
Modèle de prédiction de la dégradation des matériaux polymères en milieu réel

Anne Calmon, Françoise Silvestre, Véronique Bellon-Maurel,

Pierre Feuilloley

Les matériaux polymères, plus communément appelés "plastiques" ont aujourd'hui envahi notre quotidien et sont présents dans un grand nombre de secteurs industriels (emballage, bâtiment, agriculture, ...). Leur essor fulgurant s'accompagne d'une augmentation proportionnelle du nombre de déchets plastiques dans nos décharges. Ces déchets posent un grave problème de volume : ils représentent jusqu'à 25% des ordures ménagères, agricoles et industrielles (Gucci, 1998).

Pour les éliminer, on utilise classiquement la mise en décharge, qui sera interdite à partir de 2002 (Directive 94/62/CEE), et l'incinération, qui est accusée de pollution. Face à ces méthodes, on trouve le recyclage et le compostage qui se posent comme des alternatives "écologiques" aux méthodes traditionnelles. Bien que séduisant de prime abord, le recyclage s'adresse à des déchets plastiques propres et suppose de ce fait un triage minutieux : il n'est donc pas adapté à n'importe quel type de déchet. La **biodégradation *in situ*** (eau, sol, compost) se présente donc comme une méthode complémentaire très intéressante, notamment dans le cas où les déchets que l'on veut éliminer sont difficilement triables et récupérables (paillage agricole par exemple).

Cependant, la plupart des matières plastiques couramment utilisées ne se dégradent pas (ou très lentement) sous l'action des micro-organismes : la biodégradation *in situ* ne convient que pour

des "matériaux biodégradables". Pendant longtemps, l'absence de définitions et de tests normalisés a entraîné un emploi abusif de cette appellation, mais depuis les années 1990, des organisations internationales (ISO, ASTM, CEN) travaillent à établir des normes et des protocoles de tests permettant d'évaluer quantitativement la biodégradabilité d'un matériau standardisée (Calmon, 1998).

Malgré son incontestable intérêt, la littérature montre que la propriété de biodégradabilité reste difficilement mesurable ; aussi est-il nécessaire d'étayer la démarche normative par une approche scientifique de la biodégradabilité en milieu naturel. Au travers de l'étude comparée de la biodégradabilité en laboratoire (*in vitro*) et en conditions réelles (*in situ*), nous avons entrepris, puisque peu de travaux n'avaient été réalisés (Yakabe, 1994), de démontrer la possibilité d'une corrélation entre l'évaluation de la biodégradabilité en laboratoire et dans des conditions réelles.

La stratégie adoptée a été la suivante : tout d'abord, une banque de 20 matériaux dits "biodégradables" ou inertes ont été sélectionnés puis caractérisés. Chaque matériau a été testé d'une part par la méthode de mesure de la biodégradabilité en laboratoire (Projet CEN, 1995) et d'autre part en conditions réelles. Des méthodologies d'analyse systématique ont été mises en place. Ce travail a conduit à l'acquisi-

Anne Calmon,
Françoise
Silvestre
Laboratoire de
Chimie Agro-
industrielle
Unité Associée
INRA 31A1010
ENSCT
118, route de
Narbonne
31077 Toulouse
cedex 4

Véronique
Bellon-Maurel,
Pierre Feuilloley
Cemagref
361, rue J.F. Breton
BP 5095
34033 Montpellier
cedex 1

tion et au traitement de nombreuses données issues d'une part des tests *in vitro* (de laboratoire), d'autre part des tests *in situ* (en milieu réel), mais également des données sur les matériaux et les sites d'enfouissement.

A partir de l'ensemble de ces données, l'objectif de ce travail a été de développer et proposer un modèle capable de prédire la biodégradabilité d'un matériau polymère placé dans des conditions environnementales données à partir de la connaissance de sa biodégradabilité en laboratoire et des données sur ses caractéristiques physico-chimiques et le lieu d'enfouissement.

In fine, au travers de l'étude comparée de la biodégradabilité en laboratoire et en conditions réelles, nous avons cherché à apprécier la validité du projet de norme européenne (biodégradabilité en laboratoire avec un milieu liquide) par rapport au phénomène en milieu naturel. L'ensemble de cette recherche permet de proposer un outil qui donne, à partir d'une mesure de laboratoire, une prédiction du taux de biodégradabilité d'un matériau sur un site donné.

Acquisition des données

■ Caractérisation des matériaux

Vingt matériaux commercialisés en 1994 présentant une large gamme de biodégradabilité ont été sélectionnés, une lettre de A à T a été attribuée à chaque matériau. Les principaux films utilisés sont à base de polyhydroxybutyrate-co-hydroxyvalérate [PHBV] (A, B), polycaprolactone [PCL] (J), acide polylactique [PLA] (H, I), de mélange amidon et polycaprolactone [PCL] (C, D, E), Cellophane

(K, L, M), papier (P), de mélange polyéthylène [PE] et amidon (Q, R) et polyéthylène [PE] (T). Cette banque de matériaux a été utilisée tout au long des tests.

Ces matériaux ont été caractérisés d'une part d'un point de vue chimique : teneurs en carbone, hydrogène, oxygène et azote et d'autre part d'un point de vue physique, par la mesure de leur épaisseur et par des mesures d'état de surface (hydrophobicité et tension critique de surface).

■ Tests en laboratoire : biodégradabilité *in vitro*

La méthode retenue en laboratoire est le projet de norme européenne qui est basée sur la mesure du CO₂ dégagé (Projet CEN, 1995). Le matériau à tester, seule source de carbone est introduit dans un réacteur contenant un milieu minéral liquide inoculé avec des micro-organismes issus de boues de station d'épuration (Toulouse). Durant toute la durée du test – de 28 à 45 jours –, le milieu est aéré, agité, maintenu à 23°C ± 2°C et à l'abri de la lumière. Durant cette dégradation aérobie, du dioxyde de carbone, de l'eau et une nouvelle biomasse sont principalement générés. Mais du matériau résiduel peut persister si celle-ci n'est pas complète. La dégradation du matériau (minéralisation) est suivie indirectement par la mesure de la quantité de dioxyde de carbone produite durant une période donnée. Le résultat est exprimé comme un pourcentage de la quantité totale de CO₂ qu'aurait dégagé le matériau si la minéralisation avait été complète. La figure 1 est un exemple de courbe obtenue pour le PHBV. Pour chaque test, une substance de référence (acétate de sodium – forte aptitude à se dégrader) est utilisée et sert pour tester l'activité biologique de l'inoculum. Chaque courbe de minéralisation est référencée par rapport à cette référence (acétate de sodium) et représente une valeur moyenne entre deux réacteurs. Ainsi, une banque de données de courbes de dégradation a été constituée.

Afin de réduire le nombre de points des courbes de minéralisation en fonction du temps, nous avons proposé une modélisation de ces courbes fondée sur la sigmoïde de Hill (Calmon *et al.*, 1999a). Toutes les courbes ont été modélisées suivant l'équation reportée sur la figure 2. Ce modèle caractérise la biodégradabilité *in vitro* de chaque matériau par trois paramètres : y_{max} le taux

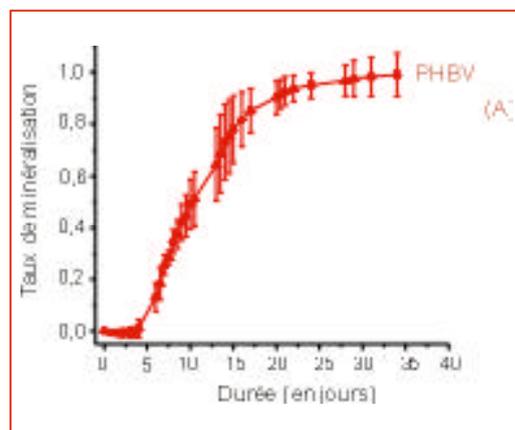
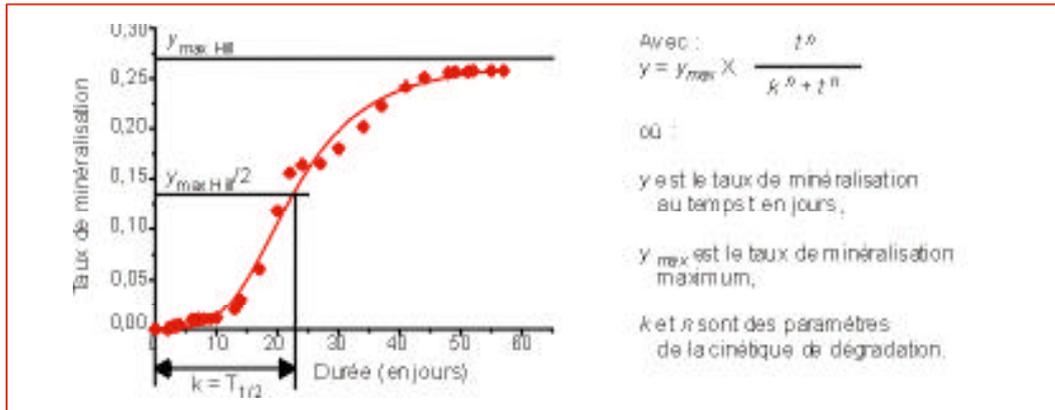


Figure 1. – Profil de l'évolution du dioxyde de carbone dégagé pour le matériau à base de PHBV référencé par rapport à l'acétate de sodium.



◀ Figure 2. – Modélisation du taux de minéralisation du matériau G selon le modèle de la sigmoïde de Hill.

de minéralisation (ou de conversion) maximum, k et n étant des paramètres de la dégradation. Pour ce qui suit c'est à dire la recherche d'une modélisation entre la biodégradabilité de laboratoire et celle en conditions réelles, nous les appellerons *indices de biodégradabilité in vitro*.

■ **Tests en conditions réelles : biodégradabilité in situ**

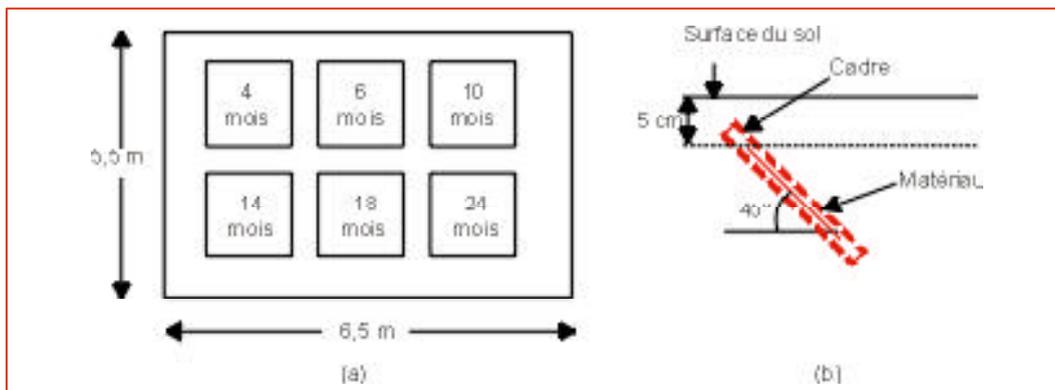
Pour réaliser les tests *in situ*, un protocole d'enfouissement dans divers biotopes présentant des climats et des sols différents (Toulouse, Clermont-Ferrand, Montpellier, Rennes) a été élaboré (Sawada, 1994, Calmon *et al.*, 1999b).

Les vingt matériaux sous la forme de bandelettes de 5 cm par 20 cm sont étudiés en triplicat afin de minimiser l'effet de l'hétérogénéité du sol. Six échantillons sont placés dans un cadre et enserrés entre 2 filets de polyéthylène. Cette technique facilite la mise en place et l'extraction à la fin de l'exposition. Pour chaque site, 6 prélèvements sur 2 ans ont été effectués (Figure 3a). Ce sont 1440

échantillons qui ont été enfouis. Une telle expérimentation n'a été menée qu'au Japon sur 8 matériaux et 18 sites.

Pour chaque cadre un gabarit est utilisé pour obtenir un plan incliné, puis le cadre est mis en place et recouvert de terre. Chaque cadre est positionné à 45° pour éviter la stagnation d'eau. L'ensemble des 6 cadrans donne la parcelle utilisée sur le site pour une durée de 2 ans, un cadran correspondant à un prélèvement (Figure 3b). Après une durée d'exposition déterminée, chaque cadre est extrait et les matériaux sont placés dans des poches individuelles, pour être ensuite analysés.

Pour les 4 sites, les six prélèvements sur deux ans et les 20 matériaux sont soumis à une mesure du taux de surface dégradée (SD) (mise au point d'une méthodologie explicitée dans l'article Calmon *et al.*, 1999b) et du taux de perte de poids (PP). Pour la modélisation, nous avons défini les taux de surface dégradée et de perte de poids comme les deux *indices de biodégradabilité in vitro*.



◀ Figure 3. – Enfouissement des cadres dans les sols : a) représentation de la parcelle avec les six cadrans, b) mise en place à 45° d'un cadre.

Par ailleurs, les sols et les climats ont été caractérisés : d'une part pour le sol par la granulométrie avec les teneurs en argile, limon et sable et les caractéristiques chimiques avec la teneur en matières organiques, le pH et le rapport C/N ; d'autre part pour le climat par la température moyenne de l'air, la pluviométrie et l'histogramme des températures en fonction de la durée de l'exposition.

D'après la littérature (Yakabe, 1994), les méthodes de laboratoire présentent l'avantage d'être plus rapides mais elles n'ont jamais été montrées comme représentatives de ce qui se passait dans l'environnement. Compte tenu de la diversité des paramètres caractérisant les matériaux, les conditions environnementales (climat, sol), les indices de biodégradabilité *in vitro* et *in situ*, il est nécessaire d'effectuer au préalable un prétraitement des données afin de procéder par étape pour déterminer quels sont les paramètres les plus significatifs permettant de modéliser la plus justement possible le comportement des matériaux dans l'environnement. Nous avons utilisé différents traitements statistiques des données ; l'outil sélectionné (encadré 1) est l'analyse en composantes principales (Matlab - PLS Toolbox).

Encadré 1

Analyse en composante principale

L'analyse en composante principale (ACP) a pour but la description d'un ensemble de données (p variables quantitatives mesurées sur n individus). On cherche à réduire le nombre de données en ne gardant d'elles que ce qui les différencie le plus. De façon plus rigoureuse, l'ACP peut être vue comme une méthode de réduction du nombre de variables qui se fait en construisant de nouvelles variables appelées *composantes principales* (CP). Ces composantes sont construites par combinaison linéaire des p variables initiales. Elles sont choisies de manière à expliquer le mieux possible la variance (les différences) entre les données initiales. A partir de ces composantes principales, des représentations géométriques des individus et des variables peuvent être réalisées.

L'ACP permet de caractériser les individus en mettant en avant leurs différences et leurs ressemblances, et établit des groupes de variables en expliquant si elles sont associées entre elles ou non.

Relation biodégradabilité *in vitro* et *in situ*

L'analyse en composante principale (ACP) réalisée à partir des indices de biodégradabilité *in vitro* (y_{\max} , k, n) et *in situ* (SD, PP), pour le sixième et dernier prélèvement montre que les paramètres y_{\max} , SD et PP sont fortement auto-corrélés (Figure 4). Par contre, la représentation des coefficients de corrélation des paramètres pris deux à deux, au cours des prélèvements, montre que plus le temps d'exposition est élevé, meilleure sera la corrélation (avec une phase stationnaire qui commence vers 9 mois d'exposition) (Figure 5). Pour l'exploitation de ces résultats, nous avons considéré que la durée des tests *in vitro* était suffisamment longue pour estimer correctement le taux de conversion maximum y_{\max} puisque ce dernier correspond à l'extrapolation du palier de la courbe.

Nous confirmons que l'obtention d'une bonne corrélation ne peut être réalisée qu'après une exposition prolongée dans le sol (2 ans pour le taux de surface dégradée) car c'est à ce stade que les matériaux ont perdu en poids mais également en surface.

La figure 6 représente les matériaux sur le plan des deux premiers axes factoriels et pour les données du sixième et dernier prélèvement. C'est à dire qu'un matériau est représenté par les triplicats et les 4 sites soit 12 points. Nous constatons qu'il n'y a pas d'influence du site, c'est-à-dire que les douze points sont superposés pour les matériaux qui ne se dégradent pas (T, Q) ou pour les matériaux fortement dégradés (J, S). Pour les autres matériaux, nous observons une influence importante du "site" par la répartition des points en forme d'écharpe, ce qui caractérise la disparité des lieux d'enfouissement.

Par l'analyse descriptive, nous pouvons affirmer qu'il existe bien une relation entre les indices de biodégradabilité *in vitro* et *in situ*. En revanche, après deux ans d'exposition, on observe toujours une influence des caractéristiques des sites qu'il conviendra donc de prendre en compte pour réaliser une prédiction.

Modèle de prédiction

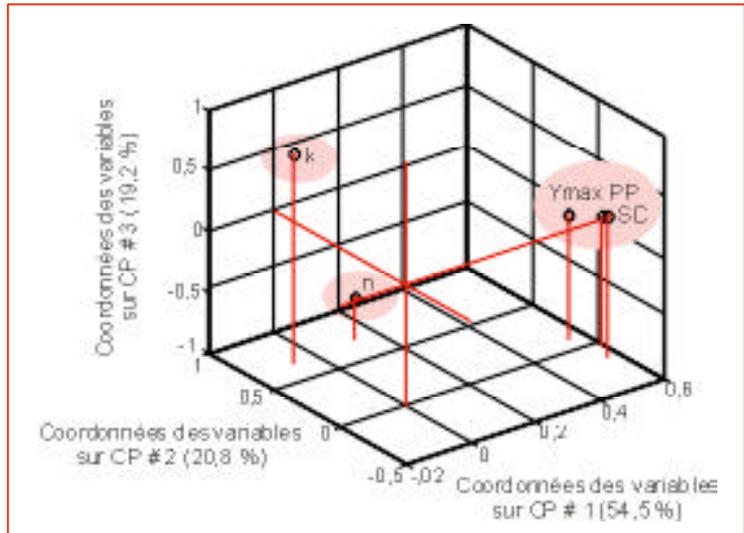
D'après les résultats précédents, il apparaît qu'il existe une relation entre la dégradation *in situ* et

la dégradation *in vitro* avec un effet "site d'enfouissement". Dans cette dernière partie, nous cherchons à modéliser et à prédire la perte de poids ou la surface dégradée d'un matériau polymère exposé à des conditions de biodégradation réelles – enfouissement dans un sol – en fonction de divers paramètres que sont la **mesure en laboratoire**: indices de biodégradabilité *in vitro* (y_{max} , k , n), **les paramètres caractérisant le matériau**: propriétés chimique (teneurs en C, H, O et N) et physique (état de surface: épaisseur (e), hydrophobicité (Hydro.), tension critique de surface (Tsc.) et **ceux caractérisant le site** à savoir le sol: granulométrie (teneur en limon (L), argile(A), sable (S)) et chimique (matière organique (MO), pH, rapport C/N) et le climat. Les réponses attendues quand à elles sont au nombre de deux: le taux de perte de poids et le taux de surface dégradée du matériau exposé en conditions réelles – sol – pour un temps déterminé.

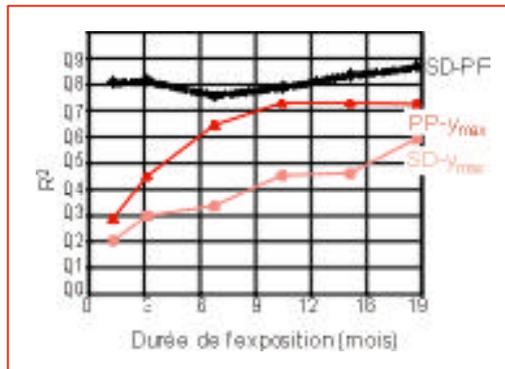
Pour s'intéresser au lien qui pouvait exister entre la biodégradabilité d'un polymère en sol et sa biodégradabilité en laboratoire, nous avons retenu une **modélisation non linéaire**. En effet, le travail réalisé *a posteriori* avec une approche linéaire de ce problème a conduit à des résultats insatisfaisants (Orliac, 1999). Pour élaborer et construire ce modèle, les techniques neuronales (encadré 2) ont été utilisées. Elles sont basées sur un modèle mathématique non linéaire qui permet de réaliser, soit de la classification, soit comme dans notre cas de la prédiction.

Comme le montre la figure 7, la couche d'entrée comprend au maximum toutes les caractéristiques précédemment citées. Le réseau est entraîné avec un grand nombre d'exemples, issu de la banque des 1440 échantillons enfouis pour créer un modèle qui permet de prédire la surface dégradée et la perte de poids. Des études préliminaires ont montré que les résultats de prédiction étaient sensiblement meilleurs en utilisant 6 noeuds dans la couche cachée et en prédisant distinctement la surface dégradée et la perte de poids c'est-à-dire deux modèles travaillant de manière séparée.

Dans ces modèles, une répartition [$\frac{1}{2}$ - $\frac{1}{2}$] dans les lots d'étalonnage et de validation a été effectuée, sans tenir compte de la notion de triplicat. Un triplicat se compose de trois "individus" identiques tant du point de vue de leur nature que du point de vue de leur exposition -durée d'exposi-

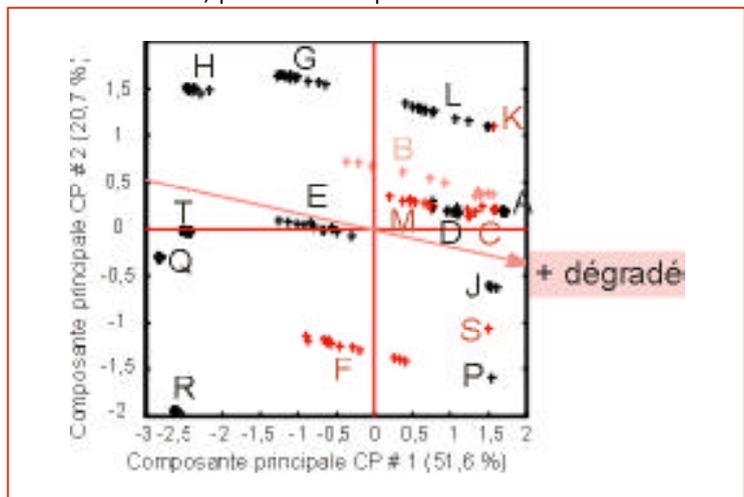


▲ Figure 4. – Représentation des résultats de l'ACP (Variables: indices *in vitro* (y_{max} , k , n) et *in situ* (SD, PP) pour le sixième prélèvement.



◀ Figure 5. – Evolution des coefficients de corrélation d'après les résultats des ACP (Variables: index *in vitro* et index *in situ*) pour chaque prélèvement.

Figure 6. – Représentation des résultats de l'ACP (Variables: index *in vitro* et index *in situ*) pour le sixième prélèvement. ▼



Encadré 2

Les réseaux de neurones : Extrait de "Des neurones dans le champagne" (V. Steinmetz et al. Ingénieries EAT n° 3, 1995.)

Sous le terme de réseaux de neurones, on regroupe aujourd'hui un certain nombre de modèles dont l'intention est d'imiter des fonctions du cerveau humain en reproduisant certaines de ses structures de base. Historiquement, c'est en 1943 que McCulloch et Pitts étudièrent un ensemble de neurones formels interconnectés, et montrèrent leurs capacités à calculer certaines fonctions logiques. S'inspirant de leurs travaux sur les neurones biologiques, ils ont proposé le neurone formel décrit dans la figure 5. Bien qu'ayant connu un fort intérêt dans les années 50, par l'intermédiaire de Hebb et Rosenblatt notamment, il faudra attendre le début des années 80 (Hopfield, Rumelhart et McClelland, Kohonen) pour voir la communauté scientifique se pencher à nouveau sur les réseaux de neurones. Les raisons de cette renaissance sont dû principalement au désenchantement vis à vis des performances de l'approche symbolique, qui avait monopolisé les recherches dans les années 60 et 70. Parmi les différents types de réseaux de neurones développés (Hopfield, pour les réseaux complètement connectés et à entrées binaires, Kohonen pour les réseaux topologiques auto-adaptatifs, Rumelhart et McClelland pour les réseaux à couches), les réseaux à couches sont ceux, pour des raisons encore mal identifiées, qui connaissent le plus grand succès.

Ces derniers sont constitués de neurones organisés en couches. Les neurones des couches d'entrée et de sortie correspondent aux paramètres d'entrées et de sortie. Les paramètres de sortie peuvent correspondre à la prédiction d'un jeu de valeurs bien précises, ou à une classification. Les neurones sont reliés entre eux par des connections synaptiques, symbolisés par des valeurs numériques qui sont déterminées lors d'une phase d'apprentissage. A partir d'un ensemble connu de couples entrée-sortie (x_i, y_i) , et après un choix initial aléatoire des connections synaptiques (w_j) , on définit une fonction d'erreur $J_e(x_i, y_i, w_j)$. L'objectif consiste alors à trouver les valeurs w_j permettant de minimiser J_e pour les couples (x_i, y_i) utilisés dans la base d'apprentissage. Une des méthodes utilisées est l'algorithme de rétropropagation du gradient, basée essentiellement sur les règles de dérivation composée (Abdi, 1994).

Le processus est donc itératif, avec une présentation multiple des couples entrée-sortie qui vont contribuer à la modification des connections synaptiques, jusqu'à atteindre un minimum de la fonction d'erreur. Ceci fait, on considère (ou non) que l'apprentissage est terminé, et que le modèle du réseau peut être utilisé. L'apprentissage plus ou moins rapide du réseau peut être réglé par des paramètres relevant de l'expertise. Un des points clés du succès des réseaux de neurones est qu'il n'est pas explicitement nécessaire de fournir l'ensemble des règles de fonctionnement d'un système, mais qu'il est possible de faire apprendre ces règles à partir d'exemples. Cette approche est particulièrement intéressante pour les systèmes complexes, à nombreuses composantes, dont on connaît rarement l'ensemble des interactions. L'inconvénient des réseaux réside dans leur incapacité à fournir une explication des phénomènes appris. Toutefois, l'intérêt des réseaux dans la modélisation de phénomènes non linéaires, leur comportement relativement stable en présence de données inattendues ou fortement bruitées, et l'association avec des outils statistiques classiques en font des outils de modélisation séduisant, pour lesquels d'immenses projets de recherches sont en cours (400 millions de dollars pour un programme de 6 ans par le Pentagone américain, et 250 millions de dollars pour un programme de 10 ans au Japon, The Economist, 1995).

tion, nature du sol et climat. Cependant, on peut considérer que cette façon de traiter le problème est faussement optimiste par le fait que des échantillons identiques à tous points de vue peuvent servir suivant le tirage à la fois pour la calibration et la validation du modèle.

La figure 8 donne un exemple de prédiction de surface dégradée d'un matériau à base de PHBV après une exposition de 10 mois sur le sol de Tou-

louse. Le modèle précédent appliqué à l'ensemble des données conduit à un taux de surface prédit de 0,86. Or, si on définit l'erreur de prédiction comme la différence entre le taux de surface dégradée prédit et le taux de surface dégradée réel – en valeur absolue – : $E(i) = (Y_{i \text{ mesuré}} - Y_{i \text{ prédit}}) \times 100$ (Eq.1), on peut calculer la proportion des matériaux prédit avec une erreur **inférieure à un taux donné**. Par exemple dans le cas précédent, la comparaison entre la valeur mesurée (0,79) et celle

prédite (0,86), donne une différence de 0,07 soit un écart de prédiction de 7 %.

Afin d'optimiser les deux modèles, nous avons étudié l'influence des divers facteurs introduits dans la couche d'entrée sur la prédiction de la surface dégradée et la perte de poids. Nous appelons "facteur" un groupe homogène de paramètres d'entrées. Huit facteurs ont été fixés :

Trois facteurs "matériau" :

- 1 : indices de biodégradabilité *in vitro* ;
- 2 : caractéristiques chimiques du matériau ;
- 3 : caractéristiques physiques du matériau ;

Trois facteurs "sol" :

- 4 : caractéristiques chimiques du sol ;
- 5 : granulométrie du sol ;
- 6 : durée de l'exposition ;

et deux facteurs "climat" :

- 7 : Température et pluviométrie moyenne sur la durée de l'exposition ;
- 8 : Taux de jours où la température est comprise entre x et $x+5^{\circ}\text{C}$ ($n=1$ ($<0^{\circ}\text{C}$) à 7 ($>25^{\circ}\text{C}$)).

Pour chacun de ces facteurs, 2 modalités ont été imposées : soit le facteur intervient en entrée du réseau soit il n'intervient pas. Pour chaque structure de réseau défini, les modèles ont été déterminés puis validés. Nous avons choisi de réaliser l'étude du plan complet soit $2 \times 2^8 = 2 \times 256$ modèles pour les prédictions de la surface dégradée et de la perte de poids.

L'exploitation de ce plan d'expériences a montré que pour la prédiction de la surface dégradée, les indices *in vitro* permettent à eux seuls de prédire 46 % de la population avec moins de 15 % d'erreur. En ajoutant la durée de l'exposition et les caractéristiques physiques du matériau, on prédit correctement 83 % de la population. Enfin, pour obtenir le jeu optimal et la prédiction la plus élevée, il faut y adjoindre la composition chimique du matériau et un des facteurs "climat" et un des facteurs "sol" ce qui donne 86 % des échantillons correctement prédits avec une erreur de prédiction inférieure à 15%.

Pour la prédiction de la perte de poids d'un matériau, l'analyse de l'influence des facteurs montre que trois facteurs sont significatifs : les indices *in vitro*, les caractéristiques physico-chimiques du matériau, mais il est nécessaire d'y adjoindre la durée de l'exposition, la granulométrie du sol et le facteur "climat" (7).

Figure 7. - Modélisation par réseau de neurones. ▼

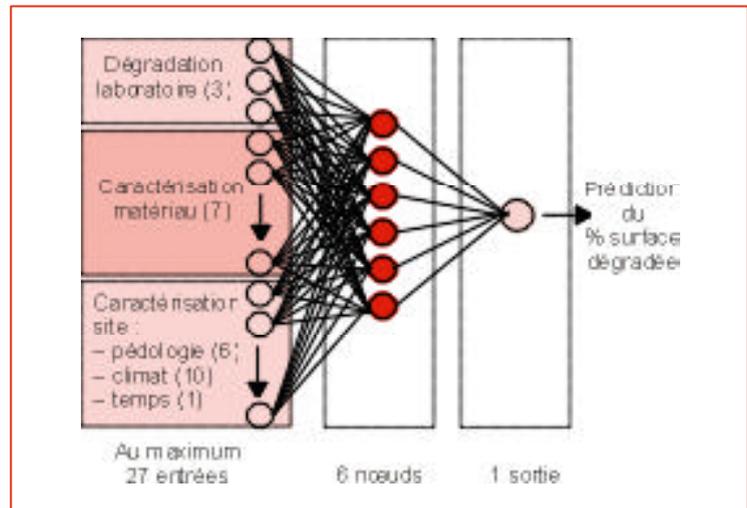
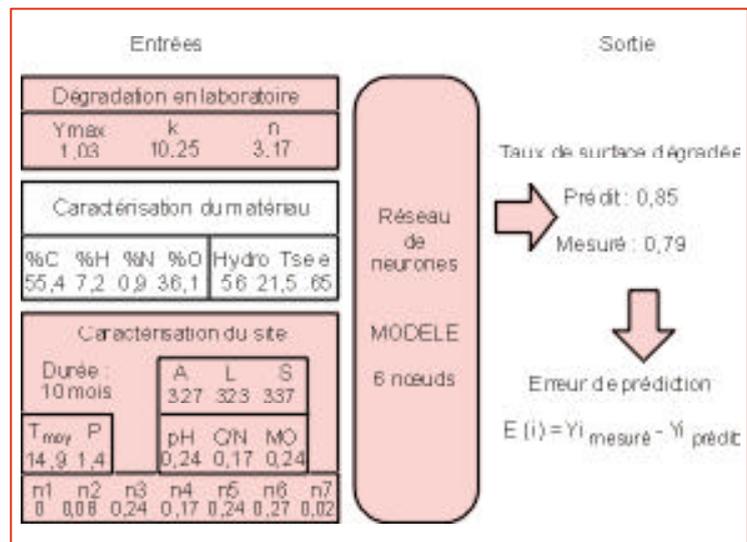


Figure 8. - Prédiction de la dégradation du matériau PHBV (55µm) pour une exposition de 10 mois sur le sol de Toulouse. ▼



Dans le tableau 1, la proportion d'échantillons correctement prédits pour une erreur maximum de prédiction inférieure à 5, 10, 15 et 20 % est reportée pour les deux modèles optimisés.

Ces résultats montrent que les deux modèles présentent 86 à 88 % d'échantillons correctement prédits avec moins de 15 % d'erreur, ce qui permet de valider l'objectif fixé au départ, en proposant des modèles capable de prédire un taux de dégradation pour une durée d'exposition déterminée, à partir de valeurs de laboratoire et des

Tableau 1. – Proportion d'échantillons correctement prédits par classe d'erreur, pour les modèles proposés. ▼

Erreur maximum de prédiction en %		5	10	15	20
Proportion d'individus correctement prédits suivant	la surface dégradée	64 %	78 %	86 %	92 %
	la perte de poids	62 %	79 %	88 %	94 %

caractéristiques physico-chimiques du matériau, du sol et du climat.

De plus, étant donné que les indices *in vitro* sont les paramètres les plus significatifs mais non suffisants dans la prédiction, ces résultats globaux valident la mesure de la biodégradabilité en milieu liquide comme un indice représentatif de la dégradation dans un environnement naturel.

Conclusion

Une banque de données a été constituée en étudiant la biodégradabilité *in vitro* (en laboratoire) et *in situ* (dans des conditions réelles – sol –) de vingt matériaux dits "biodégradables" ou inertes.

L'analyse descriptive a permis de montrer qu'il existait une relation entre les indices *in vitro* et *in*

situ. Toutefois, il a été vérifié que cette corrélation est meilleure si l'on se place en fin d'exposition dans les sols.

A partir de ce constat, deux modèles capable de prédire, d'une part le taux de surface dégradée, et d'autre part le taux de perte de poids ont été conçus. Cette prédiction, avec l'un ou l'autre des modèles, doit être réalisée à partir des index de laboratoire, des caractéristiques physico-chimiques du matériau, du climat et du sol.

Les résultats montrant que près de 90 % des échantillons sont correctement prédits avec moins de 15% d'erreur, conforte la validité de la future norme européenne. Même si cette norme en milieu liquide est éloignée du devenir des matériaux, elle apparaît néanmoins comme représentative de ce qui se passe *in situ* et elle fournit ainsi un test accéléré (28 à 45 jours) au lieu d'un minimum de 2 ans dans des conditions d'exposition réelles.

Ce travail précurseur dans ce domaine a engendré un projet Européen qui vise à développer des recommandations, des méthodes d'essais et des modèles prédictifs pour la labellisation des matériaux biodégradables (polymères industriels) en fonction de leur devenir en agriculture ou comme déchets, tout en tenant compte des directives européennes actuelles (Feuilloley, 1999). □

Résumé :

Le développement de polymères biodégradables, pour l'emballage et les produits d'usage courant a pris un intérêt considérable. Cependant, dire qu'un matériau est biodégradable nécessite d'évaluer son taux de biodégradabilité. L'objectif de ce travail est de prédire la biodégradabilité de matériaux polymères en milieu naturel à partir de la connaissance de leur biodégradabilité en laboratoire, de leurs caractéristiques physico-chimiques et de l'environnement. Deux modèles, l'un sur la mesure de la surface dégradée du matériau, et l'autre sur la perte de poids, élaborés à partir de réseaux de neurones permettent de prédire le taux de dégradation d'un matériau dans un environnement donné et ceci avec 86 % de prédiction faite avec moins de 15 % d'erreur. Ce résultat a permis de corroborer la validité de la norme en milieu liquide par rapport au milieu réel et d'autre part de proposer un outil de mesure.

Abstract :

The objective of this work is to predict the biodegradability of polymer materials in natural environment from laboratory data biodegradability, materials characteristics and environmental conditions. A model from a data processing approach combining both laboratory *in vitro* tests and *in situ* field tests was developed. With a neuronal system, the degradation level of a material in a given biotope has been modelled from a laboratory measurement and parameters characterizing the material and the site. We propose two models that allow to predict the rate of degradation of a material in a given environment and this with 86 % of suitable prediction with less of 15 % of error. This result allows us to compare the validity of the routine norm procedure (in liquid medium) with data obtained during real conditions.

Remerciements

Nous remercions l'ADEME, AGRICE, le Conseil Régional de Midi-Pyrénées et la DRRT du Languedoc-Roussillon pour leur soutien financier.

Bibliographie

Abdy, 1994

PROJET, CEN, 1995. *Evaluation of the ultimate aerobic biodegradability and desintegration of packaging materials under aqueous medium : Part 1 : method by analysis of released carbon dioxide*. Draft method. Doc. 15/02/95. CEN/TC 261/SC4/N42.

CALMON-DÉCRIAUD, A., BELLON-MAUREL, V., SILVESTRE, F., 1998. *Standard methods for testing the aerobic biodegradation of polymeric materials*. Review and perspectives *Advances in Polymer Science*. 135, p. 207-226.

CALMON, A., SILVESTRE, F., GASET, A., BELLON-MAUREL, V., FEUILLOLEY, P., ROGER, J.M., 1999a. *Modelling biopolymer degradation in liquid fermentation*. *Workshop on biopolymer science : Food and non food applications*. Montpellier (France), September 28-30, 1998 Ed. INRA, Paris, 1999 (Les colloques, n°91), p. 339-346.

CALMON, A., GUILLAUME, S., BELLON-MAUREL, V., SILVESTRE, F., 1999b. *Evaluation of the biodegradability of materials in real conditions. Development of a burying and analysis methodology by numerical vision*. *Journal of Environmental Polymer Degradation*. Sous Presse.

FEUILLOLEY, P., CALMON, A., BELLON-MAUREL, V., VAN DER ZEE, M., ITAVAARA, M., MULLER, R.J., SILVESTRE, F., CLERGEOT, D., DEGLI-INNOCENTI, F., 1999. *Labellisation des matériaux biodégradables*. Colloque Matériaux biodégradables et Environnement – Paris – (5/6 Mai 1999)

GUCCI, P.M.B., COCCIA, A.M., MUSMECI, L., 1998. *Polymeric materials in soil degradation*. *Fresenius Environmental Bulletin*. 7, p. 659-664.

ORLIAC, O., 1999. *Etude de la biodégradabilité des matériaux polymères*. Rapport D.E.A. Cemagref Montpellier.

SAWADA, H., 1994. *Field testing of biodegradable plastics*. In : Doi Y. & Fukuda K. *Biodegradable Plastics and polymers*. Elsevier Science. p. 298-312.

STEINMETZ, V., CAUQUIL, B., BOCQUET, F., 1995. *Des neurones dans le champagne*. *Ingénieries : Eau Agriculture Territoire*. 3, p. 25-30.

The economist, 1995

YAKABE, Y., KITANO, M., 1994. *Evaluation of biodegradability of biodegradable plastics in sewage sludge*. In : Doi Y. & Fukuda K. *Biodegradable Plastics and polymers*. Elsevier Science. p. 331-336.