**, 274-279 (2012).
- Panyakaew, S., Fotios, S.**, New thermal insulation boards made from coconut husk and bagasse. *Energ. Build.*, **43 (7)**, 1732-1739 (2011).
- Peyrat, E.**, Nouveau composite biodégradable obtenu à partir de maïs plante entière : étude du procédé de transformation thermo-mécano-chimique en extrudeur bi-vis et de la mise en forme par injection-moulage. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2000).
- Peyrat, E., Rigal, L., Pluquet, V., Gaset, A.**, Vegetable material from cereal plants and process for making the same. *Brevet Européen EP 0,989,228* (2000).
- Pillin, I., Kervoelen, A., Bourmaud, A., Goimard, J., Montrelay, N., Baley, C.**, Could oleaginous flax fibers be used as reinforcement for polymers? *Ind. Crops Prod.*, **34 (3)**, 1556-1563 (2011).
- Pinto, J., Paiva, A., Varum, H., Costa, A., Cruz, D., Pereira, S., Fernandes, L., Tavares, P., Agarwal, J.**, Corn's cob as a potential ecological thermal insulation material. *Energ. Build.*, **43 (8)**, 1985-1990 (2011).
- Plackett, D.**, Maleated Polylactide as an Interfacial Compatibilizer in Biocomposites. *J. Polym. Environ.*, **12**, 131-138 (2004).
- Pouplin, M., Redl, A., Gontard, N.**, Glass transition of wheat gluten plasticized with water, glycerol or sorbitol. *J. Agric. Food Chem.*, **47**, 538-543 (1999).
- Pradhan, R.C., Mishra, S., Naik, S.N., Bhatnagar, N., Vijay, V.K.**, Oil expression from *Jatropha* seeds using a screw press expeller. *Biosyst. Eng.*, **109 (2)**, 158-166 (2011).
- Prat, L.**, Modélisation d'un réacteur thermo-mécano-chimique bi-vis utilisé en fractionnement de la matière végétale. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (1998).
- Prat, L., Guiraud, P., Rigal, L., Gourdon, C.**, A one dimensional model for the prediction of extraction yields in a two phases modified twin-screw extruder. *Chem. Eng. Process.*, **41**, 743-751 (2002).
- Qian, J., Wang, F., Liu, S., Yun, Z.**, In situ alkaline transesterification of cottonseed oil for production of biodiesel and nontoxic cottonseed meal. *Bioresour. Technol.*, **99**, 9009-9012 (2008).
- Quevedo, S.**, Development and characterization of new thermoplastic biocomposites made from coriander straw and PP. *Semestre de Projet d'Initiation à la Recherche*, École Nationale d'Ingénieurs, Tarbes, France (2016).
- Rigal, L.**, Technologie d'extrusion bi-vis et fractionnement de la matière végétale. *40 ans d'extrusion bi-vis chez Clextrel*, Firminy, France, 26-33 (1997).
- Rigal, L., Ioualalen, R., Gaset, A.**, Method for obtaining a starch-free bran extract, a refined product and material resulting from this method. *Brevet Français FR 2 758 332* (1998).
- Rigal, L., Peyrat, E., Pluquet, V., Gaset, A.**, Matériau à base de matière issue de plantes céréalières et procédé d'obtention. *Brevet Européen EP 0,989,228* (1999).
- Rigal, L.**, Twin-screw technology, a new tool for fractionation and thermo-mechano-chemical conversion of the agroressources. *Proceedings of the 1st World Conference on Biomass for Energy and Industry*, Sevilla, Spain (2000).
- Rosenthal, A., Pyle, D.L., Niranjana, K.**, Aqueous and enzymatic processes for edible oil extraction. *Enzyme Microb. Technol.*, **19**, 402-420 (1996).

- Rouilly, A., Orliac, O., Silvestre, F., Rigal, L., DSC study on the thermal properties of sunflower proteins according to their water content. *Polymer*, **42** (26), 10111-10117 (2001).
- Rouilly, A., Nouveaux agromatériaux composites à matrice protéique et polysaccharidique : étude du fractionnement, de la transformation et de la mise en forme par extrusion et par injection-moulage de la pulpe de betterave et du tourteau de tournesol. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2002).
- Rouilly, A., Rigal, L., Agro-materials: A bibliographic review. *J. Macromol. Sci. Polym. Rev.*, **42**, 441-479 (2002).
- Rouilly, A., Orliac, O., Silvestre, F., Rigal, L., Thermal denaturation of sunflower globulins in low moisture conditions. *Thermochim. Acta*, **398**, 195-201 (2003).
- Saadaoui, N., Rouilly, A., Fares, K., Rigal, L., Characterization of date palm lignocellulosic by-products and self-bonded composite materials obtained thereof. *Mater. Des.*, **50**, 302-308 (2013).
- Saiah, R., Perrin, B., Rigal, L., Improvement of thermal properties of fired clays by introduction of vegetable matter. *J. Build. Phys.*, **34** (2), 124-142 (2010).
- Sampaio, K.A., Zyaykina, N., Wozniak, B., Tsukamoto, J., De Greyt, W., Stevens, C.V., Enzymatic degumming: Degumming efficiency versus yield increase. *Eur. J. Lipid Sci. Tech.*, **117** (1), 81-86 (2015).
- Sampathrajan, A., Vijayaraghavan, N.C., Swaminathan, K.R., Mechanical and thermal properties of particle boards made from farm residues. *Bioresour. Technol.*, **40** (3), 249-251 (1992).
- Sayed Ahmad, B., Étude de l'agroraffinage de graines d'*Apiaceae*, *Lamiaceae* et *Chenopodiaceae* pour la production de molécules biosourcées en vue d'application en industrie cosmétique. *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2018).
- Schaffer, E.L., Effect of pyrolytic temperatures on the longitudinal strength of dry Douglas-fir. *J. Test. Eval.*, **1** (4), 319-329 (1973).
- Silvestre, F., Rigal, L., Leyris, J., Gaset, A., Colle à l'eau à base d'extrait protéique végétal et procédé de préparation. *Brevet Européen EP 0,997,513* (1999).
- Singh, J., Bargale, P., Mechanical expression of oil from linseed (*Linum usitatissimum* L.). *J. Oilseeds Res.*, **7** (1), 106-110 (1990).
- Singh, K.K., Wiesenborn, D.P., Tostenson, K., Kangas, N., Influence of moisture content and cooking on screw pressing of crambe seed. *J. Am. Oil Chem. Soc.*, **79** (2), 165-170 (2002).
- Sriti, J., Msaada, K., Talou, T., Faye, M., Amalia Kartika, I., Marzouk, B., Extraction of coriander oil by twin-screw extruder: Screw configuration and operating conditions effect. *Ind. Crops Prod.*, **40**, 355-360 (2012).
- Sriti, J., Bettaieb, I., Bachrouch, O., Talou, T., Marzouk, B., Chemical composition and antioxidant activity of the coriander cake obtained by extrusion. *Arabian J. Chem.*, doi: 10.1016/j.arabjc.2014.11.043 (2014).
- Sykacek, E., Schlager, W., Mundingler, N., Compatibility of softwood flour and commercial biopolymers in injection molding. *Polym. Compos.*, **31**, 443-451 (2010).
- Tajuddin, M., Ahmad, Z., Ismail, H., A review of natural fibers and processing operations for the production of binderless boards. *BioResources*, **11** (2), 5600-5617 (2016).
- Tokoro, R., Vu, D., Okubo, K., Tanaka, T., Fujii, T., Fujitara, T., How to improve mechanical properties of polylactic acid with bamboo fibers. *J. Mater. Sci.*, **43**, 775-787 (2008).
- Uitterhaegen, E., Coriander oil: extraction, applications and biologically active molecules. *Master's dissertation submitted in partial fulfillment of the requirements for the degree of Master of Science in Bioscience Engineering: Chemistry and Bioprocess Technology*, Faculty of Bioscience Engineering, Ghent University, Belgium (2014).
- Uitterhaegen, E., Study of the integrated biorefinery of vegetable and essential oil in *Apiaceae* seeds (Étude du bioraffinage conjugué d'huile végétale et d'huile essentielle issues de graines d'*Apiaceae*). *Thèse de Doctorat*, INP, Toulouse, France (2018).
- Van Soest, P.J., Wine, R.H., Use of detergents in the analysis of fibrous feeds. IV. Determination of plant cell wall constituents. *J. AOAC Int.*, **50**, 50-55 (1967).
- Van Soest, P.J., Wine, R.H., Determination of lignin and cellulose in acid detergent fiber with permanganate. *J. AOAC Int.*, **51**, 780-785 (1968).
- Vandenbossche, V., Rigal, L., Saiah, R., Perrin, B., New agro-materials with thermal insulation properties. *Proceedings of the 18th International Sunflower Conference*, Mar del Plata, Argentina, pp. 949-954 (2012).
- Vandenbossche, V., Brault, J., Vilarem, G., Hernández-Meléndez, O., Vivaldo-Lima, E., Hernández-Luna, M., Barzana, E., Duque, A., Manzanares, P., Ballesteros, M., Mata, J., Castellón, E., Rigal, L., A new lignocellulosic biomass deconstruction process combining thermo-mechano-chemical action and bio-catalytic enzymatic hydrolysis in a twin-screw extruder. *Ind. Crops Prod.*, **55**, 258-266 (2014).
- Vandenbossche, V., Brault, J., Vilarem, G., Rigal, L., Bio-catalytic action of twin-screw extruder enzymatic hydrolysis on the deconstruction of annual plant material: case of sweet corn co-products. *Ind. Crops Prod.*, **67**, 239-248 (2015).
- Vergnes, B., Della Valle, G., Delamare, L., A global computer software for polymer flows in corotating twin screw extruders. *Polym. Eng. Sci.*, **38** (11), 1781-1792 (1998).
- Widyorini, R., Xu, J., Umemura, K., Kawai, S., Manufacture and properties of binderless particleboard from bagasse. I: Effect of raw material type, storage methods, and manufacturing process. *J. Wood Sci.*, **51**, 648-654 (2005).
- Wollerdorfer, M., Bader, H., Influence of natural fibres on the mechanical properties of biodegradable polymers. *Ind. Crops Prod.*, **8**, 105-112 (1998).
- Yorgun, S., Şensöz, S., Koçkar, Ö.M., Flash pyrolysis of sunflower oil cake for production of liquid fuels. *J. Anal. Appl. Pyrolysis*, **60**, 1-12 (2001).
- Zhou, X.Y., Zheng, F., Li, H.G., Lu, C.L., An environment-friendly thermal insulation material from cotton stalk fibers. *Energ. Build.*, **42** (7), 1070-1074 (2010).
- Zufarov, O., Schmidt, Š., Sekretár, S., Degumming of rapeseed and sunflower oils. *Acta Chim. Slovaca*, **1**, 321-328 (2008).