



HAL
open science

Modélisation multi-échelle et caractérisation de l'anisotropie élastique de fibres végétales pour le renforcement de matériaux composites

Richard Ntenga

► **To cite this version:**

Richard Ntenga. Modélisation multi-échelle et caractérisation de l'anisotropie élastique de fibres végétales pour le renforcement de matériaux composites. Biologie végétale. Université Blaise Pascal - Clermont-Ferrand II; Université de Yaoundé, 2007. Français. NNT : 2007CLF21759 . tel-00718126

HAL Id: tel-00718126

<https://theses.hal.science/tel-00718126>

Submitted on 16 Jul 2012

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.

N° d'ordre : D.U. 1759

EDSPIC : 323

UNIVERSITÉ BLAISE PASCAL(UBP) - CLERMONT II

**ÉCOLE DOCTORALE
SCIENCES POUR L'INGÉNIEUR DE CLERMONT-FERRAND**

et

UNIVERSITÉ DE YAOUNDÉ I (UYI)

ÉCOLE NATIONALE SUPÉRIEURE POLYTECHNIQUE (ENSP)

Thèse en cotutelle

Présenté par

Richard NTENGA

DEA. Génie Mécanique - Génie Civil, IFMA-UBP

pour obtenir le grade de

Docteur d'Université

Spécialité : GÉNIE MÉCANIQUE

**MODÉLISATION MULTI-ÉCHELLES ET
CARACTÉRISATION DE L'ANISOTROPIE ÉLASTIQUE DE
FIBRES VÉGÉTALES POUR LE RENFORCEMENT DE
MATÉRIAUX COMPOSITES**

Soutenue publiquement le 04 juillet 2007, à l'IFMA, devant le jury :

Prof. J.L. ROBERT	Université Blaise Pascal (MonIUT)	Président
Prof. T.C. KOFANE	Université de Yaoundé I (FS)	Rapporteur et examinateur
Prof. C. BALEY	Université de Bretagne Sud	Rapporteur et examinateur
Prof. L.O. AYINA	Université de Douala (IUT)	Examineur
Prof. Ass. J.A. ATANGANA	Université de Douala (ENSET)	Examineur
Prof. A. BEAKOU	Institut Français de Mécanique Avancée (IFMA)	Directeur de thèse

Laboratoire de Mécanique et Ingénieries (LaMI),
INSTITUT FRANÇAIS DE MÉCANIQUE AVANCÉE ET UNIVERSITÉ BLAISE PASCAL

Table des matières

Remerciements	12
Résumé	14
Abstract	15
Introduction Générale	16
I Fibres naturelles et composites : état de l'art	20
1 Les composites renforcés de fibres naturelles	21
1.1 Introduction	21
1.2 Utilisation des fibres végétales : avantages et inconvénients	24
1.3 Approvisionnement en fibres	26
1.4 Préparation des fibres au renforcement	27
1.4.1 Méthodes physiques	27
1.4.2 Méthodes chimiques	27
1.4.3 Imprégnation des fibres	29
1.4.4 Couplage chimique	29
1.4.5 Acétylation des fibres naturelles	31
1.4.6 Alcalisation des fibres naturelles	32
1.5 Évaluation de l'adhésion fibre/matrice	34
1.5.1 Interface d'un matériau composite : notion d'adhésion	34
1.5.2 Caractérisation de l'adhésion, de l'interface et des surfaces	35
1.6 Mise en œuvre des composites renforcés de fibres naturelles	37
1.6.1 Influence de l'humidité	37
1.6.2 Les techniques plasturgiques ou "compounding"	37
1.6.3 Utilisation des matrices thermoplastiques	38
1.6.4 Thermoplastiques renforcés de mats de fibres naturelles	39

1.6.5	Utilisation des matrices thermodurcissables	39
1.7	Comportement mécanique des composites renforcés par des fibres végétales	40
1.7.1	Fluage	40
1.7.2	Comportement en fatigue	41
1.7.3	Comportement au choc	41
1.8	Cas particuliers de composites à base de fibres végétales	43
1.8.1	Composites hybrides	43
1.8.2	Les composites biodégradables	43
1.9	Conclusion	45
2	Des plantes aux fibres	47
2.1	Introduction	47
2.2	Méthodes d'extraction des fibres végétales	47
2.2.1	Séparation des fibres libériennes	50
2.2.2	Rouissage et séparation des fibres	51
2.3	Microstructure à parois lamellaires des fibres naturelles pures	52
2.3.1	Composition chimique des fibres	53
2.3.2	Structure de la fibre	54
2.4	Propriétés des constituants chimiques des fibres	57
2.4.1	Cellulose	58
2.4.2	L'hémicellulose	59
2.4.3	La lignine	61
2.5	Propriétés mécaniques des fibres	62
2.5.1	Proportion des fibrilles cristallines et leur orientation	65
2.5.2	Les fibres naturelles synthétisées	66
2.6	Conclusion	67
II	Méthodes expérimentales	69
3	Caractérisation mécanique et physico-chimique de la fibre	70
3.1	Introduction	70
3.2	Présentation des fibres étudiées	70
3.2.1	Le sisal	70
3.2.2	Raphia	72
3.2.3	Rhectophyllum Camerunense	73
3.3	Extraction des fibres	74
3.4	Morphologie des fibres étudiées	75
3.5	Mesure de la masse volumique	79

3.6	Analyse biochimique	80
3.6.1	Méthodologie	80
3.6.2	Résultats et commentaires	81
3.7	Ultrastructure de la fibre de RC	81
3.8	Angle des microfibrilles du RC	83
3.9	Propriétés mécaniques de la fibre	86
3.9.1	Essai de traction	86
3.9.2	Résultats et discussion	86
3.9.3	Traitement statistique des résultats	88
3.10	Conclusion	91
4	Mise en œuvre des composites et caractérisation	92
4.1	Introduction	92
4.2	Composites mats de fibres courtes Sisal/Polyester	92
4.2.1	Mats	92
4.2.2	Composites	93
4.2.3	Traitements surfaciques des fibres	94
4.2.4	Fabrication des composites et caractérisation	95
4.2.5	Estimation des constantes élastiques	97
4.2.6	Influence comparée du renforcement	98
4.2.7	Résultats et commentaires	99
4.2.8	Conclusion sur les composites mats Sisal/polyester	101
4.3	Composites Unidirectionnels Sisal/Époxyde et RC/Époxyde	101
4.3.1	Introduction	101
4.3.2	Fondements de la démarche	102
4.3.3	Fabrication des composites et caractérisation	104
4.3.4	Résultats et discussion	109
III	Mécanique des matériaux hétérogènes et modélisation	112
5	Caractérisation de l'anisotropie élastique des fibres végétales	113
5.1	Introduction	113
5.2	Modélisation analytique prédictive des propriétés d'un matériau composite	115
5.2.1	Préliminaires	116
5.2.2	Approches théoriques	119
5.3	Approche inverse de la détermination des propriétés des fibres . .	134
5.3.1	Compression d'un mat de fibres	134

5.3.2	Théorie classique des stratifiés	135
5.4	Modèle analytique des propriétés élastiques des composites avec fibres orthotropes	136
5.4.1	Modèle mécanique du continu à assemblage de cylindres concentriques	136
5.4.2	Loi de Hooke et anisotropie cylindrique	136
5.4.3	Champ de contraintes	137
5.4.4	Détermination des modules homogénéisés	138
5.5	Application : détermination des constantes élastiques des fibres	144
5.5.1	Constantes élastiques avec l'hypothèse d'orthotropie	144
5.5.2	Constantes élastiques avec l'hypothèse d'isotropie transverse	145
5.6	Conclusion	146
6	Identification numérique des propriétés mécaniques de la fibre	147
6.1	Introduction	147
6.2	Modélisation multi-échelle des propriétés élastiques de la fibre	148
6.3	Détermination des propriétés élastiques des couches pariétales	149
6.3.1	Introduction	149
6.3.2	Modèle géométrique de la microfibre	149
6.3.3	Propriétés élastiques des couches de la paroi	150
6.4	Calcul numérique des propriétés élastiques de la fibre de RC	152
6.4.1	Modèles géométriques des cellules et de la fibres	153
6.4.2	Maillage de la fibre	154
6.4.3	Résultats et commentaires	155
6.4.4	Conclusion	156
	Conclusion et Perspectives	158
	Annexes	162
A	Ajustement d'une loi de probabilité à un échantillon	163
A.1	Cas d'un échantillon unique de données	164
A.1.1	Introduction	164
A.1.2	Test de Grubbs pour détection des observations aberrantes (Cas déviants)	165
A.2	Traitement applicable à un unique échantillon	166
A.2.1	Méthode de Weibull	166
A.2.2	Test d'adéquation	168
A.2.3	Méthode Normale	168

A.3 La méthode du maximum de vraisemblance	169
A.4 La méthode de la régression linéaire	170

Bibliographie	172
----------------------	------------

Table des figures

1.1	Classification des fibres naturelles selon DIN 60 001, 1990	23
2.1	Diagramme des techniques d'extraction des fibres végétales	49
2.2	Schéma représentant l'angle des microfibrilles α par rapport à l'axe de la cellule : (a) spirale en Z, (b) spirale en S.	56
2.3	Représentation schématique de la paroi végétale et ses couches [1].	56
2.4	Représentation schématique des différentes sous-couches constituant la paroi végétale.	56
2.5	Ponts hydrogènes intramoléculaires entre deux macromolécules adjacentes de cellulose	59
3.1	Plante produisant le sisal, cordage fait de fibres de sisal	71
3.2	Plante produisant les fibres RC	74
3.3	Anatomie d'une racine aérienne sèche du RC, suivant une section droite	74
3.4	Fibres de RC extraites par rouissage à l'eau	76
3.5	Micrographie SEM des fibres de sisal.	76
3.6	Surface latérale du sisal en SEM.	77
3.7	Micrographie SEM de la couche extérieure des feuilles de la foliole de Raphia	77
3.8	Micrographie SEM de la microstructure de la fibre RC	78
3.9	Forme extérieure de la section droite du RC	79
3.10	Trois parois adjacentes et leurs couches observées en TEM.	82
3.11	Couches constitutives de la paroi en stratification symétrique.	82
3.12	Paroi secondaire avec une couche verruqueuse supplémentaire	82
3.13	Agglomérat de cellules unitaires au voisinage du canal central.	82
3.14	Micrographie TEM : une cellule C3 à l'intersection de trois adjacentes.	83
3.15	Formes polygonales variées des cellules : de 3 à 6 cotés.	83
3.16	Micrographies MP faisant apparaître l'angle des microfibrilles du RC	84
3.17	Micrographies SEM faisant apparaître l'angle des microfibrilles du RC	84

3.18	Schéma de principe de la détermination de l'angle MFA(X_2) par la technique SAXS	85
3.19	Courbe $\sigma - \epsilon$ (contrainte-déformation) des fibres RC	87
3.20	Courbe $\sigma - \epsilon$ (contrainte-déformation) des fibres de sisal	87
3.21	Vérification de la weibullité des données des résistances du RC	89
3.22	Courbe d'ajustement à la distribution de Weibull des résistances du RC	89
3.23	Vérification de la weibullité des modules d'Young du RC	89
3.24	Vérification de la normalité des diamètres du RC	89
3.25	Évolution de la résistance en fonction du diamètre	90
3.26	Distribution des diamètres de la fibre RC	90
4.1	Mats de fibres végétales utilisés dans ce projet	95
4.2	Mats de fibres de verre dans le commerce	96
4.3	Dimensions des éprouvettes selon la norme NF EN ISO 527-4	96
4.4	Echantillon d'éprouvettes testées	96
4.5	Machine utilisée pour les essais de traction	97
4.6	Module d'Young d'une plaque composite renforcée de fibres de sisal	100
4.7	Coefficient de Poisson d'une plaque composite renforcée de fibres de sisal	100
4.8	Influence de la concentration de soude sur le module d'Young	101
4.9	Influence de la concentration de soude sur le coefficient de Poisson	101
4.10	Axes principaux (1, 2, 3) et axes de référence (x, y, z) du stratifié unidirectionnel.	103
4.11	Essai de traction d'une éprouvette en résine pure.	105
4.12	Enroulement des fibres sur les supports en verre.	106
4.13	Schéma du principe de mise sous vide des plaques à imprégner.	107
4.14	Mise sous vide : étape 1.	107
4.15	Mise sous vide : étape 2.	107
4.16	Mise sous vide : étape 3.	107
4.17	Mise sous vide : étape 4.	107
4.18	Mise sous vide : étape 5.	107
4.19	Mise sous vide : étape 6.	108
4.20	Mise sous vide : étape 7.	108
4.21	Préparation des éprouvettes unidirectionnelles.	109
4.22	Evolution du module d'Young E_{xx} du matériau Si/Époxyde en fonction de l'angle θ	110
4.23	Evolution du module d'Young E_{xx} du matériau RC/Époxyde en fonction de l'angle θ	110

5.1	Compression d'un mat de fibres	135
5.2	Symétrie orthotropique matérielle en coordonnées cylindriques . .	137
6.1	Les différents niveaux d'échelles	149
6.2	Organisation géométrique des macromolécules dans la microfibre .	150
6.3	Organisation géométrique des macromolécules de la microfibre adop- tée dans ce projet	150
6.4	Géométrie de la fibre et des cellules unitaires utilisée dans le mo- dèle EF	153
6.5	Représentation de la double paroi du modèle géométrique adopté .	154
6.6	Maillage de la fibre	154
6.7	État de contraintes dans la fibre sous chargement axial uz	155
6.8	Sensibilité du module d'Young à l'angle des microfibrilles	156
A.1	Procédure de traitement statistique	164

Liste des tableaux

1.1	Disponibilité de certaines fibres naturelles comparée aux fibres de verre [2], [3]	25
1.2	Propriétés mécaniques des composites lin/polymères biodégradables à 50% du taux de fibres [4]	44
2.1	Composants chimiques (et leur teneur) de certaines fibres végétales, natures et fonctions [10]	57
2.2	Rigidités de la cellulose naturelle ([5, 6])	60
2.3	Rigidités de l'hémicellulose ([5, 7])	61
2.4	Rigidités de la lignine à 60% d'hygrométrie ([7])	63
2.5	Propriétés mécaniques des fibres naturelles comparées aux renforts de synthèse traditionnels	64
2.6	Paramètres structuraux de certaines fibres naturelles [8]	65
3.1	Caractéristiques morphologiques du RC	79
3.2	Masses volumiques des fibres de Sisal et RC : pycnomètre-toluène .	80
3.3	Compositions chimiques des fibres de raphia, RC et sisal	81
3.4	Dimensions transversales de la paroi du RC	82
3.5	Mesures de l'angle des microfibrilles (MFA) de cellulose du RC . .	86
3.6	Résistances à rupture et modules d'Young des spécimens de RC testés	88
3.7	Caractéristiques de la fibre RC comparées à celles d'autres fibres . .	91
4.1	Propriétés des constituants	98
4.2	Caractéristiques comparées des composites mat RC/Époxyde et Si/Époxyde	99
4.3	Constantes élastiques obtenues expérimentalement et par la théorie	100
4.4	Données d'essais d'éprouvettes d'époxyde	104
4.5	Données d'essais de traction des spécimens composites RC/Époxyde	109
4.6	Données d'essais de traction des éprouvettes composites Sisal/Époxyde	110

5.1	Correspondance entre l'équation de Halpin-Tsai (5.53) et les prédictions autocohérentes d'Hermans [9] et de Kerner [10].	131
5.2	Valeurs empiriques du paramètre ξ de l'équation de Halpin-Tsai.	131
5.3	Constantes élastiques des fibres par approche théorique	144
5.4	Constantes élastiques des fibres par approche théorique	146
6.1	Fractions volumiques des constituants chimiques et épaisseurs des couches de la paroi	151
6.2	Rigidités élastiques de la couche S_2	151
6.3	Rigidités élastiques de la couche $M/2+P+S_1$	152
6.4	Rigidités élastiques de la couche S_3	152
6.5	Angles des microfibrilles des couches pariétales utilisés dans ce projet	152
6.6	Rigidités élastiques de la fibre	155

Remerciements

Les travaux de cette thèse de doctorat ont été menés au dans le cadre d'une convention de cotutelle entre l'Université Blaise Pascal (UBP) - Clermont II et l'Université de Yaoundé I (UYI). Je suis reconnaissant à ces deux établissements de m'avoir ouvert leurs portes pour mener paisiblement et sereinement mes activités de recherche. Plus précisément, Je tiens à exprimer ma gratitude au Laboratoire de Mécanique et Ingénieries (LaMI) de l'UBP-IFMA pour son fidèle soutien logistique durant tous mes séjours en France.

Je saisis également cette opportunité pour dire ma gratitude au Service de Coopération et de l'Action Culturelle (SCAC) de l'Ambassade de France au Cameroun pour la part importante qu'elle a prise au financement de ce programme de recherche.

Une part importante du travail expérimental de cette thèse n'aurait pas été possible sans la collaboration avec des chercheurs de divers autres laboratoires. Je pense à Brigitte Martinie Gaillarde (CHU et INRA, Theix), Jacques Lepetit (INRA, Theix), Lionel Jouve (LBP, Clermont-Ferrand, France).

Mes sincères et profonds remerciements vont tout particulièrement à mes Directeur et Co-directeur de thèse Messieurs A. Beakou et J. Atangana Ateba qui par leur collaboration ont permis l'existence de ce projet franco-camerounais.

Je remercie le Pr. Alexis Beakou pour son accueil à l'Institut Français de Mécanique Avancée (IFMA) depuis mon année de Diplôme d'études Approfondies (DEA), pour sa patience, pour son soutien constant et la confiance qu'il m'a témoigné. Je le remercie de m'avoir apporté toute son expérience, ses compétences et ses qualités humaines sans lesquelles ce travail n'aurait pas pu aboutir. Je lui suis reconnaissant de m'avoir enseigné de nouvelles méthodes de travail et une autre vision de la recherche. Je suis très sensible à l'attention qu'il a manifesté tant pour ce travail que pour l'équilibre de la vie de son étudiant.

Il n'y a eu qu'une soutenance de la thèse, à l'IFMA, et je remercie ceux qui ont été présents ce jour, tout particulièrement l'ensemble des membres du jury, MM Jean Louis Robert, Louis Ayina Ohandja, Christophe Baley, Timoléon Crépin Kofane, pour l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant de donner une partie de

leur précieux temps en tant qu'examineurs et d'avoir ainsi partagé une partie de leur savoir.

Je souhaite également exprimer ma reconnaissance à l'ensemble des personnes du Laboratoire de Mécanique et Ingénieries notamment tous les thésards pour le précieux environnement intellectuel et multiculturel qu'ils ont su nous offrir. Je pense en particulier à Arnaud Alzina, Rabia Khelif, Kashif Syed, François Deheeger, Pascale Gouinaud.

Enfin je tiens à exprimer tout mon amour et ma gratitude à mon épouse *Jude* et à nos enfants qui ont eu le courage et la gentillesse de me laisser partir si souvent. Sans leur fidélité et leur confiance, ce travail n'aurait certainement pas abouti.

Résumé

L'utilisation sans cesse croissante des composites renforcés de fibres naturelles (NFRCS) dans des domaines comme l'automobile, le bâtiment et très bientôt l'aéronautique, pose inéluctablement la question de la fiabilité des constructions qui en sont faites. Pour l'ingénieur, cette fiabilité doit être garantie au moment de la conception, par une bonne connaissance des propriétés du matériau dont il se sert. Pour les composites en l'occurrence, il est nécessaire de connaître les propriétés mécaniques de leurs constituants fibres et matrice.

L'objectif principal poursuivi au cours de cette thèse était de développer une méthodologie de modélisation et de caractérisation de l'anisotropie élastique des fibres végétales. L'étude menée est de type multi-échelles, combinant expérimentation et modélisations analytique et numérique pour déterminer les constantes élastiques des fibres. Ceci a permis de prendre en compte la structure hiérarchique responsable des caractéristiques globales de la fibre.

Le travail expérimental, en particulier, s'est focalisé d'une part, sur la caractérisation morphologique et physico-chimique d'une nouvelle fibre végétale le *Rhectophyllum camerunense* (RC) et d'autre part, sur la mise en oeuvre et caractérisation des composites unidirectionnels Sisal/Epoxyde et RC/Epoxyde. Des données fournies par des essais de traction ont été intégrés dans un modèle micro-mécanique avéré afin d'estimer complètement les propriétés élastiques des fibres végétales. Les fibres de Sisal et de RC utilisées ont exhibées une forte anisotropie élastique.

Enfin par le moyen d'une modélisation par éléments finis coques 2D d'une fibre RC de section droite idéalisée ou non, des simulations numériques des propriétés de cette fibre ont été faites. Les résultats de la simulation de la rigidité longitudinale du RC s'accordent dans une bonne mesure avec ceux obtenus expérimentalement et établissent par ailleurs que les modes de déformation observés sont dépendants de l'angle des microfibrilles de la couche secondaire S_2 de la paroi.

MOTS CLÉS : A. Fibres végétales ; B. Microscopie en transmission ; C. Composites ; D. Anisotropie élastique ; E. Angle de la microfibre ; F. modélisation ;

Abstract

This thesis is concerned with the characterization of the elastic anisotropy of plant fibres used in reinforcing composite materials. A good knowledge of the properties of composites reinforced with these fibres is essential for safe design of the related structures.

In this work, experimentation, numerical modelling and analytical Modelling were thoroughly combined to optimize the determination of sisal and *Rhectophyllum Camerunense* (RC) fibre properties. Two approaches were followed to this end. Plant fibres are hierarchically organized in a way that their macroscopic properties emerge from their micro- and nanostructural level. Hence, micromechanical investigations, focusing on the mechanical design of the fibre cell walls, were carried out to implement a multiscale approach to numerically derive the RC fibre elastic constants.

The experimental work, included amongst others, the manufacturing and characterization of unidirectional Sisal/Epoxy and RC/Epoxy composites. Tensile tests were further performed to measure the axial and off-axes Young's modulus. The results were finally inserted in a micromechanical model based on the composite cylinders assembly to predict the fibres' elastic constants. Sisal and RC fibres used herein exhibited a high degree of elastic anisotropy.

KEYWORDS : A. Plant fibres, B. Modelling, C. Elastic anisotropy D. Transmission Microscopy. E. Composites, F. Microfibril Angle

Introduction Générale

L'utilisation de fibres végétales (bois, lin, chanvre) comme éléments de renfort dans les matériaux polymères, thermoplastiques ou thermodurcissables, en remplacement des fibres de verre, est un concept déjà industrialisé et commercialisé. On trouve ces composites dans les meubles de jardin, les bardages, les plinthes et huisseries, les pièces d'habillage intérieur d'automobiles de toutes marques. Une partie du compartiment de roue de secours de la Mercedes classe A est constituée d'un composite mélangeant polypropylène et fibres d'abacca, une espèce de bananier. L'idée de remplacer les fibres de synthèse, comme les fibres de verre, le renfort dominant sur le marché, n'est pas nouvelle. Mais dans un contexte dit de *développement durable* où le recours à des ressources renouvelables est encouragé, ce remplacement est désormais considéré comme une voie sérieuse et prometteuse. De plus, si ces ressources d'origine naturelle séduisent l'industrie des composites et les chercheurs aujourd'hui, c'est aussi à cause de leur abondante variété (donc disponibilité), leur légèreté et leur souplesse (par rapport aux fibres de verre). On trouve en effet des fibres végétales de toutes sortes dans diverses parties de la planète, et le fait que certaines d'entre elles font déjà l'objet d'une agriculture commerciale est en soi un atout majeur pour ces matériaux.

Certains pays en développement comme l'Inde ont une longue tradition dans l'utilisation des fibres naturelles dans la résine polyester pour la fabrication de conduites, de panneaux ou de profilés pultrudés. D'autres comme le Brésil, le Mexique, la Tanzanie ou les Philippines ont lancé de vastes programmes de recherche sur les fibres naturelles telles que le coton, le chanvre, le kapok, le lin, la feuille d'ananas, le bambou, la canne à sucre, les fibres de noix de coco. Parmi les diverses sources fibreuses rencontrées (ou cultivées) dans les pays développés, le chanvre et le lin sont particulièrement utilisés grâce aux propriétés mécaniques de ces fibres longues, mais aussi grâce aux qualités agronomiques de leurs plantes. Ces fibres ont en outre une très large et longue utilisation dans le textile.

Avec l'utilisation particulière des composites renforcés de fibres naturelles (NFRCs) dans des domaines comme l'automobile, le bâtiment et très bientôt l'aéronautique, se posent inévitablement la question de la sécurisation des construc-

tions ou des structures qui en sont faites. Pour l'ingénieur, cette sécurisation se fait au moment de la conception par une bonne connaissance des caractéristiques du matériau dont il se sert. Et pour connaître les caractéristiques mécaniques des structures en matériaux composites, il est nécessaire de connaître les propriétés de leurs constituants, fibres et matrice. A première vue, la conception de pièces en NFRCs découle de l'expérience acquise durant des siècles d'application et obéit aux approches habituelles des composites avec renforts synthétiques. Cette riche expérience est heureusement soutenue par des recherches scientifiques plus systématiques depuis le début du siècle dernier.

Toutefois, les propriétés mécaniques des fibres naturelles d'origine végétale varient considérablement tant au sein de la même espèce que d'une espèce à l'autre. La variation d'humidité par exemple conduit au rétrécissement ou au gonflement et modifie les propriétés mécaniques [6]. De même, leurs propriétés thermiques sont de loin très différentes de celles des fibres de synthèse. Divers travaux de recherches indiquent par ailleurs que les fibres végétales exhibent un comportement anisotrope très complexe [11, 12]. Cette anisotropie doit par conséquent être prise en compte si l'on veut réaliser une conception fiable. L'étude de cette anisotropie dans le contexte actuel des NFRCs n'a été l'objet que de quelques rares travaux scientifiques. Cette thèse aborde cette problématique, notamment la caractérisation de l'anisotropie élastique de ces matériaux.

La volonté de cerner et de maîtriser la conception des structures et donc l'ensemble des technologies liées aux NFRCs passe nécessairement par une approche interdisciplinaire. Une étroite collaboration entre les disciplines scientifiques telles que la botanique, la chimie, la biochimie, la biologie des structures moléculaires, la génétique des plantes, la physique et la mécanique permet à chacune d'entre elles d'apporter une contribution constructive et complémentaire ; ceci afin de faire évoluer ces technologies aux différentes phases de traitement, de la fibre végétale au composite.

Les fibres végétales, on le sait, doivent résister aux sollicitations de toutes sortes lorsqu'elles sont encore associées aux plantes qui les contiennent. Elles sont en effet sollicitées lorsqu'il s'agit de supporter le poids de la plante ou lorsqu'il s'agit de résister aux tempêtes et aux ouragans si courants dans leur environnement. Les propriétés des structures que sont ces fibres végétales à maturité sont le résultat de processus physico-chimico-mécanique très complexes qui se produisent dans les parois végétales. Au fur et à mesure que la plante se développe, les propriétés mécaniques de ses parois évoluent pour vaincre les difficultés rencontrées au cours de sa croissance. La manière dont les propriétés des fibres sont liées à celles des parois est intéressante à différents points de vue. On peut en effet les considérer comme des structures efficaces utilisant les caractéristiques des

constituants nanométriques pour résister aux sollicitations, et s'en inspirer dans différentes techniques de l'ingénierie. Le fait que la paroi végétale soit active durant la construction de la fibre est notable. Les deux aspects que sont la construction et l'adaptabilité de la paroi durant la croissance sont en passe d'être élucidés par la recherche en biologie cellulaire. La modélisation mathématique de la mécanique cellulaire des fibres pourrait quant à elle contribuer au débat relatif au rôle de la structure sur leur comportement thermo-mécanique. Du point de vue mécanique, la fibre végétale peut être modélisée à différents niveaux d'échelle, l'objectif étant de quantifier l'apport des polymères naturels qui la composent sur ses propriétés mécaniques.

L'objectif principal de cette thèse est de développer une méthodologie de modélisation et de caractérisation de l'anisotropie élastique des fibres végétales. L'étude sera de type multi-échelles pour prendre en compte la structure hiérarchique responsable des caractéristiques globales de la fibre. Il est évident que la connaissance élaborée sur la caractérisation des fibres devrait permettre une meilleure mise en œuvre des composites NFRCs.

Ce mémoire qui résume l'ensemble des travaux menés au cours de ce projet est organisé en trois grandes parties.

La première partie fait l'état de l'art sur les NFRCs ainsi que des fibres végétales dont ils sont constitués. Plus spécifiquement, le chapitre 1 est exclusivement consacré aux composites. Ce chapitre traite entre autres des solutions techniques employées pour créer une bonne adhésion de la fibre végétale à la matrice polymère et indique les résultats obtenus à la suite de ces traitements. Le chapitre 2 donne une meilleure connaissance de la fibre végétale, en abordant la question de sa séparation de la plante source, de sa structure, sa composition chimique et son comportement mécanique.

Dans la deuxième partie réservée aux travaux expérimentaux menés dans ce projet, le chapitre 3 est consacré à l'étude détaillée d'une nouvelle fibre végétale, le *Rhectophyllum Camerunense* (RC) qui fait l'objet principal de la caractérisation physico-chimique. Elle est cependant étudiée en parallèle avec la fibre de sisal, plus connue maintenant dans la littérature des NFRCs, pour besoin de comparaison. Le chapitre 4 est consacré à la mise en œuvre et la caractérisation des composites devant permettre l'application de l'approche macro-micro pour caractériser les fibres végétales étudiées dans ce travail.

Enfin, une troisième partie aborde les questions de modélisations. Dans un premier temps, nous nous attardons au chapitre 5 sur les modèles analytiques qui sont proposés dans la plupart des études sur les composites à renforts. Ces modèles sont ensuite utilisés dans le cadre d'une méthode inverse d'identification pour la caractérisation de l'anisotropie des fibres végétales. Enfin, le chapitre

6 développe une modélisation multi-échelles du comportement élastique de la fibre végétale. Le changement d'échelle de la microfibre à la paroi cellulaire utilise les formules d'homogénéisation tandis qu'un modèle numérique utilisant les éléments finis multicouches permet de simuler le comportement élastique de la fibre.

Le mémoire s'achève par l'annonce des principaux résultats obtenus au cours de ce projet et évoque des voies susceptibles d'être suivies pour affiner la connaissance et le développement des NFRCs, et des fibres végétales.

Première partie

Fibres naturelles et composites : état de l'art

Chapitre 1

Les composites renforcés de fibres naturelles

1.1 Introduction

Les fibres naturelles peuvent être classifiées en fonction de leurs origines animales, végétales ou minérales comme le montre le diagramme de la figure 1.1. Dans la suite de ce texte, l'expression "fibres naturelles" doit être comprise comme fibres d'origine végétale. Les fibres végétales sont maintenant plus souvent utilisées comme renforts des polymères organiques (communément appelés les "plastiques") et peuvent elles-mêmes être classifiées en fonction de la partie de la plante d'où elles sont extraites. Les fibres les plus utilisées sont : le lin, le chanvre, le jute, le ramie (pour les plantes monocotylédones) et le sisal, le henequen, le coco (pour les fibres dures).

Les fibres végétales sont traditionnellement utilisées dans le secteur du textile pour l'habillement, dans l'industrie du papier, dans l'agriculture pour le paillage des cultures, dans l'emballage pour la sacherie, et dans l'ameublement pour le rembourrage des matelas et des meubles. Des applications des fibres végétales existent également dans le secteur des filtres et absorbants, dans l'isolation avec les tissus ou panneaux de particules agglomérées. Une application particulière, celle des géotextiles¹ dans le génie civil mérite d'être soulignée car elle allie les propriétés de renforcement et de biodégradabilité des fibres.

¹Les géotextiles sont utilisés dans divers domaines, notamment pour le renforcement des remblais, afin d'empêcher l'érosion des structures d'aménagement paysager. La biodégradation naturelle des fibres ligno-cellulosiques peut être considérée comme un avantage important dans les applications temporaires de génie civil. Toutefois, la durée de vie fonctionnelle d'un géotextile devrait être suffisante, dans les conditions d'application, pour offrir le niveau de protection voulu contre l'érosion, tant que la construction a besoin d'être stabilisée.

L'utilisation industrielle des fibres a commencé au début du XX^e siècle avec la fabrication de sièges d'avion, de réservoirs de carburant ou autres boîtiers électroniques à partir des fibres végétales renforçant une résine polymère [4]. Avec l'avènement des fibres synthétiques moins sensibles à la température et à l'humidité, les fibres naturelles ont quasiment été abandonnées dans l'industrie. Aujourd'hui, le souci de dégager une image plus écologique et de réaliser des gains de masse et d'énergie conduit à un renouveau de l'utilisation des fibres naturelles. Ce sont les constructeurs automobiles qui se sont engagés les premiers mais le marché potentiel s'étend aux autres secteurs des transports, aux loisirs et bâtiments. Toutefois, les verrous techniques qui ont conduit à leur abandon doivent sauter afin d'améliorer la compétitivité des fibres naturelles.

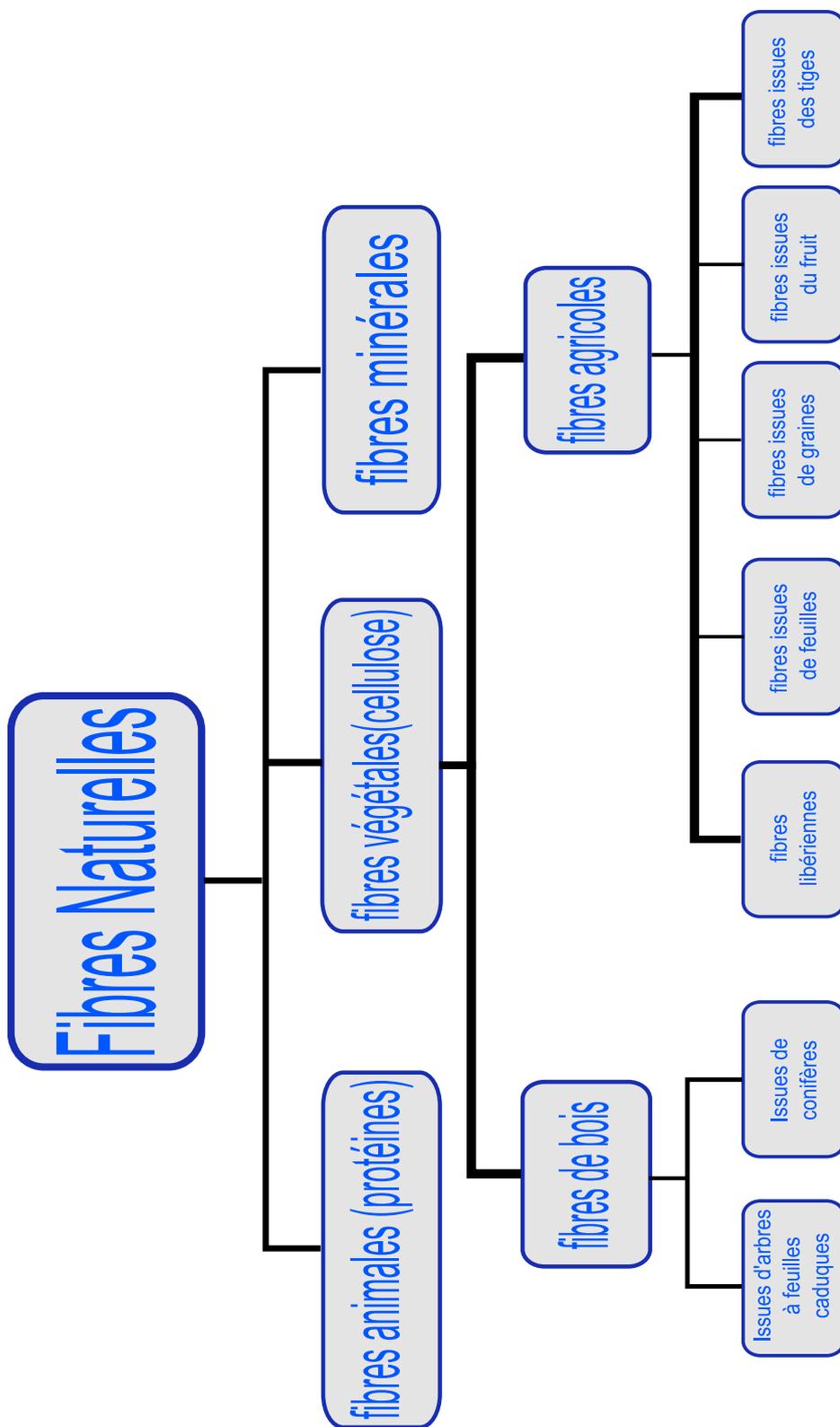


FIG. 1.1: Classification des fibres naturelles selon DIN 60 001, 1990

1.2 Utilisation des fibres végétales : avantages et inconvénients

Outre l'avantage direct de réduire l'impact négatif sur l'environnement au stade de la fabrication, un composite renforcé par des fibres naturelles peut également contribuer au respect de l'environnement grâce à son poids inférieur et à la consommation réduite de carburant des véhicules de transport qui en résulte. Si la teneur en fibres des composites à base de fibres naturelles est élevée en vue d'obtenir une qualité équivalente aux composites à base de fibres de verre, la quantité de polymères synthétiques peut de ce fait être réduite. L'étude comparative du cycle de vie d'une pièce pour véhicule automobile en résine époxyde renforcée par des fibres de chanvre, et d'une pièce réalisée à partir de polystyrène-butadiène-acrylonitrile (ABS) selon différentes méthodes, a révélé que non seulement la pièce renforcée aux fibres de chanvre présentait un avantage du point de vue de l'environnement durant la phase de production, mais que le poids réduit grâce à l'application de la pièce à base de fibres de chanvre permettait une économie d'énergie intéressante, avec des avantages additionnels pour l'environnement au cours de la phase d'utilisation.

Il existe une grande diversité de fibres naturelles. Toutes devraient être étudiées en vue de leur utilisation comme renforts des plastiques, afin de tirer profit des atouts particuliers qu'offrent chacune d'elles et pas seulement dans le but de promouvoir une plante plutôt qu'une autre. A moins qu'une fibre ne possède des avantages particuliers sur le marché, elle devrait être remplacée par toute autre ayant l'avantage du marché. Cet avantage du marché peut être basé sur des critères tels que la disponibilité, le prix, ou la performance. Ce ne sont en effet pas les désirs qui déterminent le marché ! Les producteurs et les fabricants utilisant les fibres naturelles se doivent d'explorer les intérêts communs et là où cela est possible, préparer une stratégie de création d'industrie de développement et de la promotion des fibres végétales. De plus, pour différentes applications, ces matériaux doivent être spécialement traités par rapport :

- ◇ à l'homogénéité des propriétés des fibres
- ◇ au degré de miniaturisation et le dégomme
- ◇ au degré de polymérisation et de cristallinité
- ◇ à la bonne adhésion fibre/matrice
- ◇ à la résistance à la pénétration de l'humidité
- ◇ au comportement au feu.

De nos jours, la disponibilité des fibres naturelles ne peut être assurée que partiellement (voir le tableau 1.1). Les fibres naturelles offrent de meilleures résistances,

Fibres	prix/kg(US\$) (mat/fabric)	Productionx1000 (t/an)
Jute	0,35(1,5/0,9-2)	2000
verre E	1,3(1,7/3,8)	1200
Lin	1,5(2/4)	2100
chanvre	0,6-1,8(2/4)	
Sisal	0,9-1	500
Abaca	1,5-2,5(-)	100
Ramie	1,5-2,5(-)	
Coco	0,25-0,5(-)	584

TAB. 1.1: Disponibilité de certaines fibres naturelles comparée aux fibres de verre [2], [3]

mais sont encore plus coûteuses que les fibres de verre². Le prix de vente de ces fibres dépend beaucoup du travail nécessaire pour l'extraction et la préparation ou le prétraitement des fibres, par exemple, leur mise à dimension finale avec un agent de couplage et autres surfactants qui sont du reste bien connus pour les fibres de verre. Dans certaines applications où l'on utilise des fibres de verre, les fibres naturelles doivent être prétraitées de la même façon que les premières. Elles offrent néanmoins des avantages certains par rapport aux fibres de verre :

- ◇ elles ont une faible densité,
- ◇ elles sont non abrasives par rapport aux fibres de verre, ce qui leur confère des avantages notamment quant à la longévité de l'outillage,
- ◇ elles possèdent des propriétés spécifiques élevées,
- ◇ elles sont facilement recyclables,
- ◇ elles sont moins fragiles que les fibres synthétiques et donc faciles à mettre en œuvre surtout pour les grandes courbures,
- ◇ elles sont biodégradables,
- ◇ elles se présentent sous forme d'une large gamme de variétés disponibles et renouvelables à travers le monde,
- ◇ elles peuvent générer des emplois dans le monde rural par l'augmentation des fermes non vivrières,
- ◇ elles se caractérisent par une faible consommation d'énergie,
- ◇ elles ont un coût de revient limité,

²Les fibres de verre constituent presque la totalité des fibres de renforcement utilisées en Europe (environ 600 000 tonnes par année), mais les fibres naturelles progressent de façon notable en tant que remplacement viable sur plusieurs marchés. En 1999, près de 22 400 tonnes de fibres naturelles ont été utilisées dans les composites pour automobiles en Union Européenne (UE), où le principal marché (70 %) était l'Allemagne.

-
- ◇ les composites renforcés de fibres naturelles ont été incinérées. Leur émission de CO₂ est faible et neutre par rapport à la quantité émise pendant leur croissance.
 - ◇ enfin, les composites à matrice biodégradable (amidon modifié par exemple) sont les matériaux les plus environnementalement propres. Ils peuvent ensuite être transformés en compost à la fin de leur cycle de vie.
- Cependant, les propriétés mécaniques globales de ces matériaux sont encore inférieures à celles des plastiques renforcés de fibres de verre. Un compromis est donc nécessaire entre leur performance en service et leur biodégradabilité.

1.3 Approvisionnement en fibres

Au cours des dernières années, les prix des fibres naturelles n'ont pas été stables et particulièrement pour les fibres de lin généralement produites dans les pays d'Europe (France, Belgique...). La Tanzanie et le Brésil sont les plus grands producteurs de sisal. Le henequen (une variété de la famille des agaves dont fait partie le sisal) est produit au Mexique, le chanvre de Manille aux Philippines. Les plus grands producteurs de jute sont l'Inde, la Chine et le Bangladesh.

La disponibilité de telles fibres ayant de meilleures qualités et propriétés mécaniques est l'un des prérequis pour une exploitation satisfaisante comme matériaux des sciences de l'ingénieur. Toute pénurie de ces dernières en serait une limitation majeure.

En effet dans tout processus commercial, il est important d'assurer un approvisionnement à long terme des ressources commercialisées. Afin de permettre un approvisionnement continu des fibres naturelles, une gestion anticipée des terres productrices doit être menée avec pour objectif entre autres une agriculture viable (voire durable) et la promotion des écosystèmes sains. La gestion d'écosystèmes n'est pas un euphémisme (pour la préservation de l'environnement) impliquant une négligence bénigne. Une agriculture viable dénote en effet d'un équilibre entre la conservation et l'utilisation des terres agricoles pour servir autant les intérêts sociaux qu'économiques, d'un point de vue local, national et mondial. Une agriculture viable ne signifie pas simplement l'exploitation du sol, mais mieux, elle vise à satisfaire les besoins de la génération présente sans compromettre les chances des générations futures de satisfaire les leurs. Elle implique dans le cas qui nous concerne, une production continue des fibres naturelles, la possibilité de recours aux terres multiples et la préservation de l'écosystème.

1.4 Préparation des fibres au renforcement

La qualité de l'interface fibre-matrice est très déterminante pour l'utilisation des fibres naturelles comme renforts dans les plastiques. Diverses méthodes physiques et chimiques peuvent être employées pour optimiser l'adhérence fibre-matrice. Ces méthodes sont diversement efficaces.

1.4.1 Méthodes physiques

Les fibres de renfort peuvent subir des traitements physiques ou chimiques. Les méthodes physiques telles que l'étirage en gros, le calandrage, le traitement thermique et la fabrication des fils hybrides ne modifient pas la composition chimique des fibres. Elles ont plutôt un effet sur la structure physique de la surface modifiant par là les liaisons mécaniques des fibres dans des matrices polymères.

La *décharge électrique* (Corona, plasma froid) est une autre méthode de traitement physique. Le traitement Corona est l'une des méthodes les plus intéressantes pour l'oxydation et l'activation de la surface. Cette technique modifie l'énergie de surface des fibres cellulosiques [13] et, dans le cas du bois, l'activation accroît le nombre de groupements aldéhydes [14].

Les effets similaires peuvent être obtenus par le traitement au plasma froid. Dépendamment de la nature et du type de gaz utilisé, diverses modifications des surfaces peuvent être obtenues. La réticulation de la surface peut être introduite, l'énergie de surface peut être réduite ou augmentée, les radicaux et groupements réactifs peuvent être générés.

Les méthodes par décharge électrique sont reconnues efficaces pour des substrats de polymères non actifs comme le polystyrène, le polyéthylène, le polypropylène, etc. Ces méthodes sont utilisées avec succès sur des fibres cellulosiques pour réduire la viscosité à l'état fondu des composites cellulose/polyéthylène [15] et pour améliorer les propriétés mécaniques des composites cellulose/polyéthylène.

1.4.2 Méthodes chimiques

Les fibres cellulosiques fortement polaires et hydrophiles sont incompatibles avec les matrices polymères non polaires et hydrophobes. Cependant, lorsque deux matériaux sont incompatibles il est souvent possible de les compatibiliser par l'introduction d'un troisième matériau ayant des propriétés intermédiaires aux deux autres. Il existe pour cela divers mécanismes de couplage dans les matériaux :

-
- ◇ agents de couplage des couches limites faibles : ils éliminent les couches limites faibles,
 - ◇ agents de couplage par déformation des couches : ils produisent une couche rugueuse flexible,
 - ◇ agents de couplage par inhibition des couches : ils développent une région fortement réticulée à l'interphase avec un module intermédiaire entre celui de la substance et celui du polymère,
 - ◇ agents de mouillage : ils améliorent le mouillage entre le polymère et la substance (facteur critique de la tension de surface),
 - ◇ agents de couplage par liaisons chimiques : ils forment des liaisons de covalence avec les deux matériaux,
 - ◇ agents de couplage acido-basique : ils détruisent l'acidité de la surface du substrat.

Le développement d'une théorie établie sur les mécanismes de liaison par agents de couplage dans les composites est un problème complexe. La principale théorie en elle-même est insuffisante à ce sujet. Ainsi la prise en compte d'autres concepts incluant la morphologie de l'interphase, les réactions acido-basiques à l'interface, l'énergie de surface et le phénomène de mouillage est nécessaire.

Une ancienne méthode de traitement physique des fibres cellulosiques est *le mercerisage*. Elle est largement utilisée sur les textiles en coton. Le mercerisage est une méthode de traitement à l'alcali des fibres cellulosiques. Elle dépend du type et de la concentration de la solution alcaline, sa température, le type de traitement, la résistance du matériau ainsi que des additifs. De nos jours, le recours au mercerisage pour le traitement des fibres naturelles est toujours en vogue. Dans les conditions optimales de mercerisage, on améliore les propriétés de traction [16, 17, 18] et les caractéristiques d'absorption qui sont importantes.

L'énergie de surface des fibres naturelles est intimement liée à leur hydrophilie. Quelques travaux de recherches se sont penchés sur des méthodes permettant de réduire l'hydrophilie. Par exemple la modification des fibres de bois par l'acide stéarique [19] les rend hydrophobes et améliore leur dispersion dans du polypropylène. De même, le traitement des fibres de jute avec du polyacétate de vinyle améliore les propriétés mécaniques [20] et la résistance à la pénétration de l'humidité.

Les agents de couplage au silane confèrent des propriétés hydrophiles à l'interface, plus particulièrement, lorsque les silanes amino fonctionnels tels que les silanes époxydes à l'uréthane sont utilisés comme amorçeurs pour les polymères réactifs. L'amorceur a pour rôle de fournir plus de fonctionnalité amine permettant une plus grande réactivité avec la résine à l'interphase. Les amines qui ne réagiraient pas sont hydrophiles et par conséquent responsables de la faible ré-

sistance à l'eau des liens. Un moyen plus pratique d'utilisation des silanes hydrophiles est de les mélanger aux silanes hydrophobes tels que le phényl triméthoxysilane. Les amorceurs siloxanes mélangés ont eux aussi une meilleure stabilité thermique, laquelle est typique pour les silicones aromatiques [21].

1.4.3 Imprégnation des fibres

Une meilleure association des fibres et de la matrice est obtenue par imprégnation des fibres de renfort par des matrices polymères compatibles avec la fibre. A cet effet, des solutions polymères ou agents dispersants de faible viscosité sont utilisés. Pour un certain nombre de polymères intéressants, le déficit de solvants appropriés limite le recours à l'imprégnation. Lorsque les fibres cellulosiques sont imprégnées en présence de l'agent dispersant polychlorure de vinyle (PVC) plastifié par du butylbenzylphthalate, une excellente répartition peut être réalisée dans du polystyrène (PS) et le PVC [22].

1.4.4 Couplage chimique

Une autre méthode importante de traitement est le couplage chimique car il améliore la qualité de l'interface fibre/matrice. La surface de la fibre est traitée avec un composé chimique servant de pont des liaisons chimiques entre les fibres et la matrice. Différents types de couplages chimiques sont utilisés, nous en évoquons quelques uns ci-dessous.

1.4.4.1 Greffage par copolymérisation

C'est une réaction initiée par les radicaux libres de la molécule de cellulose. Cette dernière réaction, en effet, est traitée par une solution aqueuse contenant des ions sélectionnés et est ensuite exposée à une radiation intense d'énergie. Lorsque la molécule de la cellulose craque, les radicaux se forment. Enfin, les parties radiculaire de la cellulose sont traitées à l'aide d'une solution appropriée (compatible avec la matrice polymère), monomère vinyl [18], acrylonitrile [17] méthacrylate de méthyle [23], polystyrène [24] par exemple. Le copolymère résultant possède des propriétés caractéristiques du polymère greffé et de la cellulose fibreuse.

Par exemple, le traitement des fibres cellulosiques avec le copolymère polypropylène maléique anhydre (MAH-PP) chauffé, fournit des liaisons covalentes à l'interface [25]. Le mécanisme de la réaction peut être subdivisé en deux étapes : (1) activation du copolymère par chauffage ($T \simeq 170$ °C) avant traitement et (2) estérification de la cellulose. Après ce traitement, l'énergie de la surface de la fibre se

trouve augmentée à un niveau plus proche de l'énergie de surface de la matrice. On obtient ainsi un bien meilleur mouillage et une forte adhésion fibre/matrice à l'interface. La chaîne polypropylène (PP) permet une cristallisation segmentée et un couplage par cohésion entre la fibre modifiée et la matrice PP [25]. Le greffage par copolymérisation est efficace mais complexe.

1.4.4.2 Couplage par composé chimique contenant des groupements méthanol

Les composés chimiques contenant des groupements méthanol ($-\text{CH}_2\text{OH}$) forment des liaisons covalentes stables avec les fibres cellulosiques. Ces composés sont très connus et d'utilisation courante dans l'industrie textile. Même les liaisons hydrogènes peuvent être formées au cours de cette réaction [4].

Le traitement de la cellulose par des composés contenant des groupements méthanolmélamine avant la mise en forme des composites cellulose/polyester non saturé (UP) diminue l'absorption d'humidité et accroît la force de mouillage du plastique renforcé.

1.4.4.3 Couplage à l'aide des isocyanures

Les propriétés mécaniques des composites renforcés de fibres de bois dans une résine PVC ou PS peuvent être améliorées par traitement à l'isocyanure de ces fibres [24, 26] ou de la matrice polymère. L'isocyanure polyméthylène-polyphényle (PMPPIC) à l'état pur ou en solution dans un plastifiant peut être utilisé. Le PMPPIC est chimiquement lié à la cellulose par des liaisons covalentes fortes.

Le PMPPIC et le PS contiennent tous deux les anneaux de benzène et leurs électrons π délocalisés fournissent une interaction forte de sorte qu'il y a adhésion entre le PMPPIC et le PS [24].

Une comparaison des deux méthodes de traitement, aux silanes (hydrure de silice) et aux isocyanures montre clairement que la deuxième méthode est plus efficace que la première. Des résultats identiques sont obtenus lorsque le PMPPIC est utilisé pour modifier aussi bien les fibres que la matrice polymère.

1.4.4.4 Couplage à l'aide des triazines

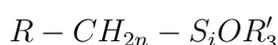
Les dérivés du triazine établissent des liaisons avec les fibres cellulosiques. La baisse d'absorption d'humidité dans les fibres et les composites cellulosiques traités avec des dérivés du triazine s'explique par [27, 28] :

- ◇ une diminution du nombre de groupements hydroxyles de la cellulose, lesquels favorisent une absorption d'humidité,

- ◇ une diminution de l'hydrophilie à la surface de la fibre,
- ◇ une limitation du gonflement des fibres par la création d'un réseau de réticulation formé par des liaisons covalentes fibre/matrice.

1.4.4.5 Couplage à l'aide des organo-silanes

Les organo-silanes sont les principaux agents de couplage utilisés pour les plastiques renforcés de fibres de verre. Ils ont été développés pour coupler, virtuellement, n'importe quelle fibre utilisée comme renfort dans les plastiques. La plupart des agents de couplage peuvent être représentés par la formule suivante :



avec : $n = 0 - 3$, OR' : groupement alkoxyde hydrolysable

R : groupement fonctionnel organique.

Le groupement organofonctionnel de l'agent de couplage est responsable de la réaction avec le polymère. Cette réaction pourrait être une copolymérisation et/ou la formation d'un réseau interpénétrant. La réaction de durcissement du substrat de silane traité augmente le mouillage par la résine.

Les silanes alkoxydes subissent l'hydrolyse, la condensation (leurs catalyseurs sont généralement ceux de condensation) et la formation des liaisons se fait en présence d'une base ou d'un acide. En plus des réactions des silanols avec les hydroxydes de la surface de la fibre, la formation des structures polysiloxanes peut avoir lieu. Comme avec les fibres de verre, les silanes sont utilisés comme agents de couplage pour les composites cellulés. Par exemple le traitement des fibres de bois avec du méthacrylate améliore la stabilité dimensionnelle du bois. Cependant une diminution des caractéristiques mécaniques a été observée après traitement des fibres mercerisées. Avec des aminosilanes [29], l'élaboration du composite sisal/époxyde a remarquablement amélioré la résistance à l'humidité de ce composite. Ces exemples montrent que les théories sur le traitement par les silanes peuvent être contradictoires. Des travaux supplémentaires doivent par conséquent être menés pour cet aspect.

1.4.5 Acétylation des fibres naturelles

L'hydrophilie des fibres naturelles est essentiellement due à la cohésion des molécules d'hydrogène aux groupements hydroxyles des parois cellulaires. Comme expliqué plus haut, des composés chimiques peuvent être greffés avec succès aux groupements hydroxyles des parois cellulaires de la cellulose, de l'hémicellulose et de la lignine. Une des méthodes pouvant être utilisées à cet effet est l'acétylation.

L'acétylation est l'introduction d'un groupement hydroxyle dans des combinaisons contenant les groupements OH-, SN-, ou NH₂. Plus précisément, des combinaisons d'acide acétique (chlorure d'acétyle) sont chauffées en présence d'un solvant par du benzol ou de l'acide acétique. Dans certains cas, l'acétylation est accélérée par l'utilisation de catalyseurs. Des groupements hydroxyles, des parois cellulaires, devant subir une acétylation peuvent être atteints de différentes façons. Cependant, sans le recours aux catalyseurs ou solvants appropriés on ne peut atteindre que les groupements hydroxyles les plus facilement accessibles.

Par cette méthode, des fibres d'aspen, de bambou, de jute... ont pu être traitées. Le remplacement des groupements hydroxyles par des groupements acétyles dans les parois cellulaires permet de réduire l'hydrophilie de ceux-ci. Plus la teneur en groupements hydroxyles est importante, plus le taux d'humidité à l'équilibre diminue [4]. La représentation graphique du taux d'humidité à l'équilibre en fonction de la teneur en groupements acétyles est une droite quelle que soit la fibre utilisée (proportion variable en cellulose, hémicellulose et lignine). Ce résultat semble indiquer que la réduction d'absorption d'humidité (suite à l'acétylation) est engendrée par un même facteur.

1.4.6 Alcalisation des fibres naturelles

L'effet du mercerisage sur les propriétés mécaniques des fibres de coton a été profondément étudié. La définition standard de cette technique (proposée par la norme ASTM D1965) est la suivante : procédé suivant lequel une fibre végétale est soumise à une interaction dans une solution aqueuse d'une base relativement concentrée, pour provoquer un gonflement important qui induit des changements dans la structure, les dimensions, la morphologie et les propriétés mécaniques.

Comme expliqué précédemment, la cellulose est le principal constituant dans la structure d'une fibre végétale ; mais les constituants non-cellulosiques, c'est-à-dire la lignine et l'hémicellulose, influencent aussi significativement les propriétés caractéristiques de ces fibres. L'hémicellulose, dont on pense qu'elle est constituée de xylan, de polyuronide et de hexosan est très sensible à l'action de la soude caustique, laquelle n'a presque aucun effet sur la lignine (ou α -cellulose). Des travaux portant sur le traitement à l'alcali des fibres de jute par exemple ont révélé que la dissolution de l'hémicellulose et de la lignine a des effets positifs sur les caractéristiques de traction des fibres. En effet, lorsque l'hémicellulose est soustraite de la zone interfibrillaire, celle-ci devient probablement moins dense et moins rigide, permettant ainsi aux fibrilles de se réorienter facilement suivant la

direction de la déformation de traction. Lorsqu'ensuite les fibres naturelles sont étirées, cette réorientation des fibrilles permettrait une meilleure distribution de la charge, ce qui les rend plus aptes à supporter les contraintes plus élevées. Par contre, le ramollissement de la matrice interfibrillaire a des effets négatifs sur la transmission des contraintes entre les fibrilles et par suite sur la capacité de la fibre à supporter des déformations de traction. Avec la dissolution progressive de la lignine, la lamelle centrale reliant les cellules les plus éloignées deviendrait de plus en plus plastique et homogène à cause de l'élimination des micro-pores, et les cellules les plus éloignées elles-mêmes ne seraient alors que légèrement affectées.

De plus, certains auteurs ont évoqué des changements de la cristallinité après le traitement à l'alcali des fibres de noix de coco et de lin [30, 31]. L'augmentation de la cristallinité des fibres alcalinisées s'expliquerait par le fait que la dissolution des '*extractifs*' qui se produit conduit à un meilleur conditionnement de l'emballage des chaînes cellulosiques. Ainsi, le traitement à l'hydroxyde de sodium (NaOH) entraîne une diminution de l'angle d'hélice et une plus grande orientation moléculaire. Une assez grande incertitude est introduite dans l'orientation des cristallites à cause de la dissolution des constituants non-cellulosiques. Le module élastique des fibres naturelles, par exemple, est supposé augmenter avec le degré d'orientation moléculaire. Des fibres cellulosiques, comme le lin, mieux orientées dans la chaîne moléculaire présentent un module d'Young supérieur à celui des fibres ayant une orientation moyenne (comme le coton). En plus de la modification d'orientation et la consolidation des points faibles, d'autres facteurs importants en rapport avec les propriétés mécaniques seraient la longueur des cristallites, le degré de cristallinité et la dissolution des fractions de celluloses de faible degré de polymérisation.

Des essais conduits par Prasad et al. [32] sur les fibres de coco et par Chaud et al. [33] sur les fibres de sisal ont présenté des variantes dans le changement d'indice de cristallinité après traitement à l'alcali dans une solution à 8% de NaOH. Une augmentation de 25% de la résistance à la traction a pu être obtenue avec les fibres de cuir et une augmentation de 100% avec les fibres de sisal, dépendamment de la durée de séjour dans la solution. En plus d'accroître les propriétés mécaniques, le traitement à l'alcali améliore la qualité des composites suite à une meilleure adhésion fibre-matrice. Prasad et al. [32], Chaud et al. [33] ont ensuite conduit des essais de décohésion avec les fibres de noix de coco et de sisal alcalinisées. La force de décohésion des fibres de sisal se situait entre 10 et 15 N, et l'adhérence a été accrue à un niveau correspondant au temps d'alcalinisation de 90 heures. Après quoi la force de décohésion et l'adhérence ont baissé considérablement. Une contrainte de déchaussement similaire a été observée avec un

composite fibre de noix de coco/polyester [32].

1.5 Évaluation de l'adhésion fibre/matrice

Tout au long de la section 1.4 nous avons évoqué l'adhésion et les propriétés d'interface ou de surface des composites à base de fibres végétales (NFRCs). Nous allons présenter et discuter les principaux aspects liés à l'adhésion ainsi que son rôle.

1.5.1 Interface d'un matériau composite : notion d'adhésion

La notion d'adhésion ne peut être dissociée de la nature des surfaces impliquées. Ces dernières présentent des propriétés qui les rendent plus ou moins idéales. Les fibres végétales constituent un bon exemple de matériau à surface irrégulière, rugueuse, poreuse et possédant d'autres caractéristiques non nécessairement souhaitables. La surface conditionne donc fortement les possibilités de liens chimiques ou mécaniques représentant l'adhésion à l'interface entre deux matériaux. Cette interface prend différentes formes et conduit au concept d'interphase. L'interphase est une zone entre les deux adhérents, dans laquelle il existe un gradient de concentration des deux composants. Cette zone est plus ou moins large et plus ou moins performante. L'interphase se crée par interdiffusion entre deux plastiques, par diffusion d'un adhésif dans la fibre végétale ou dans un matériau poreux. C'est donc à l'interface ou dans l'interphase qu'agissent les forces qui sont à l'origine de l'adhésion. Ces forces sont regroupées en mécanismes qui décrivent une adhésion mécanique, par diffusion électronique et par adsorption. C'est la nature de la surface (chimie, porosité, basse ou haute énergie, rugosité, etc.) qui permet ou non la présence simultanée des différents mécanismes.

Les mécanismes de liaison font appel à des considérations théoriques complexes. La théorie des liaisons chimiques propose plusieurs types de liens intermoléculaires plus ou moins forts (lien van der Waals, lien hydrogène ou lien acide-base). La morphologie de l'interphase joue, quant à elle, un rôle prépondérant en ce qui concerne l'adhésion mécanique. La théorie de l'adhésion fait aussi appel à la notion d'énergie de surface et au phénomène de mouillage. L'interaction entre deux constituants d'un composite peut se décrire par le travail d'adhésion. Le travail d'adhésion (W_{ad}) correspond à la somme des énergies superficielles des deux composants diminuée de l'énergie interfaciale. Cette grandeur représente le gain d'énergie obtenu par le recouvrement d'un composant par l'autre et est donnée par la relation de Young-Dupre. Elle dépend de l'angle de contact θ établi entre les deux constituants et de l'énergie libre γ_m appelée tension

de surface.

$$W_{ad} = (1 + \cos \theta) \gamma_m \quad (1.1)$$

En terme d'énergie de surface, il y a l'énergie libre de surface non polaire résultant des forces dispersives de London et l'énergie de surface polaire résultant d'interactions du type dipôle-dipôle, dipôle induit et liaison hydrogène. Le rôle du mouillage apparaît donc primordial pour l'adhésion de l'interface qui est le lieu privilégié du transfert des contraintes entre la matrice et le renfort. Si l'on considère un matériau neutre comme le polypropylène qui n'est capable que d'interactions de dispersion, le travail d'adhésion sera uniquement déterminé par l'énergie de surface dispersive des deux composants. Au contraire, les fibres cellulodiques possèdent une énergie de surface majoritairement polaire. Les tensions de surface de différents bois, en particulier, oscillent entre 40 et 54,3 mJ/m² (approche de Lifshitz-van der Waals/acide-base). Il faut aussi noter le caractère faiblement acide du bois en général (pH = 4,3-5,9). La température, de par l'agitation moléculaire, entraîne une réorientation des macromolécules et une migration des extractibles vers la surface dont l'énergie est modifiée. C'est donc en gardant présent à l'esprit ces notions qu'il faut appréhender l'interface des NFRCs.

1.5.2 Caractérisation de l'adhésion, de l'interface et des surfaces

L'adhésion se situe à l'interface entre les constituants. Afin de déterminer cette adhésion avant ou après l'avoir modifiée, il existe différents moyens qui fournissent une information plus ou moins directe de l'efficacité de cette dernière. La mise en relation des caractéristiques d'interface et des propriétés des NFRCs est, de par son intérêt, l'objet d'études axées sur l'analyse de l'interface.

Les techniques microscopiques sont nombreuses et nous renseignent sur la nature physique de l'adhésion. Il s'agit, pour partie, d'imagerie de l'interface (SEM, microscopie confocale, microscopie par fluorescence ou optique, AFM). La microscopie confocale, par exemple, a permis de visualiser et de quantifier la distribution d'une résine thermodurcissable sur des fibres de panneaux MDF [34]. Elle peut aussi, au même titre que l'AFM, nous procurer une idée de la rugosité des surfaces [35], ou alors tout simplement fournir une information dans un plan unique, et ce, grâce à son principe de fonctionnement. La microscopie électronique, comme la SEM, est suffisamment puissante, pour permettre une observation détaillée des fibres, de leurs surfaces, de leurs parois, ainsi que de la morphologie de l'interface avec une très grande résolution. C'est certainement la technique la plus largement utilisée lors de l'étude des NFRCs. Il faut noter que la matière végétale n'est pas un composé adapté à cette microscopie puisqu'il est

nécessaire de métalliser la fibre au préalable, bien qu'il existe maintenant des microscopes de type *environnemental* où la métallisation est moins poussée ou pas du tout nécessaire. Les techniques, dites spectroscopiques (FTIR), donnent quant à elles, davantage d'informations sur la nature ou la composition chimique de l'adhésion [35]. Les analyses thermiques de type DSC, TG, TMA ou DMTA sont précieuses en ce qui concerne l'évaluation des liaisons créées lors d'une cinétique de température. La compréhension de la réticulation des adhésifs, utilisés pour les NFRCs, doit beaucoup à ces techniques.

La caractérisation des possibilités de liaisons à l'interface peut aussi s'effectuer via des techniques plus spécifiques comme l'angle de contact ou la chromatographie gazeuse inversée (IGC) [36]. Dans ce cas particulier, il s'agit de techniques de caractérisation de surface, pas d'interface. Les grandeurs mesurées sont celles qui sont présentées dans l'expression du travail d'adhésion (équation (1.1)). Selon Riedl et Matuana [37], l'IGC, bien que plus délicate à mettre en oeuvre, se révèle plus précise et plus sensible que l'angle de contact, notamment en ce qui concerne les sites de hautes énergies et les substrats très poreux ou poudreux. L'analyse de NFRCs, avec des surfaces modifiées ou non, par la chromatographie gazeuse inversée a permis à Zafeiropoulos et al [38] de vérifier les possibilités de liaisons à l'interface.

Outre ces techniques empruntées à l'ingénierie chimique, il existe aussi des possibilités de caractérisation mécanique, plus ou moins directe, de l'adhésion. Les essais comme la traction perpendiculaire utilisés pour les panneaux composites à base de bois, ou "le single fibre pull out test" sont les plus courants. Le *pull out test* permet de déterminer l'adhésion d'une fibre prise dans une matrice. Toutefois, Beckert et Lauke [39] mettent en avant le fait, qu'il n'est pas évident que ce test mesure réellement l'adhésion puisque des effets de non linéarité, comme la friction ou l'inélasticité de la matrice, risquent d'interférer. Toutefois, l'association de l'imagerie microscopique et du *pull out test* autorise l'observation de l'allure de la surface de rupture entre deux matériaux. Une bonne adhésion doit exclure la présence d'une rupture à l'interface. L'essai de traction perpendiculaire est normé pour les matériaux bois, et est considéré comme un bon indicateur de la qualité de l'adhésion. En effet, ce sont principalement les liaisons avec la colle qui assurent la cohésion du matériau.

Toutes ces méthodes de caractérisation peuvent être associées afin d'optimiser les résultats obtenus. Elles sont complémentaires, et même si elles fournissent parfois des informations similaires, les moyens employés diffèrent. La complexité des mécanismes d'adhésion nécessite cette diversité qui peut, à l'occasion, ne pas s'avérer totalement efficace.

1.6 Mise en œuvre des composites renforcés de fibres naturelles

Les différentes techniques utilisées pour la mise en œuvre des composites NFRCs se fondent sur les acquis relatifs aux composites renforcés de fibres synthétiques. Ces techniques incluent entre autres le moulage au contact, la pultrusion, l'enroulement filamentaire, l'extrusion, le moulage par injection de résine, le compounding, etc. Il convient cependant de relever avec justesse que les matrices telles que le polyéthylène et le polypropylène thermoplastiques, sont surtout utilisés dans le compounding et l'extrusion.

1.6.1 Influence de l'humidité

Le séchage des fibres avant renforcement est une opération importante car l'eau présente à la surface de la fibre agit comme un agent de détérioration de l'adhérence à l'interface fibre/matrice. Cet aspect est d'autant plus important que des vides ou pores naissent dans la matrice pendant la polymérisation (la plupart des résines thermodurcissables ont une température de polymérisation supérieure à 100 °C, celles des thermoplastiques se situe bien au-dessus de la température de vaporisation de l'eau). Les 2 phénomènes évoqués provoquent la diminution des propriétés mécaniques des plastiques renforcés de fibres naturelles. Pour les composites jute/époxyde par exemple, la résistance à la traction des fibres préalablement séchées à 1% d'humidité augmente d'environ 10% comparée à celle des fibres faiblement séchées à 10% (poids) d'humidité. On peut signaler dans le même ordre d'idée, une augmentation d'environ 20% de la rigidité. Le séchage des fibres peut être effectué dans une étuve sous vide à différentes températures afin de parvenir à différents taux d'humidité.

1.6.2 Les techniques plasturgiques ou "compounding"

Ces procédés mis au point pour produire des compounds thermoplastiques peuvent se résumer en 6 étapes principales [40] :

- ◇ dans un premier temps les fibres sont nettoyées et coupées à une dimension de 4 mm,
- ◇ transférées dans un réacteur, les fibres courtes subissent un traitement thermomécanique spécial et éventuellement un traitement chimique,
- ◇ transportées sur la ligne de granulation, les fibres sont dosées gravimétriquement avec les granulés,
- ◇ le mélange est introduit dans un malaxeur où il est fondu et malaxé,

-
- ◇ la matière fondue est extrudée et granulée sous eau,
 - ◇ les granulés subissent un traitement thermique final avant d'être conditionnés en sacs étanches.

Les fibres (non compatibilisées) utilisées jusqu'ici sont le bois, le chanvre, le lin, le jute, le kenaf et le sisal. Les taux d'incorporation de fibres varient de 15% à 70% selon les besoins. Les résultats obtenus avec un polypropylène copolymère montrent que le module de traction est plus élevé pour le chanvre et viennent ensuite le sisal, le jute, le lin et un compound obtenu à partir des déchets [40]. Les propriétés mécaniques obtenues avec le PEHD montrent que les modules de traction et de flexion du polymère peuvent être multipliés par 3 voire 4. L'accroissement de rigidité obtenu entraîne bien sûr une valeur de l'énergie de rupture au choc relativement faible puisqu'aucun traitement destiné à rendre la cellulose de la fibre compatible avec le polymère de base n'est réalisé.

1.6.3 Utilisation des matrices thermoplastiques

Comme mentionné plus haut les résines thermoplastiques sont largement employées dans les techniques plasturgiques avec des fibres courtes. Cependant des fibres longues de coton, de lin de kenaf et de chanvre peuvent tout aussi être utilisées [41]. Ces dernières sont généralement mélangées à la résine pour produire un tissu non tissé qui sera ensuite pressé à chaud pour fondre le thermoplastique et obtenir la pièce composite. L'avantage particulier de cette approche avec des fibres réside évidemment dans l'acquisition d'une meilleure capacité de renforcement qu'avec le compounding.

Comparées aux fibres de verre, la faible stabilité thermique des fibres naturelles limite le nombre de matrices thermoplastiques pouvant être renforcées par ces fibres car ces dernières sont susceptibles de se dégrader ou de produire des émissions volatiles de gaz pouvant détériorer les propriétés des composites aux températures élevées. Seuls les thermoplastiques dont la température de mise en œuvre ne dépasse pas 230 °C sont utilisables (quoiqu'il soit possible d'utiliser des températures élevées pendant une très courte période). Ce facteur limite les types de thermoplastiques pouvant être renforcés avec ces fibres aux matériaux tels que le polypropylène (PP), le polyéthylène (PE), le polychlorure de vinyle (PVC) et le polystyrène (PS). Il convient cependant de signaler que ces thermoplastiques (à faibles coûts de revient) représentent 70% des thermoplastiques utilisés dans l'industrie des composites. L'impossibilité de renforcer les autres 30% ne devrait donc pas être nécessairement mise en relief. Les plastiques synthétiques tels que les polyamides, polyesters et polycarbonates nécessitent des températures de mise en œuvre supérieures à 250 °C et ne conviennent donc pas pour

être renforcées par des fibres naturelles (possible détérioration des fibres).

1.6.4 Thermoplastiques renforcés de mats de fibres naturelles

Avec un taux de retournement le plus élevé, les thermoplastiques renforcés de fibres de verre sont sans doute les produits secondaires les plus utilisés du groupe des thermoplastiques renforcés. Un procédé particulier a été développé par BAS AG [4] pour la fabrication des composites à matrice polypropylène (PP). Les fibres utilisables pour ce procédé doivent être disponibles sous forme de mats, lesquels peuvent être obtenus par des couches préalablement aplanies puis enduites d'un fondant au travers d'une presse à double enrobage. Cette presse est dotée d'une zone de pression à chaud et d'une zone de pression à froid. De plus dans cette presse, les mats sont renforcés au PP fondu entre des bandes d'acier en mouvement. Le mouillage des mats dans le bain thermoplastique a lieu à chaud. Le stratifié est ensuite refroidi dans la zone de pression à froid. Les fibres de sisal, de verre et de lin utilisées dans ce procédé ont permis d'atteindre des propriétés mécaniques (résistance à la traction et module d'Young) plus élevées.

1.6.5 Utilisation des matrices thermodurcissables

Bien que la production des NFRCs commerciaux à base de résines thermodurcissables soit encore limitée, l'intérêt accordé à ces matrices est de plus en plus croissant. Les techniques de mise en œuvre utilisant ces résines sont largement calquées sur celles de l'industrie traditionnelle des composites. Mentionnons par exemple le moulage ouvert (moulage au contact et moulage par projection) et le moulage en moule fermé (injection de résine, moulage sous vide, moulage par compression à chaud ou à froid). Un blocage quant à l'emploi des différentes techniques de mise en œuvre avec ces matrices est le recours à des températures élevées (généralement plus de 150 °C).

Les compounds de moulage sont des demi produits livrés en rouleaux ou feuilles d'épaisseur d'environ 3 mm, composés généralement de résine polyester-fibres de verre, placés entre deux films polyéthylène. Les plus utilisés de ces compounds sont les SMC et les BMC. Les secteurs de l'automobile et de l'électronique sont les plus grands consommateurs de pièces produites par SMC et BMC, notamment les pare-chocs, coffres etc. Une comparaison des composites sisal-thermodurcissable et verre-thermodurcissable obtenus par SMC indique que les fibres de verre offrent des valeurs plus élevées de propriétés, sauf pour la résistance à la traction. Lorsque les valeurs mesurées sont rapportées à la densité, les composites avec les fibres de lin se situeraient au même niveau que ceux renfor-

cés avec les fibres de verre [4]. Les pièces composites à base de fibres naturelles et possédant de bonnes propriétés mécaniques peuvent être aussi élaborées par BMC [42].

1.7 Comportement mécanique des composites renforcés par des fibres végétales

1.7.1 Fluage

Très peu de travaux ont jusqu'ici été menés sur l'étude du comportement au fluage des plastiques renforcés de fibres naturelles. L'effet des agents de couplage sur ces composites (sauf peut être pour les systèmes à matrice élastomère) n'avait jamais été rationnellement étudié. Mentionnons cependant les travaux de Tobias [43] sur les systèmes thermodurcissables renforcés comprenant 30 à 40 % en volume de fibres courtes d'abaca. L'objectif de ces travaux était d'étudier l'influence de la teneur en fibres sur le seuil de fluage de ces composites. Les résultats obtenus montrent que la rupture est provoquée par la contrainte appliquée dans les deux cas de figure. Une augmentation du niveau de contrainte (maintenue constante au même niveau) réduit la durée de vie de ces composites. Par contre, la résistance à la rupture du matériau augmente considérablement avec la teneur en fibres. En effet le taux de dégradation à un niveau de contrainte donné est plus important pour les matériaux à faible teneur en fibres.

Les recherches portant sur l'étude de relaxation des contraintes dans les composites sisal (fibres courtes)/caoutchouc naturel ont permis de mettre en évidence l'influence de l'adhésion fibre-matrice pour les matériaux élaborés sans agent de couplage, car le taux de relaxation des contraintes augmente avec le niveau de déformation. Par contre, pour les composites traités avec un agent de couplage, le taux de relaxation semble être quasi-indépendant du niveau de déformation à cause justement d'une forte adhérence sisal-caoutchouc à l'interface.

Mentionnons également les travaux [4] sur l'influence de l'agent de couplage MAH-PP ainsi que sur les effets de la teneur en fibres sur le comportement au fluage des composites jute/polypropylène pour une durée de chargement d'environ 300 minutes. Au bout de ce temps, toutes les éprouvettes ont pu atteindre ledit état secondaire de fluage permanent, avec un taux de fluage quasi constant. Les résultats relatifs aux composites non traités par l'agent de couplage indiquent que la déformation est d'environ 5% après 300 minutes pour une teneur de 23%, en volume de fibres. Les données d'essai ont ensuite été ajustées à la loi de fluage de Abboh. Une augmentation de 36%, en volume, de la teneur en fibres conduit

à une réduction de moitié de la déformation après 300 mn et à une cinétique de fluage plus faible. Comme c'est le cas pour le comportement au fluage des plastiques renforcés de fibres de verre, une amélioration de l'adhérence fibre-matrice permet de réduire remarquablement la déformation de fluage, en raison d'une meilleure transmission d'effort entre la fibre et la matrice. Comparés aux composites non traités, la déformation sur les fibres externes a été réduite de 20-25% par l'utilisation d'un agent de couplage. Ce dernier est en effet nécessaire pour parvenir à une absorption plus efficace des contraintes à travers les fibres, ce qui est tout autant le cas pour le comportement exhibé par le matériau testé.

1.7.2 Comportement en fatigue

Comme dans le cas du fluage, le comportement en fatigue des plastiques renforcés par des fibres cellulosiques n'a pas beaucoup été étudié jusqu'ici. Les travaux sur cet aspect de même que l'influence des agents de couplage sur les systèmes thermoplastique et thermodurcissable ont été publiés par Gassan et al. [44, 45].

Il apparaît qu'une amélioration de l'adhérence fibre-matrice à l'aide d'agents de couplage comme le MAH greffé de PP conduit, pour le composite jute/PP, à une limite d'endurance suffisamment élevée. La propagation de l'endommagement pour les fibres traitées (jute/PP) est quasi-indépendante de la teneur en fibres, ce qui se traduit notamment par des contraintes maximales indépendantes dues à la qualité améliorée de l'adhésion fibres-matrice par l'agent MAH-PP et une meilleure transmission d'effort matrice-fibres. De même pour les composites à fibres traitées jute/PP, une augmentation de 40% (par rapport au matériau non traité) de la limite d'endurance a pu être atteinte avec une teneur de 40%, en volume, de fibres. Enfin, pour les deux systèmes (traités ou non) l'endommagement ne se produit pas spontanément mais de façon continue avec l'augmentation du niveau de contraintes.

1.7.3 Comportement au choc

Comparés aux plastiques renforcés de fibres de verre, les composites à fibres végétales sont encore très peu étudiés en ce qui concerne leur comportement au choc. Pavittran et al. [46] ont déterminé l'énergie de rupture des composites sisal/polyester, ananas/polyester, noix de coco/polyester et abaca/polyester (50 vol % de fibres) par l'essai de résilience Charpy. Leurs résultats indiquent qu'en dehors du matériau noix de coco/polyester, l'augmentation de l'énergie de rupture s'accompagne de l'augmentation de la ténacité de la fibre. De plus, les com-

posites renforcés par des fibres possédant un grand angle d'hélice se sont montrés plus tenaces que ceux renforcés par des fibres de faible angle d'hélice. C'est pourquoi selon Pavittan et al. les composites à fibres de sisal (angle des fibrilles = 25°) ont présenté les meilleurs résultats au choc. Pavittan et al. ont ensuite étudié la ténacité spécifique du composite sisal/UHMPE (Ultra High Molecular Polyethylene), laquelle serait approximativement inférieure de 25% à celle du matériau verre/UHMPE de même teneur en fibres. En ajoutant les fibres de lin au système précédent, Höck a rapporté une augmentation de l'endommagement (à -40 °C) par rapport au PP non renforcé. Le traitement à l'aide des silanes a permis de réduire cet effet.

Tobias [47] a étudié l'influence de la teneur en fibres et de la longueur des fibres sur le composite abaca/époxyde. Il a rapporté un accroissement de la ténacité du matériau avec l'augmentation du taux de fibres (fibres de 20 mm de longueur). Des fibres plus courtes ont permis d'atteindre une plus grande ténacité, le taux de fibres étant le même que précédemment. D'une manière générale, la ténacité des composites verre/PP augmente avec la longueur des fibres de verre. D'autres investigations sur le comportement au choc du composite jute/PP non traité par l'agent de couplage MAH-PP ont été entreprises. Il en ressort que l'endommagement peut être retardé et initié pour des valeurs d'effort plus grandes lorsque l'adhésion fibre-matrice est forte, étant donné que les composites ayant une faible adhésion rompent sous de très faibles charges appliquées suivant la direction transversale des fibres. Il a été également observé que le facteur de résilience (0,52 J) du composite jute/PP traité avec le MAH-PP est relativement plus faible que celui (0,76 J) du composite non traité, pour une même quantité d'énergie de 1,5 J. En effet, pour les composites sans agent de couplage, une partie de l'énergie du choc est consommée à l'interface fibre-matrice sous forme de déchaussement des fibres et de frottement par exemple. Dans les mêmes conditions, l'essai au choc répété conduit à une diminution d'énergie de rupture (jusqu'au 3^{ème} choc) et pour le matériau traité au MAH-PP, une légère détérioration s'est produite après le 3^{ème} choc. Dit autrement, aucun dommage macroscopique n'a été observé. Pour les composites sans agent de couplage, une telle accumulation de l'endommagement n'est pas manifeste.

1.8 Cas particuliers de composites à base de fibres végétales

1.8.1 Composites hybrides

Il s'agit des plastiques renforcés conjointement par des fibres végétales et des fibres synthétiques (verre ou carbone). En effet, les plastiques renforcés essentiellement de fibres végétales n'atteignent les propriétés physiques des systèmes verre/plastiques que dans certaines conditions particulières. On peut cependant améliorer ces caractéristiques par l'élaboration des composites hybrides. Les propriétés de ces types de composites peuvent être trouvées dans la référence [4]. Ces composites hybrides atteignent les caractéristiques mécaniques quasi-identiques à celles des composites traditionnels. A cause de la résistance à l'eau des fibres de verre, l'hygro-dépendance de ces propriétés devient négligeable. L'absorption d'eau est en fait réduite quand les fibres de verre remplacent une partie des fibres cellulosiques.

1.8.2 Les composites biodégradables

Par souci de préservation de l'environnement, des investigations sont continuellement menées dans le domaine des composites biologiquement dégradables. A cet effet, les matrices polymères le plus souvent utilisées sont le *Biopol*[®], PHB-HV (un copolymère, obtenu par fermentation des micro-organismes), le *Biocéta*[®] (obtenu par estérification des groupements hydroxydes de la cellulose qui devient thermoplastique tout en conservant sa structure), le *MaterBi*[®] ou *Sonacell A*[®] (obtenus par estérification complète ou partielle des groupements hydroxydes de la cellulose). Ces polymères ont été également renforcés par des fibres végétales et des essais conduits notamment par Hanselka et al. [48] montrent que la résistance à la traction et le module d'Young de ces matériaux dépend de leur type particulier de matrice et de l'adhérence fibre-matrice. Le tableau 1.2 donne une idée de l'ordre de grandeur des caractéristiques mesurées. Des travaux disponibles dans la littérature montrent que les composites *Bio* peuvent avantageusement être utilisés comme matériaux de construction, avec cependant quelques limitations sous conditions environnementales sévères. D'une part, on considère la fibre comme étant une structure ligno-cellulosique très complexe, formée d'un grand nombre d'agropolymères divers de par l'origine botanique de la plante source. Ces polymères peuvent se trouver au contact de la matrice et participent à l'interphase fibre-matrice. D'autre part, quelques évolutions techniques ou scientifiques ont fait l'objet de dépôt de brevets [40]. On utilise de *nouvelles* matrices.

Fibres/PolyBio	Résistance (MPa)	Module d'Young (MPa)
Lin/Bioceta	65,7	1400
Lin/Sconacell A	106,9	8180
Lin/Mater Bi	124,3	10 580

TAB. 1.2: Propriétés mécaniques des composites lin/polymères biodégradables à 50% du taux de fibres [4]

Pour les thermoplastiques, il s'agit de matrices biodégradables tels que le PLA ou le PCL (Polycaprolactone) qui permettent d'obtenir des composites. Pour les thermodurcissables, on utilise des matrices issues de ressources renouvelables, par exemple à partir d'huiles végétales époxydées. Le fractionnement des fibres permet d'obtenir des whiskers, il s'agit de mono-cristaux de cellulose (diamètre = 10 nm, rapport de forme de 50 à 200) qui ont permis de développer de nouveaux nanocomposites. Mais, malheureusement ces différentes évolutions sont limitées dans leur développement par le problème crucial du rapport coût-performance qui demeure élevé.

Depuis quelques années, la société ARD [40] (Pomacle, France) travaille au développement d'une nouvelle gamme de polymères obtenus à partir d'huiles végétales époxydées (lin, colza, . . .). Plusieurs applications développées actuellement sont liées à l'utilisation de ces résines alliées à des fibres végétales.

Les polymères mis au point sont en particulier employés pour le collage des pailles de céréales. L'objectif est de réaliser des panneaux de fibres pour des applications en ameublement. La présence d'une couche cireuse à la surface des pailles de céréales constitue un important blocage technique. En effet, elle rend impossible tout collage par les liants en solution aqueuse traditionnels de type aminoplaste. L'utilisation de résines polyuréthanes, techniquement satisfaisante, pose quant à elle des problèmes liés à la santé et est de fait proscrite en Europe pour ce type d'application. Les résines à base d'huiles époxydées présentent une excellente compatibilité avec les surfaces cireuses des pailles de céréales. Elles permettent ainsi de lever ce blocage technique.

Des composites à matrices renforcées par des fibres à hautes propriétés mécaniques (lin, chanvre) ont également été étudiées [40]. Les performances mécaniques obtenues sont tout à fait comparables à celle de composites à matrice polypropylène tout en améliorant de façon significative l'éco-bilan des matériaux mis au point.

Des perspectives intéressantes apparaissent donc pour des applications notamment dans l'industrie automobile ou ferroviaire pour les éléments de revêtement remplissant des fonctions de support, ou même dans l'industrie de fa-

brication d'équipements de laboratoire, etc. La recyclabilité de ces produits reste néanmoins discutable.

1.9 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons entrepris de définir ce que sont les NFRCs, ainsi que de situer le contexte de développement et d'utilisation de ces produits relativement *récents*. La nature des constituants, les interactions existant entre ces derniers, au même titre que l'agencement de leur combinaison, sont autant de paramètres dont il faut tenir compte. Les travaux passés montrent toute la complexité de ces nouveaux matériaux. Cette revue de littérature montre la diversité des NFRCs tant au niveau de leur conception que de leur fabrication ou bien de leur usage. Les composites que nous nous proposons d'étudier, sont des composites mat de fibres/polymère et composites unidirectionnels/polymères. Le choix du traitement de couplage nécessite la définition de la concentration et de la structure chimique des agents de couplage ainsi que la prise en considération de la forme, de la taille et de l'espèce de la fibre végétale et de la matrice. Il est important de tenir compte du taux de fibres végétales, du procédé de fabrication et de l'utilisation finale du produit. Globalement, pour chaque type de composites NFRCs, il existe un traitement de surface capable d'améliorer efficacement ses caractéristiques. Les effets sont variés et ont été exposés dans la section 1.4.

Si l'optimisation des propriétés des composites NFRCs est souhaitée, il est évident qu'il faut profiter au mieux de l'association des constituants et de leurs performances. La qualité de cette association passe par l'interface. C'est pourquoi il nous a semblé judicieux de décrire les mécanismes en jeu dans l'adhésion. Du point de vue mécanique, il est important de rappeler que l'interphase est le lieu privilégié du transfert des contraintes entre la fibre cellulosique (le renfort) et le polymère synthétique, communément appelé la matrice [49].

Au stade actuel de l'utilisation des fibres naturelles dans le domaine des composites, beaucoup reste encore à faire quant à l'obtention de matériaux biodégradables. On a en effet besoin de recherches pour améliorer le lien entre les fibres naturelles et la matrice de polymère qui sert à maintenir les fibres dans les matériaux biocomposites. De même il y a aussi des défis à relever quant à la mise au point des combinaisons de matériaux pour les applications structurales. Il convient néanmoins de se réjouir de ce que les blocages techniques relatifs à l'absorption d'humidité par ces matériaux soient progressivement levés. Des traitements particuliers³ sont appliqués aux fibres pour ce faire. Ceci augure de nou-

³certains de ces traitements restent encore protégés par les industries qui les ont mis au point.

veaux horizons d'explorations, notamment pour la fabrication des pièces devant fonctionner sous environnement sévère. Le chapitre suivant se focalisera plus spécifiquement sur les fibres végétales afin d'en donner une meilleure connaissance.

Chapitre 2

Des plantes aux fibres

2.1 Introduction

Très tôt dans l'Histoire, l'homme a appris à confectionner des vêtements de lin à partir des fibres de la tige du lin. Ces fibres, qui ne sont pas faciles à extraire, donneront finalement la magnifique et somptueuse étoffe de lin. Pour extraire les fibres des tiges, on laissait tremper ces dernières pendant environ deux semaines dans des bassins d'eau stagnante. L'enveloppe ligneuse avait ainsi le temps de se décomposer. Un ouvrage de référence [50] déclare que "cette opération appelée rouissage est la plus singulière et incontestablement la plus désagréable des étapes de transformation du lin". De fait, il n'y avait rien d'agréable à être plongé jusqu'à la taille dans l'eau puante des bassins, à en sortir délicatement les longues tiges en décomposition tout en s'efforçant de ne pas les casser ! Les tiges nauséabondes étaient ensuite étalées sur l'herbe pour sécher au soleil pendant deux semaines. Une fois sèches et cassantes, on les brisait et on les battait pour extraire les fibres. Ce battage s'appelait le teillage.

De nos jours, les fibres naturelles sont cultivées dans des "usines agricoles" pratiquant une monoculture intensive. Les problèmes inévitables (défrichement de nouvelles parcelles de culture, désertification, surpâturage rendant tout régénération des forêts impossible, problèmes sociaux) doivent être pris en compte dans le choix des sites et la planification de la production.

2.2 Méthodes d'extraction des fibres végétales

Il existe six types de fibres végétales : les fibres provenant des poils qui recouvrent certaines graines, les fibres du liber, les fibres rugueuses des dicotylédones, les fibres vasculaires, les fibres dures extraites des feuilles et des tiges des monocotylédones, et les fibres extraites des troncs de certaines graminées. Il existe

d'autres types de fibres végétales mais qui ne présentent qu'une utilité "limitée". C'est le cas des fibres extraites des feuilles de raphia ou extraites d'enveloppes de fruit (noix de coco, palmier). Parmi les fibres provenant de graines, seuls le coton et le kapok ont une valeur commerciale. Le coton, qui se prête à une grande diversité d'applications, notamment dans la fabrication d'étoffes, constitue la fibre la plus utilisée ; le kapok en revanche, qui ne peut pas être filé, convient au capitonnage et au rembourrage. Creux, le kapok est très léger et flotte. Aussi a-t-il été utilisé pour les gilets de sauvetage, même s'il est désormais largement remplacé par d'autres matériaux.

Les nombreuses variétés de fibres du liber sont utilisées aussi bien pour la confection d'étoffes raffinées que pour la fabrication de cordages. Outre le lin, qui est extrait de la tige de la plante portant le même nom, le chanvre, le jute et la ramie sont utilisés pour la fabrication de tissus plus grossiers, de cordes et de ficelles.

Les fibres vasculaires sont presque entièrement réservées à la fabrication de cordages : l'agave (sisal), le tampico, l'abaca ou chanvre de Manille¹. Le manille possède une légèreté, une résistance et une durabilité plus grandes que les autres fibres naturelles. Il est flexible et est difficilement attaqué par l'eau de mer. Sa couleur se situe entre le blanc de l'ivoire et le brun foncé.

Les fibres végétales sont extraites des plantes par différentes méthodes mécaniques, chimiques et biologiques (utilisation des bactéries et enzymes) en fonction du type de fibre considéré. Ces procédés de séparation des fibres généralement utilisés de nos jours sont schématisés dans le diagramme de la figure 2.1. La méthode d'extraction traditionnelle, le rouissage, utilise des bactéries existant dans l'environnement pour dissoudre les extractibles. Certaines bactéries, telles que *Bacillus* et *Clostridium*, utilisées lors du rouissage à l'eau et certains champignons comme *Pusillus* et *Fusarius laterium*, utilisés lors du rouissage à la rosée se sont révélés très efficaces pour attaquer les substances non cellulosiques des plantes et libérer la fibre [51, 52]. Bien que le rouissage atmosphérique fournisse des fibres de qualité, il requiert un temps d'extraction relativement long durant lequel le contrôle de la qualité de la fibre n'est pas aisé.

Une méthode de rouissage très pratiquée utilise des solutions alcalines, des solutions d'acide doux et des enzymes pour accélérer le processus de libération de la fibre. L'alcali le plus utilisé est la soude (ou hydroxyde de sodium) ; mais des acides doux comme l'acide sulfurique et l'acide oxalique en combinaison avec un détergent ont été aussi utilisés pour l'extraction des fibres. Les facteurs déterminant la qualité des fibres chimiquement extraites sont la teneur du composé

¹Le manille ou chanvre de Manille est une fibre produite à partir des feuilles de l'abaca et utilisé en marine.

chimique en usage et la durée du traitement [53]. En ce qui concerne le rouissage enzymatique, une combinaison d'enzymes telles que les pectinases, hémicellulases et cellulases est généralement employée en association avec un pré- ou post- traitement chimique. Plus récemment, des multi-enzymes pouvant effectuer de 10 à 15 activités pour une amélioration de la qualité ont été élaborés.

La séparation mécanique quant à elle utilise des machines à décortiquer, le vapocraquage, l'extraction à l'ammoniaque et le process Tilby. La méthode Tilby, en effet, se révèle efficace notamment dans l'extraction des fibres de canne à sucre, de maïs, et d'autres plantes dont la tige regorge de fibres cellulosiques, car elle offre l'avantage de réaliser une extraction sans désintégration des constituants [54]. Des fibres extraites de la paille de blé et de la canne à sucre par la méthode Tilby et le vapocraquage ont été de meilleure qualité pour être utilisées dans le textile dans les composites.

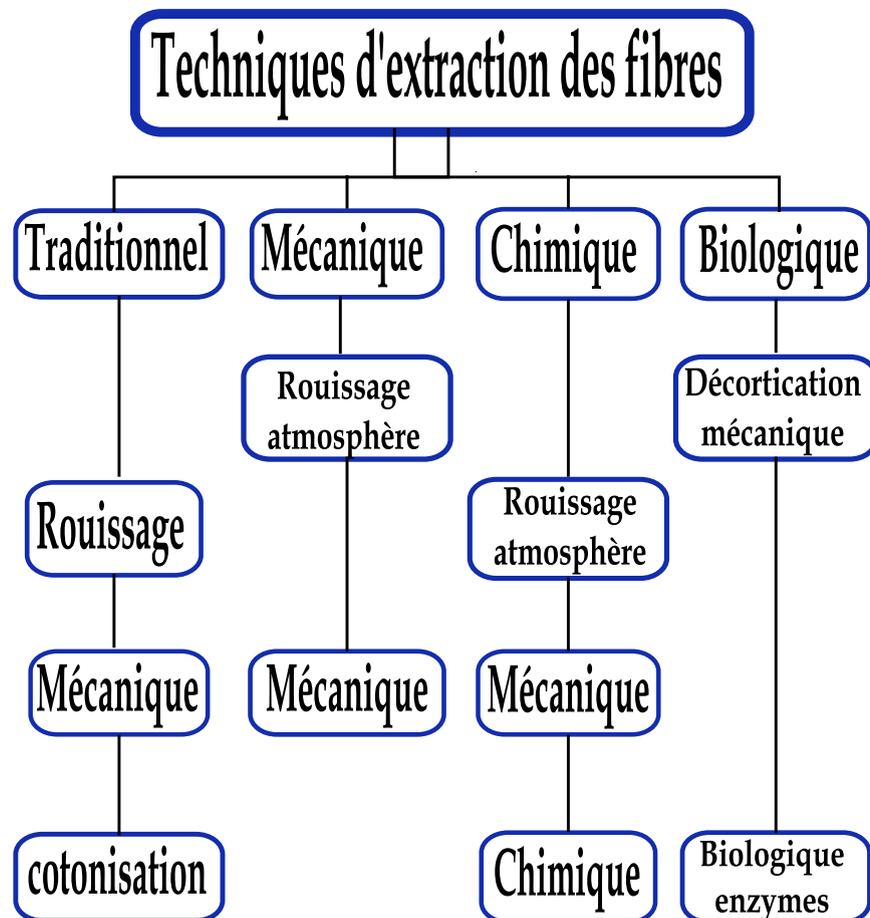


FIG. 2.1: Diagramme des techniques d'extraction des fibres végétales

2.2.1 Séparation des fibres libériennes

Les fibres libériennes sont celles extraites du liber. Le liber (botanique), du latin liber écorce d'arbre, est la région de la racine, de la tige ou de la feuille des plantes vasculaires, formée très généralement par du tissu criblé, que caractérise la présence des tubes criblés (dits encore tubes cribleurs ou vaisseaux grillagés). Son rôle essentiel est d'assurer, par ses tubes criblés, la répartition de la sève élaborée dans les feuilles.

2.2.1.1 Décortication

Pour obtenir des fibres élémentaires à partir de la tige de la plante, la première étape consiste à séparer les faisceaux de fibres libériennes du cœur, généralement ligneux, de la tige. Le cœur ligneux est fragile et casse lorsqu'on plie la tige, tandis que les faisceaux de fibres libériennes eux, sont très flexibles et ne se rompent pas. Les machines utilisées pour la décortication mécanique des fibres libériennes se basent soit sur le principe des moulins broyeurs, soit sur le principe des rouleaux concasseurs rotatifs, profilés. Les machines acceptent les tiges de plantes même emmêlées, ce qui simplifie la technique de récolte par rapport au procédé traditionnel de production des fibres [55].

Afin de déterminer leur "décorticabilité", des tiges de chanvre sèches ont été traitées dans une machine de décortication en laboratoire. Cette machine se compose de quatre paires de rouleaux rotatifs, à profil axial, placés les uns derrière les autres et entraînés par un moteur électrique. Cette machine permet de reproduire en laboratoire un processus de décortication industriel, correspondant au niveau actuel de la technique. Dans le cadre de la décortication en laboratoire, les tiges ne sont pas complètement décortiquées après un seul passage. Le liber partiellement décortiqué a donc été reconduit plusieurs fois dans la machine jusqu'à ce qu'il soit absolument exempt de chénevottes, ce qui a requis cinq passages dans la machine. L'opération effectuée par étapes a permis d'interpréter de manière détaillée le processus de décortication des tiges de chanvre à différents stades de développement. Les plantes plus anciennes seraient plus faciles à décortiquer. Si l'on se base sur la "décorticabilité", la date de récolte optimale se situe au début de la période de maturité des semences.

2.2.1.2 Dégommage

Avec la décortication mécanique et le cardage successif, les faisceaux de fibres ne peuvent pas être séparés jusqu'aux cellules des fibres élémentaires. Pour parvenir à ce stade, il est indispensable d'éliminer les substances gommeuses qui

entourent les fibres (dégommage). Différents procédés biologiques et chimico-physiques ont été étudiés pour obtenir un dégommage contrôlé. Le procédé par explosion de vapeur (vapocraquage) et le procédé de séparation biologique sont les plus développés. En ce qui concerne le vapocraquage, le liber est placé dans un autoclave avec vapeur alcaline de 8-12 bars pendant un maximum de 30 min. Lorsque la pression est réduite, les fibres sont accélérées et séparées. Ce procédé permet d'affiner les fibres. Il est suffisamment développé pour permettre une application industrielle. Dans le cadre de la séparation biologique, les microorganismes présents naturellement sur le liber sont placés dans un fermenteur dans des conditions précisément définies. Les substances gommeuses du liber se dissolvent sous l'action des enzymes libérés par ces microorganismes [56, 57], ce qui permet la séparation ultérieure des fibres élémentaires. Pour l'heure, ce procédé est développé en laboratoire.

2.2.1.3 Composition chimique du liber

La composition chimique du liber n'influence pas uniquement la "décorticabilité" de la tige, mais aussi l'aptitude des fibres au dégommage. Pour que les fibres soient faciles à décortiquer, la teneur en cellulose doit être élevée, ce qui veut dire que la plante doit présenter beaucoup de fibres susceptibles de résister aux sollicitations mécaniques. Cette propriété peut être atteinte en fixant la date de récolte le plus tard possible.

Pour la production de fibres décortiquées mécaniquement sans dégommage ultérieur, comme c'est le cas pour les isolants ou les pièces moulées utilisées dans l'industrie automobile, il est recommandé de fixer la récolte au stade de pleine floraison femelle. Les plantes présentent alors un taux de "décorticabilité" élevé grâce à la forte teneur du liber en cellulose. De plus, c'est à ce stade de développement également qu'a été obtenu le rendement maximum.

2.2.2 Rouissage et séparation des fibres

Le United State Department of Agriculture (USDA) et le Center for American Flax Fiber (CAFF), à la Clemson University, ont mis au point un procédé à la fois mécanique, chimique et enzymatique pour la séparation des fibres de lin. Ces fibres sont prétraitées à l'aide de petits rouleaux rainurés afin de briser la tige mécaniquement et de permettre aux enzymes d'être absorbées plus rapidement par les fibres. Ensuite, avant de pulvériser une enzyme commerciale (fournie par Novozymes²) sur les tiges, on les immerge dans l'eau pendant deux minutes. On

²www.novozymes.com.

utilise des chélateurs (par exemple de l'EDTA (EDTA ou ethylenediaminetetraacetic acid) ou de l'acide oxalique) pour réduire la quantité d'enzymes employée. Les chélateurs éliminent le calcium qui relie et stabilise les pectines, ce qui favorise l'accès de l'enzyme à l'intérieur de la tige. On a constaté que des variations dans les formules d'enzymes modifient les propriétés de la fibre (par exemple sa couleur, sa résistance et sa finesse), ce qui ouvre la voie à diverses possibilités d'adaptation des fibres aux caractéristiques recherchées. Les chercheurs sont d'avis que le rouissage aux enzymes pourrait être fait dans des installations fermées, ce qui permettrait de rouir à l'année, d'éliminer les problèmes de rouissage causés par un temps sec et de réduire la quantité de poussière et de débris accumulés sur les tiges laissées au champ. Le processus de rouissage aux enzymes réduit le temps de rouissage de plusieurs semaines (pour le rouissage au champ) à 24 heures seulement. Les chercheurs espèrent éventuellement arriver à un processus de rouissage aux enzymes ne durant que de six à huit heures, limitant ainsi le temps de rétention de la fibre dans les installations à un ou deux jours une fois le processus optimisé.

2.3 Microstructure à parois lamellaires des fibres naturelles pures

Les fibres végétales sont constituées de cellules individuelles ou cellules de base. Le coton et le kapok par exemple ont chacun une unique cellule de base suffisamment longue pour être considéré comme fibre unicellulaire. Du reste dans la plupart des cas, toutes les autres fibres naturelles sont multicellulaires formées en fait d'un faisceau de fibres individuelles ou de base liées entre elles par un polymère naturel, la lignine ou la pectine [50, 58]. Dans ce texte, le vocable *fibre* se référera plus souvent à un tel faisceau de résistance appropriée, de longueur et de finesse acceptables pour différentes applications industrielles. Les cellules de base sont si petites que leur utilisation textile par exemple est rendue difficile. Elles peuvent cependant être utilisées dans le papier et autres domaines apparentés. Les cellules sont constituées de microfibrilles cristallines à base de cellulose et reliées sur une couche entière par de la lignine amorphe et des hémicelluloses. Plusieurs de ces couches cellulose-lignine (ou hémicelluloses) sont empilées en formant ainsi des parois cellulaires multicouches.

2.3.1 Composition chimique des fibres

La composition chimique des fibres végétales dépend en grande partie des besoins particuliers de la plante dont elles sont extraites. Cependant, cellulose, hémicellulose en sont les principaux constituants, et leur teneur dépend de l'âge, l'origine et des conditions d'extraction des fibres [50]. La *cellulose* est le constituant chimique qui dans la structure moléculaire contribue le plus à la résistance et à la stabilité de la paroi végétale et donc des fibres [59]. La teneur en cellulose de la fibre influence largement les propriétés mécaniques, l'aspect économique et la production de la fibre. Des fibres ayant une forte teneur en cellulose seraient préférables pour une utilisation dans le textile, le papier, les composites et autres domaines d'activité ; tandis que celles ayant une forte teneur en hémicellulose seraient appropriées pour la production de l'éthanol et d'autres produits de fermentation car l'hémicellulose est facile à hydrolyser dans des sucres fermentables. Ainsi, la valeur d'une fibre végétale et ses applications potentielles dépendent dans une large mesure de sa teneur en cellulose. Disons cependant que la *valeur* d'une plante dépend surtout de la qualité de ses fibres et de leur utilisation finale et non de la teneur en cellulose en soi.

L'*hémicellulose* est ramifiée, et formée de multiples polysaccharides, des polymères avec un degré de polymérisation et un degré d'orientation inférieurs à ceux de la cellulose. L'hémicellulose n'influencerait que peu ou pas la rigidité et la résistance des cellules individuelles.

La *lignine* est une macromolécule complexe fortement réticulée avec une structure amorphe et se comporte comme une matrice pour les fibrilles de la paroi cellulaire. La lignine est d'abord déposée entre les cellules voisines de la lamelle moyenne, les lie en tissus puis se diffuse dans la paroi entière en traversant l'hémicellulose et liant les microfibrilles de cellulose [60].

C'est la lignine qui confère aux plantes et aux fibres leur résistance à la compression, leur rigidité pariétale et protège ainsi les carbohydrates contre les dommages physiques et chimiques [61]. La teneur en lignine des fibres influe sur leurs propriétés, morphologie, flexibilité et taux d'hydrolyse [62]. Autrement dit, les fibres ayant une forte teneur en lignine seront plus fines et plus flexibles ; de même celles ayant une faible teneur en cellulose auront une plus grande quantité de lignine. La lignine peut varier de soluble dans l'eau (lignosulfonate) à insoluble (lignine kraft) et même dans des solvants organiques généraux tels que l'acétone.

Les extractifs ne font pas partie intégrante de la paroi cellulaire. Ils sont facilement éliminés par des solvants naturels. Ils comprennent plusieurs substances chimiques différentes comme certaines graisses, composés aromatiques, huiles

volatiles, alcools à haut poids moléculaire et acides gras. Les extractifs ne contribuent pas aux propriétés mécaniques des fibres, bien qu'ils s'ajoutent au poids de la matière végétale à l'état brut. Les extractifs pigmentent les fibres parfaites et leur donnent un parfum ; ils sont toxiques et augmentent la résistance des fibres parfaites à la pourriture et contre-attaquent les insectes.

Le terme d'"extractifs" couvre un large éventail de composés différents qui peuvent être extraits des plantes par divers procédés utilisant des solvants polaires ou non polaires. Un exemple de ces composés est la pectine, un nom commun à tous les hétéropolysaccharides dont le constituant principal est l'acide polygalacturose. La pectine devient soluble dans l'eau après neutralisation à l'alcali ou à l'hydroxyde d'ammonium [63].

2.3.2 Structure de la fibre

Les dimensions et l'arrangement des cellules individuelles ou de base déterminent l'ultrastructure et les propriétés mécaniques des fibres. Les dimensions des cellules de base varient d'une fibre à l'autre, cependant pour la même fibre, elles dépendent du degré de maturité de la partie de la plante dont la fibre est extraite et des conditions d'extraction [51, 52].

De façon générale, toutes les cellules individuelles des fibres végétales ont un vide central sur leur section droite appelé lumen. La forme (circulaire, polygonale ou elliptique) du lumen dépend de l'origine de la fibre et de l'épaisseur de la paroi [62]. La présence du lumen justifie en grande partie la faible densité de la fibre et est favorable à l'isolation acoustique et thermique. Ces derniers traits font des fibres végétales de meilleures candidates dans les applications composites où un poids mini est requis et dans l'isolation thermique pour l'automobile.

A l'aide d'un microscope polarisé, optique ou électronique, on peut détecter aisément les différentes couches qui forment la paroi cellulaire (voir figures 2.3 et 2.4). La couche intercellulaire, extérieure à la paroi cellulaire proprement dite, soude les cellules entre elles. Puis, en allant de l'extérieur de la paroi cellulaire vers le lumen, on trouve la paroi primaire (P) et la paroi secondaire (S). Parfois, dans la littérature, l'ensemble des couches intercellulaire et primaire est appelé lamelle moyenne.

Les parois cellulaires d'une même cellule diffèrent de l'une à l'autre par leurs compositions (rapport entre la teneur en cellulose et la lignine ou hémicellulose), leur épaisseur et par l'orientation des microfibrilles (données par leur angle d'hélice). Les valeurs de ces paramètres structuraux varient selon les fibres, il en ira donc de même pour les traitements physicochimiques (mercerisage et acétylation par exemple) appliqués pour préparer les fibres au renforcement.

2.3.2.1 La couche intercellulaire

La couche intercellulaire apparaît après la division de la cellule mère. Son épaisseur varie entre $0,5 \mu\text{m}$ et $1,5 \mu\text{m}$. Le microscope optique montre, en particulier si la lignine est teinte, l'existence d'une importante quantité de lignine dans cette couche. Cette couche réunit les cellules les unes aux autres. Pour séparer les cellules (pour l'étude anatomique ou la fabrication de la pâte à papier), on utilise des techniques de macération ou d'attaque chimique. Cette paroi est détruite et les cellules se séparent.

2.3.2.2 Paroi primaire

La paroi primaire est très mince ; elle a environ $0,1 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Comme la couche intercellulaire, elle contient une grande quantité de lignine, mais très peu de cellulose. Il est souvent difficile de distinguer la paroi primaire de la couche intercellulaire.

2.3.2.3 Paroi secondaire

L'analyse au microscope polarisant révèle que la paroi secondaire est composée de trois couches (S_1 , S_2 et S_3). La paroi S_2 constitue la partie la plus épaisse de la paroi cellulaire dans le bois d'été. Elle n'est cependant pas aussi importante dans le bois de printemps qui possède une paroi cellulaire plus mince que dans le bois d'été. Il faut noter que très peu de différences existent entre la couche S_1 et la couche S_3 . L'ultrastructure de la paroi cellulaire est composée de microfibrilles de cellulose, de lignine et d'hémicelluloses qui ne sont pas directement observables par microscopie optique, car ces structures sont submicroniques. Elles sont donc détectées en utilisant la microscopie électronique à balayage (SEM), à transmission (TEM) ou à force atomique (AFM), ainsi que par diffraction des rayons X (DRX). Plusieurs modèles ont été proposés pour les parois secondaires des cellules des résineux. Dans tous les modèles proposés, les microfibrilles sont considérées comme ayant une forme de spirale en Z dans les parois S_1 , S_2 et S_3 . Les microfibrilles de cellulose ont une direction privilégiée dans les couches S_1 , S_2 et S_3 . Elles forment des hélices parallèles entre elles. L'angle de la tangente de l'hélice avec l'axe de la fibre est appelé angle des microfibrilles (MFA, X_2 dans ce texte) dans la couche (figure 2.2). Seul l'angle des microfibrilles dans la couche S_2 varie sensiblement en fonction de la nature de la fibre et particulièrement des conditions de croissance. Dans les autres couches, l'angle des microfibrilles est généralement considéré constant, mais variable en fonction du type de fibre.

Selon Côté et al. [64], les trois couches de la paroi secondaire sont organisées

à la manière d'un contreplaqué (figure 2.3). Le faible angle microfibrillaire de la paroi S_2 compris entre 10° et 30° , contraste avec celui de la paroi S_1 (compris entre -80° et 80° selon qu'il s'agit de bois de printemps ou d'été) et celui de la paroi S_3 compris entre -70° et 70° (voir figures 2.3 et 2.4). Ces couches sont elles-mêmes composées de plusieurs lamelles associées par un type de lignine particulier.

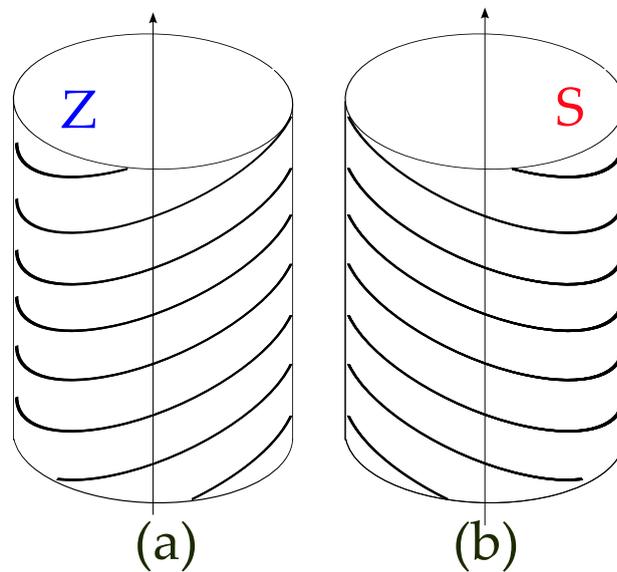


FIG. 2.2: Schéma représentant l'angle des microfibrilles α par rapport à l'axe de la cellule : (a) spirale en Z, (b) spirale en S.

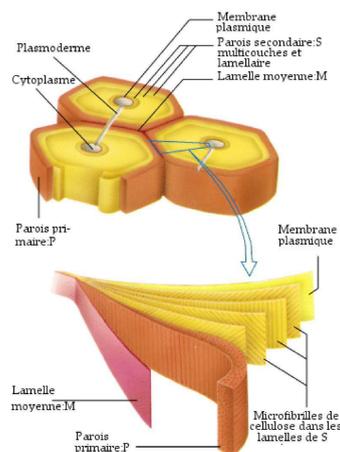


FIG. 2.3: Représentation schématique de la paroi végétale et ses couches [1].

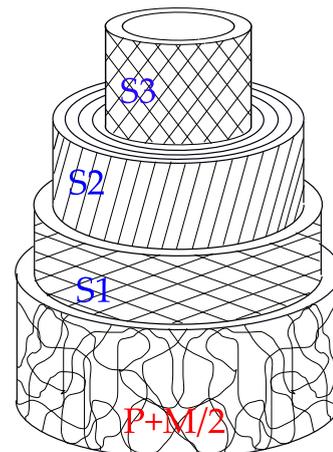


FIG. 2.4: Représentation schématique des différentes sous-couches constituant la paroi végétale.

2.4 Propriétés des constituants chimiques des fibres

Dans cette section, nous allons expliquer succinctement la structure et l'arrangement moléculaire des composants polymériques des fibres végétales. Une description plus détaillée sur la structure moléculaire de ces composants peut être trouvée dans la littérature spécialisée [65, 66]. Le tableau 2.1 donne le pourcentage volumique de chaque composant chimique, leur nature polymérique, leur degré de polymérisation (DP) et leur fonction, pour quelques fibres choisies. Il faut noter que le pourcentage massique des constituants chimiques des fibres sont différents dans chaque couche de la paroi cellulaire.

	Coton	Jute	Lin	Ramie	Sisal	Nature polymérique	Fonction dans la paroi
Cellulose	82,7	64,4	64,1	68,6	65,8	Molécule linéaire	Fibre
Hémicellulose	5,7	12,0	16,7	13,1	12,0	Molécule ramifiée	Matrice
Pectine	5,7	0,2	1,8	1,9	0,8	Molécule polymérique	Protection
Lignine	-	11,8	2,0	0,6	9,9	Réticulé 3D, amorphe	Matrice
Extractifs	1,0	1,1	3,9	5,5	1,2	Molécule polymérique	Protection
Wax	0,6	0,5	1,5	0,3	0,3	-	Protection
Eau	10,0	10,0	10,0	10,0	10,0	-	Protection

TAB. 2.1: Composants chimiques (et leur teneur) de certaines fibres végétales, natures et fonctions [10]

Ainsi que nous l'avons préalablement mentionné, divers travaux de recherche ont été entrepris pour la détermination des propriétés mécaniques de ces constituants. Les données présentées dans ce paragraphe sont tirées des références littéraires qui leur sont consacrées. Certaines propriétés mentionnées ici sont mesurées, d'autres sont calculées à partir de modèles moléculaires et d'autres encore constituent des estimations faites sur la base des matériaux ayant un comportement analogue.

2.4.1 Cellulose

C'est en 1838 qu'Anselme Payen a suggéré que les parois de nombreuses cellules végétales étaient constituées de la même substance à laquelle il donna le nom de cellulose. C'est un composant indispensable pour toutes les fibres végétales. La cellulose est la matière la plus répandue dans la nature. Elle est présente dans les plantes, les algues, les bactéries et chez certains animaux. La structure de la cellulose suscite encore beaucoup de questions. Si tout le monde semble accepter sa structure moléculaire, des questions subsistent quant à son arrangement moléculaire au sein des microfibrilles.

La cellulose est présente à raison de 50% à 85% dans les fibres végétales couramment utilisées comme renforts dans les composites. C'est un homopolysaccharide linéaire constitué d'unités β -D-glucopyranose reliées entre elles par des liaisons glycosidiques β -(1 \rightarrow 4). La conformation chaise (équatoriale) du cycle hexagonal de l'unité β -D-glucopyranose est favorisée énergétiquement. L' α -D-glucopyranose polymérise en une molécule hélicoïdale (amidon), alors que le β -D-glucopyranose polymérise en une molécule linéaire (cellulose). Le poids moléculaire de la cellulose est élevé. Par exemple le coton a un degré de polymérisation (DP) d'environ 10 000 et celui du bois est inférieur à 5000.

On admet généralement que la cellulose résulte d'une condensation linéaire d'unités monomères D-anhydroglucopyranose (en abrégé anhydroglucose ou même glucose par commodité) agencées par des liaisons β -1,4-glucosidique. C'est donc un 1,4- β -D-glucan. Les anneaux de pyranose sont dans la conformation 4C_1 , ce qui signifie que les groupements $-\text{CH}_2\text{OH}$ et $-\text{OH}$ ainsi que les liaisons glycosidiques sont équatoriales par rapport au plan moyen des anneaux [16].

La formule moléculaire de la cellulose est responsable de sa structure supramoléculaire, et elle détermine en retour plusieurs de ses propriétés chimiques et physiques. Pour la molécule pleinement développée, les unités monomères adjacentes sont orientées par leur plan moyen à un angle de 180° l'une par rapport à l'autre. Ainsi, l'unité répétée de la molécule est l'anhydrocellulobiose et le nombre de répétitions est la moitié du degré de polymérisation (DP). Ce nombre est de 14000 dans la cellulose naturelle (de type I non synthétisée). Cependant, les procédés de raffinage le réduisent souvent à environ 2500 [16]. Le degré de polymérisation indique que la longueur de la chaîne polymère varie en fonction du type de fibres végétales.

Les propriétés mécaniques d'une fibre naturelle dépendent de son type de cellulose car, chaque type a sa propre géométrie cellulaire, et ce sont ces conditions géométriques qui déterminent les propriétés mécaniques. Fink et al. [67] ont reproduit des mesures effectuées par différents auteurs, et les méthodes d'essai em-

ployées dans le but de comparer les modules d'Young des celluloses types I et II. La plupart de ces auteurs ont obtenu des valeurs caractéristiques plus élevées pour le type I que pour le type II.

La cellulose solide forme une structure microcristalline avec les zones de degré supérieur, c'est-à-dire des régions cristallines, et des zones de degré inférieur, c'est-à-dire des zones amorphes. La résistance à la traction des microfibrilles de cellulose est très élevée, étant donné qu'elle est le matériau le plus résistant et connu dont la résistance est estimée à 7,5 GPa [68].

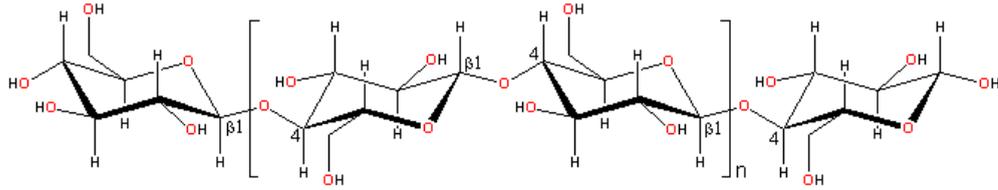


FIG. 2.5: Ponts hydrogènes intramolécules entre deux macromolécules adjacentes de cellulose

La cellulose naturelle de type I est fortement cristalline, ce qui signifie que sa rigidité est indépendante du taux d'humidité. Certains travaux indiquent que cette cellulose a un comportement orthotrope, mais nous supposons, dans le cadre de ce projet, qu'il s'agit d'un matériau isotrope transverse, reprenant ainsi les hypothèses de Salmén [5]. Un tel matériau est un cas particulier d'orthotropie, invariant par rotation d'angle quelconque autour d'un axe du repère d'orthotropie. Le matériau est évidemment quasi isotrope, dans le plan perpendiculaire à cet axe, et sa matrice des rigidités a la structure donnée par la relation (2.1) (le plan 2-3 étant isotrope).

$$\mathbb{C}^{cell} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{22} & C_{23} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{23} & C_{22} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{C_{22}-C_{23}}{2} = C_{66} \end{pmatrix} \quad (2.1)$$

Différentes valeurs des rigidités C_{ij} de la cellulose sont rapportées dans la littérature. Notons par exemple les travaux de Cousins et de Salmén [7, 5] d'où sont extraites les données du tableau 2.2 qui seront utilisées dans cette étude.

2.4.2 L'hémicellulose

L'hémicellulose n'est pas du tout une autre forme de cellulose comme l'indiquerait son nom. Il comprend un groupe de polysaccharides (pectine exclue)

Propriété	Valeur		
	plage	à 12% d'humidité 20 °C	à 20% d'humidité 20 °C
E_{11} (GPa)	134,0-170	134	134
E_{22} (GPa)	15,0-27,2	27,2	27,2
G_{12} (GPa)	3,0-6,0	4,4	4,4
ν_{21}	0,01-0,02	0,02	0,02
ν_{32}	0, 50	0,50	0,50

TAB. 2.2: Rigidités de la cellulose naturelle ([5, 6])

qui reste intimement liés (constitue une sorte de matrice au sens d'un matériau composite) aux microfibrilles de la cellulose même après extraction de la lignine. L'hémicellulose est différente de la cellulose sous trois aspects importants. Premièrement, elle contient différentes unités de glucose (sucre) tandis que la cellulose contient seulement le glucose 1,4- β -D-glucopyranose. Deuxièmement, elle exhibe un degré de ramification important tandis que la molécule de la cellulose est strictement linéaire. Et troisièmement, le degré de polymérisation de la cellulose naturelle est de 10 à 100 fois plus grand que celui de l'hémicellulose. L'hémicellulose est plus vulnérable à l'absorption d'humidité car elle contient de nombreux sites pouvant établir des liaisons chimiques avec des molécules d'eau.

Contrairement à la cellulose, les constituants de l'hémicellulose varient d'une plante à une autre. Les sucres constitutifs des hémicelluloses peuvent être divisés en 4 groupes : les pentoses, les hexoses, les acides hexuroniques et les désoxyhexoses. La chaîne principale des hémicelluloses peut être constituée d'un seul type d'unités (homopolymère, ex. les xylanes) ou de plusieurs unités différentes (hétéropolymères, ex. les glucomannanes).

On admet généralement que les molécules de l'hémicellulose ont tendance à s'aligner à celles de la cellulose. Cousins [7] a par conséquent suggéré que la rigidité 3D de l'hémicellulose soit également décrite par 5 constantes élastiques comme pour un matériau à isotropie transverse. Il faut néanmoins garder présent à l'esprit que l'hémicellulose est très sensible aux variations d'hygrométrie, ce qui fait que sa rigidité est souvent donnée dans la littérature comme fonction du taux d'humidité ambiant suivant le modèle donné par l'équation (2.2). Le tableau 2.3 contient les valeurs des rigidités proposées pour ce constituant, et qui seront utilisées dans la partie modélisation numérique de ce travail, au chapitre 6.

$$\mathbb{C}^{Hemic}(w) = \begin{pmatrix} 8 & 2 & 2 & 0 & 0 & 0 \\ 2 & 4 & 2 & 0 & 0 & 0 \\ 2 & 2 & 4 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} c_H(w) \text{ GPa} \quad (2.2)$$

avec :

- ◇ $c_H(w)$ fonction de l'hygrométrie pouvant être obtenue par ajustement aux données expérimentales.

Propriété	Valeur		
	plage	à 12% d'humidité 20 °C	à 20% d'humidité 20 °C
E_{11} (GPa)	2,0 - 8,0	2	0,02
E_{22} (GPa)	0,8 - 4,0	0,8	0,008
G_{12} (GPa)	1,0 - 2,0	1	0,01
ν_{21}	0,08-0,1	0,08	0,08
ν_{32}	0,40		

TAB. 2.3: Rigidités de l'hémicellulose ([5, 7])

2.4.3 La lignine

Après la cellulose, la lignine est la substance organique la plus abondante dans les plantes. La présence de la lignine dans la paroi cellulaire rend les fibres végétales mécaniquement très résistantes et a permis à certains arbres d'atteindre une hauteur de plus de cent mètres. La quantité de lignine présente dans les différentes espèces de plantes est très variable. Les feuillus en contiennent 18 à 25%, alors que les résineux en contiennent plus, soit 25 à 35%.

Les lignines sont des polymères hydrocarbonés complexes avec des constituants aromatiques et aliphatiques. Leurs principales unités monomères sont en fait des anneaux substitués phénylpropane liés de diverses façons qui restent encore incompréhensibles aujourd'hui. Certains détails de leur structure varient en fonction des auteurs [16]. Des trois principaux constituants des plantes, la lignine est celui qui a le moins d'affinité avec l'eau. Un autre trait caractéristique de la lignine est qu'elle est thermoplastique (i.e qu'elle se ramollit au voisinage de 90 °C, et coule au voisinage de 170 °C). Les propriétés mécaniques des lignines sont inférieures à celles de la cellulose.

Depuis le modèle d'organisation macromoléculaire des trachéides du bois de Goring [69], validé à l'échelle ultrastructurale, la fonction de la lignine dans l'assemblage des microfibrilles de cellulose n'a que peu progressé. Les travaux récents de Ruel et al. [70] sur des fibres industrielles ayant subi des traitements variés de mise en pâte (chimiques, mécaniques ou enzymatiques), ou de raffinage indiquent :

- ◇ que la paroi secondaire mature est le résultat de l'assemblage de lamelles (d'environ 100-200 nm d'épaisseur) de microfibrilles de cellulose enrobées dans une matrice formée de polysaccharides (hémicellulose) et de lignines. A maturité, cette structure de base est masquée,
- ◇ que les lamelles s'associent entre elles sous l'effet de la synthèse d'un type non-condensé de lignine. Ce résultat est important en ce qui concerne l'assemblage des parois mais aussi parce qu'il montre que le mode de polymérisation radicalaire des lignines dans l'environnement polysaccharidique neutre des microfibrilles cellulosiques influence la nature des liaisons internes dans la molécule de lignine et par là, sa conformation finale. Les auteurs ont donc suggéré qu'il existe une complémentarité conformationnelle entre ce type non-condensé de lignine et son aptitude à assurer la jonction interlamellaire.

On considère généralement que la molécule de la lignine présente un comportement isotrope qui est tout comme l'hémicellulose, dépendant de l'hygrométrie. Ce résultat sur l'isotropie de la lignine n'est pas confirmé par Salmén [5] qui rapporte une valeur de E_{11} (2 GPa) différente de celle de E_{22} (1 GPa) à 12% ou 20% d'humidité et à 20 °C. L'équation (2.3) décrit la rigidité de ce constituant en fonction du taux d'humidité. Le tableau 2.4 reprend les valeurs qui seront employées ici, pour un comportement supposé isotrope de la lignine, notamment pour l'étude numérique au chapitre 6.

$$\mathbb{C}^{Lign}(w) = \begin{pmatrix} 4 & 2 & 2 & 0 & 0 & 0 \\ 2 & 4 & 2 & 0 & 0 & 0 \\ 2 & 2 & 4 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} c_L(w) \text{ GPa} \quad (2.3)$$

2.5 Propriétés mécaniques des fibres

Les fibres naturelles sont d'une manière générale de bons renforts pour les plastiques (thermoplastiques ou thermodurcissables) à cause de leur résistance

Coefficient, unité	Valeur
E (GPa)	2,0 - 3,5
ν	0,33

TAB. 2.4: Rigidités de la lignine à 60% d'hygrométrie ([7])

relativement grande et leur faible densité (tableau 2.5) [4]. Certaines caractéristiques des fibres de lin et des fibres de bois kraft atteignent des valeurs très proches de celles des fibres de verre "E" (référence faite à leur application première dans l'électronique). Néanmoins, il est observable (tableau 2.5) que l'intervalle de variation des caractéristiques est l'un des inconvénients actuels des fibres naturelles, lesquelles sont tributaires des conditions environnementales au cours de leur croissance. Les fibres naturelles peuvent être traitées par diverses méthodes pour obtenir des éléments de renforts aux caractéristiques améliorées. Leurs constituants ainsi que leurs modules d'élasticité sont présentés dans la référence [4].

Le module d'Young des fibres de bois à l'état massif est de l'ordre de 10 GPa par exemple. Les fibres cellulosiques ayant un module d'Young de 40 GPa peuvent être extraites du bois à partir des procédés chimiques de mise en pâte. Elles peuvent ensuite être transformées par hydrolyse suivie d'une désintégration mécanique en microfibrilles de module 70 GPa. Théoriquement, le module d'Young de la cellulose est de 134 GPa [5], mais il n'existe pas encore de technologie permettant de séparer celle-ci des microfibrilles. Les fibres les plus utilisées (dans la papeterie) sont celles ayant un module de l'ordre de 40 GPa.

En outre, les propriétés des fibres et leur structure (tableau 2.6) dépendent de plusieurs facteurs tels que le milieu de leur croissance, le climat et l'âge des plantes. Le lavage mécanique de la fibre est un autre facteur important qui détermine la structure et les caractéristiques de celles-ci.

Comme dans le cas des fibres de verre, la résistance à la traction des fibres naturelles dépend de leur longueur, facteur important quant à l'efficacité du renforcement. Les données relatives à la traction notamment en service doivent encore faire l'objet d'études pour la plupart des fibres. La dépendance à la longueur de la résistance à la traction pourrait être expliquée par les grands écarts entre les diverses fibres. Koher et al. [79], Mieck et al. [79], Mukherjee et al. [8] ont étudié cet aspect sur diverses fibres de lin, et d'ananas. Leurs résultats montrent que la résistance à la traction des fibres de lin est fortement dépendante de la longueur des fibres comparées aux fibres de verre. Par contre, la résistance à la traction des fibres d'ananas est moins dépendante de leur longueur. Cependant, la dispersion observée sur les données obtenues pour ces deux types de fibres se situe dans

Fibre	Caractéristiques				Références
	Masse volumique (g/cm ³)	Allongement (%)	Résistance (MPa)	Module de Young (GPa)	
Coton	1,5-1,6	7,0-8,0	287 – 597	5,5 – 12,6	[71, 72, 73]
Jute	1,3	1,5-1,8	393-773	26,5	[71, 74, 72, 75]
Lin	1,5	2,7-3,2	345-1035	50-70	[74]
Chanvre	-	1,6	690	-	[17]
Ramie	-	3,6-3,8	400-938	61,4-128	[72, 73]
Sisal	1,5	2,0-2,5	511-635	9,4-22,0	[71, 72, 76]
Coco	1,2	30,0	175	4,0-6,0	[71, 76]
Viscose (corde)	-	11,4	593	11,0	[73]
Bois kraft	1,5	-	1000	40,0	[77]
Verre-E	2,5	2,5	2000-3500	70,0	[78]
Verre-S	2,5	2,8	4570	86,0	[71, 78]
Aramide (normal)	1,4	3,3-3,7	3000-3150	63,0-67,0	[78]
Carbone (standard)	1,4	1,4-1,8	4000	230,0-240,0	[78]

TAB. 2.5: Propriétés mécaniques des fibres naturelles comparées aux renforts de synthèse traditionnels

un intervalle dont la largeur est de l'ordre de l'écart-type. Cette dépendance résistance/longueur pourrait être regardée comme le degré d'homogénéité ou la quantité d'impuretés des fibres ou du matériau en général. La résistance à la traction est en outre dépendante du raffinage de la fibre. Une diminution de la finesse de la fibre entraîne une plus grande résistance de celle-ci.

La nature hydrophilique est un autre problème majeur des fibres cellulosiques quand elles sont utilisées comme renforts dans les plastiques. La teneur en humidité de la fibre dépend de la teneur en constituants non cristallins, de la porosité, et peut atteindre 10% (du poids total) dans les conditions standards. Le caractère hydrophilique influence du reste l'ensemble des propriétés mécaniques ainsi que d'autres propriétés physiques de la fibre prise isolément. D'une manière générale, la direction des microfibrilles et la teneur en cellulose déterminent les propriétés mécaniques des fibres cellulosiques. Hearle et al. [80] ont développé des modèles basés essentiellement sur ces deux paramètres structuraux (tableau 2.6) pour calculer le module d'Young des fibres.

Fibre	Indice de cristallinité(CrI) cellulose	Angle d'hélice (°)	Aire(A) section droite (mm ²)	Longueur (L)de la cellule (mm)	Ratio d'aspect L/D D :Diamètre de la cellule
Jute		8,0	0,12	2,3	110
Lin		10,0	0,12	20,0	1687
Chanvre		6,2	0,06	23,0	960
Ramie		7,5	0,03	154,0	3500
Sisal	56,6-66,2	20,0	1,10	2,2	100
Coco		45,0	1,20	3,3	35

TAB. 2.6: Paramètres structuraux de certaines fibres naturelles [8]

2.5.1 Proportion des fibrilles cristallines et leur orientation

Depuis les travaux de Hearle [81], différents auteurs se sont efforcés de calculer les caractéristiques mécaniques des fibres naturelles à partir de leurs paramètres structuraux. C'est notamment le cas avec les travaux de Gordon et Jérónimidis [82], Jérónimidis [83] et McLaughlin et Trait [84]. Toutes ces théories tiennent essentiellement compte de la teneur en cellulose et de l'orientation des fibrilles. En prenant en compte divers mécanismes généraux de déformation, on déduit trois équations de déformation permettant de calculer la rigidité longitudinale de la fibre.

2.5.1.1 Equation basée sur une déformation isochore

Cette équation décrit bien le comportement des fibrilles de faible angle d'hélice,

$$E_1 = [X_{1C}E_{\parallel,C} + (1 - X_{1C}) E_{NC}] \cos^2 X_2 = E^* \cos^2 X_2 \quad (2.4)$$

avec :

- ◇ E_1 : module d'élasticité longitudinale de la fibre
- ◇ $E_{\parallel,C}$: module d'élasticité longitudinale de la cellulose
- ◇ E_{NC} : module d'Young des parties non cristallines
- ◇ X_{1C} : teneur en parties cristallines de la fibre
- ◇ X_2 : angle d'hélice

2.5.1.2 Equation de déformation type ressort

Cette équation convient pour les fibrilles dont l'angle d'hélice est $\succ 45^\circ$

$$E_1 = \frac{K_{NC}}{1 - X_{1C}} (1 - 2 \cot^2 X_2)^2 = K (1 - 2 \cot^2 X_2)^2 \quad (2.5)$$

avec :

- ◇ K_{NC} : module de compressibilité des parties non cristallines (rapport entre la contrainte hydrostatique et la fraction en volume)

2.5.1.3 Equation mixte (superposition des deux modèles précédents)

Cette équation au comportement correspondant à celui de deux ressorts en série, chacun ayant tendance à soulager les contraintes subies par l'autre par un interéchange de tension.

$$E_1 = \frac{E^* \cos^2 X_2 \left[K (1 - 2 \cot^2 X_2)^2 \right]}{E^* \cos^2 X_2 + K (1 - 2 \cot^2 X_2)^2} \quad (2.6)$$

On admet généralement que contrairement à la rigidité, la résistance ne dépend pas de la configuration géométrique, mais est plutôt fonction des défauts présents dans la fibre. Notons que, d'une manière générale, la résistance augmente avec la teneur en cellulose et décroît avec la diminution de l'angle d'hélice X_2 .

Mukherjee et al. [8] ont proposé une relation de proportionnalité entre les propriétés mécaniques Y , la teneur en cellulose X_1 , l'angle d'hélice X_2 et les dimensions des cellules X_3 ,

$$Y = X_1^{a1} X_2^{a2} X_3^{a3} \quad (2.7)$$

2.5.2 Les fibres naturelles synthétisées

Les travaux relatifs à la structure et aux caractéristiques des fibres cellulose-siques de synthèse (par exemple les fibres de rayonne³) ont été publiés au fil des années. Mentionnons en particulier la publication de Hermans [67] pour parler surtout de son important apport sur la connaissance de la cellulose et la structure des fibres.

Des études expérimentales sur les propriétés et la structure des fibres viscoses ont été menées par Krässig [85]. Plus récemment encore, Lenz, Schurtz et al. ont travaillé sur l'influence des paramètres structuraux sur des fibres élaborées par

³"rayonne" : terme générique pour désigner les fibres végétales de synthèse formées de cellulose régénérée

divers procédés. Un résumé des résultats expérimentaux fournis dans la littérature montre que les propriétés mécaniques des fibres cellulosiques de synthèse dépendent de leur structure à différents niveaux, c'est-à-dire qu'il faut prendre en compte les éléments ci-après :

- ◇ le degré de polymérisation DP ,
- ◇ la structure cristalline,
- ◇ la structure de la supermolécule (exemple : degré de cristallinité),
- ◇ l'orientation des chaînes (régions cristallines et non cristallines),
- ◇ la porosité,
- ◇ le diamètre des fibres.

En général, la résistance à la traction des fibres est considérablement influencée par la longueur des molécules comme c'est aussi le cas pour les fibres viscoses et les fibres d'acétate. Une corrélation linéaire avec pente négative entre la résistance à la traction et l'inverse du degré de polymérisation $\frac{1}{DP}$ pourrait être modifiée par les effets d'orientation, par la variation des dimensions des cristallites et de la cristallinité, par les impuretés et probablement par les pores et les sections droites non uniformes dans la fibre [67]. S'intéressant à différentes fibres, Krässig [85] a montré qu'il existe des corrélations quasi-linéaires entre un certain nombre de paramètres structuraux et la résistance à la traction, l'allongement ultime et le module ; l'équation (2.8) modélise ces corrélations.

$$\begin{cases} \sigma_{con} \simeq (DP_L^{-1} - DP^{-1}) GI \cdot f_r^2 \\ \sigma_{wet} \simeq (DP_L^{-1} - DP^{-1}) GI \cdot f_r^{2.5} \\ E_{wet} \simeq DP_L (DP_L^{-1} - DP^{-1})^{-1} \left(\frac{1}{\cos \beta} - 1 \right)^{-1} \cos \beta \end{cases} \quad (2.8)$$

avec :

- ◇ DP : degré de polymérisation moyen,
- ◇ DP_L : longueur des régions cristallines,
- ◇ $C_r I$: indice de cristallinité,
- ◇ f_r : facteur de direction d'Hermans,
- ◇ $\cos \beta$: mesure de la direction ($\simeq f_r^{0.5}$).

2.6 Conclusion

Le but de ce chapitre était de nous donner une meilleure connaissance des fibres végétales. Un accent particulier a été mis sur leur obtention, notamment sur les différentes méthodes qui sont généralement employées pour les séparer des plantes dont elles sont issues. La question de l'amélioration de la qualité de la fibre extraite a connu bien des réponses satisfaisantes notamment quant à la pos-

sibilité de combiner plusieurs méthodes quant cela s'avère nécessaire. D'autres questions nécessitent encore des travaux de recherche. Elles incluent entre autres, les conditions de croissance pour la multiplication des semences et la production des fibres, les méthodes de récolte, la séparation des fibres et l'optimisation de leur séparation, le fondement moléculaire de l'amélioration de la décortication et de la performance des fibres. Les connaissances acquises grâce à ce travail serviront à concevoir de nouvelles variétés de fibres faites sur mesure pour des applications industrielles particulières.

De même, le recours à la protéomique a été récemment engagé dans l'Union Européenne (UE), pour isoler les gènes qui participent à la biosynthèse de la lignine des parois cellulaires et de l'hémicellulose dans le tabac. Les variations subies par ces composants peuvent affecter la qualité des fibres et la disponibilité de la cellulose. Ces connaissances peuvent servir à orienter des programmes de sélection moléculaire ainsi que les modifications génétiques servant à améliorer la qualité des fibres végétales.

Sur le plan du comportement mécanique des fibres végétales, des développements importants ont été réalisés et ont permis de mettre en évidence l'influence de la composition chimique et des paramètres structuraux de la paroi végétale sur les propriétés à l'étirement de ces fibres. Les aspects relatifs à la microstructure de ces fibres révèlent que celle-ci est d'une grande complexité notamment lorsqu'il s'agit de définir des modèles géométriques et analytiques généralisables pour la décrire. Comme indiqué plus haut, l'amélioration des propriétés mécaniques des fibres passera peut-être par l'introduction de nouveaux types de fibres. Et nous pourrions relever dans ce tableau les recherches en cours sur le filage avec solvant de la cellule naturelle (type I, cristalline) [86], lesquels travaux pourraient aboutir à des fibres de plus grande résistances et présentant une faible dispersion des propriétés.

Deuxième partie

Méthodes expérimentales

Chapitre 3

Caractérisation mécanique et physico-chimique de la fibre

3.1 Introduction

Ce chapitre a pour but de donner une connaissance plus approfondie des fibres choisies pour notre travail. Sont abordés ici des renseignements de tout ordre permettant de mettre plus en valeur ces matériaux. Les raisons ayant concourus à leur choix sont précisées dans la section spécifique à chacune des fibres. Une place plus importante est cependant consacrée à une nouvelle fibre, le Rhecktophyllum Camerunense (RC) qui fera donc l'objet principal de la caractérisation physico-chimique annoncée en titre de ce chapitre. Elle est cependant étudiée en parallèle avec la fibre de sisal, plus connue maintenant dans la littérature des NFRCs, pour besoin de comparaison.

3.2 Présentation des fibres étudiées

3.2.1 Le sisal

Ainsi que nous l'avons signalé en introduction de ce chapitre, le sisal est une fibre qu'on ne présente presque plus car elle revient très souvent dans la littérature des composites à base de fibres végétales. Le sisal constitue, avec les autres fibres textiles du genre *Agave*, la plus "grossière" des fibres *dures* parmi les nombreuses variétés cultivées dans des conditions tropicales et subtropicales ; il est plus "grossier" que le jute et les autres fibres libériennes. Du point de vue commercial, l'*Agave sisalana* (et ses hybrides) reproduite à la figure 3.1, et l'*Agave fourcroydes* (plus connu sous le nom d'henequen) arrivent en première place¹.

¹www.wigglesworthfibres.com/products/sisal/history.html.

L'Agave sisalana produit, par ses feuilles, des fibres dures flexibles qui servent à la fabrication de cordes, de ficelles et de nattes, et pour le rembourrage et le capitonnage. Les fibres apparentées sont le chanvre de Haïti (*Agave foetida*), et l'agave du Mexique ou ixtle (chanvre de Tampico ou mexicain). Ces fibres, extraites de l'Agave funkiana ou de l'Agave lechugilla sont principalement utilisées en broserie, mais peuvent aussi servir occasionnellement dans le textile. Font également partie de cette catégorie le maguey et le cantala, tirés de l'Agave cantala (Philippines ou Indonésie), ou l'Agave tequilana (Mexique) et la pita (*Agave americana*).

Le sisal compte actuellement pour les deux tiers de la production mondiale de fibres dures. Les trois-quarts de la production sont utilisés sous forme de ficelle agricole [2].



FIG. 3.1: Plante produisant le sisal, cordage fait de fibres de sisal

3.2.1.1 Utilisations traditionnelles et nouvelles

Le sisal et les autres fibres textiles servent traditionnellement à fabriquer de la ficelle agricole (ficelle de botteleuse ou lieuse), de la corde et des cordages. Le marché mondial du sisal (et du principal produit dérivé, la ficelle agricole) n'a cessé de se contracter depuis qu'il est apparu des produits synthétiques remplaçant les fibres naturelles, et en particulier depuis que le polypropylène est utilisé pour la fabrication de ficelle de lieuse et de cordages [87]. Toutefois, compte tenu de l'intérêt croissant (motivé notamment par un prix de pétrole toujours plus élevé et sa conséquence sur le prix du polypropylène) pour les produits naturels, renouvelables et biodégradables, les échanges de sisal sont en passe de connaître un nouvel essor avec la remise à l'honneur des utilisations traditionnelles et l'apparition de nouvelles utilisations.

Les applications nouvelles (ou redécouvertes) pourraient mettre à profit les caractéristiques du sisal qui se renouvelle plus rapidement que le bois dont il peut remplacer les fibres. Le sisal peut servir d'agent de renforcement (à la place de l'amiante et des fibres de verre) dans les cordes revêtues de fils métalliques, les pâtes à papier de spécialité et le plâtre. Il est également utilisé comme isolant ou fibre ornementale dans les tapis, les revêtements muraux et le macramé, les matelas, les sacs et les produits artisanaux. Il sert en outre pour la fabrication de produits de bourrellerie, de tissus de polissage, de filtres, de géotextiles utilisés dans le génie civil et écologique et de matériaux pour l'industrie automobile. Les déchets de la production de sisal peuvent être utilisés comme aliments du bétail, comme engrais, mais aussi pour produire du biogaz. Ces nouvelles utilisations sont étudiées au niveau international, sous la conduite de la FAO [87]. Compte tenu de l'intérêt croissant porté au recyclage, le sisal pourrait offrir des perspectives prometteuses dans l'industrie du papier, pour renforcer le papier à forte teneur en fibres de bois recyclé mais aussi, de plus en plus, il est utilisé comme renfort des matrices polymères servant à la fabrication des matériaux composites. Les propriétés mécaniques de cette fibre dont les applications sont si variées ne sont cependant pas entièrement connues. Nous l'explicitons plus loin dans le paragraphe aux chapitres 4.3 et dans le chapitre 5.

3.2.2 Raphia

Le palmier Raphia ou *Raphia ruffia* (*Raphia farinifera*) est une gigantesque espèce de palmier, de la famille des Arécacées, que l'on trouve en masse à Madagascar et dans certaines régions de l'Afrique. Un climat tropical humide et un terrain marécageux sont des critères excellents pour la croissance de cet arbre. Dans ces conditions, il se développe à grande vitesse et peut produire des branches jusqu'à 20 m. Chaque branche contient à son tour 80 à 100 feuilles.

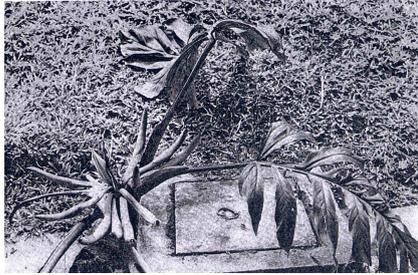
De septembre à mai on peut couper de jeunes feuilles (feuilles de la foliole). Afin d'obtenir une fibre très fine, seul l'épiderme (30-150 μm d'épaisseur, et 8-10 mm de largeur) du lobe des jeunes feuilles de palmiers est prélevé dans les 48 heures suivant la récolte. Les fibres sont alors pelées manuellement puis cet épiderme est mis à sécher au soleil et est ensuite fendu sur toute sa longueur de manière à obtenir les fibres elles-mêmes : celles-ci ont alors la longueur de la feuille du palmier mais, une fois nouées les unes aux autres, elles permettent de tisser des étoffes de taille importante. En fait, les fibres de raphia ne peuvent pas être filées. Lorsque le raphia est finalement sec et a obtenu sa couleur bien connue jaune pâle, il est prêt pour la prochaine étape du processus de production. Dans le centre de tri les fibres sont dénudées des parties sombres et classées suivant la

qualité, la couleur et la largeur. Éventuellement le raphia peut encore être teint sur place avant d'être pesé et mis en ballot. Le produit terminé est finalement utilisé pour différents usages : relier les plantes, confectionner des paniers, nattes, chapeaux et même des costumes traditionnels ou des objets décoratifs.

Les fibres de raphia demeurant rêches et raides, on recourt à différentes méthodes pour les assouplir : elles sont peignées et raclées avec le bord tranchant d'une coquille d'escargot jusqu'à devenir fines comme un fil de soie. Les tisseurs, une fois la pièce tissée, la mettent à tremper dans l'eau puis, après l'avoir enveloppée de vieux chiffons pour la protéger, la placent au fond d'un mortier de bois pour la piler ; le foulage permet de transformer une pièce de raphia rugueuse en une étoffe délicate et souple.

3.2.3 *Rhectophyllum Camerunense*

Le *Rhectophyllum Camerunense* (RC) est une plante de la famille des aracées, de genre *Rhectophyllum* dont le type camerunense, le matériau étudié ici, a été identifié pour la première fois par Ntéfé-Nyamè en 1981 [88]. Elle a été localisée dans toute la zone forestière du Cameroun, Nigéria et Gabon, et certainement dans les régions sèches septentrionales ; elle se localise dans le sous bois de forêt dense humide. Cette plante est d'abord dressée sur racines échasses, pouvant atteindre 50 cm de hauteur, avec une tige courte et épaisse, ensuite rampante sur un stolon émis de son sommet et pouvant porter des pousses feuillées, enfin grimpante et pouvant s'élever jusqu'à 30 m au-dessus du sol (d'où le nom local d'*Ayang yop* pour plante grimpante). Elle possède deux sortes de racines aériennes : (1) longues racines verticales atteignant le sol, très plates 1,5-4 cm de largeur, pubérulentes, non verruqueuses ; (2) racines crampon horizontales, plus courtes 10-20 cm de longueur, elles aussi aplaties et pubérulentes. Un stolon plus mince permet la progression de la plante soit sur le sol soit sur l'arbre support ; elle s'élève en altitude jusque vers 100 m et se rencontre encore dans les galeries forestières en savane. Des racines aériennes aplaties de cette plante, sont extraites des fibres mécaniques utilisées traditionnellement pour le cordage, et le tissage (filets de pêche par exemple). A ce jour, aucune étude de caractérisation physico-chimique n'a, à notre connaissance, été effectuée sur les fibres de cette plante après son identification botanique. Les figures 3.2(a)-3.2(c) constituent une illustration de cette brève description du RC.



(a) Plante produisant les fibres de RC



(b) Racine aérienne liée à la racine échasse



(c) Racines aériennes aplaties sources de fibres

FIG. 3.2: Plante produisant les fibres RC

3.2.3.1 Anatomie des racines aériennes

La figure 3.3 donne des renseignements sur l'organisation et la constitution des racines aériennes d'où sont extraites les fibres RC. On y observe notamment que ces fibres sont libériennes, étant situées dans la zone périphérique de la racine et en contact avec sa très mince épiderme. Le centre de la racine est occupé par un très long renfort ailé et multi-perforé, tandis que les parties restantes contiennent des fibres noyées à l'état humide dans un tissu d'extractifs (pectine et autres) qui les pigmentent de façon presque indélébile.



FIG. 3.3: Anatomie d'une racine aérienne sèche du RC, suivant une section droite

3.3 Extraction des fibres

Des tentatives d'extraction des fibres, encore plus fines, de l'épiderme des feuilles de la foliole du palmier raphia ont été menées. Les dissolutions à la soude

et à l'acide sulfurique ont permis de faire apparaître des fibres très fines aux extrémités. Ce travail devrait être poursuivi par l'utilisation des composés chimiques et/ou enzymes appropriés. Ceci passe notamment par une meilleure connaissance de l'anatomie et de la composition chimique de ces feuilles, dont quelques éléments sont donnés dans les sections 3.4 et 3.6.

Les fibres de sisal utilisées dans cette étude proviennent du commerce (SOC-SUBA, Douala Cameroun). Il s'agit donc du sisal cultivé et produit industriellement, il n'était donc plus nécessaire de procéder à leur extraction. Des fibres de l'épiderme de la foliole de raphia utilisées ici ont été récoltées dans la région de BALENGOU (Ouest Cameroun). Des racines aériennes du RC fraîchement récoltées (dans la région de ZOETELE, Sud Cameroun), ont été extraites des fibres par léger battage manuel suivi d'un rouissage à l'eau simple pendant deux jours. Les racines utilisées étant relativement longues (1-4 m), cela a permis d'obtenir des fibres aux mêmes longueurs (ou presque), très fines, et de diamètre très régulier sur toute la longueur comme le montre la figure 3.4. Toute tentative de rouissage lorsque les racines commencent à se déshydrater ne donne pas les mêmes résultats. Car les extractifs et la faible épiderme adhèrent fortement sur les fibres et résistent à la dissolution à l'eau simple. Il convient de plus de vérifier si la méthode d'extraction préconisée pour les fibres libériennes à la section 2.2.1 conduirait à des fibres de meilleure qualité lorsque les racines sont complètement déshydratées. Du reste, compte tenu de notre connaissance actuelle de ces fibres, la méthode enzymatique combinée à un battage mécanique quelque temps après la récolte devrait être la meilleure option d'extraction permettant de préserver leur intégrité. Chaque racine produit de 100 à 350 fibres longues ce chiffre variant selon sa grosseur. Comparé au sisal (1000 fibres de 1-1,5 m de long par feuille), on obtient pratiquement le même rendement en fibres lorsqu'on prend en compte la longueur de la racine du RC.

3.4 Morphologie des fibres étudiées

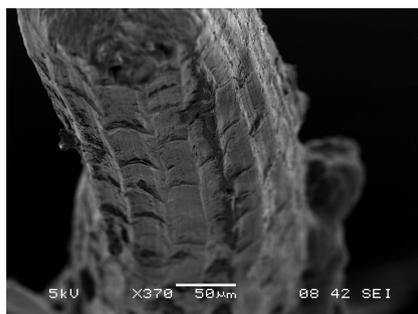
Dans le but d'étudier la microstructure des fibres, la surface latérale et la section droite ont été examinées au microscope par la technique SEM à l'Institut National de Recherches Agronomiques (INRA, THEIX, France) et au Centre hospitalier Universitaire (CHU, Clermont-Ferrand, France). C'est ainsi qu'un microscope électronique à balayage, de marque JEOL - T220, a été utilisé pour l'acquisition d'images à un voltage de 5-20 kV. Les surfaces observées ont été préalablement métallisées dans une chambre à vide pour y déposer une fine couche d'or de 70 nm d'épaisseur. Notons que les fibres peuvent être endommagées sous l'action



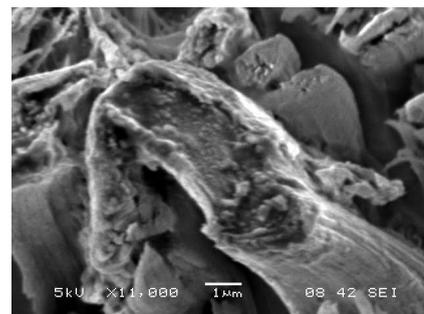
FIG. 3.4: Fibres de RC extraites par rouissage à l'eau

du bombardement par le faisceau d'électrons lors des observations dans un tel microscope, d'où la nécessité de la métallisation à 70 nm (au lieu de 40 nm) et l'application d'un voltage (du faisceau) approprié et maintenu constant. Les observations faites dans ce cadre portent sur les fibres de sisal, de raphia et du RC.

Les figures 3.5(a) et 3.5(b) donnent des renseignements sur l'aspect et la forme de la fibre de sisal. Il est à noter que le lumen n'apparaît pas distinctement sur ces images, ce qui laisse croire que leur structure vue suivant la section droite est semblable à un enroulement en peau d'oignon.



(a) Profil de la fibre de sisal



(b) section droite de la fibre de sisal

FIG. 3.5: Micrographie SEM des fibres de sisal.

De même, des observations SEM de la couche extérieure de la feuille de la foliole de raphia dans les sens longitudinal et transversal sont données aux figures 3.7(a) à 3.7(d). Comme signalé dans la section 3.3, ces images (3.7(d) en particulier) mettent en évidence la présence d'un réseau de très fines fibres disposées en treillis sur une des faces de la feuille. L'observation de la face oppo-

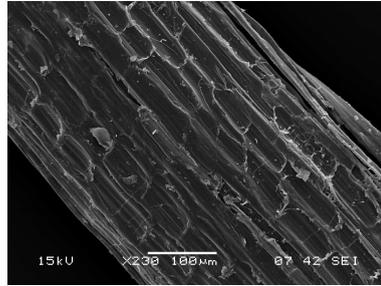
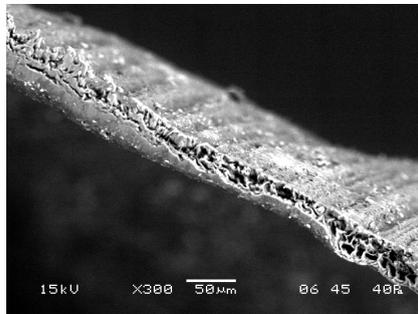
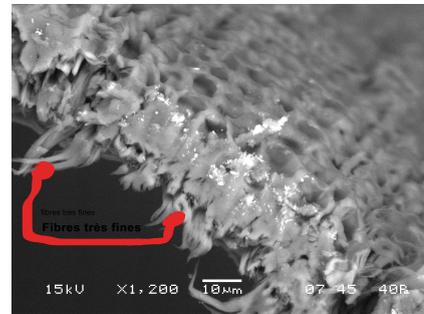


FIG. 3.6: Surface latérale du sisal en SEM.

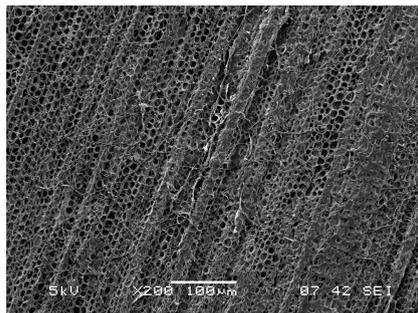
sée révèle qu'elle est totalement opaque, ce qui explique pourquoi les toitures faites des feuilles du palmier raphia se révèlent très étanches. Cette observation est conforme à celle rapportée par Elenga et al. [89].



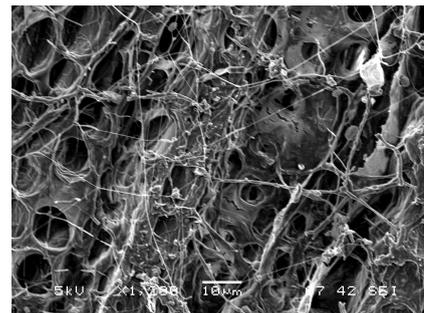
(a) section droite de l'épiderme de la feuille de la foliole



(b) Fibres apparentes à l'extrémité de l'épiderme



(c) surface latérale-1

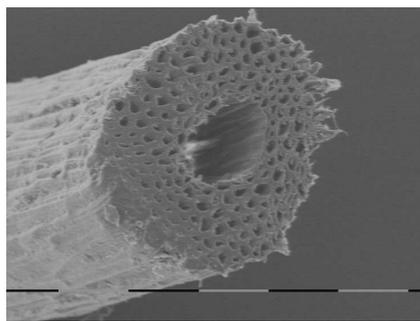


(d) surface latérale-2

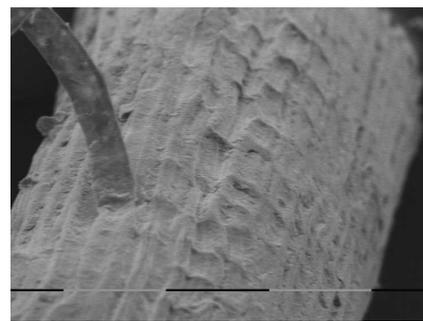
FIG. 3.7: Micrographie SEM de la couche extérieure des feuilles de la foliole de Raphia

Enfin, les figures 3.8(a) à 3.8(c) mettent clairement en évidence l'aspect, la forme et la microstructure de la fibre RC ; on remarque d'emblée la présence d'un canal au centre et une distribution régulièrement concentrique des cellules de base dont les lumens sont également très apparentes ; les images d'une section longitudinale révèlent par ailleurs que les lumens et le canal central s'étendent à toute la fibre dans le sens longitudinal. La fibre extraite de la plante RC consti-

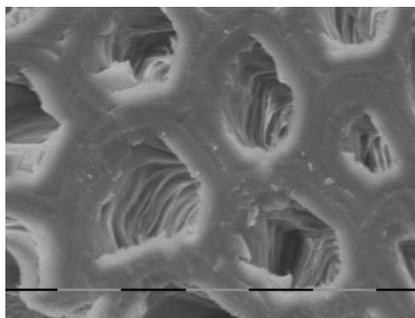
tue donc un faisceau d'environ 200 à 280 de ces cellules individuelles et exhibe une porosité très caractéristique, due au canal central et aux lumens. Une telle organisation de la microstructure n'a pas été observée sur les fibres de sisal dont les dimensions transversales sont sensiblement équivalentes. La porosité de cette fibre devra être prise en compte pour une meilleure estimation de ses propriétés mécaniques. Afin de déterminer ce taux de porosité, plusieurs micrographies de la section droite des fibres RC ont été réalisées au microscope épifluorescent et traitées comme indiqué à la section 3.8. Les résultats obtenus (voir le tableau 3.1) indiquent que le *taux de porosité* est de l'ordre 28 à 36% selon de la grosseur de la fibre.



(a) section transversale ;
échelle=100 μ m



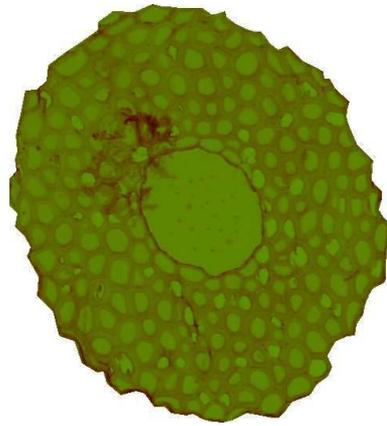
(b) surface latérale ; échelle=100 μ m



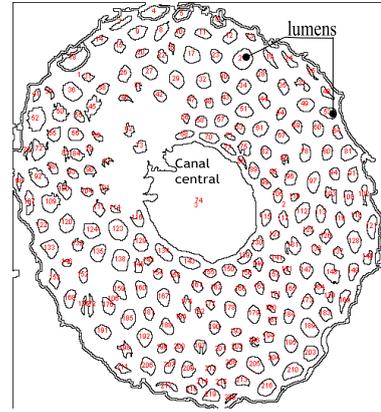
(c) Micrographie SEM des cellules ;
échelle=10 μ m

FIG. 3.8: Micrographie SEM de la microstructure de la fibre RC

Les figures 3.9(a) et 3.9(b) en particulier renseignent sur la forme périphérique de la section droite du RC. Ces figures sont obtenues par analyse d'images. Ce traitement a permis entre autres de déterminer l'aire apparente des sections droites, leur taux de circularité et leur diamètre équivalent (voir le tableau 3.1).



(a) Section droite au microscope épifluorescent



(b) Pores de la section droite après analyse de 3.9(a)

FIG. 3.9: Forme extérieure de la section droite du RC

%Porosité	Aire app. (mm ²)	% Circu- larité	ϕ_{fibre} (μm)	ℓ/D (aspect)	ϕ_{canal} (μm)	ϕ_{lumens} (μm)
28,31-35,5	50e-4-962e-4	60,8-94,5	70-350	$\succ 2000$	25-110	2-29

TAB. 3.1: Caractéristiques morphologiques du RC

3.5 Mesure de la masse volumique

Différentes mesures ont été réalisées à l'aide du pycnomètre à solide (à l'INRA de Theix, à l' IUT d'Auvergne, à l'Université de Bretagne Sud, Lorient, France) et le toluène, l'éthanol et le xylène comme liquides d'immersion. Des fibres ont été séchées pendant 96 heures dans un dessiccateur contenant de la silice (préalablement régénérée). Elles ont ensuite été découpées en longueurs de 5 à 15 mm puis introduites dans le pycnomètre qui, à son tour, est placé dans le dessiccateur pendant au moins 24 heures (après la découpe des fibres). Avant de réaliser la pesée hydrostatique avec le toluène on fait l'imprégnation des fibres pendant 2 heures, puis l'agitation vortex pour évacuer les micro bulles entre les fibres. Aucun dégazage n'a été observé avec les fibres de sisal ; par contre un dégazage important s'est produit pour les fibres de RC. La température de chambre d'essai était de 18,1 °C, avec une hygrométrie de 57%, dans la pièce, et de 3% dans le dessiccateur. Les résultats des mesures sont donnés dans le tableau 3.2.

Nous avons obtenu une masse volumique très faible du RC (0,947g/cm³), comparée à 1,335-1,45 [90, 91] pour le sisal. Il convient d'ailleurs de relever qu'à

Fibre	Poids (g)	Température de salle(°C)	Masse volumique g/cm ³
Sisal	1,118	18,6	1,352
RC	1,100	18,1	0,947

TAB. 3.2: Masses volumiques des fibres de Sisal et RC : pycnomètre-toluène

notre connaissance, aucune autre fibre végétale n'a une aussi faible masse volumique ; celle-ci devrait du reste conférer à la fibre RC de grandes propriétés spécifiques.

3.6 Analyse biochimique

Le but de cette analyse est de déterminer la teneur en lignine, en cellulose et en pentosanes des échantillons de fibres de Raphia, RC et Sisal. Les essais ont été réalisés au Centre Technique du Papier (CTP, Grenoble, France).

3.6.1 Méthodologie

3.6.1.1 Teneur en lignine

La détermination de la teneur en lignine a été effectuée selon la méthode de Klason. Les échantillons sont broyés et extraits au dichlorométhane avant d'être hydrolysés dans l'acide sulfurique à 72%. La lignine étant le seul constituant insoluble, elle se sépare de la fibre et peut ainsi être quantifiée.

3.6.1.2 Teneur en cellulose

La cellulose a été déterminée selon la méthode de Kurschner et Hoffer. Les échantillons sont broyés et extraits au dichlorométhane puis additionnés d'un mélange acide nitrique/éthanol à 95%. La cellulose correspond à la fraction insoluble des échantillons.

3.6.1.3 Teneur en pentosanes

La détermination des pentosanes a été effectuée selon la norme NF T 12-008. Les échantillons sont chauffés dans de l'acide bromhydrique. Les pentosanes sont transformés en furfural ; ce dernier est extrait par distillation et dosé par méthode spectrophotométrique. Les pentosanes constituent l'essentiel des hémicelluloses.

3.6.2 Résultats et commentaires

Les résultats de ces analyses sont fournis dans le tableau 3.3. Il en ressort notamment que la teneur en cellulose de l'épiderme des feuilles de la foliole de raphia est de l'ordre de 58,5%, teneur que nous assimilerons ici au taux de fibres cellulosiques. La valeur de 58,5% constitue du reste une motivation supplémentaire pour parvenir à extraire effectivement les fibres de cette plante, et compte tenu de la finesse observée, elles pourraient avoir une très bonne application dans les nanocomposites et le textile. La composition chimique des fibres de sisal est largement référencée dans la littérature [90, 91, 92, 93]. Du reste, les valeurs des teneurs déterminées sont en accord avec celles généralement mentionnées. En ce qui concerne le RC, la teneur de 68,5% de cellulose lui confère un bon atout pour exhiber de meilleures propriétés mécaniques, ce qui du reste sera précisé dans la section 3.9.1.

Fibre	Cellulose (%)	Lignine (%)	pentosanes (%)
Raphia	58,5	26,8	13,4
RC	68,2	15,6	16,0
Sisal [90, 91]	49,62-78,8	7-9,9	21-24,0

TAB. 3.3: Compositions chimiques des fibres de raphia, RC et sisal

3.7 Ultrastructure de la fibre de RC

Dans cette section, nous envisageons de connaître précisément les dimensions transversales des différentes couches de la paroi des fibres de RC. Ces dimensions serviront entre autres à la modélisation numérique envisagée au chapitre 6. L'ultrastructure concerne un domaine de dimensions qui se situe entre le domaine atomique et moléculaire et le domaine accessible au microscope optique. Le microscope électronique est l'instrument de choix pour l'exploration de ce domaine aussi bien en biologie qu'en physique. La microscopie électronique en transmission (TEM) est une technique de microscopie basée sur le principe de diffraction des électrons et pouvant atteindre un grossissement de 5 000 000.

Les échantillons de fibres RC ont été fixés dans une solution de glutaraldéhyde à 3% dans du tampon cacodylate 0,2 M pendant 2 heures à 4 °C. Ils sont rincés 3 fois dans le même tampon et post-fixés avec de l'acide osmique 1% pendant 1 heure à 4 °C. Ensuite, ils ont été rincés avec le tampon cacodylate et déshydratés dans une série croissante d'alcool (70, 95 et 100%) puis dans 3 bains d'oxyde de propylène (3x15 minutes) avant 2 bains d'imprégnation dans le mélange résine

épon et oxyde de propylène suivi d'une nuit dans la résine pure. Après polymérisation, les coupes sont réalisées au couteau de diamant avec un ultramicrotome et contrastées à l'acétate d'uranyle et au citrate de plomb. Les observations ont dès lors été effectuées sur un TEM Hitachi H-7650 au CHU (Clermont-Ferrand, France).

Les figures 3.10 à 3.15 constituent une illustration des observations ainsi réalisées. Ces images ont été analysées comme expliqué au paragraphe 3.8 pour obtenir les dimensions du tableau 3.4.

couches	P+M+S1	S2	S3
épaisseur (nm)	530	1600	670

TAB. 3.4: Dimensions transversales de la paroi du RC

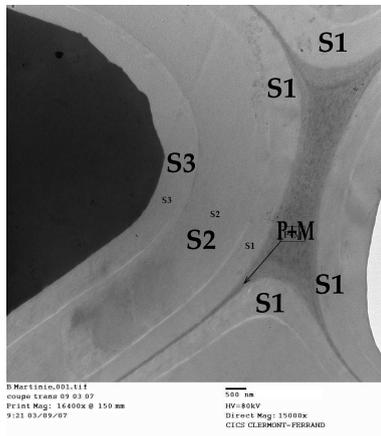


FIG. 3.10: Trois parois adjacentes et leurs couches observées en TEM.

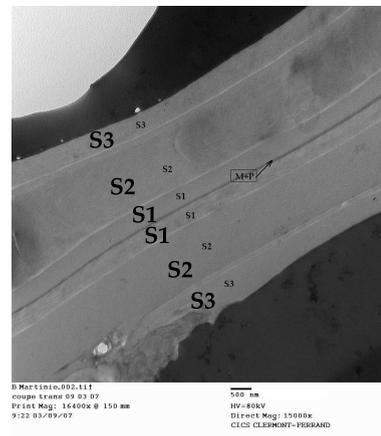


FIG. 3.11: Couches constitutives de la paroi en stratification symétrique.

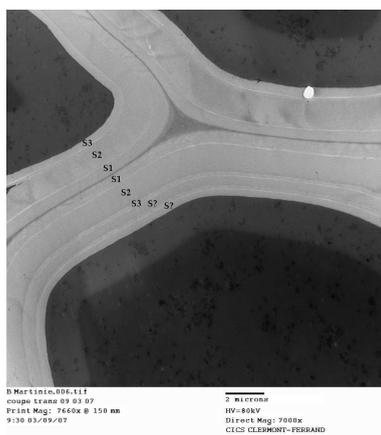


FIG. 3.12: Paroi secondaire avec une couche verrouillée supplémentaire

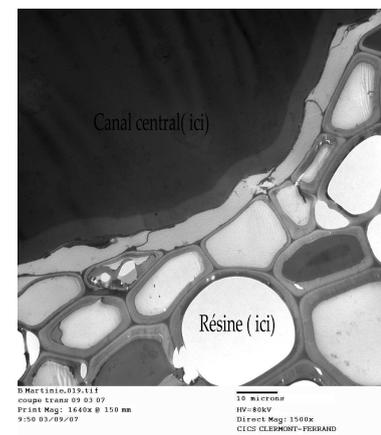


FIG. 3.13: Agglomération de cellules unitaires au voisinage du canal central.



FIG. 3.14: Micrographie TEM : une cellule C3 à l'intersection de trois adjacentes.

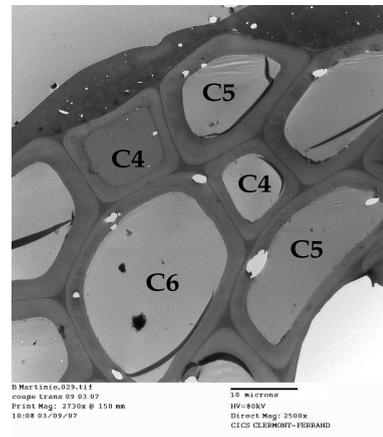


FIG. 3.15: Formes polygonales variées des cellules : de 3 à 6 cotés.

3.8 Angle des microfibrilles du RC

De nombreuses méthodes ont été utilisées pour mesurer l'angle des microfibrilles dans la couche S2 que l'on considère généralement comme une hélice en Z. Néanmoins, certaines études utilisant les ponctuations de champs de croisement (cross-field pit en anglais) comme celles de Pysznski et Hejnowicz [94] sur les trachéides d'Épicéa norvégien montrent que dans environ 80% des arbres étudiés, les microfibrilles en forme de Z possèdent un angle de 10° - 40° , alors que dans les 20% restants, l'angle est plus faible avec des variations d'orientation. Une liste complète des différentes techniques de mesure de l'angle microfibrillaire avec leurs avantages et désavantages est donnée par Huang et al. [95]. Parmi ces techniques, la diffraction des rayons X s'avère rapide, mais il est impossible de mesurer l'angle sur une seule fibre, car le faisceau couvre de nombreuses fibres et donne seulement une moyenne de l'angle sur les cellules touchées par les rayons X. Les résultats obtenus par différentes méthodes sont souvent contradictoires. Par exemple, les travaux de Herman et al. [96] sur des trachéides individuelles montrent de grandes variations de l'angle microfibrillaire au sein des cernes annuelles avec une forte diminution depuis les cellules de printemps aux cellules d'été. Tandis que d'autres études effectuées par Réitérer et al. et Lichtenegger et al. [97] utilisant la méthode SAXS (small-angle X-ray scattering), illustrée par la figure 3.18, sur le même type de cellules montre un angle microfibrillaire plus élevé dans les trachéides d'été que dans celles de printemps. Actuellement, il est nécessaire de comprendre d'où viennent les différences de résultats obtenus par les méthodes de mesure disponibles et d'en trouver une qui donne des résultats sûrs et reproductifs. Une technique a été développée par Jang [98] qui utilise

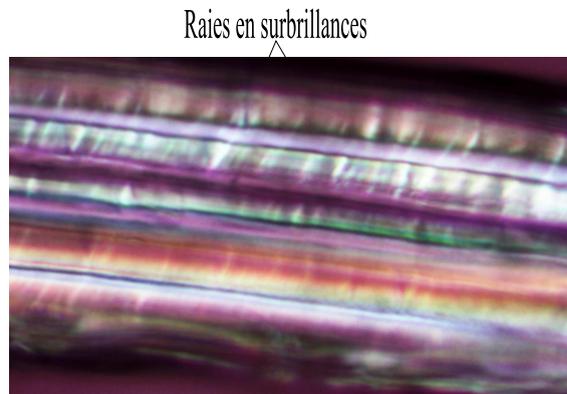
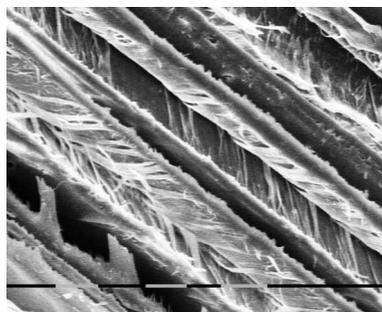


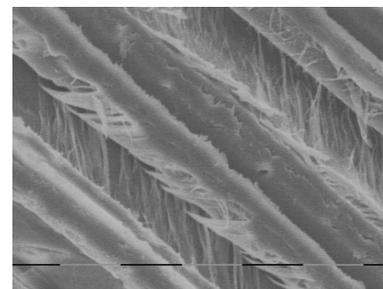
FIG. 3.16: Micrographies MP faisant apparaître l'angle des microfibrilles du RC

la microscopie confocale par polarisation basée sur la fluorescence dichromique de la paroi cellulaire lorsqu'elle est colorée avec des fluorochromes spécifiques possédant une forte affinité avec la cellulose. Dans cette technique, il reste des problèmes de préparation d'échantillons, car ils sont très fins, ce qui permet d'observer uniquement l'intensité de la fluorescence de la couche S_2 sans interférence avec les autres couches.

Pour ce qui est de nos travaux, une estimation rapide mais sûre de l'angle des microfibrilles du RC a été faite sur la base des micrographies obtenues par la méthode SEM et au microscope polarisant. Les images présentées aux figures 3.16 et 3.17 montrent clairement l'inclinaison des microfibrilles de cellulose sur la couche S_2 . En effet, une coupe longitudinale manuelle de la fibre nous a permis de localiser ces microfibrilles (figures 3.17(a) et 3.17(b)), ce qui n'est pourtant pas le cas à tous les coups car il faut que cette coupe tombe sur cette couche S_2 .



(a) Orientation des microfibrilles de cellulose observée en SEM



(b) Orientation des microfibrilles de cellulose observée en SEM

FIG. 3.17: Micrographies SEM faisant apparaître l'angle des microfibrilles du RC

Quant à la figure 3.16 elle montre en surbrillance ces microfibrilles. Cela est rendue possible par le fait de la lumière polarisée du microscope utilisé. En effet,

le microscope polarisant, ou microscope polariseur analyseur, est un microscope optique muni de deux filtres polarisants (appelés polariseur et analyseur). Il est utilisé en géochimie pour l'observation et l'identification des minéraux² dans les roches, et utilise la lumière polarisée. Dans la plupart des minéraux, suivant la direction de polarisation, la lumière n'aura pas la même vitesse. Lorsqu'un rayon lumineux pénètre dans un cristal, il se dédouble en deux rayons de polarisation différente qui se propagent avec une vitesse différente, c'est la *biréfringence*³.

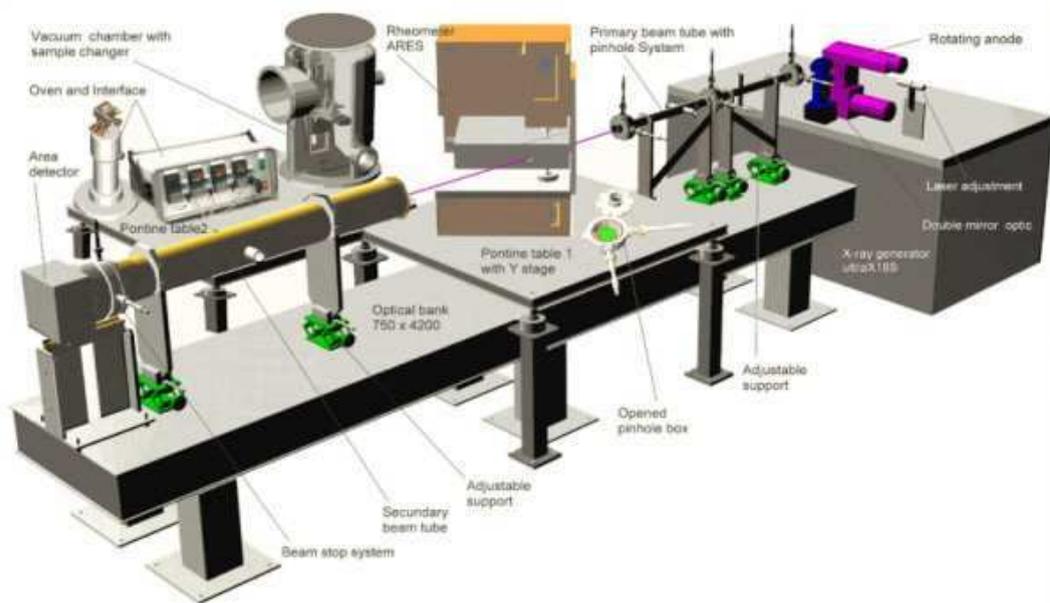


FIG. 3.18: Schéma de principe de la détermination de l'angle MFA(X_2) par la technique SAXS

Une analyse d'images effectuée au moyen du logiciel ImageJ 1.36b (1997-2004)⁴ [99] a permis de déterminer les valeurs de l'angle des microfibrilles des fibres RC

²Un minéral est une substance normalement inorganique, plus rarement organique, formée naturellement ou synthétisée artificiellement, définie par sa composition chimique et l'agencement de ses atomes selon une périodicité et une symétrie précises qui se reflètent dans le groupe d'espace et dans le système cristallin du minéral. Les minéraux sont généralement solides dans les conditions normales de température et de pression (TPN) et s'associent pour former les roches constituant la croûte terrestre et, d'une façon plus générale, la lithosphère.

³La biréfringence est une propriété qu'ont certains matériaux transparents vis-à-vis de la lumière. Leur effet principal est de diviser en deux un rayon lumineux qui les pénètre. La biréfringence, encore appelée double réfraction, s'explique par l'existence de deux indices de réfraction différents selon la polarisation de la lumière. Cette technique permet de différencier, dans un minéral, différents cristaux de biréfringences différentes, qui apparaîtront avec une couleur et une luminosité différente.

⁴Logiciel d'analyse d'images du National Institute of Health (NIH), USA. ImageJ is in the public domain, <http://rsb.info.nih.gov/ij>

données dans le tableau 3.5. Le traitement statistique de ces valeurs donne une valeur médiane de 40,109. Cette valeur est égale à celle des fibres de coco. Elle devrait conduire à un module d'Young moyen, un allongement à rupture important et un bon comportement au choc.

MFA : $X_2(^{\circ})$	44,721	39,997	39,588	39,516	42,145	39,785
	43,072	40,109	41,48	45,8	36,763	47,503
	34,47	43,526				

TAB. 3.5: Mesures de l'angle des microfibrilles (MFA) de cellulose du RC

3.9 Propriétés mécaniques de la fibre

3.9.1 Essai de traction

Des éprouvettes de fibres individuelles de RC et de Sisal ont été élaborées en pourvoyant les deux extrémités de têtes d'amarrage, en fait une courte gaine en élastomère maintenue par pincement et par collage à l'adhésif cyanocrylate. L'ensemble a ensuite été monté sur une machine d'essai de traction pour micro-matériaux INSTRON Version IX 8.28.00, de type 4302 possédant une interface PC pour l'acquisition automatique des déplacements. Il était dès lors possible de réaliser les essais de traction à une vitesse de 20 mm/min sur plus de 60 spécimens de fibres RC. Les spécimens ont été testés avec une longueur libre de 23 mm.

Pour simplifier, nous avons considéré que les fibres sont de sections droites parfaitement circulaires et avons cependant tenu compte du taux de porosité (section 3.4) pour la détermination des caractéristiques mécaniques. Les spécimens ayant rompu au voisinage des talons d'amarrage ont été écartés. Pour calculer la déformation, la longueur de jauge de l'éprouvette a été utilisée. Aucun déchaussement (aux talons d'amarrage) de la fibre n'a été observé.

3.9.2 Résultats et discussion

Les figures 3.19 et 3.20 représentent des courbes $\sigma - \epsilon$ (contrainte-déformation) des fibres de RC non traitées et de sisal respectivement. Il apparaît que le RC testé en traction présente un comportement différent du sisal. En effet, le comportement du sisal est du type élastique fragile, tandis que le RC présente 2 phases, celle des déformations élastiques ($\epsilon \leq 3\%$) et celle des déformations non linéaires, ϵ pouvant atteindre 50% dans certains cas. Les grandes déformations obtenues pour ces fibres sont vraisemblablement le fait de l'inclinaison de 40° (rapportée

au paragraphe 3.8) des microfibrilles de cellulose. En effet, le comportement en traction de la fibre cellulosique se traduit ici par une réorientation des microfibrilles qui tendent à s'aligner avec l'axe de la fibre [100]; et dans le cas où l'angle des microfibrilles est grand comme dans l'exemple traité ici, on obtient nécessairement de grandes déformations. Ceci est à rapprocher avec le fait qu'il existe une forte corrélation entre l'angle des fibrilles et les propriétés à l'étirement de la pâte en feuilles. Les résultats indiquent que 75% de la variation à l'étirement sont attribuables à cet angle.

Le tableau 3.6 montre les valeurs des résistances à la rupture et des modules d'Young des spécimens testés de la fibre RC. La lecture de ce tableau renseigne d'emblée sur la dispersion assez significative des valeurs de ces résistances signe que nous avons à faire à un matériau très hétérogène. D'autres travaux, par exemple ceux de Zafeiropoulos et al. [101], rapportent une légère baisse de la résistance à la traction lorsque la longueur libre des éprouvettes augmente, quoique cette baisse soit statistiquement négligeable. Cette possibilité est à exclure dans ce cas car les spécimens testés avaient exactement la même longueur. Ainsi, un traitement statistique des données est nécessaire si l'on devait tirer une conclusion de valeur sur les données d'essais présentées ici.

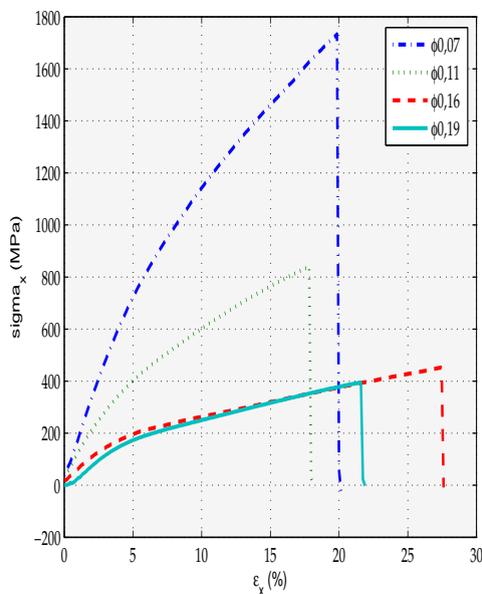


FIG. 3.19: Courbe $\sigma - \epsilon$ (contrainte-déformation) des fibres RC

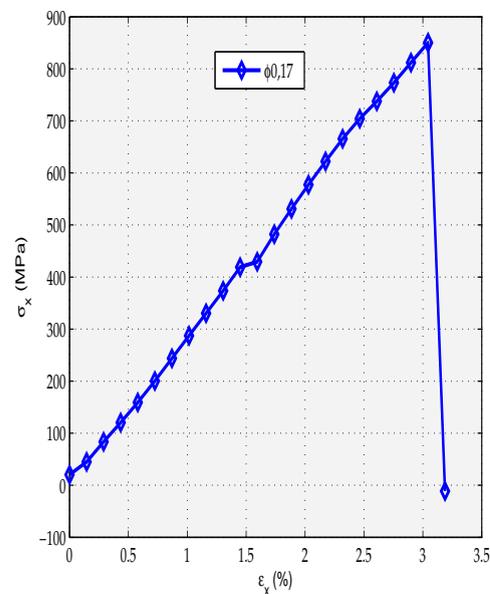


FIG. 3.20: Courbe $\sigma - \epsilon$ (contrainte-déformation) des fibres de sisal

On notera également une forte dépendance de la résistance et du module d'Young de la fibre au diamètre, avec une diminution de ces deux caractéristiques lorsque le diamètre augmente. Compte tenu de la grande régularité observée

quant à l'organisation de la microstructure du RC, la variation des diamètres serait le fait de l'âge (ou du stade de maturité), mais elle pourrait tout autant être le fait de l'existence de différentes variétés du RC. Cette dernière explication devrait être évidemment explorée d'autant plus que les fibres utilisées ici proviennent de plantes sauvages (non cultivées). Une étude taxonomique serait alors nécessaire et permettrait entre autres de sélectionner la(es) variété(s) pouvant être cultivée(s) en vue d'une exploitation industrielle de la fibre RC.

ϕ de à (exclu)	$\leq 0,1$	0,1 0,12	0,12 0,14	0,14 0,16	0,16 0,18	0,18 0,2	0,2 0,22	0,22 0,24	0,24 0,35
E_x (GPa)	12,859	8,173	7,013	8,5	6,461	3,298	2,251.	2,306	2,531
	14,254	8,71	7,05	6,783	5,06	4,404	1,93	3,83	1,983
	13,456	7,033	7,573	7,044	3,452	3,702	2,651	2,505	2,555
	11,890	6,94	4,06	3,73	4,086		2,311	2,935	2,671
	17,056	8,991	4,412	5,414	3,703		3,818	3,609	2,804
	10,613	4,412	9,744	4,584				3,713	1,447
		6,321	6,414					2,258	1,815
		8,002							1,827
		11,299							2,426
		10,936							
	8,838								
R_r (GPa)	1,277	0,893	0,755	0,670	0,575	0,440	0,277	0,348	0,289
	1,738	0,795	0,615	0,565	0,572	0,396	0,267	0,289	0,215
	1,307	0,750	0,592	0,689	0,393	0,380	0,337	0,275	0,244
	1,368	0,625	0,410	0,400	0,444		0,281	0,327	0,241
	1,590	0,871	0,407	0,495	0,180		0,251	0,303	0,272
	0,854	0,521	0,750	0,452				0,376	0,182
		0,470	0,604					0,301	0,179
		0,329							0,150
		0,963							0,173
		1,035							
	0,842								

TAB. 3.6: Résistances à rupture et modules d'Young des spécimens de RC testés

3.9.3 Traitement statistique des résultats

Ce traitement permet d'ajuster les données sur la résistance à une loi de distribution afin d'estimer les caractéristiques mécaniques moyennes du matériau. En général la distribution de Weibull ou la distribution lognormale sont les meilleures candidates pour les données des résistances mécaniques. Un test d'adéquation est donc conduit à cet effet [102]. La procédure retenue dans cette étude, pour ce faire, est celle précédemment utilisée dans la référence [103] et dont la version re-

vue et corrigée est reprise en annexe A. Les résultats significatifs de ce traitement sont présentés ci-après. Les figures 3.21 à 3.23 indiquent que les résistances et les modules d'Young s'ajustent convenablement à la distribution de Weibull. Les diamètres s'ajustent à la loi normale comme le montre la figure 3.24. La méthode de Weibull décrite au paragraphe A.2.1 est donc appliquée conjointement avec la méthode du maximum de vraisemblance (cf paragraphe A.3).

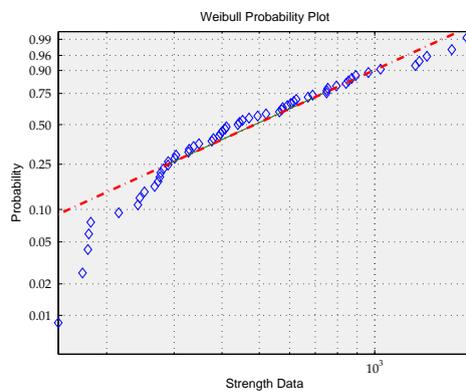


FIG. 3.21: Vérification de la weibullité des données des résistances du RC

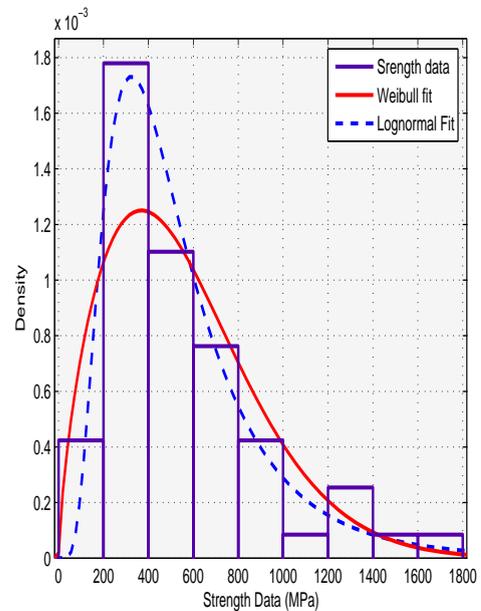


FIG. 3.22: Courbe d'ajustement à la distribution de Weibull des résistances du RC

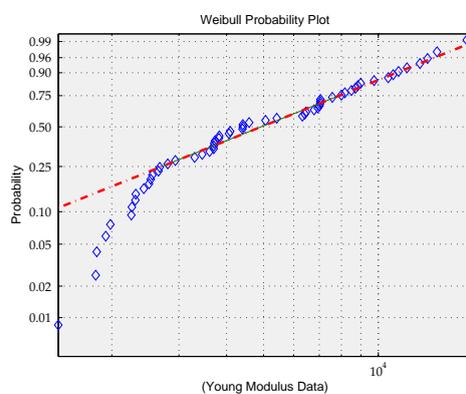


FIG. 3.23: Vérification de la weibullité des modules d'Young du RC

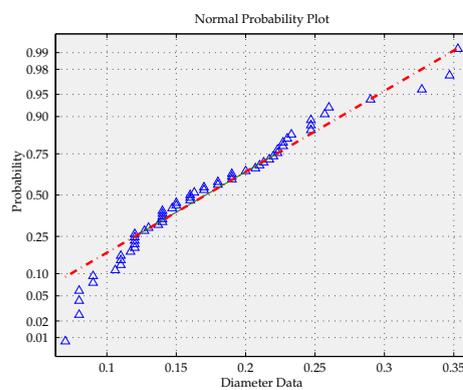


FIG. 3.24: Vérification de la normalité des diamètres du RC

La figure 3.25 montre l'évolution de la résistance à la rupture en fonction du diamètre de la fibre. Les diamètres les plus élevés conduisent à des résistances faibles.

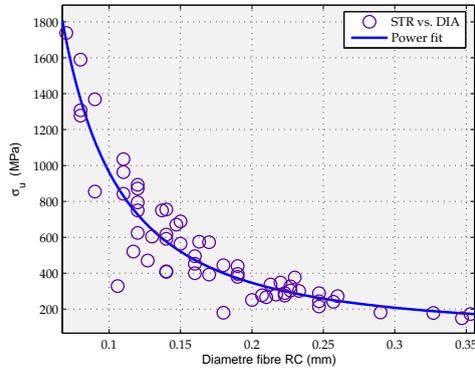


FIG. 3.25: Évolution de la résistance en fonction du diamètre

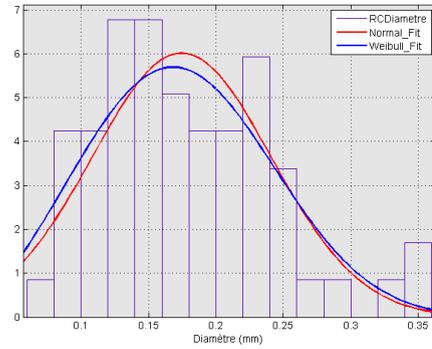


FIG. 3.26: Distribution des diamètres de la fibre RC

Le calcul des estimations de E_x et σ_u conduit sous Matlab fournit les résultats donnés aux équations (3.1) à (3.4).

$$P_{HAT}(\sigma_u) = \begin{pmatrix} \sigma_u \\ m_{\sigma_u} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 6.2429e + 002 \\ 1.6960e + 000 \end{pmatrix} \quad (3.1)$$

$$P_{CI}(\sigma_u) = \begin{bmatrix} 5,3211e + 002 & 1,4076e + 000 \\ 7,3243e + 002 & 2,0434e + 000 \end{bmatrix} \quad (3.2)$$

$$P_{HAT}(E) = \begin{pmatrix} E_x \\ m_{E_x} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 6,5201e + 003 \\ 1,7246e + 000 \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

$$P_{CI}(E) = \begin{bmatrix} 5,5735e + 003 & 1,4225e + 000 \\ 7,6274e + 003 & 2,0909e + 000 \end{bmatrix} \quad (3.4)$$

avec :

- ◇ P_{HAT} : estimation des paramètres (E_x ou σ_u),
- ◇ P_{CI} : intervalles de confiance à 95% des paramètres estimés, en colonne

Les valeurs $E_x=6,52e+003$ MPa est celle que nous utiliserons aux sections 4.2 et 4.3 pour évaluer les caractéristiques mécaniques des composites fabriqués à base des fibres RC ; et au chapitre 6, les valeurs des modules données dans le tableau 3.6 feront l'objet de comparaison avec les résultats de la modélisation numérique. Pour les deux échantillons de données traitées ici, la valeur $m < 2$ obtenue pour le module de Weibull confirme bien la grande dispersion des résultats d'essai. Le tableau 3.7 récapitule les caractéristiques des fibres RC à côté des autres fibres communément utilisées dans le renforcement des composites.

Fibre	Caractéristiques					
	ρ	ϵ_u	σ_u	E_x	Propriétés spécifiques	
	(g/cm ³)	(%)	(MPa)	(GPa)	E/ρ (MN m/kg)	σ_u/ρ (kN m/kg)
Cotton	1,5-1,6	7,0-8,0	287-597	5,5-12,6	3,66-8,4	191-398
Jute	1,3	1,5-1,8	393-773	26,5	20,38	302-594
Lin	1,5	2,7-3,2	345-1035	50-70	33,3-46,66	230-690
Sisal	1,3-1,45	1,6-2	80-840	9-22	6,76-16,64	61,5-646
Verre-E	2,5	2,5	2000-3500	70,0	22,5	686
Carbone	1,4	1,4-1,8	4000	230,0-240	164,3-171,4	890
RC	0,947	10,9-53	150-1738	2,3-17	2,55-18,8	159,5-1849

TAB. 3.7: Caractéristiques de la fibre RC comparées à celles d'autres fibres

3.10 Conclusion

Le champ d'exploration des fibres végétales pouvant être exploitées industriellement reste bien ouvert. Dans ce chapitre, nous avons eu l'occasion d'étudier en profondeur une nouvelle fibre végétale, le Rhectophyllum Camerunense. Entre autres, une meilleure connaissance de la microstructure et de la morphologie de la fibre nous a permis de mieux expliciter le comportement de ce matériau en traction. Ses propriétés mécaniques de base ont en outre été déterminées par une analyse statistique minutieuse. L'analyse biochimique de détermination des teneurs de ses composés, notamment le taux de cellulose de 68%, révèle qu'elle possède des atouts intéressants pour une utilisation mécanique. De plus grâce à sa masse volumique de 0,94 g/cm³, la plus faible de toutes les fibres jusque là étudiées, son fort taux d'allongement et sa grande résistance à la traction lui confèrent des avantages décisifs pour être utilisée comme renfort dans les composites. D'autres voies d'exploration de cette nouvelle fibre existent et incluraient notamment l'étude de son comportement thermique et ses possibles applications dans l'isolation. La compréhension de la manière dont la morphologie des fibres influe sur les propriétés des matériaux composites est essentielle pour l'industrie. Plus précisément elle est importante quant au choix de nouvelles fibres, quant aux orientations possibles de la culture des plantes fibreuses pouvant être génétiquement sélectionnées. Mais également, ceci permettrait de prédire leur potentialité de renforcement dans d'autres matériaux pour atteindre les propriétés désirées.

Chapitre 4

Mise en œuvre des composites et caractérisation

4.1 Introduction

Les chapitres 2 et 3 ont mis en relief la complexité de la microstructure des fibres végétales, laquelle affecte évidemment leurs propriétés mécaniques. Il y est également suggéré de recourir aux approches macro-micro pour parvenir à une estimation efficace des propriétés. Une telle approche est traitée au chapitre 5 et nécessite la mise en œuvre des composites et leur caractérisation. Sur la base de l'état de l'art présenté au chapitre 1, nous étudions dans ce paragraphe, les traitements chimiques de la surface des fibres (alcalisation et acétylation) contribuant à les rendre moins hydrophiles, favorisant ainsi une adhérence efficace entre fibre et matrice pour de tels composites. Les composites mats de fibres, faciles à mettre en œuvre, seront utilisés pour ce faire.

4.2 Composites mats de fibres courtes Sisal/Polyester

4.2.1 Mats

Des fibres non agglomérées étant en général encombrantes et difficiles à manipuler, des techniques appropriées pour relier sous forme de mats de fibres ont été développées. Le mat est donc un agglomérat de fibres coupées qui sont assemblées entre elles, sans orientation particulière, par un liant ou non. Le mat peut constituer le produit fini ou être une étape intermédiaire dans l'élaboration des composites comme c'est le cas dans ce chapitre. Le mat est utilisé lorsque l'on recherche une bonne résistance à la compression. Il permet également de monter rapidement en épaisseur, lorsque cela est nécessaire.

La technologie de l'élaboration des mats de fibres représente une excellente opportunité pour fabriquer des pièces de forme complexe avec épaisseur et densité uniformes. Ces mats peuvent être constitués de fibres courtes ou longues reliées entre elles au cours d'un ou plusieurs procédés dont le cardage, l'aiguilletage ou l'utilisation d'une matrice thermoplastique (à un très faible dosage).

- ◇ Dans le cas du *cardage*, les fibres sont peignées, mélangées et physiquement enchevêtrées entre elles sous forme de mat. Ces mats sont généralement de haute densité mais peuvent être réalisés à la densité désirée. On peut obtenir un alignement plus ou moins importante des fibres. Un alignement plus précis peut être obtenu par orientation des fibres par un champ magnétique [104] afin d'obtenir un composite unidirectionnel à fibres courtes.
- ◇ L'*aiguilletage* utilise une machine pour faire passer une toile aléatoirement obtenue à travers une planche d'aiguilles. Dans un tel mat les fibres sont enchevêtrées mécaniquement. Les toiles sont réalisées par une fibre longue ou par une combinaison de fibres courtes d'épaisseur et de densité uniformes. La densité d'un tel mat est contrôlée via la qualité de la fibre passant à travers l'aiguille ou par empilement des mats aiguilletés jusqu'à la densité souhaitée.
- ◇ Dans le cas du *mat thermoplastique*, les fibres sont tenues dans le mat par l'utilisation d'une résine thermoplastique thermiquement ramollie telle que le polypropylène (PP) ou le polyéthylène (PE). Ces mats peuvent être constitués de fibres courtes seules et posséder des épaisseur et densité uniformes. Il est possible d'y ajouter un adhésif de sorte que le mat puisse être comprimé ultérieurement dans un moule suivant une forme désirée.

4.2.2 Composites

Les résines thermodurcissables sont principalement utilisées dans la fabrication des panneaux de revêtement interne des portes de véhicules automobiles. Les fibres de jute, de chanvre et de lin sont actuellement les plus utilisées. On peut maintenant fabriquer des produits pour les murs, le sol, le plafond, des cadres de porte et fenêtre. On peut même teindre les fibres avant de les utiliser lors de la fabrication des mats pour le moulage des pièces.

En ce qui concerne le renforcement des thermoplastiques, l'emploi des agents de compatibilisation pour améliorer les propriétés mécaniques est généralement recommandé. Les différents procédés auxquels on recourt font appel au moulage par injection de résine liquide, LCM (Liquid Compound Molding). Qu'il s'agisse de la RTM (Resin Transfer Molding), la SRIM (Structural Resin Injection Molding), la RRIM (Reinforced Reaction Injection Moulding) ou la SMC (Sheet Moul-

ding Compound), on peut produire des pièces pour applications structurales ou non. Différentes études s'accordent sur le fait qu'un arrangement aléatoire des fibres dans le mat produit un composite quasi isotrope lorsqu'on considère un VER dont les fibres s'étendent jusqu'à ses extrémités [105].

4.2.3 Traitements surfaciques des fibres

4.2.3.1 Alcalinisation

Des fibres de sisal obtenues dans le commerce (SOCSUBA, Douala) ont été régulièrement découpées en morceaux de longueurs de 5 à 6 cm, puis trempées (dosage massique 1 :66) dans des solutions de 2%, 4% et 8% de soude (NaOH) contenues dans un récipient en acier inoxydable. Les solutions de soude étaient préparées avec de l'eau déminéralisée préalablement portée à ébullition. Le récipient en acier inox a été placé dans une étuve équipée d'un système de contrôle automatique de température, et maintenu à 80 °C pendant 3 heures. Les fibres ont ensuite été lavées abondamment à l'eau déminéralisée et séchées à 80 °C pendant 24 h (en moyenne).

4.2.3.2 Fibres non traitées

Des fibres courtes sont lavées à l'eau déminéralisée pour obtenir un dégraissage de base puis séchées à 80 °C dans une étuve dotée d'un système de contrôle de température dans la gamme de 20 °C à 250 °C et conservées à 27 °C avant imprégnation.

4.2.3.3 Acétylation

Des fibres de sisal ont été trempées pendant 5 minutes dans une solution à 18% de soude à température ambiante (25 °C environ) puis rincées abondamment à l'eau déminéralisée. Ces fibres ont ensuite été trempées dans une solution à 2,5% d'acide sulfurique pour obtenir une neutralisation de la fibre (alcaline), puis séchées à l'air libre pendant 15 minutes pour obtenir une réaction chimique complète à la surface. Elles sont enfin trempées pendant 5 minutes dans une solution à 50% d'acide acétique et rincées à l'eau déminéralisée [90]. Le seul catalyseur à notre disposition étant l'acide acétique, l'acétylation ne se produirait dans ces conditions que sur les groupements hydroxyles accessibles de la paroi, ce qui suppose une acétylation lente. D'après la référence [90], la teneur massique des groupements acétyls ainsi obtenue est de l'ordre de 1,6 à 2,4%.

Comme indiqué au paragraphe 3.5 seule la masse volumique des fibres non traitées a été déterminée par la méthode du pycnomètre utilisant le principe d'Archimède (par immersion d'une petite quantité de fibres de poids connu dans un liquide de plus faible densité). Cependant un traitement de compatibilisation tel qu'opéré ici conduit généralement à une diminution sensible de la masse volumique des fibres, celles-ci étant plus *propres* [91].

4.2.4 Fabrication des composites et caractérisation

4.2.4.1 Préparation de la résine

La matrice utilisée ici est une résine pour composite, le polyester (insaturé) Norsodyne S21150TA commercialisée par la société CRAY Valley (Rouvoy, France), de masse volumique 1,1-1,15 g/cm³ (ISO 2811), soluble dans un solvant organique (l'acétone par exemple). La résine polyester a été mélangée à un durcisseur ; le dosage volume durcisseur/résine est de 1/6 (préconisé par le fabricant).

4.2.4.2 Préparation des éprouvettes

Des mats de fibres ont été obtenus par aspersion manuelle régulière des fibres courtes sur une plaque en carton de 420x297 mm² puis pressées à 40 kg entre deux plaques rigides pour avoir une épaisseur uniforme sur toute la surface. Plusieurs mats (voir les figures 4.1(a) et 4.1(b)) de ce type ont été préparés pour chaque échantillon de fibres traitées comme indiqué au paragraphe 4.2.3. Afin d'estimer le taux de fibres, chaque échantillon de mat a été pesé sur une balance électronique de précision (0,01 g).



(a) Mat de fibres de Sisal



(b) Mat de fibres RC

FIG. 4.1: Mats de fibres végétales utilisés dans ce projet

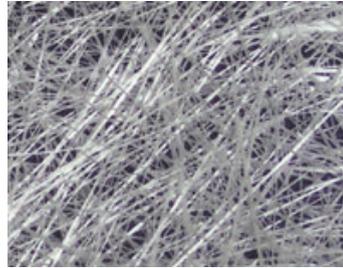


FIG. 4.2: Mats de fibres de verre dans le commerce

Pour fabriquer les plaques composites renforcées de mats de fibres courtes, des couches de résine et de mats de fibres ont été alternativement superposés et l'ensemble pris en sandwich entre 2 plaques de verre ($500 \times 500 \times 10 \text{ mm}^3$) dont la surface utile a été enduite de l'agent de démoulage Freekote 500 (ou de la cire d'abeilles). Les couches sont ensuite pressées à plus de 60 kg (une telle charge serait dommageable pour les fibres synthétiques, fibres de verre par exemple qui se briseraient dans ces conditions) et laissées en l'état à température de salle d'essai (25 °C environ) pendant 48 heures (temps de polymérisation complète). Le but visé ici était de maximiser les propriétés mécaniques du composite par un taux de fibres maximum. Trois couches de mats de fibres ont été utilisées pour chaque plaque, mais pesées au préalable pour évaluer le taux moyen de fibres. Le taux de porosité des plaques composites a été évalué à environ 5%. Les dimensions et la géométrie des éprouvettes découpées, à l'aide d'une scie en diamant montée sur une scie circulaire VARGA 1 ont été évaluées selon la norme NF EN ISO 527-4. Cinq éprouvettes de dimensions 250 mm de longueur et 25 mm de largeur (comme montré à la figure 4.3) ont été découpées de chaque plaque composite. Des talons ont été prévus à chaque extrémité pour assurer un amarrage suffisant pendant les essais.

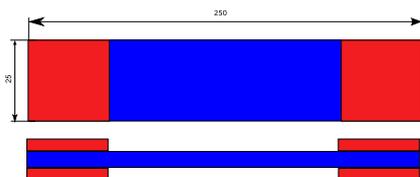


FIG. 4.3: Dimensions des éprouvettes selon la norme NF EN ISO 527-4

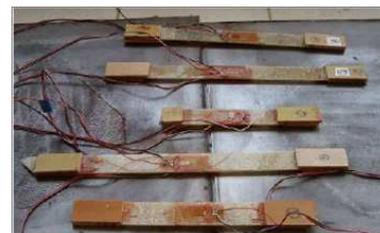


FIG. 4.4: Echantillon d'éprouvettes testées

4.2.4.3 Essai de traction

Afin d'évaluer l'influence des traitements annoncés au paragraphe 4.2.3 sur les propriétés mécaniques composites, les éprouvettes préparées ont subi un essai

de traction à l'aide d'une machine Zwick ZmartPro UTS20k dotée d'une interface PC et d'une chaîne d'acquisition de mesure pilotée par le logiciel TestXpert. Les éprouvettes ont été par conséquent équipées de jauges de déformation selon les besoins pour permettre la détermination du module d'Young et du coefficient de Poisson.

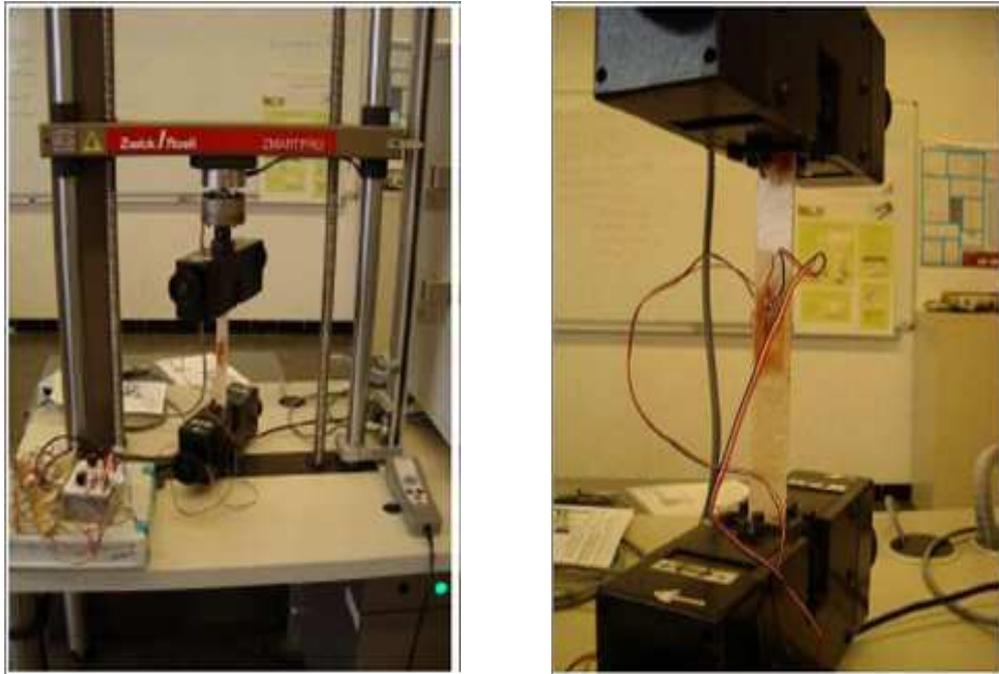


FIG. 4.5: Machine utilisée pour les essais de traction

4.2.5 Estimation des constantes élastiques

Le problème de la détermination des constantes élastiques d'un composite isotrope mat de fibres réparties aléatoirement a été traité par Christensen [105].

$$E = \frac{[E_{11} + 4(1 + \nu_{12})^2 K_{23}] [E_{11} + (1 - 2\nu_{12})^2 K_{23} + 6(\mu_{12} + \mu_{23})]}{3[2E_{11} + 3(8\nu_{12}^2 + 12\nu_{12} + 7) K_{23} + 2(\mu_{12} + \mu_{23})]} \quad (4.1)$$

et

$$\nu = \frac{E_{11} + 2E_{11} + 2(8\nu_{12}^2 + 12\nu_{12} + 3) K_{23} - 4(\mu_{12} + \mu_{23})}{2[2E_{11} + 3(8\nu_{12}^2 + 12\nu_{12} + 7) K_{23} + 2(\mu_{12} + \mu_{23})]} \quad (4.2)$$

avec :

$E_{11}, \nu_{12}, K_{23}, \mu_{12}, \mu_{23}$ les 5 constantes élastiques d'un matériau composite unidirectionnel et isotrope transverse, et exprimées en fonction des constantes élastiques des constituants et de leurs fractions volumiques dans le composite.

Le but visé étant d'évaluer l'influence du traitement appliqué aux fibres sur les propriétés du composite nous avons, par souci de simplification, considéré

que les fibres et la résine sont isotropes. Dans ces conditions, les cinq constantes élastiques sont exprimées par les équations (4.3)-(4.7) [105].

$$E_{11} = E^m (1 - \phi^f) + E^f \phi^f + \frac{4(\nu^f - \nu^m)^2 \phi^f (1 - \phi^f) G^m}{\frac{(1 - \phi^f) G^m}{k^f + \frac{G^f}{3}} + \frac{\phi^f G^m}{k^m + \frac{G^m}{3}}} \quad (4.3)$$

$$\nu_{12} = (1 - \phi^f) \nu^m + \phi^f \nu^f + \frac{(\nu^f - \nu^m) \phi^f (1 - \phi^f) \left(\frac{G^m}{k^m + \frac{G^m}{3}} - \frac{G^m}{k^f + \frac{G^f}{3}} \right)}{\frac{(1 - \phi^f) G^m}{k^f + \frac{G^f}{3}} + \phi^f G^m k^m + \frac{G^m}{3} + 1} \quad (4.4)$$

$$K_{23} = k_m + \frac{G^m}{3} + \frac{1}{1/\left[k^f - k^m + \frac{1}{3}(G^f - G^m)\right] + (1 - \phi^f)/(k^m + \frac{4}{3}G^m)} \quad (4.5)$$

$$\frac{G_{12}}{G^m} = \frac{(1 + \phi^f) G^f + (1 - \phi^f) G^m}{(1 - \phi^f) G^f + (1 + \phi^f) G^m} \quad (4.6)$$

$$\frac{G_{23}}{G_m} = 1 + \frac{\phi^f}{\frac{G^m}{G^f - G^m} + \frac{k^m + \frac{7}{3}G_m}{2k^m + \frac{8}{3}G_m}} \quad (4.7)$$

où ϕ^f représente le taux volumique de fibres. Les indices (exposants) (f) et (m) se rapportent à la fibre et à la matrice respectivement. Nous avons adopté une valeur de 0,25 pour le coefficient de Poisson du sisal en l'absence de toute information dans la littérature. Pour la résine polyester, les valeurs de $E^m=3,8$ GPa et $\nu^m=0,37$ tirées de la littérature [106] ont été utilisées. Le tableau 4.1 récapitule ces différentes constantes ayant servies aux calculs.

constituant	E (GPa)	ν
Fibres de sisal	9-22	0,25
Fibres RC	2-17	0,2
Polyester	3,8	0,37
Époxyde	4,5	0,38

TAB. 4.1: Propriétés des constituants

4.2.6 Influence comparée du renforcement

Nous souhaitons savoir si le renforcement avec les fibres RC permet d'obtenir de meilleures performances mécaniques que le renforcement avec le Sisal. A cet effet, nous avons fabriqué les composites mats de fibres Sisal/Époxyde et RC/Époxyde selon le protocole présenté au paragraphe 4.2.4. La résine époxyde utilisée ici est présentée au paragraphe 4.3.3.1. L'objectif étant d'établir une comparaison entre les 2 matériaux, nous nous sommes efforcés d'atteindre le même taux de fibres dans chaque cas. Il convient néanmoins de reconnaître que pour des mats confectionnés manuellement, cet objectif est pratiquement hors de portée.

Nous nous en sommes du reste rendu compte une fois les deux plaques composites fabriquées. Une machine de traction Zwick ZmartPro UTS20k, a permis de mesurer. Le tableau 4.2 présente les résultats du module d'Young et du coefficient de Poisson des éprouvettes, de ces composites, testées en traction.

Matériau	RC/Époxyde ($\phi^f = 0,14$)			
E (MPa)	3082,916	2961,929	2893,872	2705,633
ν	0,332	0,349	0,314	0,322
Matériau	Sisal/Époxyde ($\phi^f = 0,22$)			
E (MPa)	4337,699	4039,288	3973,573	4140,787
ν	0,375	0,383	0,367	0,350

TAB. 4.2: Caractéristiques comparées des composites mat RC/Époxyde et Si/Époxyde

En fait, les résultats obtenus par cette mise en œuvre ne permettent pas de se prononcer avec rigueur sur les performances comparées de l'une par rapport l'autre fibre.

4.2.7 Résultats et commentaires

La figure 4.6 montre le comportement élastique en traction sous charge modérée du composite Sisal/Polyester à 0% de NaOH (fibres non alcalinisées). La courbe représentée traduit une relation linéaire $\sigma - \epsilon$ (contrainte-déformation). Le module d'Young obtenu vaut 3715 MPa, valeur qui est très supérieure à celle rapportée dans la référence [91], avec un taux de fibre de 50%, un taux de porosité de 16,11%. Cette différence suggèrerait que le taux critique de fibres pour le renforcement de tels composites est inférieur à 50%. Du reste, on se rend compte qu'il est nécessaire de standardiser les méthodes de fabrication et d'essais des NFRCs afin de faciliter la comparaison des résultats des différents travaux. L'acétylation pratiquée ici sur des fibres conduit à un module d'Young moyen égal à 4105 MPa. On observe donc une augmentation de cette caractéristique suite à ce traitement.

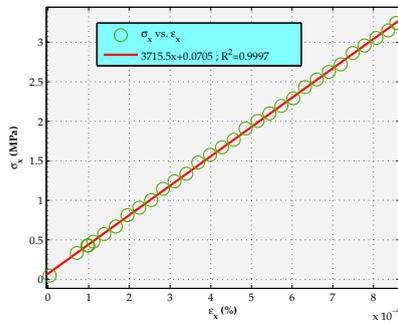


FIG. 4.6: Module d'Young d'une plaque composite renforcée de fibres de sisal

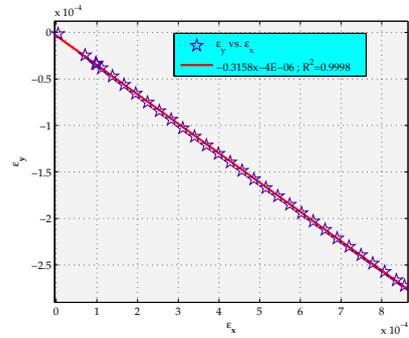


FIG. 4.7: Coefficient de Poisson d'une plaque composite renforcée de fibres de sisal

De même, la figure 4.7 traduit une relation linéaire entre les déformations longitudinales et transversales. Le coefficient de Poisson moyen obtenu expérimentalement vaut 0,32.

Dans le tableau 4.3 les valeurs d'essais des constantes élastiques sont comparées aux résultats fournis par la théorie de renforcement présentée au paragraphe 4.2.5. La valeur mesurée du module d'Young est très inférieure à la valeur théorique. Ceci pourrait s'expliquer par le fait que dans l'estimation théorique, le taux de porosité du composite n'a pas été pris en compte ; mais l'on pourrait tout aussi penser à la qualité de l'interface fibre/matrice supposée parfaite dans la modélisation ou à la valeur arbitrairement fixée de $\nu^m=0,25$. Du reste, des erreurs de mesures pourraient également être à l'origine de cet écart. La figure 4.8 traduit

Source	E (GPa)	ν
Essai	3,715	0,32
Théorie	4,686	0,35

TAB. 4.3: Constantes élastiques obtenues expérimentalement et par la théorie

l'influence de la concentration de NaOH sur le module d'Young de la plaque composite. On y relève notamment qu'une concentration de 8% de NaOH induit une augmentation de 50% du module d'Young. La résistance à la traction n'est pratiquement pas modifiée par le traitement alcalin avec la soude, car une valeur de 17 MPa a été trouvée autant pour le composite à fibres non traitées qu'avec des composites à fibres alcalinisées. Il apparaît donc nécessaire d'étudier la variation induite par la compatibilisation sur chaque caractéristique mécanique afin de tirer une conclusion de valeur.

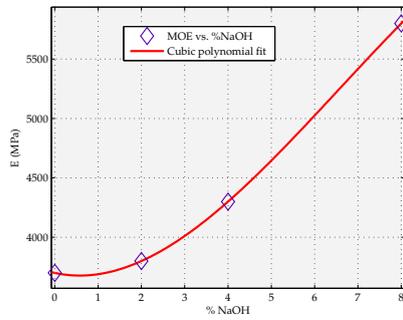


FIG. 4.8: Influence de la concentration de soude sur le module d'Young

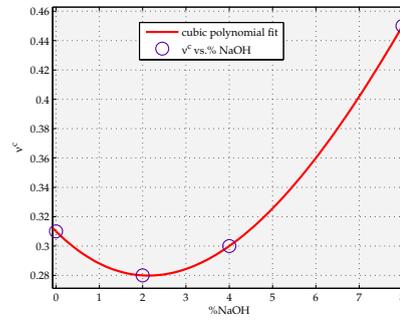


FIG. 4.9: Influence de la concentration de soude sur le coefficient de Poisson

4.2.8 Conclusion sur les composites mats Sisal/polyester

Cette première partie de ce chapitre, nous a permis d'étudier l'influence du traitement alcalin sur les propriétés mécaniques des composites mats de fibres courtes Sisal/Polyester. Des résultats satisfaisants ont été obtenus pour le module d'Young pour une concentration de 8% de NaOH. Nous avons en définitive retenu une concentration de 4% comme meilleur compromis entre l'amélioration des propriétés mécaniques et le démoulage. Cette concentration sera appliquée aux échantillons fabriqués par la suite, notamment au paragraphe 4.3. Comme mentionné dans la section 4.2.7, la résistance à la traction n'a connu aucune variation à la suite de la compatibilisation opérée. Ce résultat n'est pas en accord avec celui de la référence [36] rapportant une diminution de la résistance lorsque la concentration augmente. Il est donc nécessaire de standardiser les méthodes de fabrication et d'essais des NFRCs afin de faciliter la comparaison des résultats des différents travaux.

4.3 Composites Unidirectionnels Sisal/Époxyde et RC/Époxyde

4.3.1 Introduction

Le caractère anisotrope des fibres végétales s'impose à tous les niveaux d'échelle où elles peuvent être modélisées, depuis les microfibrilles de cellulose jusqu'au faisceau fibreux constitué de cellules unitaires. Il est donc nécessaire de tenir compte de cet aspect distinctif si l'on souhaite parvenir à une meilleure compréhension du comportement de ces fibres. L'essentiel de la connaissance que nous avons des matériaux de l'ingénieur se fonde sur l'expérimentation, et celle-

ci est constamment envisagée chaque fois que cela est possible. Cependant, lorsqu'on a affaire à des micromatériaux telles que des fibres par exemple, il devient difficile voire impossible de les caractériser entièrement par des moyens traditionnels. Diverses approches sont généralement utilisées pour contourner ce problème d'échelle. L'une d'elles, l'approche macro-micro (littéralement du plus grand au plus petit) peut être avantageusement utilisée. Dans ce paragraphe sur les composites unidirectionnels, nous nous attelons à fournir des données expérimentales pour alimenter une telle approche (explicitée au chapitre suivant) en vue de l'identification complète des propriétés élastiques des fibres de Sisal et de RC retenues dans ce projet.

4.3.2 Fondements de la démarche

Un composite unidirectionnel est constitué de fibres parallèles disposées dans une matrice (figure 4.10). Ce type de matériau constitue la configuration de base des matériaux composites à fibres, d'où l'importance de son étude. Le comportement élastique d'un tel matériau dépend en effet de la nature de ses constituants.

4.3.2.1 Composite orthotrope

Rigidités et souplesses. Le comportement élastique d'un matériau composite unidirectionnel orthotrope peut être décrit en introduisant soit les constantes de rigidité C_{ij} , soit les constantes de souplesse S_{ij} . La loi de Hooke $\sigma = \mathbb{C}\epsilon$ (ou l'inverse $\epsilon = \mathbb{S}\sigma$) s'écrit suivant l'une des deux formes matricielles, la forme directe :

$$\begin{Bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{Bmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{22} & C_{23} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{23} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66} \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} \epsilon_1 \\ \epsilon_2 \\ \epsilon_3 \\ \epsilon_4 \\ \epsilon_5 \\ \epsilon_6 \end{Bmatrix} \quad (4.8)$$

ou la forme inverse :

$$\begin{Bmatrix} \epsilon_1 \\ \epsilon_2 \\ \epsilon_3 \\ \epsilon_4 \\ \epsilon_5 \\ \epsilon_6 \end{Bmatrix} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{22} & S_{23} & 0 & 0 & 0 \\ S_{13} & S_{23} & S_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & S_{66} \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{Bmatrix} \quad (4.9)$$

Les matrices de rigidité et de souplesse sont inverses l'une de l'autre, et le comportement élastique d'un matériau composite est donc caractérisé par 9 coefficients indépendants :

$$C_{11}, C_{12}, C_{13}, C_{22}, C_{23}, C_{33}, C_{44}, C_{55}, C_{66},$$

ou les S_{ij} correspondants :

$$S_{11}, S_{12}, S_{13}, S_{22}, S_{23}, S_{33}, S_{44}, S_{55}, S_{66}.$$

Expressions des modules hors axes L'objectif ici est de caractériser les propriétés élastiques de la couche ou du stratifié, en les exprimant dans le système d'axes de référence du stratifié (x, y, z), la direction des fibres ou de la chaîne faisant un angle θ (figure 4.10) avec la direction x .

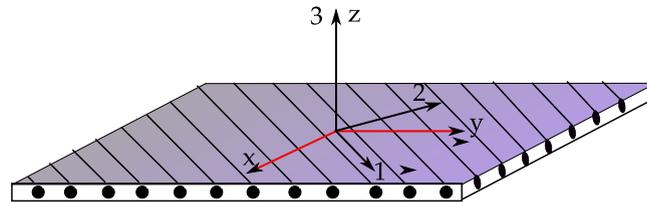


FIG. 4.10: Axes principaux (1, 2, 3) et axes de référence (x, y, z) du stratifié unidirectionnel.

◇ (x, y, z) : système de coordonnées cartésiennes du mécanicien (système de référence)

◇ (1,2,3) : système d'axes propre du matériau unidirectionnel.

Dans un essai de traction suivant la direction x , le module d'Young E_{xx} (ou E_x pour simplifier) est défini par l'équation (4.10).

$$\frac{1}{E_{xx}} = S_{11} \cos^4 \theta + S_{22} \sin^4 \theta + (2S_{12} + S_{66}) \sin^2 \theta \cos^2 \theta \quad (4.10)$$

ou en introduisant les modules d'élasticité du composite unidirectionnel orthotrope, mesurés suivant ses axes, E_{xx} est donné par

$$E_{11} = \frac{1}{S_{11}}, \quad \nu_{12} = \frac{-S_{12}}{S_{11}}, \quad E_{22} = \frac{1}{S_{22}}, \quad G_{12} = \frac{1}{S_{66}}$$

$$\frac{1}{E_{xx}} = \frac{1}{E_{11}} \cos^4 \theta + \frac{1}{E_{22}} \sin^4 \theta + \left(\frac{1}{G_{12}} - 2 \frac{\nu_{12}}{E_{11}} \right) \sin^2 \theta \cos^2 \theta \quad (4.11)$$

Ainsi d'après l'équation (4.11) la connaissance de E_{11} , E_{22} et $\left(\frac{1}{G_{12}} - 2 \frac{\nu_{12}}{E_{11}} \right)$ permet de déterminer E_{xx} quelle que soit la direction θ considérée.

Le problème inverse peut être posé comme suit : connaissant E_{xx} (mesures expérimentales) dans un certain nombre de directions θ , peut-on déterminer les

constantes élastiques des constituants, les fibres en l'occurrence ? La réponse est oui si l'on dispose des relations analytiques entre les modules d'élasticité, dans le système d'axes propre, défini ci-dessus. La modélisation analytique des propriétés homogènes (en terme de moyennes) d'un matériau composite qui sera traitée au chapitre 5 permet d'établir de telles relations dans un certain nombre de cas. Pour ce qui est de ce travail nous aborderons notamment le cas du composite à matrice isotrope et à fibres supposées orthotropes.

4.3.3 Fabrication des composites et caractérisation

4.3.3.1 Préparation de la résine

La matrice utilisée ici est une résine pour composite, l'époxyde SR5550 commercialisée par la société Sicomin Composites (CHATEAUNEUF LES MARTIGUES, France), de masse volumique $1,145 \text{ g/cm}^3$ à 20 °C (pycnomètre), préconisée dans les systèmes Bois/Époxyde. La résine époxyde a été mélangée au durcisseur SR5503 de masse volumique 1 g/cm^3 (préconisé pour la stratification et le collage); le dosage volume durcisseur/résine est de $1/3$ (préconisé par le fabricant). Avec ce mélange on obtient une masse volumique de $1,109 \text{ g/cm}^3$.

Constantes élastiques de la résine Afin d'obtenir les caractéristiques effectives de cette résine époxyde, 5 éprouvettes ont été moulées et soumises à l'essai de traction. Les données relatives à ces essais consignées dans le tableau 4.4 dont les valeurs moyennes sont $E^m=4,516 \text{ GPa}$ et $\nu^m=0,386$.

N°	1	2	3	4	5
E (GPa)	4,4	4,998	4,667	4,675	3,84
ν	0,383	0,383	0,397	0,386	0,382

TAB. 4.4: Données d'essais d'éprouvettes d'époxyde

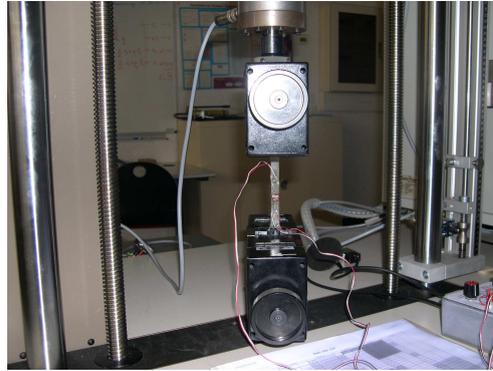


FIG. 4.11: Essai de traction d'une éprouvette en résine pure.

4.3.3.2 Traitement alcalin des fibres

Sur la base des résultats obtenus à la section 4.2, des fibres de sisal et de RC de 22 cm de long et plus ont été traitées comme décrit au paragraphe 4.2.3.1 dans des solutions de 4% de soude (NaOH) (dosage massique 1 :66). Rappelons la concentration de 4% a été retenue ici pour établir un compromis entre la purification de la surface et les éventuelles difficultés de démoulage.

4.3.3.3 Préparation des plaques à imprégner

L'objectif poursuivi est d'obtenir des spécimens composites unidirectionnels avec des orientations préférentielles, de 0° , 15° , 30° , 45° , 60° , 75° et 90° . Nous avons pour ce faire réalisé à l'aide du logiciel de DAO Autocad, des esquisses sur papier de plaques, selon les angles définis, que nous avons collées sur les plaques de verre. En raison de la transparence de ce dernier il était ensuite facile d'enrouler manuellement des fibres sur la face opposée de la plaque de verre en respectant les directions prédéfinies. La figure 4.12 illustre clairement la description qui vient d'être faite.



FIG. 4.12: Enroulement des fibres sur les supports en verre.

4.3.3.4 Méthode d'imprégnation

La plaque de verre enroulée de fibres de sisal ou du RC est placée sur une étagère prévue dans un bécher de capacité 500 ml rempli de résine époxyde fraîchement mélangée au durcisseur. On pose une plaque en bois (avec trous d'aération) à l'ouverture du bécher qui est à son tour introduit dans un sac plastique de mise sous vide étirable. L'ensemble est alors introduit dans une machine de mise sous vide. On vient faire le vide jusqu'à la pression de -5 mbar. La machine à vide utilisée permet la fermeture automatique par plastification à chaud, du sac plastique dont le contenu, restant bien entendu dans l'état de vide créé, est légèrement balancé pour permettre à la plaque de verre de tomber dans le bain. On porte enfin le bain à la température atmosphérique en perçant le sac plastique de façon à permettre à la résine de mieux fluer et ainsi de supprimer les défauts tels que bulles ou manques ; la plaque enroulée de fibre séjourne dans le bain de résine pendant 15 min [107] à la pression atmosphérique. Les images présentées aux figures 4.13 et 4.14 à 4.20 reconstituent cette description.

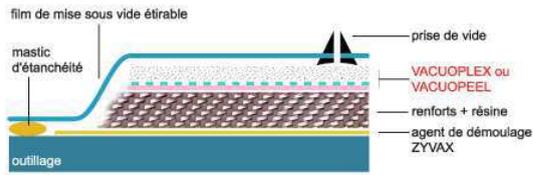


FIG. 4.13: Schéma du principe de mise sous vide des plaques à imprégner.



FIG. 4.14: Mise sous vide : étape 1.



FIG. 4.15: Mise sous vide : étape 2.



FIG. 4.16: Mise sous vide : étape 3.



FIG. 4.17: Mise sous vide : étape 4.



FIG. 4.18: Mise sous vide : étape 5.

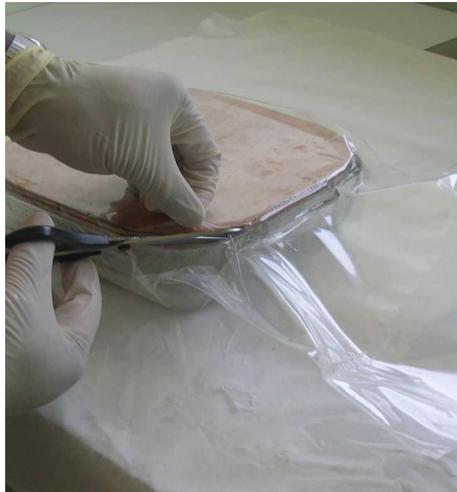


FIG. 4.19: Mise sous vide : étape 6.

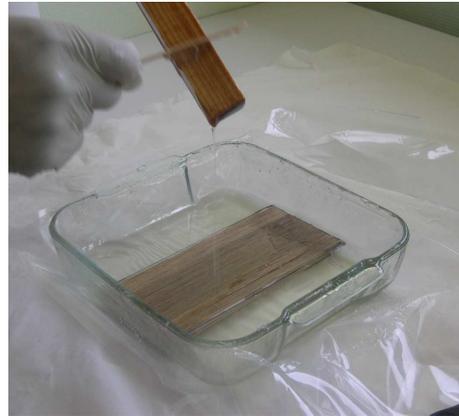


FIG. 4.20: Mise sous vide : étape 7.

Les fibres ainsi imprégnées sont prises en sandwich entre 2 plaques de verre pressées l'une sur l'autre pour chasser l'excès de résine et obtenir une épaisseur constante de l'échantillon composite fabriqué. L'ensemble est enfin laissé en cuisson, à température de salle, pendant 48 heures pour permettre une polymérisation complète de la résine.

De même, pour estimer le taux de fibres, chaque plaque enroulée de fibres a été pesée avant son imprégnation et après cuisson de la résine, sur une balance électronique de précision.

Il convient de noter que la méthode classique consistant à dissoudre la résine du composite pour déterminer le taux de fibres n'est pas applicable aux fibres végétales. Ceci est notamment dû au risque très élevé de dégradation totale de ces fibres durant les manipulations. D'autres méthodes ont été testées par certains auteurs, notamment celle basée sur le taux d'humidité absorbée par le composite [107] et n'ont cependant pas pu être expérimentées dans ce projet.

4.3.3.5 Préparation des éprouvettes

Selon la norme NF EN ISO 527-4, 3 à 5 éprouvettes de dimensions 150x20x2 mm³ en moyenne (comme montré à la figure 4.21) ont été découpées de chaque plaque composite à l'aide d'une scie en diamant montée sur une scie circulaire VARGA 1. Des talons ont été prévus à chaque extrémité pour assurer un amarrage suffisant pendant les essais.

4.3.3.6 Essais mécaniques

Les éprouvettes ont été munies de jauges de déformation, selon les besoins, pour permettre la détermination du module d'Young et du coefficient de Poisson. Avec les éprouvettes à 45° en particulier, le module de cisaillement longitudinal G_{xy} peut également être déterminé par la mesure des déformations longitudinale et transversale. Des essais de traction ont été réalisés sur la machine Zwick ZmartPro UTS20k déjà présentée au paragraphe 4.2.4.3 et les résultats obtenus sont consignés dans les tableaux 4.5 et 4.6.



FIG. 4.21: Préparation des éprouvettes unidirectionnelles.

caract	Angles														
	0°				15°				30°						
E_p	1,366	2,353	1,696	2,082	1,28	1,34	1,307	1,27	1,323	1,35	1,19	1,687	1,623	1,623	1,47
ϕ^f	0,16	0,157	0,322	0,16	0,253	0,315	0,253	0,315	0,315	0,315	0,104	0,286	0,286	0,286	0,286
E_{xx} (GPa)	2,94	2,88	2,82	2,53	3,01	3,02	2,72	2,57	3,66	3,11	2,89	2,90	2,83	2,84	2,77

caract	45°				60°				75°				90°		
	E_p	2,72	2,61	2,73	2,807	1,91	1,737	1,583	1,523	1,5	1,57	2,283	2,19	2,153	
ϕ^f	0,176	0,176	0,176	0,176	0,282	0,282	0,282	0,31	0,31	0,31	0,157	0,157	0,157		
E_{xx} (GPa)	2,61	3,20	2,99	2,29	2,35	1,48	2,46	1,58	2,34	1,85	2,09	2,21	2,08		
ν_{xy}	0,255	0,435	0,323	0,433											
G_{xy} (GPa)	2,08	2,23	2,26	1,60											

TAB. 4.5: Données d'essais de traction des spécimens composites RC/Époxyde

4.3.4 Résultats et discussion

Les figures 4.22 et 4.23 renseignent sur l'évolution du module d'Young en fonction de l'angle de direction des fibres des composites Si/Époxyde et RC/Époxyde respectivement. On s'attend évidemment à ce que le module diminue avec l'augmentation de l'angle. Les données relatives au composite Si/Époxyde offrent

caract	Angles										
	0°			15°			30°				
Ep	1,149	1,21	1,233	2,25	2,357	2,213	2,103	2,033	2,01	1,95	
ϕ_f^f	0,390	0,390	0,390	0,241	0,241	0,241	0,334	0,334	0,334	0,334	
E_{xx} (GPa)	6,92	7,42	6,29	3,51	5,07	4,93	3,56	3,41	3,09	3,56	
	45°			60°			75°		90°		
Ep	2,72	2,807	2,61	2,73	2,177	2,093	2,557	2,223	2,24	1,257	1,307
ϕ_f^f	0,321	0,321	0,321	0,321	0,294	0,294	0,294	0,27	0,27	0,364	0,364
E_{xx} (GPa)	2,71	2,60	2,42	2,85	2,14	2,30	2,59	2,74	2,26	2,89	2,38
ν_{xy}	0,333	0,513	0,439	0,395							
G_{xy}	2,03	1,72	1,68	2,04							

TAB. 4.6: Données d'essais de traction des éprouvettes composites Sisal/Époxyde

une allure plus conforme au résultat attendu que celles relatives au composite RC/Époxyde.

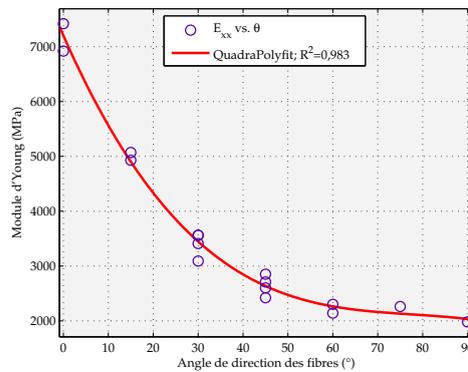


FIG. 4.22: Evolution du module d'Young E_{xx} du matériau Si/Époxyde en fonction de l'angle θ

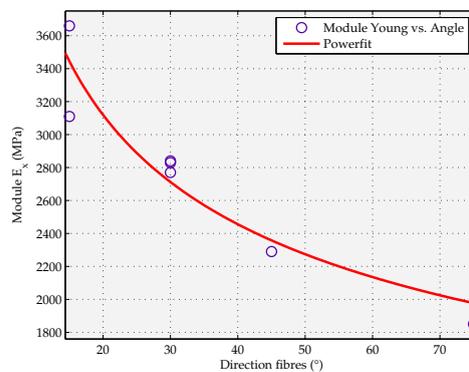


FIG. 4.23: Evolution du module d'Young E_{xx} du matériau RC/Époxyde en fonction de l'angle θ

La dispersion sur ces données est attribuable en grande partie aux conditions de mise en œuvre. En effet il est apparu pendant les essais que les fibres de RC utilisées ici étaient plus sujettes au gondolement que celles du sisal lors de l'en-

roulement sur les plaques de verre. Nous savons d'une manière générale que les essais de traction du composite UD produisent de bons résultats lorsque les fibres sont toutes "tendues" et parallèles dans la matrice. Les données utilisées dans la courbe de la figure 4.23 sont celles qui renseignent le mieux sur le comportement attendu. Ces données seront utilisées dans le chapitre 6 pour une estimation théorique des constantes élastiques des fibres.

Troisième partie

Mécanique des matériaux hétérogènes et modélisation

Chapitre 5

Caractérisation de l'anisotropie élastique des fibres végétales

5.1 Introduction

La modélisation d'un matériau est un moyen d'estimer son comportement et les lois qui le régissent. Il existe de nombreuses possibilités de modélisation qu'elles soient analytiques, numériques, statistiques ou autres. Ce chapitre se décompose en une revue bibliographique avec présentation des différents types de modèles ou approches utilisés pour les matériaux composites et une présentation des théories qui s'y rattachent. Par la suite, nous allons exposer le modèle analytique développé pour décrire le comportement des NFRCs à température ambiante, en vue de parvenir à une meilleure approche de la définition de leur anisotropie élastique. La connaissance des diverses approches de modélisation, choisies par les nombreux auteurs qui se sont préoccupés des matériaux composites, peut sembler un peu fastidieuse. Néanmoins, il nous paraît indispensable de présenter ces nombreuses possibilités qui traduisent à la fois l'intérêt, la complexité du matériau et aussi les difficultés rencontrées lors de la modélisation de phénomènes réels. De plus, l'aspect innovant des matériaux NFRCs nous a conduit à puiser largement dans ces différentes approches que ce soit pour élaborer nos propres modèles ou bien pour argumenter notre discussion.

Classiquement, les matériaux composites sont définis comme la constitution de l'assemblage de deux matériaux de natures différentes, se complétant et permettant d'aboutir à un matériau dont l'ensemble des performances est supérieur à celui des composants pris séparément [106]. D'une manière générale on distingue deux phases : une phase continue appelée matrice et une phase discontinue appelée renfort ou matériau renforçant. Les matériaux qui nous concernent sont les composites à matrice organique et plus précisément les matériaux compo-

sites à fibres. La matrice est considérée comme le constituant qui enrobe les fibres. Ces dernières agissent comme un renfort dont l'orientation détermine l'anisotropie du matériau. Cet aspect constitue une des caractéristiques fondamentales des matériaux composites.

L'étude du comportement mécanique d'un matériau composite passe généralement par l'utilisation du concept d'homogénéisation. Ce concept permet de contourner les problèmes liés aux hétérogénéités. L'hypothèse essentielle est celle de la continuité. On idéalise la constitution réelle du matériau en le considérant continu. Les propriétés ponctuelles du matériau varient de manière discontinue aux interfaces de passage entre les diverses phases, en supposant, comme expliqué auparavant, chaque phase homogène et isotrope. Dans le cas de matériaux composites où l'une des deux phases est dispersée dans l'autre, il existe souvent une dimension caractéristique de l'hétérogénéité qui, dans le cas des composites à fibres, est la distance moyenne entre les fibres. Il existe aussi une échelle de dimension δh à partir de laquelle les propriétés du matériau peuvent être estimées sous forme de moyennes avec une bonne approximation. Cela revient à considérer que la mesure d'une propriété sur un échantillon de cette dimension δh est indépendante de la localisation spatiale de ce dernier dans le matériau. On parle alors d'homogénéité macroscopique ou d'homogénéité statistique. Le volume de dimension δh est nommé Volume Élémentaire Représentatif (VER) du matériau. La définition de la contrainte moyenne et de la déformation moyenne sur le VER nous donne la possibilité d'explicitier les constantes de rigidité et de souplesse. La difficulté majeure réside dans le fait qu'il faut trouver au préalable les solutions exactes des champs de contraintes et de déformations en chaque point du matériau hétérogène.

L'homogénéisation peut s'effectuer sous différentes formes que sont les méthodes empiriques, analytiques, numériques, statistiques ou une combinaison de ces dernières appliquées aux théories d'élasticité, de viscoélasticité, de plasticité ou autres. Les études scientifiques, sur les matériaux composites à renforts fibreux cellulosiques ou autres, couvrent toutes ces approches qui sont plus ou moins complexes. De plus, les composites fibres végétales/polymères peuvent aussi être considérés dans de nombreux cas comme des milieux poreux. Les milieux poreux font aussi l'objet d'approches spécifiques qui permettent de mieux tenir compte de leurs caractéristiques. Les modélisations existantes sont multiples mais sont souvent, dans le cas des composites, très spécialisées. En effet, les composites unidirectionnels à renfort fibreux sont probablement les plus étudiés, malgré cela le renfort fibreux n'est pas supposé posséder une architecture propre (réseau tridimensionnel) capable d'influer fortement sur les propriétés du matériau. Il est plus souvent question de modéliser des inclusions prises dans une

matrice homogène. Étant donné la complexité et la diversité des composites fibres végétales/polymères en général, et de ceux conçus lors de ce projet, il semble nécessaire de présenter les approches susceptibles d'apporter des solutions à notre démarche de modélisation.

Dans un premier temps, nous allons nous attarder sur les modèles analytiques simples qui sont proposés dans la plupart des études sur les composites à renforts. La théorie des stratifiés ne sera pas explicitement abordée dans ce cadre. De plus, il sera question d'appliquer cette théorie aux NFRCs. Puis, nous présenterons dans un prochain chapitre (le chapitre 6) certaines possibilités de modélisation numérique prenant en compte cette théorie. Enfin, ce chapitre s'achèvera par une présentation de la méthode inverse d'identification basée sur le modèle du continu à assemblage cylindrique, initialement proposé par Hashin [108], pour caractériser l'anisotropie des fibres végétales.

5.2 Modélisation analytique prédictive des propriétés d'un matériau composite

Cette partie traite de l'évaluation des modèles permettant de prédire la rigidité des composites renforcés de fibres courtes. Le but de cette partie est de passer en revue la littérature relative à la micro-mécanique et de fournir une évaluation critique des modèles disponibles. Mais les composites unidirectionnelles (UD) sont souvent utilisés comme prélude à la modélisation de comportement plus complexes. Ainsi nous nous focalisons sur les composites UD, à longueur et propriétés mécaniques uniformes. Nous imposons certains critères généraux aux modèles devant figurer dans la présente revue, notamment que ceux-ci doivent intégrer les propriétés des fibres et matrices permettant de prédire un ensemble de constantes élastiques relatives aux composites. Tout modèle ne respectant pas ces critères n'a pas été pris en compte ici. Tous ces modèles se fondent sur les principes de base suivant :

- ◇ Les fibres et matrice sont à comportement linéaire élastique, la matrice est isotrope et les fibres sont soit isotropes soit orthotropes.
- ◇ Les fibres sont axisymétriques, identiques en forme et dimensions et peuvent être caractérisées par leur ratio d'aspect ℓ/d .
- ◇ Les fibres et matrice sont conventionnellement liées à leur interface et conservent cette situation au cours de la déformation. Nous ne traitons donc pas de la décohésion interfaciale, du déchaussement fibre/matrice et ou de la microfissuration de la matrice.

La section 5.2.1 traite des préliminaires sur les tenseurs de concentration des contraintes et leurs relations à la rigidité du composite. La section 5.2.2 passe en revue les diverses théories, compare et évalue les modèles disponibles.

5.2.1 Préliminaires

5.2.1.1 Notation

- ◇ vecteurs : caractères romains minuscules,
- ◇ tenseurs d'ordre 2 : caractères romains majuscules ; vecteurs et tenseurs seront en gras si possible, et les caractères indicés seront utilisés là où ce sera nécessaire.
- ◇ indice/exposant f : appliqué aux quantités relatives aux fibres,
- ◇ indice/exposant m : appliqué aux quantités relatives à la matrice.

5.2.1.2 Contraintes et déformations moyennes

\mathbf{X} désigne le vecteur position au point M .

Lorsqu'un matériau composite est sollicité, les champs de contraintes $\sigma(\mathbf{X})$ et de déformation $\epsilon(\mathbf{X})$ au point considéré seront non uniformes à l'échelle microscopique. La recherche d'une solution exacte à ces champs est un problème complexe à résoudre. Cependant, on peut obtenir d'excellents résultats en termes de contrainte et déformation moyennes. Nous définissons ces moyennes dans le paragraphe suivant.

Considérons un volume représentatif moyen (Ω). Ce volume (Ω) est choisi suffisamment grand pour contenir beaucoup de fibres, mais petit à toute échelle de longueur pour laquelle les changements ou déformations moyennes peuvent varier. La contrainte volumique moyenne $\bar{\sigma}$ est définie comme la moyenne à travers le volume (Ω) de la contrainte $\sigma(\mathbf{X})$ au point M :

$$\bar{\sigma} = \frac{1}{\Omega} \int_{(\Omega)} \sigma(\mathbf{X}) d\Omega \quad (5.1)$$

La déformation moyenne $\bar{\epsilon}$ est définie de la même manière, mutatis mutandis. Il est aussi nécessaire de définir les contraintes et déformations volumiques moyennes des deux phases fibre et matrice constituant le composite. Il convient pour cela de partitionner le volume moyen (Ω) en volumes (Ω^f) occupé par les fibres et (Ω^m) occupé par la matrice. Nous écrirons donc dans le cas des composites à deux phases que :

$$\Omega = \Omega^f + \Omega^m \quad (5.2)$$

Les tenseurs en fibres et matrice sont simplement exprimées par $\phi^f = \frac{\Omega^f}{\Omega}$ et $\phi^m = 1 - \phi^f = \frac{\Omega^m}{\Omega}$. Etant donné qu'il n'y a que deux phases, on a : $\phi^f + \phi^m = 1$.

Les contraintes moyennes dans les fibres et la matrice sont les moyennes sur les volumes correspondants :

$$\bar{\sigma}^f = \frac{1}{\Omega^f} \int_{(\Omega^f)} \sigma(\mathbf{X}) d\Omega \quad \bar{\sigma}^m = \frac{1}{\Omega^m} \int_{(\Omega^m)} \sigma(\mathbf{X}) d\Omega \quad (5.3)$$

Les déformations moyennes de la fibre et de la matrice sont définies de la même façon. Les relations entre les moyennes sur les fibres et la matrice et la moyenne globale sur le composite peuvent être tirées des définitions précédentes et s'écrivent :

$$\bar{\sigma} = \phi^f \bar{\sigma}^f + \phi^m \bar{\sigma}^m \quad (5.4a)$$

$$\bar{\epsilon} = \phi^f \bar{\epsilon}^f + \phi^m \bar{\epsilon}^m \quad (5.4b)$$

Un résultat important lié aux définitions précédentes (5.4a) et (5.4b) est le théorème de la déformation moyenne. En effet, considérons que le volume représentatif Ω subit un déplacement surfacique $u^0(\mathbf{X})$ compatible avec une déformation uniforme ϵ^0 . Alors la déformation moyenne dans la région considérée est :

$$\bar{\epsilon} = \epsilon^0 \quad (5.5)$$

Ce théorème peut être démontré en écrivant la définition du tenseur de déformation $\tilde{\epsilon}$ en termes de vecteur déplacement u introduit dans la définition de la déformation moyenne $\bar{\epsilon}$, et en appliquant le théorème de Gauss (théorème de la divergence). Le résultat est :

$$\bar{\epsilon}_{ij} = \frac{1}{2} \left[\frac{1}{\Omega} \int_{\partial\Omega} (u_i^0 n_j + u_j^0 n_i) dS \right] \quad (5.6)$$

avec :

- ◇ $S = \partial\Omega$: surface ou frontière de Ω
- ◇ \mathbf{n} : normale unitaire extérieure à $\partial\Omega$.

La déformation moyenne à travers le volume Ω est entièrement déterminée si l'on connaît les champs de déplacement sur la frontière de ce volume. En effet, les déplacements compatibles avec une déformation uniforme produisent une valeur identique de la déformation moyenne. Un corollaire de ce principe est que si nous définissons une perturbation $\epsilon^c(\mathbf{X})$ comme la différence entre la déformation locale et la déformation moyenne,

$$\epsilon^c(\mathbf{X}) = \epsilon(\mathbf{X}) - \bar{\epsilon} \quad (5.7)$$

alors la moyenne de $\epsilon^c(\mathbf{X})$ doit être égale à zéro.

$$\bar{\epsilon}^c = \frac{1}{\Omega} \int_{\Omega} \epsilon^c(\mathbf{X}) d\Omega = 0 \quad (5.8)$$

Le théorème homologue pour la contrainte moyenne tient tout autant. Ainsi, lorsque des tractions de surface compatibles avec σ^0 sont exercées sur $\partial\Omega$, alors la contrainte moyenne est

$$\bar{\sigma}^0 = \sigma^0 \quad (5.9)$$

5.2.1.3 Propriétés moyennes et localisation des déformations

Le but des modèles micromécaniques est de prédire les propriétés élastiques moyennes du composite ; cependant ces dernières méritent d'être convenablement définies. Nous suivons ici une approche directe [109]. Le volume représentatif correspondant (Ω) étant soumis à des déplacements surfaciques compatibles avec une déformation moyenne ϵ^0 , la rigidité moyenne du composite est le tenseur \mathbb{C} qui lie cette déformation uniforme à la contrainte moyenne. L'équation (5.4a) permet d'écrire :

$$\bar{\sigma} = \mathbb{C}\bar{\epsilon} \quad (5.10)$$

La souplesse moyenne \mathbb{S} est définie de la même façon en appliquant des tractions compatibles avec une contrainte uniforme σ^0 sur la frontière du volume représentatif moyen. Et le recours à l'équation (5.10) donne :

$$\bar{\epsilon} = \mathbb{S}\bar{\sigma} \quad (5.11)$$

Il est bien entendu que $\mathbb{S} = \mathbb{C}^{-1}$. D'autres auteurs définissent les rigidités et souplesses moyennes comme l'intégrale de l'énergie de déformation à travers (Ω). Cette façon de faire est équivalente à l'approche directe [109, 110]. Un important concept relatif a été préalablement introduit par Hill [110]. Il repose sur les notions de tenseurs de localisation des déformations et de concentration des contraintes \mathbb{A} et \mathbb{B} . Ceux-ci sont essentiellement des ratios entre la contrainte (déformation) moyenne des fibres et la moyenne correspondante dans le composite. Plus précisément :

$$\bar{\epsilon}^f = \mathbb{A}\bar{\epsilon} \quad (5.12)$$

$$\bar{\sigma}^f = \mathbb{B}\bar{\sigma} \quad (5.13)$$

avec :

- ◇ \mathbb{A} : tenseur de localisation des déformations
- ◇ \mathbb{B} : tenseur de concentration des contraintes

\mathbb{A} et \mathbb{B} sont des tenseurs d'ordre quatre. Ils découlent d'une solution sur les champs de contraintes (déformations) microscopiques. Divers modèles micromécaniques permettent d'approximer \mathbb{A} et \mathbb{B} de différentes manières. Notons que \mathbb{A} et \mathbb{B} comportent des symétries mineures provenant des tenseurs de rigidité et de souplesse, c'est-à-dire :

$$A_{ijkl} = A_{jikl} = A_{ijlk},$$

mais en général,

$$A_{ijkl} \neq A_{klij}$$

Par convenance, il serait bon de disposer d'un tenseur de localisation des déformations $\hat{\mathbb{A}}$ reliant la déformation moyenne de la fibre à la déformation moyenne de la matrice,

$$\bar{\epsilon}^f = \hat{\mathbb{A}}\bar{\epsilon}^m \quad (5.14)$$

lequel est lié à \mathbb{A} par :

$$\mathbb{A} = \hat{\mathbb{A}}[(1 - \phi^f)\mathbb{I} + \phi^f\hat{\mathbb{A}}]^{-1} \quad (5.15)$$

de sorte que les deux formes soient facilement interchangeables. L'utilisation des différentes équations à notre disposition permet d'exprimer la rigidité du composite en fonction du tenseur de localisation des déformations \mathbb{A} et des propriétés des fibres et matrices [110]. La combinaison des équations (5.1), (5.4a), (5.4b), (5.10) et (5.12) donne :

$$\mathbb{C} = \mathbb{C}^m + \phi^f(\mathbb{C}^f - \mathbb{C}^m)\mathbb{A} \quad (5.16)$$

La forme duale de l'équation (5.16) pour la souplesse est :

$$\mathbb{S} = \mathbb{S}^m + \phi^f(\mathbb{S}^f - \mathbb{S}^m)\mathbb{B} \quad (5.17)$$

Les équations (5.16) et (5.17) ne sont pas indépendantes étant donné que $\mathbb{S} = (\mathbb{C})^{-1}$. Ainsi, le tenseur de localisation des déformations \mathbb{A} et le tenseur de concentration des contraintes \mathbb{B} ne sont pas non plus indépendantes. L'utilisation de l'une ou l'autre est dès lors une question de convenance. Pour illustrer l'utilisation des tenseurs de localisation des déformations et de concentration des contraintes, notons que la moyenne définie par Voigt repose sur l'hypothèse que la fibre et la matrice subissent toutes deux la même déformation uniforme. Ainsi, $\bar{\epsilon}^f = \bar{\epsilon}^m$, $\mathbb{A} = \mathbb{I}$ et l'équation (5.16) de la rigidité du composite se réécrit :

$$\mathbb{C}^{Voigt} = \mathbb{C}^m + \phi^f(\mathbb{C}^f - \mathbb{C}^m) = \phi^f\mathbb{C}^f + \phi^m\mathbb{C}^m \quad (5.18)$$

Rappelons que la moyenne selon Voigt est la borne supérieure de la rigidité du composite. La moyenne selon Reuss repose sur l'hypothèse que la fibre et la matrice subissent la même contrainte uniforme. Le tenseur de concentration des contraintes \mathbb{B} est alors égal au tenseur unité \mathbb{I} , et l'équation (5.17) se réécrit :

$$\mathbb{S}^{Voigt} = \mathbb{S}^m + \phi^f(\mathbb{S}^f - \mathbb{S}^m) = \phi^f\mathbb{S}^f + \phi^m\mathbb{S}^m \quad (5.19)$$

cette équation (5.19) permet de définir une borne inférieure de la rigidité du composite.

5.2.2 Approches théoriques

5.2.2.1 Inclusion équivalente d'Eshelby

Un résultat fondamental utilisé dans plusieurs modèles est basé sur l'inclusion équivalente d'Eshelby [111, 112]. Eshelby a résolu le champ de contrainte

élastique σ à l'intérieur et autour d'une particule ellipsoïdale incluse dans une matrice infinie. En considérant que la particule en question est une ellipsoïde de révolution, on peut utiliser le résultat d'Eshelby pour modéliser les champs de contraintes ou de déformation autour d'une fibre cylindrique.

Eshelby a tout d'abord posé et résolu un autre problème, celui d'une inclusion homogène. Considérons un volume solide infini de rigidité \mathbb{C}^m , initialement non sollicité. Toutes les déformations subséquentes seront mesurées à partir de cet état. Une région particulière de ce solide sera appelée inclusion et le reste sera appelé matrice. Supposons que l'inclusion subisse une transformation telle que si elle était un solide isolé, elle se déformerait uniformément de ϵ^T , sans traction de surface. ϵ^T est appelée déformation de transformation. Cette déformation devrait être acquise dans une phase de transformation ou à travers une combinaison de changements de température et divers coefficients d'expansion dans l'inclusion. En fait, l'inclusion est liée à la matrice de telle sorte que lorsque la transformation se produit, l'ensemble développe une déformation complexe $\epsilon^c(\mathbf{X})$ relative à sa forme avant la transformation. Dans la matrice, la contrainte σ^m est simplement le produit tensoriel de la rigidité et de cette déformation :

$$\sigma^m(\mathbf{X}) = \mathbb{C}^m \epsilon^c(\mathbf{X}) \quad (5.20)$$

Mais dans l'inclusion, la déformation de transformation ne contribue pas à la contrainte, de sorte que la contrainte de l'inclusion est donnée par :

$$\sigma^I = \mathbb{C}^m (\epsilon^c - \epsilon^T) \quad (5.21)$$

Le résultat clé d'Eshelby a été que dans une inclusion ellipsoïdale, la déformation ϵ^c est uniforme et est reliée à la déformation de transformation par :

$$\epsilon^c = \mathbb{E} \epsilon^T \quad (5.22)$$

\mathbb{E} est appelé tenseur d'Eshelby, Il ne dépend que du ratio d'aspect de l'inclusion et des contraintes élastiques dans la matrice. Des applications détaillées sont données par Mura dans la référence [113]. Les expressions analytiques du tenseur d'Eshelby dans le cas d'une inclusion ellipsoïdale dans une matrice isotrope apparaissent dans plusieurs références [114, 115, 116, 117, 118]. Le champ des déformations $\epsilon^c(\mathbf{X})$ dans la matrice est uniforme [119], mais cette partie très complexe de la solution peut être ignorée.

Une seconde étape dans l'approche est d'établir une équivalence entre le problème de l'inclusion homogène et celui d'une inclusion non homogène de même forme. Considérons en effet deux corps infini de matrice. L'un a une inclusion homogène avec une déformation de transformation ϵ^T et l'autre a une inclusion

de rigidité \mathbb{C}^f , sans aucune déformation de transformation. Appliquons une déformation uniforme à l'infini ϵ^A . Nous désirons trouver la déformation de transformation ϵ^T qui induit les mêmes distributions de contrainte et de déformation dans les deux cas.

Pour le premier problème, la contrainte dans l'inclusion est définie par l'équation (5.21) à laquelle on ajoute la déformation appliquée,

$$\sigma^I = \mathbb{C}^m(\epsilon^A + \epsilon^c - \epsilon^T) \quad (5.23)$$

tandis que le second problème n'a pas ϵ^T , mais une rigidité différente, ce qui conduit à une contrainte

$$\sigma^I = \mathbb{C}^f(\epsilon^A + \epsilon^c) \quad (5.24)$$

En écrivant que la contrainte σ^I est la même pour les relations (5.23) et (5.24), on obtient alors la déformation de transformation qui rend ces deux problèmes équivalents. L'utilisation de l'équation (5.22) et le réarrangement des termes conduit à :

$$- [\mathbb{C}^m + (\mathbb{C}^f - \mathbb{C}^m)\mathbb{E}] \epsilon^T = (\mathbb{C}^f - \mathbb{C}^m)\epsilon^A \quad (5.25)$$

Notons que ϵ^T est proportionnelle à ϵ^A ce qui implique une contrainte proportionnelle à la déformation appliquée dans le cas homogène équivalent.

5.2.2.2 Modèle dilué d'Eshelby

On peut se servir du résultat obtenu par Eshelby pour déterminer la rigidité d'un composite à fibres ellipsoïdales (de très faible concentration). Il faudra simplement trouver les tenseurs de localisation des déformations \mathbb{A} . Notons tout d'abord que pour un composite (faiblement renforcé), la déformation moyenne est égale à la déformation appliquée, étant donné que c'est la même déformation à l'infini,

$$\bar{\epsilon} = \epsilon^A \quad (5.26)$$

De même, Eshelby permet d'écrire que la déformation dans la fibre est uniforme et est donnée par :

$$\bar{\epsilon}^f = \epsilon^A + \epsilon^c, \quad (5.27)$$

Le terme de droite de l'équation (5.27) est évalué dans la fibre. En écrivant maintenant l'équivalence en terme de contraintes entre les cas d'inclusions homogène et non homogène (cf équations (5.23) et (5.24)) on a,

$$\mathbb{C}^f(\epsilon^A + \epsilon^c) = \mathbb{C}^m(\epsilon^A + \epsilon^c - \epsilon^T) \quad (5.28)$$

Utilisons ensuite (5.22), (5.26) et (5.27) pour éliminer ϵ^T , ϵ^A et ϵ^c de (5.28) nous obtenons :

$$[\mathbb{I} + \mathbb{E}\mathbb{S}^m(\mathbb{C}^f - \mathbb{C}^m)] \epsilon^f = \bar{\epsilon} \quad (5.29)$$

Une comparaison entre (5.29) et (5.12) montre que le tenseur de localisation des déformations pour une inclusion équivalente d'Eshelby est :

$$\mathbb{A}^{Eshelby} = [\mathbb{I} + \mathbb{E}S^m(\mathbb{C}^f - \mathbb{C}^m)]^{-1} \quad (5.30)$$

L'équation (5.30) peut être utilisée pour prédire la rigidité des composites à renforts unidirectionnels. Ce résultat a été développé pour la première fois par Russel [120]. Des calculs permettant d'investiguer l'influence du ratio d'aspect des particules sur la rigidité ont été présentés dans la référence [121] par Chow.

Alors que la solution d'Eshelby traite seulement des fibres ellipsoïdales, les fibres généralement utilisées dans les structures en composites sont assimilables à des cylindres de section droite circulaire. La relation entre les particules ellipsoïdales et le cylindre a été traité par Steif et Hoysan [122] qui ont développé une méthode EF pour déterminer l'effet de rigidification d'une fibre de forme donnée. Pour des particules très courtes $\ell/d = 4$, ils ont établi un excellent accord en permettant que le cylindre de l'ellipsoïde ait le même ratio ℓ/d . La particule ellipsoïdale conduit à un composite plus rigide, la différence entre les deux résultats variant avec le ratio des modules E^f/E^m . Ainsi nous utilisons un ratio d'aspect cylindrique et non ellipsoïdale dans les modèles d'Eshelby.

Etant donné que la solution d'Eshelby ne s'applique seulement qu'à une particule individuelle entourée de matrice infinie, $\mathbb{A}^{Eshelby}$ est indépendant du taux de fibres, et la rigidité prédite par ce modèle croit linéairement avec le taux de fibres. Les prédictions de modules basées sur les équations (5.30) et (5.16) ne seraient exactes que dans le cas de très faibles taux de fibres, disons ϕ^f égal au plus à 10% ($\phi^f \leq 0,01$). Le problème le plus difficile consiste à prendre en compte les interactions entre fibres dans le modèle et de produire des résultats à des taux de fibres élevés. Nous considérons par la suite les approches permettant d'y parvenir.

5.2.2.3 Modèle de Mori-Tanaka

La famille des modèles pour composites faiblement dilués a évolué à partir de la proposition faite à l'origine par Mori et Tanaka [123]. Benveniste [124] a fourni une explication particulièrement simple et claire de l'approche de Mori-Tanaka, laquelle sera utilisée ici pour introduire cette approche. Nous avons déjà introduit le tenseur de localisation des déformations à l'équation (5.12). Supposons maintenant qu'un composite soit constitué de particules de renforts d'un certain type et que pour une particule individuelle dans une matrice infinie, nous connaissions le tenseur d'Eshelby $\mathbb{A}^{Eshelby}$ de localisation des déformations,

$$\bar{\epsilon}^f = \mathbb{A}^{Eshelby} \bar{\epsilon} \quad (5.31)$$

L'hypothèse faite par Mori-Tanaka est que lorsque plusieurs particules identiques sont incluses dans un composite, la déformation moyenne de la fibre est donnée par :

$$\bar{\epsilon}^f = \mathbb{A}^{Eshelby} \bar{\epsilon}^m \quad (5.32)$$

c'est-à-dire dans un composite concentré, chaque particule "voit" un champ de déformations éloigné égal à la déformation moyenne dans la matrice. L'utilisation du tenseur de localisation des déformations défini à l'équation (5.14) permet d'exprimer l'hypothèse de Mori-Tanaka comme suit :

$$\hat{\mathbb{A}}^{MT} = \mathbb{A}^{Eshelby} \quad (5.33)$$

L'équation (5.15) permet ensuite de définir le tenseur de localisation des déformations par :

$$\mathbb{A}^{MT} = \mathbb{A}^{Eshelby} [(1 - \phi^f)\mathbb{I} + \phi^f \mathbb{A}^{Eshelby}]^{-1} \quad (5.34)$$

La relation (5.34) est l'équation de base permettant de mettre en œuvre le modèle Mori-Tanaka. L'approche de modélisation des propriétés des composites proposé par Mori-Tanaka a été introduite pour la première fois par Wakashima, Otsuka et Umekawa [125] pour modéliser l'expansion thermique dans les composites à inclusions ellipsoïdales unidirectionnelles. La référence [123] de Mori-tanaka traite simplement du problème d'inclusion homogène et ne dit rien au sujet des composites. Cette approche a ensuite été utilisée pour la première fois sur les composites à fibres courtes par Mura [114] et Taya et Chow [115] dont le travail portait également sur l'effet des fissures. Weng [126] a généralisé leur modèle et Tandon et Weng ont utilisé l'approche de Mori-Tanaka pour produire des équations relatives à un ensemble de constantes élastiques pour les composites à fibres courtes. L'équation de Tandon et Weng pour le module de compression transversale k_{23} en déformations planes, ainsi que le coefficient de Poisson principal ν_{12} doit être résolue de manière itérative.

Le développement usuel du modèle de Mori-Tanaka diffère quelque peu de l'explication de Benveniste. Pour une contrainte moyenne $\bar{\sigma}$ la déformation de référence ϵ^0 est définie comme la déformation induite dans un corps homogène de matrice dans cet état de contrainte,

$$\bar{\sigma} = \mathbb{C}^m \epsilon^0 \quad (5.35)$$

Dans le composite, la déformation moyenne diffère de la déformation de référence par quelque perturbation $\tilde{\epsilon}^m$,

$$\epsilon^m = \epsilon^0 + \tilde{\epsilon}^m \quad (5.36)$$

Une fibre incluse dans le composite subira une perturbation supplémentaire $\tilde{\epsilon}^f$ telle que :

$$\epsilon^f = \epsilon^0 + \tilde{\epsilon}^m + \tilde{\epsilon}^f \quad (5.37)$$

tandis que l'inclusion équivalente aura cette déformation plus la déformation de transformation ϵ^T . L'équivalence en contrainte entre l'inclusion et la fibre devient alors :

$$\mathbb{C}^f (\epsilon^0 + \tilde{\epsilon}^m + \tilde{\epsilon}^f) = \mathbb{C}^m (\epsilon^0 + \tilde{\epsilon}^m + \tilde{\epsilon}^f - \epsilon^T) \quad (5.38)$$

Une comparaison de l'équation (5.38) avec la version d'Eshelby de l'équation (5.28) montre que ϵ^A , dans le problème d'Eshelby, est équivalente à $(\epsilon^0 + \tilde{\epsilon}^m)$ ici. Le développement est complété en supposant que la perturbation supplémentaire dans la fibre est liée à la déformation de transformation par le tenseur d'Eshelby,

$$\tilde{\epsilon}^f = \mathbb{E}\epsilon^T \quad (5.39)$$

Une combinaison des équations (5.36) et (5.37) révèle que l'équation (5.39) contient l'essentiel des hypothèses formulées par Mori-Tanaka : la fibre dans un corps "voit" la déformation de la matrice. D'autres modèles micro-mécaniques sont équivalents à l'approche Mori-Tanaka, quoique cette équivalence ne fasse pas toujours l'unanimité. Chow [127] ayant traité le problème d'Eshelby, a formulé la conjecture selon laquelle dans un composite concentré, la déformation dans l'inclusion serait la somme de deux termes : le résultat à l'état dilué (obtenu par Eshelby) et la déformation moyenne dans la matrice.

$$(\epsilon^c)^f = \mathbb{E}\epsilon^T + (\bar{\epsilon}^c)^m \quad (5.40)$$

Ceci peut être combiné avec la définition de la déformation moyenne donnée à l'équation (5.4b) pour relier la déformation de l'inclusion à la déformation de transformation ϵ^T :

$$(\epsilon^c)^f = (1 - \phi^f) \mathbb{E}\epsilon^T \quad (5.41)$$

Chow a ensuite étendu ce résultat à la non homogénéité en suivant l'argumentation usuelle (équations (5.23)-(5.30)), ce qui a conduit à un tenseur de localisation des déformations,

$$\mathbb{A}^{Chow} = [\mathbb{I} + (1 - \phi^f) \mathbb{E}\mathbb{S}^m (\mathbb{C}^f - \mathbb{C}^m)] \quad (5.42)$$

L'équation (5.42) est équivalent au résultat obtenu par Mori-Tanaka à l'équation (5.34). Chow n'était probablement pas au courant du lien entre son approche et celle de Mori-Tanaka. Il semble cependant avoir été le premier à appliquer l'approche de Mori-Tanaka pour prédire la rigidité des composites à fibres courtes. Un développement plus récent est basé sur le modèle poly-inclusions équivalent

de Ferrari [128] utilisant un tenseur effectif d'Eshelby \mathbb{E} , défini comme le tenseur reliant la déformation de l'inclusion à la déformation de transformation, à un taux volumique fini de fibres :

$$(\epsilon^c)^f = \hat{\mathbb{E}}\epsilon^T \quad (5.43)$$

Une fois $\hat{\mathbb{E}}$ défini, il devient simple d'en déduire le tenseur de localisation des déformations \mathbb{A} et les modules du composite. Ferrari a considéré les formes admissibles pour $\hat{\mathbb{E}}$, étant donné les exigences auxquelles il doit satisfaire, c'est-à-dire : (a) produire un tenseur de rigidité symétrique, (b) converger vers le tenseur d'Eshelby \mathbb{E} quand le taux volumique de fibres tend vers zéro et (c) produire un composite de rigidité indépendante de celle de la matrice quand le taux volumique de fibres tend vers 1. Il a proposé la forme simple suivante satisfaisant ces critères,

$$\hat{\mathbb{E}} = (1 - \phi^f) \mathbb{E} \quad (5.44)$$

La combinaison des équations (5.43) et (5.44) est identique à l'hypothèse de Chow (équation (5.41)) et, pour des fibres unidirectionnelles et de longueur uniforme, la poly-inclusion équivalente de Ferrari, le modèle de Chow et celui de Mori-Tanaka sont identiques. Des différences importantes entre le modèle poly-inclusion et le modèle de Mori-Tanaka surviennent lorsque les fibres sont aléatoirement orientées dans la matrice ou ont des longueurs différentes.

5.2.2.4 Les modèles auto-cohérents

Une seconde approche prenant en compte des taux volumiques finis de fibres est basée sur les méthodes dites autocohérentes. Cette approche est généralement portée au crédit de Hill [129] et Budiansky [130] dont le travail originel s'est focalisé sur des particules sphériques et des fibres continues unidirectionnelles. L'application aux composites à fibres courtes a été développée par Laws et McLaughlin [131] et par Chou, Nomura et Taya [132]. Dans les approches autocohérentes, on est amené à déterminer les propriétés dans le composite dans lequel une fibre individuelle est introduite dans une matrice infinie ayant les propriétés moyennes du composite. Une fois encore, en utilisant le résultat d'Eshelby, sur une particule ellipsoïdale, nous pouvons établir une version autocohérente de l'équation (5.30) en remplaçant les matrices de rigidité et de souplesse par les propriétés correspondantes du composite. Ceci produit la version autocohérente du tenseur de localisation des déformations,

$$\mathbb{A}^{SC} = [\mathbb{I} + \mathbb{E}\mathbb{S}(\mathbb{C}^f - \mathbb{C})]^{-1} \quad (5.45)$$

Bien sûr, les propriétés \mathbb{C} et \mathbb{S} sont initialement inconnues. Lorsque la particule de renfort est une sphère ou un cylindre infini, les équations peuvent être mani-

pulées algébriquement pour trouver des expressions explicites pour l'ensemble des propriétés [130, 131]. Pour des fibres courtes, ceci n'a pas été possible, mais des solutions numériques peuvent être facilement obtenues par une méthode itérative. On débute par une solution initiale des propriétés du composite, puis on procède à une évaluation de \mathbb{E} et \mathbb{A}^{SC} défini à l'équation (5.45) ; enfin on substitue les résultats à l'équation (5.20) pour obtenir une valeur améliorée des modules du composite. La procédure est répétée en utilisant cette nouvelle valeur et les itérations se poursuivent jusqu'à l'obtention d'une solution convergente pour \mathbb{C} .

Un changement additionnel mais non évident est que le tenseur \mathbb{E} d'Eshelby dépend des propriétés de la matrice qui sont maintenant isotropes transverses. Les expressions d'Eshelby pour une matrice isotrope transverse contenant des particules ellipsoïdales de révolution sont données par Chou et Taya [133] et par Lin et Mura [134]. Ayant ces expressions, on peut se servir de l'équation (5.45) et l'équation (5.20) pour trouver la rigidité du composite. C'est l'approche autocohérente utilisée pour les fibres courtes [131, 132]. Une méthode très rapprochée de la précédente et appelée modèle autocohérent généralisé utilise aussi une approche "incrustante". Cependant, dans ces modèles, l'objet incrusté comprend aussi bien les fibres que la matrice. Lorsque les particules de renfort sont sphériques, alors l'objet incrusté est une sphère de renfort enchâssée dans une coquille de matrice sphérique qui lui est concentrique. Cet objet est en retour entouré d'un corps infini possédant les propriétés moyennes du composite. Le modèle autocohérent généralisé est souvent connu sous le nom de modèle de "double incrustation". Pour des fibres continues, l'objet incrusté est une fibre cylindrique entourée d'une coquille cylindrique de matrice. Les premiers modèles autocohérents généralisés furent développés pour les particules sphériques par Kerner [10] et, pour des particules cylindriques par Hermans [9]. Ces 2 articles contiennent une erreur qui a été discutée et corrigée par Christensen et Lo [135].

5.2.2.5 Modèles définissant les bornes

Une approche, plutôt différente, pour modéliser la rigidité est basée sur la détermination des bornes supérieure et inférieure des modules du composite. Toutes les méthodes s'y référant se fondent sur les champs de contraintes et de déformations approchés dans le composite. Le champ inconnu est déterminé en faisant recours au principe variationnel et en minimisant une fonctionnelle de la contrainte ou de la déformation. La rigidité du composite ainsi obtenue n'est pas exacte, mais peut être garantie comme étant soit supérieure, soit inférieure ou égale à la rigidité effective dépendamment du principe variationnel utilisé. Cet encadrement rigoureux des propriétés constitue le point d'attraction de ces

méthodes.

Historiquement, les moyennes de Voigt et de Reuss étaient les premiers modèles à avoir été reconnus comme fournissant respectivement les bornes supérieure et inférieure rigoureuses. Pour obtenir le modèle de Voigt, donné à l'équation (5.18), on suppose que la fibre et la matrice subissent la même déformation $\bar{\epsilon}$ et l'on minimise ensuite l'énergie potentielle. Etant donné que l'énergie potentielle atteint un minimum absolu quand le composite est en équilibre, l'énergie potentielle sous déformation uniforme (supposée) devra être supérieure ou égale au résultat exact. La rigidité ainsi calculée sera donc la borne supérieure de la rigidité réelle. Le modèle de Reuss, donné à l'équation (5.19) est obtenu en supposant que fibre et matrice supportent la même contrainte uniforme $\bar{\sigma}$ et en maximisant l'énergie complémentaire. Etant donné que l'énergie complémentaire sera maximale à l'équilibre, le modèle de Reuss fournit la borne inférieure de la rigidité du composite. Des détails poussés de ces résultats peuvent être trouvés dans la référence [136] par Wu et McCullough.

Les bornes de Voigt et de Reuss fournissent des résultats isotropes, pourvu que la matrice et la fibre soient elles-mêmes isotropes, lorsqu'en effet on s'attend à ce que les composites à fibres unidirectionnelles soient fortement anisotropes. Plus important encore, lorsque fibres et matrice ont des rigidités substantiellement différentes, les bornes des modèles de Voigt et de Reuss sont très écartées, ne fournissant que des renseignements peu utiles sur la rigidité réelle du composite. Ce dernier aspect a motivé Hashin et Strickman en mettre en place des bornes plus serrées.

Hashin et Strickman ont eu recours à un principe variationnel alternatif pour les matériaux hétérogènes [137, 138]. Leur méthode introduit la notion de matériau de référence et fonde le développement subséquent sur les différences entre ce matériau de référence et le composite réel. Au lieu de nécessiter deux principes variationnels comme dans le cas de Voigt et de Reuss, leur unique principe fournit les deux bornes en faisant des choix appropriés du matériau de référence. Pour la borne supérieure, le matériau de référence devrait être le plus rigide (ou autant rigide) que chacune des deux phases (fibre ou matrice) du composite. Et pour la borne inférieure, le matériau de référence doit avoir une rigidité inférieure ou égale à chacune des phases. Dans la plupart des composites, la fibre est la plus rigide des phases. Ainsi, en choisissant la fibre comme matériau de référence, on obtient la borne supérieure ; et en prenant la matrice comme matériau de référence, on obtient la borne inférieure. Si la matrice est plus rigide que la fibre, les bornes sont inversées. Les bornes ainsi déduites sont plus serrées que celles établies par Voigt et Reuss, lesquelles en effet peuvent être fournies par la théorie de Hashin-Strickman en attribuant au matériau de référence une rigidité nulle ou

infinie respectivement.

Les bornes originellement définies par Hashin et Strickman s'appliquent aux composites faits de constituants isotropes. Fréquemment, ces bornes sont considérées comme s'appliquant à des composites à renforts particuliers sphériques, quoique un corps 3D à fibres orientées aléatoirement puisse également respecter ces bornes.

Walpole a repris les bornes de Hashin-Strickman en utilisant le principe classique d'énergie [139] et les a étendues aux matériaux anisotropes [140]. Walpole a également obtenu des résultats pour des fibres infiniment longues et les disques infiniment minces dans les cas des fibres unidirectionnelles et de fibres orientées aléatoirement [141].

Les bornes de Hashin-Strickman-Walpole ont ensuite été étendues aux composites à fibres courtes par Willis [142], et par Wu et McCullough [136]. Ces travaux ont introduit une fonction de corrélation par deux points dans le domaine d'encadrement, permettant aux particules ellipsoïdales d'être prises en compte. A partir de ces extensions, les formules explicites pour des particules UD ont été développées par Weng [143] et Eduljee et al [144, 145]. Le format général de ces limites reprises ici est celui fourni par Weng et qui définit la rigidité du composite par :

$$\mathbb{C} = [\phi^f \mathbb{C}^f \mathbb{Q}^f + \phi^m \mathbb{C}^m \mathbb{Q}^m] [\phi^f \mathbb{Q}^f + \phi^m \mathbb{Q}^m]^{-1} \quad (5.46)$$

avec :

◇ \mathbb{Q}^f et \mathbb{Q}^m des tenseurs donnés par :

$$\mathbb{Q}^f = [\mathbb{I} + \mathbb{E}^0 \mathbb{S}^0 (\mathbb{C}^f - \mathbb{C}^0)]^{-1} \quad (5.47)$$

$$\mathbb{Q}^m = [\mathbb{I} + \mathbb{E}^0 \mathbb{S}^0 (\mathbb{C}^m - \mathbb{C}^0)]^{-1} \quad (5.48)$$

◇ \mathbb{E}^0 : tenseur d'Eshelby associé aux propriétés du matériau de référence de rigidité \mathbb{C}^0 et de souplesse \mathbb{S}^0 .

Quand la matrice est prise comme matériau de référence, l'équation (5.46) donne un tenseur de localisation des déformations $\hat{\mathbb{A}}^{low}(\hat{\mathbb{A}}^{inf})$ tel que :

$$\hat{\mathbb{A}}^{inf} = [\mathbb{I} + \mathbb{E}^m \mathbb{S}^m (\mathbb{C}^f - \mathbb{C}^m)] \quad (5.49)$$

Ce résultat est étiqueté ici comme borne inférieure en supposant que la fibre est plus rigide que la matrice. La rigidité du composite est obtenue en remplaçant $\hat{\mathbb{A}}^{inf}$ dans les équations (5.15) et (5.16). Eduljee et McCullough ont argumenté [144, 145] que la borne inférieure fournit une estimation plus exacte des propriétés du composite et recommandent que ce soit le modèle. Notons néanmoins que cette borne inférieure est identique au modèle de Mori-Tanaka de l'équation (5.34). Cette correspondance appuie favorablement l'approche de Mori-Tanaka

et garantit que celle-ci sera toujours compatible avec les bornes. L'autre borne, la supérieure, est déduite en utilisant l'équation (5.46) avec comme matériau de référence, la fibre, ce qui donne un tenseur de localisation des déformations,

$$\hat{\mathbb{A}}^{sup} = [\mathbb{I} + \mathbb{E}^f \mathbb{S}^f (\mathbb{C}^m - \mathbb{C}^f)] \quad (5.50)$$

Notons que le tenseur d'Eshelby \mathbb{E}^f est maintenant calculé pour des inclusions de matrice entourées par la fibre. L'équation (5.50) est étiquetée comme borne supérieure en supposant aussi que la fibre est plus rigide que la matrice. Un résultat similaire peut être obtenu à partir de la théorie de Mori-Tanaka en admettant une particule ellipsoïdale de matrice incrustée dans une phase continue de fibre. Si la matrice est plus rigide que la fibre, alors le terme de droite de l'équation (5.49) devient la borne supérieure et l'équation (5.50) définit la borne inférieure. Toutes les formules précédentes relatives aux bornes ont été données pour des composites à deux phases, mais la théorie présentée ici s'accommode bien aux composites multiphasés.

A des taux volumiques de fibres proches de l'unité, la rigidité de la matrice influence grandement la borne inférieure du modèle Mori-Tanaka, malgré sa quantité faible dans le composite. Les considérations liées au conditionnement suggèrent que le seul moyen d'approcher des taux de fibres aussi élevés est d'utiliser des fibres continues. Lielens et al. [146] suggèrent qu'à des taux de fibres élevés, la rigidité du composite soit proche de la borne supérieure ou soit équivalente à la prédiction de Mori-Tanaka (en utilisant la fibre comme la phase continue). Cet éclairage a poussé Lielens et ses co-auteurs [146] à proposer un modèle qui fait l'interpolation entre les deux bornes, de telle sorte que la supérieure domine pour de forts taux de fibres et l'inférieure domine à de faibles taux de fibres (une fois encore, on suppose que la fibre est plus rigide que la matrice). Ils ont en effet effectué cette interpolation sur l'inverse du tenseur $\hat{\mathbb{A}}$, pour obtenir la relation prédictive suivante :

$$\hat{\mathbb{A}}^{Lielens} = \left\{ (1 - f) \left[\hat{\mathbb{A}}^{Inf} \right]^{-1} + f \left[\hat{\mathbb{A}}^{Sup} \right]^{-1} \right\}^{-1} \quad (5.51)$$

le facteur d'interpolation f dépend des taux de fibres et est défini comme suit :

$$f = \frac{\phi^f + (\phi^f)^2}{2} \quad (5.52)$$

Cette théorie reprend les bornes supérieure et inférieure, des résultats de Mori-Tanaka (à des taux faibles de fibres). Il est cependant reconnu qu'elle fournit des résultats améliorés pour des taux de fibres comprises entre 40 et 60%.

5.2.2.6 Les équations de Halpin-Tsai

Pendant longtemps, les équations de Halpin-Tsai ont été largement utilisées pour ce qui est de prédire les propriétés des composites à fibres courtes. Une revue détaillée et dérivation est fournie par Halpin et Kardos [147] d'où nous tirons les principaux points suivants.

C'est en ayant en vue les composites à fibres continues que les équations originelles de Halpin-Tsai ont été établies. Elles sont tirées des travaux de Hermans [9] et Hill [148]. Hermans a développé le premier modèle autocohérent généralisé pour un composite à fibres continues unidirectionnelles (Section 5.2.2.4). Halpin et Tsai se sont rendu compte que 3 des équations d'Hermans sur la rigidité peuvent être exprimées sous un format commun,

$$\frac{P}{P^m} = \frac{1 + \xi\eta\phi^f}{1 - \eta\phi^f} \quad (5.53)$$

avec :

$$\eta = \frac{P^f/P^m - 1}{P^f/P^m + 1}$$

- ◇ P représente le symbole des modules du composite listés à la table 5.1,
- ◇ P^f : module correspondant de la fibre, k^f, G^f, E^f ,
- ◇ P^m : module correspondant de la matrice, k^m, G^m, E^m ,
- ◇ ξ : paramètre dépendant du coefficient de Poisson de la matrice et de la constante élastique considérée.

Hermans a obtenu des expressions de k_{23} (en déformations planes), de G_{12} et G_{23} . Les paramètres ξ pour ces constantes sont fournis dans la table 5.1. Notons que pour une matrice isotrope,

$$k^m = [E^m/2(1 + \nu^m)(1 - 2\nu^m)]$$

Hill a montré que pour un composite à fibres continues, les autres constantes sont données par :

$$E_{11} = \phi^f E^f + \phi^m E^m - 4 \left[\frac{\phi^f - \phi^m}{\frac{1}{k^f} - \frac{1}{k^m}} \right]^2 \left(\frac{1}{k_{23}} - \frac{\phi^f}{k^f} - \frac{\phi^m}{k^m} \right) \quad (5.54)$$

$$\nu_{12} = \phi^f \nu^f + \phi^m \nu^m + \frac{\left[\frac{\phi^f - \phi^m}{\frac{1}{k^f} - \frac{1}{k^m}} \right] \left(\frac{1}{k_{23}} - \frac{\phi^f}{k^f} - \frac{\phi^m}{k^m} \right)}{\left[\frac{\phi^f - \phi^m}{\frac{1}{k^f} - \frac{1}{k^m}} \right]^2} \quad (5.55)$$

Ces équations complètent le modèle d'Hermans pour les composites unidirectionnels. Notons que l'on doit connaître k_{23} pour déterminer E_{11} et ν_{12} . Nous savons maintenant que le résultat d'Hermans pour G_{23} est incorrect en ce qu'il ne satisfait pas toutes les conditions de continuité fibre/matrice [109]. Ce résultat est néanmoins identique à une borne inférieure sur G_{23} donnée par Hashin [149].

P	P^f	P^m	ξ	observations
k_{23}	k^f	k^m	$\frac{1-\nu^m-2(\nu^m)^2}{1+\nu^m}$	Module de compression en déformations planes (UD)
G_{23}	G^f	G^m	$\frac{1+\nu^m}{3-\nu^m-4(\nu^m)^2}$	Module de cisaillement transversal, fibres UD
G_{12}	G^f	G^m	1	Module de cisaillement longitudinal, fibres UD
K	K^f	K^m	$\frac{2(1-\nu^m)}{1+\nu^m}$	Module de compression, particules
G	G^f	G^m	$\frac{7-5\nu^m}{8-10\nu^m}$	Module de cisaillement, particules

TAB. 5.1: Correspondance entre l'équation de Halpin-Tsai (5.53) et les prédictions autocohérentes d'Hermans [9] et de Kerner [10].

Le reste des résultats obtenus par Hermans est identique au modèle de Hashin et Rosen pour le composite à assemblage de cylindres concentriques. Ainsi les constantes k_{23} , E_{11} et ν_{12} sont identiques à celles fournies par le modèle autocohérent de Hill [129]. Le format de l'équation (5.53) par Halpin-Tsai peut aussi être utilisé pour exprimer les équations relatives aux composites à particules, dérivées par Kerner [10] qui a également employé le modèle autocohérent généralisé. Le tableau 5.2 en donne les détails.

P	P^f	P^m	ξ	Comments
E_{11}	E^f	E^m	$2(\ell/d)$	Module longitudinal
E_{22}	E^f	E^m	2	Module transversal
G_{12}	G^f	G^m	1	Module de cisaillement longitudinal
ν_{12}				Coeff de Poisson, $= \phi^f \nu^f + \phi^m \nu^m$

TAB. 5.2: Valeurs empiriques du paramètre ξ de l'équation de Halpin-Tsai. Pour G_{23} confère tableau 5.1.

Le résultat de Kerner pour le module de cisaillement est également reconnu comme étant incorrect, mais reprend la borne inférieure de Halpin-Strickman-Walpole pour les composites isotropes. Le résultat de Kerner pour k est identique à celui de Hashin sur le composite à inclusion sphérique [137]. Pour des discussions supplémentaires sur les résultats de Kerner et Hermans on peut consulter les références [135, 109] de Christensen et Lo, et Hashin respectivement.

Pour permettre l'applicabilité de leurs résultats aux composites à fibres continues Halpin et Tsai ont fait trois approximations ad hoc supplémentaires :

- ◇ l'équation (5.53) peut être directement utilisée pour calculer les constantes de l'ingénieur bien choisies, avec E_{11} ou E_{22} substituant P ,
- ◇ le paramètre ξ est insensible à ϕ^m et peut être approximé par des valeurs constantes,
- ◇ les termes soulignés dans les équations (5.54) et (5.55) peuvent être négligés. Dans l'équation (5.54), le terme souligné est négligeable et son annulation

conduit à la loi usuelle des mélanges pour E_{11} d'un composite à fibres continues. Cependant, l'annulation du terme souligné de l'équation (5.55) et l'utilisation de la loi des mélanges pour calculer ν_{12} n'est pas exacte si les coefficients de Poisson des fibres et de la matrice sont différents. Halpin et Tsai ont prétendu que la rigidité du composite était insensible à ν_{12} .

Afin d'adapter leur modèle aux composites à fibres courtes, Halpin et Tsai ont proposé que $\xi \in [0, \infty]$. Si $\xi = 0$, alors l'équation (5.53) se réduit à la loi inverse des mélanges [147].

$$\frac{1}{P} = \frac{\phi^f}{P^f} + \frac{\phi^m}{P^m}, \quad (5.56)$$

tandis que lorsque $\xi = \infty$, l'équation de Halpin-Tsai devient la loi des mélanges,

$$P = \phi^f P^f + \phi^m P^m \quad (5.57)$$

Halpin et Tsai ont ensuite suggéré qu'il y ait une corrélation entre ξ et la géométrie des fibres de renfort et en calculant E_{11} , ξ devrait varier d'une valeur constante petite à l'infini comme une fonction du ratio d'aspect des fibres ℓ/d . En comparant les prédictions du modèle avec les résultats EF (en $2D$) disponibles, ils ont trouvé que $\xi = 2(\ell/d)$ donne de bons résultats pour E_{11} des composites à fibres courtes. Ils ont également suggéré d'autres constantes de l'ingénieur qui sont faiblement dépendantes du ratio d'aspect des fibres ℓ/d , et qui de ce fait peuvent être approximées en utilisant les formules relatives aux composites à fibres continues [150]. Les équations résultantes sont résumées dans le tableau 5.2. Les premières références [151, 150] ne mentionnent pas G_{23} . Quand cette propriété est nécessaire, l'approche usuelle consiste à utiliser ξ donné dans la table 5.2. Alors que les équations de Halpin Tsai ont été largement utilisées pour les fibres isotropes, les résultats de Hermans et Hill eux s'appliquent aux fibres à isotropie transverse ; ainsi, les équations de Halpin-Tsai peuvent aussi être utilisées dans ce cas. Il est reconnu que les équations de Halpin-Tsai s'ajustent bien aux données relatives aux composites à faible taux volumique de fibres mais sous-estiment la rigidité des systèmes à fort taux de fibres. Ceci a conduit à des modifications de ce modèle. Hewih et Malherbe [152] proposent que ξ soit une fonction de ϕ^f et par ajustement, ont obtenu l'expression :

$$\xi = 1 + 40 (\phi^f)^{10} \quad (5.58)$$

laquelle donnerait un bon accord avec les résultats EF en $2D$ pour G_{12} sur les structures à fibres continues.

Nielsen et Lewiss [153, 154] se sont penchés sur l'analogie entre la rigidité G du composite et la viscosité μ des particules rigides en suspension dans un fluide newtonien. Ils ont noté que $\mu/\mu^m = G/G^m$ quand le renfort est plus rigide

($G^f/G^m \rightarrow \infty$) et la matrice incompressible. Ils ont développé une équation dans laquelle la rigidité ne correspond pas seulement à celle de la théorie d'inclusion au sens d'Eshelby (à faible taux de fibres), mais affiche $G^f/G^m \rightarrow \infty$ lorsque $\phi^f \rightarrow \phi^m$; ceci conduit à la modification suivante de l'équation de Halpin-Tsai :

$$\frac{P}{P^m} = \frac{1 + \xi\eta\phi^f}{1 - \psi(\phi^f)\eta\phi^f} \quad (5.59)$$

avec :

- ◇ η : conserve sa définition donnée à l'équation (5.53)
- ◇ $\psi(\phi^f)$: fonction du taux de fibres maximum, ϕ_{max}^f . ψ est choisi de manière à fournir des résultats satisfaisants aux bornes inférieure et supérieure du taux de fibres ; les expressions suivantes sont donc retenues :

$$\psi(\phi^f) = 1 + \left(\frac{1 - \phi_{max}^f}{(\phi_{max}^f)^2} \right) \phi^f \quad (5.60)$$

$$\psi(\phi^f) = \frac{1}{\phi^f} \left[1 - \exp \left(\frac{-\phi^f}{1 - (\phi^f / \phi_{max}^f)} \right) \right] \quad (5.61)$$

5.2.2.7 Modèles du shearlag

L'un des premiers modèles décrivant l'effet du renforcement par des fibres courtes sur le module d'Young et la résistance des matériaux composites a été développé par H.L. Cox en 1952 [155]. Le travail fait par Cox est communément référencé dans la littérature sous l'appellation de théorie du shearlag. Les modèles du shearlag ont été appliqués aux composites à fibres courtes et pour étudier le comportement aux extrémités des fibres rompues dans les pièces composites à fibres continues [156, 157]. Malgré certaines insuffisances théoriques importantes, les modèles du shearlag ont connu une popularité, peut être à cause de leur simplicité algébrique et de leur attrait physique. Une expression complète de l'équation du shearlag et une méthode permettant de déterminer le paramètre H de Cox pour un arrangement carré ou hexagonal des fibres ont été fournies par Piggott [158]. Les modèles classiques du shearlag ne permettent de faire des prédictions que sur E_{11} , et ne remplissent pas toutes les conditions énoncées au début de cette section quant à la capacité des modèles à prédire un ensemble de propriétés. Nous en parlons cependant ici en raison de leur importance historique et leur utilisation répandue. On pourrait obtenir une caractérisation plus complète de la rigidité en recourant au modèle du shearlag pour déterminer E_{11} et en utilisant quelque autre modèle à fibres continues (tel que celui d'Hermans) pour le reste des constantes élastiques. Si les fibres étaient anisotropes, alors le

module d'Young devrait être obtenu par l'équation du shearlag. Traditionnellement, la théorie du shearlag suppose que les fibres de renfort sont alignées et arrangées d'une façon précise. Le transfert d'une charge appliquée de la matrice à la fibre est censé se faire à travers des contraintes de cisaillement interfaciales et la contrainte de traction σ aux extrémités des fibres est nulle. Ce qui fait que la contrainte maximale de traction σ_{max} se développe au milieu de la fibre tandis que la contrainte maximale de cisaillement τ_{max} se développe aux extrémités. Ces hypothèses conduisent à l'équation classique du shearlag pour le module d'Young,

$$E_{11} = E^f \left(1 - \frac{\tanh\left(\eta \frac{L}{2}\right)}{\eta \frac{L}{2}} \right) \phi^f + E_m \phi^m, \quad (5.62)$$

η étant donné par :

$$\eta = \frac{1}{a} \left(\frac{2E^m}{E^f (1 + \nu^m) \ln\left(\frac{P^f}{\phi^f}\right)} \right), \quad (5.63)$$

avec :

- ◇ a : rayon de la fibre supposée cylindrique
- ◇ P^f : facteur dépendant de l'arrangement des fibres.

Typiquement, on peut utiliser un arrangement carré ou hexagonal. Pour un arrangement carré, $P^f = \pi$ et pour un arrangement hexagonal, $P^f = 2\pi/\sqrt{3}$. On peut observer à partir de l'équation (5.62) que lorsque $L/a \rightarrow \infty$, l'équation du shearlag se ramène à la loi des mélanges.

5.3 Approche inverse de la détermination des propriétés des fibres

5.3.1 Compression d'un mat de fibres

D'une manière générale, la littérature relative à l'identification des constantes élastiques transverses n'est pas abondante. Le développement des premières méthodes inverses permettant de caractériser l'anisotropie élastique de fibres celluliques s'est appuyé sur le comportement d'un réseau plan de fibres agglomérées en mat et l'hypothèse de base est celle d'une déformation uniforme supposée égale à la déformation moyenne. L'une des approches fait écho aux travaux de Toll et Manson [159] en considérant un mat de densité définie (relativement faible) et soumis à une compression transversale dans le domaine élastique. L'idée directrice en est que dans un réseau de fibres sous compression élastique, le transfert des charges se fait à travers les points de contact établis entre les fibres voisines. Chaque fibre établissant un nombre de contacts finis est considérée comme une

poutre continue en flexion dont la longueur de la travée est prise égale à l'unité élémentaire déformable (UED = 2λ, voir figure 5.1).

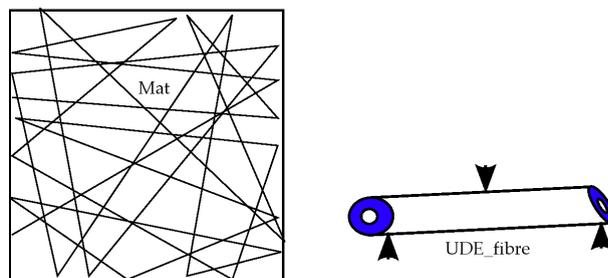


FIG. 5.1: Compression d'un mat de fibres

Dans ces conditions les charges appliquées à l'UED peuvent être calculées en fonction de son angle de direction dans le réseau et l'on évalue ensuite la déformation totale de la fibre en tenant compte du nombre de contacts établis. Si le réseau est soumis à une déformation homogène $\epsilon = (\epsilon_x, \epsilon_y, \gamma_{xy})$, la déformation uniforme dans une fibre de direction α dans le VER (voir Section 4.2.2) est donnée par

$$\epsilon^f = \epsilon_x \cos^2 \alpha + \epsilon_y \sin^2 \alpha + \gamma_{xy} \cos \alpha \sin \alpha \quad (5.64)$$

Les fibres de section droite A^f étant supposées ne subir qu'une contrainte axiale, la loi de Hooke permet d'écrire,

$$F^f = E^f A^f (\epsilon_x \cos^2 \alpha + \epsilon_y \sin^2 \alpha + \gamma_{xy} \cos \alpha \sin \alpha) \quad (5.65)$$

avec :

F^f et E^f force et module d'Young (respectivement) de la fibre. L'équation (5.65) montre que ce modèle ne permet que l'obtention du module d'Young de la fibre et ne donne donc pas les autres caractéristiques transversales. Ce modèle a néanmoins été appliqué à un mat de fibres de bois [160].

5.3.2 Théorie classique des stratifiés

Le modèle présenté au paragraphe 5.3.1 s'applique aux mats de fibres longues et de faible densité. Pour les mats de fibres longues dont la densité est relativement plus élevée, la théorie du stratifié a été proposée pour modéliser leur comportement élastique en membrane. Dans ce cas, le mat de fibres peut être considéré comme un stratifié homogène dont les propriétés en membrane peuvent être données par la relation de comportement élastique orthotrope ; les directions principales du stratifié coïncidant avec la direction de fabrication et la direction transversale. Les fibres sont supposées isotropes transverses et uniformes

sur toute la longueur. En recourant aux propriétés des invariants et aux paramètres de stratification, une formulation approchée du module d'Young du mat a été proposée. Une telle démarche reste encore purement théorique et ne conduit pas directement aux propriétés des fibres.

Cichocki et al. [107] ont appliqué cette approche à un stratifié composite unidirectionnel, en traitant le cas des fibres de jutes supposées isotropes transverses. Ils ont ainsi estimé les 5 constantes élastiques de ces fibres en recourant aux équations empiriques de Halpin-Tsai. Dans la section 5.4, nous considérons le modèle analytique des propriétés élastiques homogènes d'un composite dont les fibres sont supposées orthotropes. Une telle démarche sur les fibres orthotropes n'a, à notre connaissance, pas encore été traitée.

5.4 Modèle analytique des propriétés élastiques des composites avec fibres orthotropes

Dans ce paragraphe nous abordons la question de la détermination des propriétés macroscopiques des composites renforcés de fibres végétales orthotropes. Le but final est de caractériser l'anisotropie élastique de ces fibres par une approche macro-micro en partant des caractéristiques du composite notamment le module d'Young.

5.4.1 Modèle mécanique du continu à assemblage de cylindres concentriques

Nous considérons un modèle composite à deux ou trois phases constituées de deux ou trois cylindres concentriques et pour lequel l'interphase est soit présente soit inexistante. Le premier problème est celui de la détermination du champ de contraintes induites dans les cylindres, dans certaines conditions de chargement de l'assemblage.

5.4.2 Loi de Hooke et anisotropie cylindrique

La relation de Hooke inverse $\epsilon = \mathbb{S}\sigma$ dans le cas d'un matériau orthotrope en coordonnées cylindriques (r, θ, z) s'écrit :

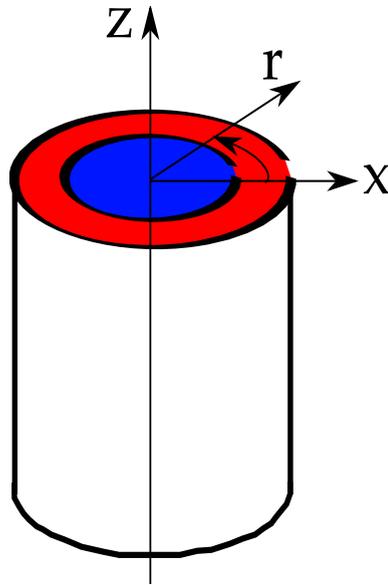


FIG. 5.2: Symétrie orthotropique matérielle en coordonnées cylindriques

$$\begin{Bmatrix} \epsilon_r \\ \epsilon_\theta \\ \epsilon_z \\ \epsilon_{\theta z} \\ \epsilon_{rz} \\ \epsilon_{r\theta} \end{Bmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{E_r} & -\frac{\nu_{r\theta}}{E_r} & -\frac{\nu_{rz}}{E_r} & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{\nu_{r\theta}}{E_r} & \frac{1}{E_\theta} & -\frac{\nu_{z\theta}}{E_z} & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{\nu_{rz}}{E_r} & -\frac{\nu_{z\theta}}{E_z} & \frac{1}{E_z} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{\theta z}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{rz}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{r\theta}} \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} \sigma_r \\ \sigma_\theta \\ \sigma_z \\ \sigma_{\theta z} \\ \sigma_{rz} \\ \sigma_{r\theta} \end{Bmatrix} \quad (5.66)$$

avec :

- ◇ \mathbb{S} : matrice de souplesse
- ◇ ϵ et σ représentent respectivement les vecteurs des déformations et des contraintes.

5.4.3 Champ de contraintes

5.4.3.1 Cas d'un cylindre

Nous traitons en tout premier lieu le cas d'un cylindre dont les extrémités sont soumises aux conditions suivantes : (1) la contrainte axiale est constante, de sorte que les sections planes perpendiculaires à son axe restent planes durant le chargement, (2) toute section droite perpendiculaire à l'axe ne se déforme que radialement (sous l'effet par exemple des pressions radiales interne et/ou externe). Ce problème est un classique en élasticité, et pour un cylindre isotrope subissant une pression interne p_i et une pression externe p_o la solution proposée dans la

littérature [161, 162, 163, 164] est :

$$\begin{cases} \sigma_{rr} &= -p_i \frac{(b/r)^2 - 1}{(b/a)^2 - 1} - p_o \frac{1 - (a/r)^2}{1 - (a/b)^2} \\ \sigma_{\theta\theta} &= -p_i \frac{(b/r)^2 + 1}{(b/a)^2 - 1} - p_o \frac{1 + (a/r)^2}{1 - (a/b)^2} \\ \sigma_{zz} &= \xi(\text{constante}) \end{cases} \quad (5.67)$$

- ◇ σ_{rr} , $\sigma_{\theta\theta}$ et σ_{zz} sont les contraintes radiale, tangentielle et longitudinale respectivement à la position r de l'axe de symétrie,
- ◇ a et b sont les rayons interne et externe du cylindre.

5.4.3.2 Cas de deux cylindres

Il s'agit d'un composite à deux phases dont le cylindre externe (la matrice) est creux et isotrope, tandis que le cylindre interne (la fibre) est plein et de comportement orthotrope. L'assemblage ainsi constitué est supposé avoir un comportement orthotrope, la matrice y conservant son isotropie.

- ◇ Pour la fibre (le cylindre intérieur) la pression interne p_i et le rayon intérieur sont nuls, et pour éviter des singularités à l'origine, les équations du système (5.67) deviennent :

$$\begin{cases} \sigma_{rr}^f &= \sigma_{\theta\theta}^f = A^f \\ \sigma_{zz}^f &= C^f \end{cases} \quad (5.68)$$

avec : A^f et C^f sont des constantes (f dénote la fibre).

- ◇ Pour la matrice (le cylindre externe), si aucune pression externe p_o n'est appliquée les équations du système (5.67) deviennent :

$$\begin{cases} \sigma_{rr}^m(a) &= A^m + B^m (a/r)^2 \\ \sigma_{\theta\theta}^m(a) &= A^m - B^m (a/r)^2 \\ \sigma_{zz}^m &= C^m \end{cases} \quad (5.69)$$

avec :

- ◇ A^m , B^m et C^m sont des constantes
- ◇ m dénote la matrice.

5.4.4 Détermination des modules homogénéisés

5.4.4.1 Détermination de \overline{E}_1

Le problème se réduit à la détermination des cinq constantes A^f , C^f , A^m , B^m et C^m sous les **conditions aux limites** ci-après :

- ◇ on impose une déformation longitudinale constante $\epsilon = \epsilon^f = \epsilon^m$. L'application de la loi de Hooke de la relation (5.66) à la fibre et de la loi de Hooke isotrope à la matrice permet d'écrire :

$$-\frac{\nu_{rz}^f}{E_r^f} \sigma_{rr}^f - \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \sigma_{\theta\theta}^f + \frac{1}{E_z^f} \sigma_{zz}^f = \epsilon \Rightarrow \sigma_{zz}^f = E_z^f \epsilon + E_z^f \left(\frac{\nu_{rz}^f}{E_r^f} + \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \right) A^f \quad (5.70a)$$

$$-\frac{\nu^m}{E^m} \sigma_{rr}^m - \frac{\nu^m}{E^m} \sigma_{\theta\theta}^m + \frac{1}{E^m} \sigma_{zz}^m = \epsilon \Rightarrow \sigma_z^m = E^m \epsilon + 2\nu^m A^m \quad (5.70b)$$

- ◇ continuité à l'interface, $\sigma_{rr}^m(a) = \sigma_{rr}^f(a)$, ce qui conduit à :

$$A^f = A^m + B^m \quad (5.70c)$$

- ◇ pression externe nulle sur la matrice, $\sigma_{rr}^m = 0$. Cette condition se traduit par :

$$A^m + B^m \left(\frac{a}{b} \right)^2 = 0 \Rightarrow B^m = -\frac{A^m}{\phi^f} \quad (5.70d)$$

avec :

- $\phi^f = \left(\frac{a}{b} \right)^2$: taux volumique de fibres
- $\phi^m = 1 - \left(\frac{a}{b} \right)^2 = 1 - \phi^f$: taux volumique de la matrice

- ◇ continuité des déplacements à l'interface : $u_r^f(a) = u_r^m(a)$. Cette condition est traduite par l'équation :

$$\epsilon_{\theta\theta}^f(a) = \epsilon_{\theta\theta}^m(a) \quad (5.70e)$$

avec :

$$\begin{aligned} \diamond \epsilon_{\theta}^f(a) &= -\frac{\nu_{r\theta}^f}{E_r^f} \sigma_r^f + \frac{1}{E_{\theta}^f} \sigma_{\theta}^f - \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \sigma_z^f \\ \diamond \epsilon_{\theta}^m(a) &= -\frac{\nu^m}{E^m} \sigma_r^m + \frac{1}{E^m} \sigma_{\theta}^m - \frac{\nu^m}{E^m} \sigma_z^m \end{aligned}$$

et la combinaison des équations (5.68)-(5.70) donne :

$$\begin{aligned} A^m &= \frac{\nu_{z\theta}^f - \nu^m}{\Delta} \epsilon & B^m &= \frac{\nu_{z\theta}^f - \nu^m}{\Delta \phi^f} & C^m &= E^m \epsilon + 2\nu^m A^m \\ A^f &= -\frac{(\nu_{z\theta}^f - \nu^m) \phi^m}{\Delta} \epsilon & C^f &= E_z^f \epsilon + E_z^f \left(\frac{\nu_{rz}^f}{E_r^f} + \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \right) A^f \end{aligned}$$

avec :

$$\Delta = \left[\frac{\nu_{r\theta}^f}{E_r^f} - \frac{1}{E_{\theta}^f} + \nu_{z\theta}^f \left(\frac{\nu_{rz}^f}{E_r^f} + \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \right) \right] \frac{\phi^m}{\phi^f} - \frac{\nu^m}{E^m} \frac{\phi^m}{\phi^f} - \frac{1}{E^m} \frac{\phi^f + 1}{\phi^f} + 2 \frac{(\nu^m)^2}{E^m} \quad (5.70f)$$

C^f et C^m sont fournis par les équations (5.70a) et (5.70b).

La détermination de E_1 se fait par homogénéisation en écrivant que le comportement de l'assemblage (cellule de base ACC) est de type 1D ; on a alors :

$$\overline{E}_z = \overline{E}_1 = \frac{\sigma_1}{\epsilon} = \frac{1}{\pi b^2 \epsilon} \int \overline{\sigma}_z(r) ds \quad (5.71a)$$

$$\overline{E}_1 = \frac{1}{\pi b^2 \epsilon} \left[\int_0^a \sigma_z^f(r) dr d\theta + \int_a^b \sigma_z^m(r) dr d\theta \right] \quad (5.71b)$$

$$\overline{E}_1 = \frac{1}{\epsilon} (\phi^f \sigma_z^f + \phi^m \sigma_z^m) \quad (5.71c)$$

La combinaison des équations (5.68)-(5.70) et (5.71) donne :

$$\boxed{\overline{E}_1 = E_z^f \phi^f + E_z^m \phi^m - \frac{\nu_{z\theta}^f - \nu^m}{\Delta} \left[E_z^f \left(\frac{\nu_{rz}^f}{E_r^f} + \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \right) - 2\nu^m \right] \phi^m} \quad (5.72)$$

5.4.4.2 Détermination de $\overline{\nu}_{12}$

Le coefficient de Poisson homogénéisé $\overline{\nu}_{12}$ de la cellule se déduit du problème de la détermination de \overline{E}_1 en remarquant que :

$$u_r^c = -r^m \overline{\nu}_{12} \epsilon = u_r^m(b) \quad (5.73)$$

avec $u_r^m(b) = b \epsilon_\theta^m(b) = \frac{b}{E^m} [\sigma_\theta^m(b) - \nu^m \sigma_z^m(b)]$, et l'introduction des équations (5.68)-(5.70), (5.73) se réécrit :

$$\boxed{\overline{\nu}_{12} = -2 \frac{1 - (\nu^m)^2}{E^m} \frac{\nu_{z\theta}^f - \nu^m}{\Delta} + \nu^m} \quad (5.74)$$

5.4.4.3 Détermination du module de compression transversale \overline{k}_{23}

Nous reprenons ici le même problème que pour la détermination de \overline{E}_1 , mais avec **des conditions aux limites différentes**. On considère toujours le champ de contraintes défini au paragraphe 5.4.3.2. La détermination des cinq constantes A^f, C^f, A^m, B^m et C^m tient compte des **conditions aux limites** suivantes :

- ◇ On impose une compression radiale $\sigma_{rr}^m(b) = -p$, ce qui se traduit par l'équation :

$$A^m + B^m \phi^f = -p \quad (5.75)$$

- ◇ La continuité des contraintes à l'interface ($\sigma_{rr}^f(a) = \sigma_{rr}^m(a)$) donne

$$A^m + B^m = A^f \quad (5.76)$$

- ◇ L'équilibre suivant la direction z se traduit par l'équation 5.77

$$\sigma_{zz}^m \phi^m + \sigma_{zz}^f \phi^f = 0 \Rightarrow C^m \phi^m + C^f \phi^f = 0 \quad (5.77)$$

La combinaison des équations (5.75)-(5.77) donne :

$$B^m = -\frac{A^m + p}{\phi^f} \quad A^f = -\frac{A^m \phi^m + p}{\phi^f} \quad C^f = -C^m \frac{\phi^m}{\phi^f} \quad (5.78)$$

Les inconnues réduites désormais à 2 peuvent être déterminées par l'application de la loi de Hooke $\sigma - \epsilon$ de l'équation (5.66) et des conditions de non déchaussement de la fibre.

- ◇ $\epsilon_{zz}^f = \epsilon_{zz}^m$ est traduite aussi par

$$\left[\left(\frac{\nu_{rz}^f}{E_r^f} + \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \right) \phi^m + \frac{2\nu^m}{E^m} \phi^f \right] A^m - \left(\frac{\phi^m}{E_z^f} + \frac{\phi^f}{E^m} \right) C^m = - \left(\frac{\nu_{rz}^f}{E_r^f} + \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \right) p \quad (5.79)$$

L'équation (5.79) se met sous la forme simplifiée :

$$I_1 A^m + I_2 C^m = L_1 p \quad (5.80)$$

avec :

$$I_1 = \left(\frac{\nu_{rz}^f}{E_r^f} + \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \right) \phi^m + \frac{2\nu^m}{E^m} \phi^f \quad I_2 = - \left(\frac{\phi^m}{E_z^f} + \frac{\phi^f}{E^m} \right)$$

$$L_1 = - \left(\frac{\nu_{rz}^f}{E_r^f} + \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \right)$$

- ◇ La continuité des déplacements à l'interface $u_r^f(a) = u_r^m(a)$ ou $\epsilon_{\theta\theta}^f(a) = \epsilon_{\theta\theta}^m(a)$, conduit à l'équation (5.81)

$$\left[\left(\frac{\nu_{r\theta}^f}{E_r^f} - \frac{1}{E_\theta^f} \right) \phi^m - \frac{1}{E^m} (\nu^m - \phi^f - 1) \right] A^m + \left(\frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \phi^m + \frac{\nu^m}{E^m} \phi^f \right) C^m = - \left(\frac{\nu_{r\theta}^f}{E_r^f} - \frac{1}{E_\theta^f} \right) p$$

$$\dots - \frac{\nu^m - 1}{E^m} p \quad (5.81)$$

L'équation (5.81) peut se mettre sous la forme simplifiée :

$$I_3 A^m + I_4 C^m = L_2 p \quad (5.82)$$

avec :

$$I_3 = \left(\frac{\nu_{r\theta}^f}{E_r^f} - \frac{1}{E_\theta^f} \right) \phi^m - \frac{1}{E^m} (\nu^m - \phi^f - 1) \quad I_4 = \frac{\nu_{z\theta}^f}{E_z^f} \phi^m + \frac{\nu^m}{E^m} \phi^f$$

$$L_2 = - \left[\frac{\nu_{r\theta}^f}{E_r^f} - \frac{1}{E_\theta^f} + \frac{1}{E^m} (\nu^m - 1) \right]$$

La résolution du système formé par les équations (5.80) et (5.82) donne :

$$\begin{aligned} A^m &= -\frac{I_4 L_1 - I_2 L_2}{I_1 I_4 - I_2 I_3} p & C^m &= -\frac{I_1 L_2 - I_3 L_1}{I_1 I_4 - I_2 I_3} p \\ B^m &= \frac{1}{\phi^f} \left(\frac{I_4 L_1 - I_2 L_2}{I_1 I_4 - I_2 I_3} - 1 \right) p & A^f &= \frac{1}{\phi^f} \left(\frac{I_4 L_1 - I_2 L_2}{I_1 I_4 - I_2 I_3} \phi^m - 1 \right) p \\ C^f &= \frac{\phi^m}{\phi^f} \frac{I_1 L_2 - I_3 L_1}{I_1 I_4 - I_2 I_3} p \end{aligned}$$

Le module homogénéisé de compression transversale est défini comme suit :

$$\overline{k_{23}} = \frac{\overline{\sigma_{22}}}{2\epsilon_{22}} = \frac{\sigma_{rr}^m(b)}{2(u_r^m(b)/b)} = -\frac{p}{2\epsilon_{\theta\theta}^m(b)} \quad (5.84)$$

La combinaison des équations (5.68)-(5.70) et (5.83) conduit à

$$\overline{k_{23}} = \frac{E^m \phi^f (I_1 I_4 - I_2 I_3)}{2 \left[-(1 - \nu^m) \phi^f (I_4 L_1 - I_2 L_2) + (1 + \nu^m) \phi^f (I_4 L_1 - I_2 L_2 - I_1 I_4 + I_2 I_3) - \nu^m \phi^m (I_1 L_2 - I_3 L_1) \right]} \quad (5.85)$$

5.4.4.4 Détermination du module de cisaillement longitudinal $\overline{G_{12}}$

Le chargement imposé à la cellule est $\sigma_{ij} = 0$ pour tout i, j sauf $\sigma_{23} = \sigma_{31} = \sigma$. On montre dans ces conditions que le champ des déplacements peut se mettre sous la forme :

$$u_r^m = 0 \quad u_z^m = [A^m + B^m (a/r)^2] \cos \theta \quad (5.86)$$

$$u_r^f = u_\theta^f = 0 \quad u_z^f = A^f \cos \theta \quad (5.87)$$

La définition complète des déplacements dans la fibre et dans la matrice passe par la détermination des constantes A^m , B^m et A^f sous les conditions aux limites suivantes :

$$\begin{cases} u_r^m(b) = 2\epsilon_0 b \cos \theta & u_z^m(a) = u_z^f(a) \\ \sigma_{rz}^m = \sigma_{rz}^f \end{cases} \quad (5.88)$$

Le champ des déplacements u est utilisé pour calculer d'abord les déformations ϵ et les contraintes σ dans le composite avec les conditions aux limites (5.88), ce qui donne :

$$u_z^m(b) = 0 \Rightarrow A^m + B^m \phi^f = 2\epsilon_0 \quad (5.89)$$

$$u_z^m(a) = u_z^f(a) \Rightarrow A^f = A^m + B^m \quad (5.90)$$

$$\sigma_{rz}^m = \sigma_{rz}^f \Rightarrow G^m \frac{\partial u_z^m}{\partial r} \Big|_{r=a} = G_{rz}^f \frac{\partial u_z^f}{\partial r} \Big|_{r=a} \quad (5.91)$$

$$\Rightarrow G^m (A^m - B^m) = G_{rz}^f A^f \quad (5.92)$$

La combinaison des équations (5.89)-(5.92) donne :

$$A^m = \frac{2\epsilon_0 (G^m + G_{rz}^f)}{G^m (1 + \phi^f) + G_{rz}^f \phi^m} \quad B^m = -\frac{\phi^m}{\phi^f} (2\epsilon_0 - A^m) \quad A^f = -\frac{\phi^m}{\phi^f} A^m + \frac{2\epsilon_0}{\phi^f} \quad (5.93)$$

L'expression de $\overline{G_{12}}$ s'obtient finalement en écrivant :

$$\overline{G_{12}} \frac{\partial u_z^c}{\partial r} \Big|_{r=b} = G^m \frac{\partial u_z^m}{\partial r} \Big|_{r=b} \quad (5.94)$$

L'exposant c se rapporte au composite ($c = (f) \cup (m)$) ; l'équation (5.94) se réécrit finalement :

$$\boxed{\frac{\overline{G_{12}}}{G^m} = \frac{G^m \phi^m + G_{rz}^f (\phi^f + 1)}{G^m (\phi^f + 1) + G_{rz}^f \phi^m}} \quad (5.95)$$

5.4.4.5 Expression du module d'Young transversal $\overline{E_{22}}$

Des modèles semi-empiriques pourraient également être utilisés pour déterminer les modules d'élasticité transversale et de cisaillement des fibres de renfort. Les modèles de Halpin-Tsai et de Tsai-Hahn sont vraisemblablement parmi les plus utilisés à cet effet. La résolution de l'équation de Halpin-Tsai permet de déterminer E_2^f (que nous assimilerons ici à E_θ^f) suivant :

$$\begin{cases} E_f^\theta = \frac{E_m(\eta\beta+1)}{1-\beta} \\ \beta = \frac{\frac{E_{22}-1}{E_m}}{\eta\phi^f + \frac{E_{22}}{E_m}\phi^f} \end{cases} \quad (5.96)$$

avec η : paramètre d'ajustement qui renseigne sur le degré de renforcement du composite. Quand $\eta=2$, le module d'Young transversal s'accorde bien avec les résultats de l'analyse par différences finies développée par Adams et Doner [165] aux fibres cylindriques réparties suivant un arrangement carré et pour un taux volumique de fibres de 0,55. Plusieurs autres auteurs adoptent une valeur de $\eta=2$ lorsqu'ils appliquent la relation de Halpin-Tsai à E_2 [166, 167, 165]. Compte tenu du manque de données expérimentales pour convenablement identifier ce paramètre pour les composites de notre étude, nous adopterons aussi une valeur de $\eta=2$ dans ce travail. De l'équation (5.96) nous tirons :

$$E_{22} = \frac{-(1 + \eta\phi^f) E_f^\theta + \eta E_m (\phi^f - 1)}{\frac{\phi^f-1}{E_m} E_f^\theta - (\phi^f - \eta)} \quad (5.97)$$

De même la combinaison des équations (5.53) donne :

$$\frac{E_{22}}{E_m} = \frac{(1 + \xi\phi^f) E_f^\theta + (1 - \xi\phi^f) E_m}{(1 - \phi^f) E_f^\theta + (1 + \phi^f) E_m} \quad (5.98)$$

5.5 Application : détermination des constantes élastiques des fibres

Dans ce paragraphe nous mettons en application les résultats de la section 5.4. Les expressions de E_{11} , de G_{12} , de ν_{12} et de E_{22} sont ensuite intégrées dans l'équation (4.11) donnant E_{xx} en fonction de θ . Le but final est de déterminer les constantes élastiques caractérisant l'anisotropie élastique des fibres considérées en partant des caractéristiques du composite, notamment le module d'Young dont les mesures ont été fournies à la section 4.3.4.

Le problème est dès lors celui de la résolution du système surdimensionné (plus de données que d'inconnues) d'équations non linéaires ainsi formé. Il s'agit donc d'un problème d'optimisation que nous résolvons en utilisant la méthode de Levenberg-Marquardt. Une routine de cette méthode a été écrite et mise en exécution sous le logiciel Matlab R2007a.

5.5.1 Constantes élastiques avec l'hypothèse d'orthotropie

Les résultats de l'optimisation sont présentés pour les constantes élastiques des fibres de sisal et de RC étudiées dans ce projet et sont consignés dans le tableau 5.3. Le problème principal de tels algorithmes de calcul est celui de trou-

Propriétés	$E_z^f(GPa)$	$E_r^f(GPa)$	$E_\theta^f(GPa)$	ν_{zr}^f	$\nu_{r\theta}^f$	$\nu_{z\theta}^f$	$G_{rz}^f(GPa)$
Sisal	12,35	5,235	6,262	0,80	-0,364	0,134	2,243
RC	6,82	4,25	2,85	1,32	0,2	0,45	3,88

TAB. 5.3: Constantes élastiques des fibres par approche théorique

ver un vecteur de départ, solution approchée de la solution exacte pour obtenir la convergence de la procédure. La fiabilité des calculs dépend notablement de ce vecteur. Pour E_z nous avons utilisé les valeurs mesurées expérimentalement ; une estimation de G_{rz} est fournie par les résultats des éprouvettes à 45° . Pour le reste des constantes, nous avons adopté l'allure générale des constantes présentées pour un comportement isotrope transverse de la fibre. Du reste, l'implémentation de la routine sous Matlab fait apparaître des perturbations liées au recours à un module empirique pour E_{22} non nécessairement compatible avec la modélisation analytique d'un assemblage de cylindres de Hashin. Il convient également d'évoquer les imprécisions sur la détermination des taux de fibres appliqués à ce modèle analytique. En effet, la question de la détermination fiable du taux de fibres (dont l'influence est notable sur un matériau composite) reste encore une préoccupation pour l'étude du comportement des matériaux NFRCs.

Au demeurant, il se peut également que l'hypothèse d'un comportement orthotrope de la fibre ne soit pas tout a fait la bonne proposition. Ceci nous comptons le vérifier dans paragraphe suivant en faisant l'hypothèse d'un comportement isotrope transverse de la fibre.

5.5.2 Constantes élastiques avec l'hypothèse d'isotropie transverse

L'équation 4.11 reprise dans le cas d'un comportement isotrope transverse du composite s'écrit

$$\frac{1}{E_{xx}} = \frac{1}{E_{11}} \cos^4 \theta + \left(\frac{1}{4G_{23}} + \frac{1}{4K_{23}} + \frac{\nu_{12}^2}{E_{11}} \right) \sin^4 \theta + \left(\frac{1}{G_{12}} - 2 \frac{\nu_{12}}{E_{11}} \right) \sin^2 \theta \cos^2 \theta \quad (5.99)$$

L'analyse faite à la section 5.4 et reprise ici (en gardant à l'esprit que le nombre d'inconnues à déterminer est désormais réduit à 5 au total) conduit aux expressions suivantes :

$$E_{11} = E^m \phi^m + E_z^f \phi^f - \frac{2(\nu_{zr}^f - \nu^m)^2 \phi^m}{\Delta} \quad (5.100)$$

avec

$$- \Delta = \frac{\phi^m}{\phi^f} \left[\frac{\nu_{r\theta}^f - 1}{E_r^f} + \frac{2(\nu_{zr}^f)^2}{E_z^f} \right] - \frac{\phi^f + \nu^m \phi^m - 2(\nu^m)^2 \phi^f + 1}{E^m \phi^f}$$

- $\phi^f = \left(\frac{a}{b}\right)^2$: fraction volumique de fibres

- $\phi^m = 1 - \left(\frac{a}{b}\right)^2 = 1 - \phi^f$: fraction volumique de la matrice

$$\nu_{12} = \nu^m - 2 \frac{1 - (\nu^m)^2}{E^m} \frac{\nu_{zr}^f - \nu^m}{\Delta} \quad (5.101)$$

$$K_{23} = \frac{E^m \phi^f (K_1 K_4 - K_2 K_3)}{2 \left[-(1 - \nu^m) \phi^f (K_4 \lambda_1 - K_2 \lambda_2) + (1 + \nu^m) \phi^f (K_4 \lambda_1 - K_2 \lambda_2 - K_1 K_4 + K_2 K_3) - \nu^m \phi^m (K_1 \lambda_2 - K_3 \lambda_1) \right]} \quad (5.102)$$

avec

$$\begin{aligned} K_1 &= 2 \left(\frac{\nu_{zr}^f \phi^m}{E_z^f \phi^f} + \frac{\nu^m}{E^m} \right) & K_2 &= - \left(\frac{\phi^m}{E_z^f \phi^f} + \frac{1}{E^m} \right) & K_3 &= \frac{\nu^m \phi^m + (1 + \phi^f)}{E^m \phi^f} + \frac{1 - \nu_{r\theta}^f}{E_r^f \phi^f} \phi^m \\ K_4 &= - \left(\frac{\nu^m}{E^m} + \frac{\nu_{zr}^f \phi^m}{E_z^f \phi^f} \right) & \lambda_1 &= - \frac{2\nu_{zr}^f}{E_z^f \phi^f} & \lambda_2 &= - \left(\frac{1 - \nu_{r\theta}^f}{E_r^f \phi^f} + \frac{1 + \nu^m}{E^m \phi^m} \right) \end{aligned}$$

L'expression de G_{12} donnée par l'équation (5.95) reste inchangé.

Sur la base des résultats obtenus par Christensen [105] en introduisant un modèle de 3 cylindres concentriques, G_{23} est donné par

$$\frac{G_{23}}{G^m} = 1 + \frac{\phi^f}{G^m \left(G_{r\theta}^f - G^m \right) + \left(k^m + \frac{7}{3} G^m \right) / \left(2k^m + \frac{8}{3} G^m \right)} \quad (5.103)$$

avec

$$G_{r\theta}^f = \frac{E_r^f}{2(1 + \nu_{r\theta}^f)} \quad G^m = \frac{E^m}{2(1 + \nu^m)} \quad k^m = \frac{E^m}{3(1 - 2\nu^m)}$$

De même, la résolution du problème d'optimisation sous MatLab a permis d'obtenir les constantes élastiques données dans le tableau 5.4. Ces derniers résul-

Propriétés	E_z^f	E_r^f	ν_{rz}^f	$\nu_{r\theta}^f$	G_{rz}^f
Sisal	12,35	5,453	0,420	0,240	2,245
RC	6,520	0,2185	0,132	0,200	1,878

TAB. 5.4: Constantes élastiques des fibres par approche théorique

tats sont globalement satisfaisants et révèlent par ailleurs l'incohérence de l'utilisation simultanée des modèles empirique et analytiques. Des développements numériques futurs permettront de dire le type de comportement qu'il convient d'adopter pour la fibre.

5.6 Conclusion

Ce chapitre nous a permis de faire ressortir différentes possibilités de modélisations théoriques du comportement élastique des matériaux composites. Ces possibilités sont diverses et ont été généralement développées pour modéliser les composites isotropes ou isotropes transverses. Il est apparu que malgré cette abondance, il est difficile de trouver une approche capable de rendre compte du comportement plus complexe de nos composites, relatif à l'anisotropie 3D induite par l'un ou par les 2 constituants (pour un composite à 2 phases). Le cas des NFRCs, supposés orthotropes ici, confirme bien cette problématique. Les fibres végétales utilisées pour le renforcement sont poreuses lorsque les méthodes d'extraction utilisées ne permettent pas d'atteindre une grande finesse. Ceci pose évidemment le problème même de la nature des concepts théoriques qu'il faut appliquer lorsqu'il s'agit de leur utilisation en l'état comme éléments de renfort. Une étape préliminaire mais non moins importante, a néanmoins été franchie ici, en ce qu'elle a été effectuée afin d'optimiser les estimations des propriétés du stratifié unidirectionnel utilisant les fibres naturelles, à partir de données expérimentales. Les résultats obtenus, indiquent qu'un comportement isotrope transverse des fibres est la meilleure hypothèse du point de vue de la prédiction analytique de l'ensemble des constantes élastiques. Des développements numériques futurs permettront de dire le type de comportement qu'il convient d'adopter pour la fibre. C'est principalement la difficulté de prise en compte de l'adhérence, et les moyens utilisés pour fabriquer les NFRCs qui sont à l'origine des écarts d'estimation dans les différents cas de comportement présentés ici.

Chapitre 6

Identification numérique des propriétés mécaniques de la fibre

6.1 Introduction

Les chapitres 2 et 3 ont mis en relief l'architecture pariétale des fibres végétales ; et en particulier celle des fibres RC dont nous envisageons le calcul numérique des propriétés dans ce chapitre.

Les simulations numériques scientifiques reposent sur la mise en œuvre de modèles théoriques utilisant souvent la technique dite des éléments finis. Elles sont donc une adaptation aux moyens numériques de la modélisation mathématique, et servent à étudier le fonctionnement et les propriétés d'un système modélisé ainsi qu'à en prédire son évolution. On parle également de calcul numérique. Grâce à la simulation numérique, sans prétendre à une description exhaustive, on peut mieux comprendre la recherche fondamentale ou appliquée, dans différents domaines. Les outils traditionnels que sont devenus l'expérimentation, les tests, les maquetages, etc sont devenus très coûteux en temps ou en argent (exemple les crash tests), parfois insuffisamment représentatifs.

Différents travaux sur l'identification numérique des fibres végétales sont rapportés dans la littérature et sont pour la plupart effectués sur des fibres de bois. Ces travaux qui sont diversement évoqués dans la référence [6], ont mis en évidence l'anisotropie prononcée entre les rigidités transversale et longitudinale ; aucune explication n'a été fournie sur la différence entre les rigidités radiale et tangentielle.

La modélisation numérique des propriétés mécaniques des fibres végétales sur la base de leur microstructure nécessite la définition précise d'un VER qui comme son nom l'indique soit représentatif du comportement du matériau. Trois niveaux d'échelle sont généralement retenus pour étudier le comportement mé-

canique des fibres : la microfibre, la paroi végétale et la fibre. Dans ce chapitre nous considérerons un VER à l'échelle de la microfibre pour alimenter les calculs numériques. Les modèles géométriques du VER retenus sont tirés de la littérature et seront simplifiés étant donné qu'ils doivent être utilisés dans un code de calcul par éléments finis. Ils doivent par conséquent être compris comme étant une approximation de la microstructure. Un aspect du travail développé repose sur la notion d'homogénéisation décrite au chapitre 5. Deux étapes importantes de l'identification des propriétés de la fibre seront traitées. Sur la base des propriétés mécaniques de leurs constituants chimiques (définies dans la section 2.4), les caractéristiques des différentes parois sont calculées. Ces propriétés sont ensuite utilisées dans un modèle EF appliqué à la fibre. Une comparaison des résultats obtenus par cette approche et l'expérimentation est ensuite présentée à la fin de ce chapitre.

6.2 Modélisation multi-échelle des propriétés élastiques de la fibre

La structure hiérarchisée de la fibre se prête bien à une modélisation multi-échelles. Les différents niveaux d'échelles abordés dans ce travail et représentés à la figure 6.2 sont les suivants :

- ◇ échelle des constituants chimiques, cellulose, hémicellulose et lignine : échelle qui est de l'ordre du nanomètre,
- ◇ échelle de la paroi de l'ordre du micromètre,
- ◇ échelle de la fibre de l'ordre du millimètre.

Le passage de l'échelle des constituants chimique à celle de la paroi est traité sur la base des modèles géométriques de la microfibre proposés dans la littérature, et l'une des méthode d'homogénéisation proposées dans le chapitre 5. Le passage de la paroi à la fibre sera développé par une modélisation numérique qui sera mise en œuvre dans un code de calcul par éléments finis. La paroi végétale qui nous intéresse ici, a été décrite au chapitre 2 comme étant un assemblage de sous-couches. Cet assemblage est similaire à celui décrit pour les stratifiés composites. Leur modélisation par éléments finis devrait par conséquent intégrer des éléments permettant un empilement des couches. Compte tenu des dimensions transversales des parois, nous avons adopté pour cette description EF, des éléments finis de type coques 2D.

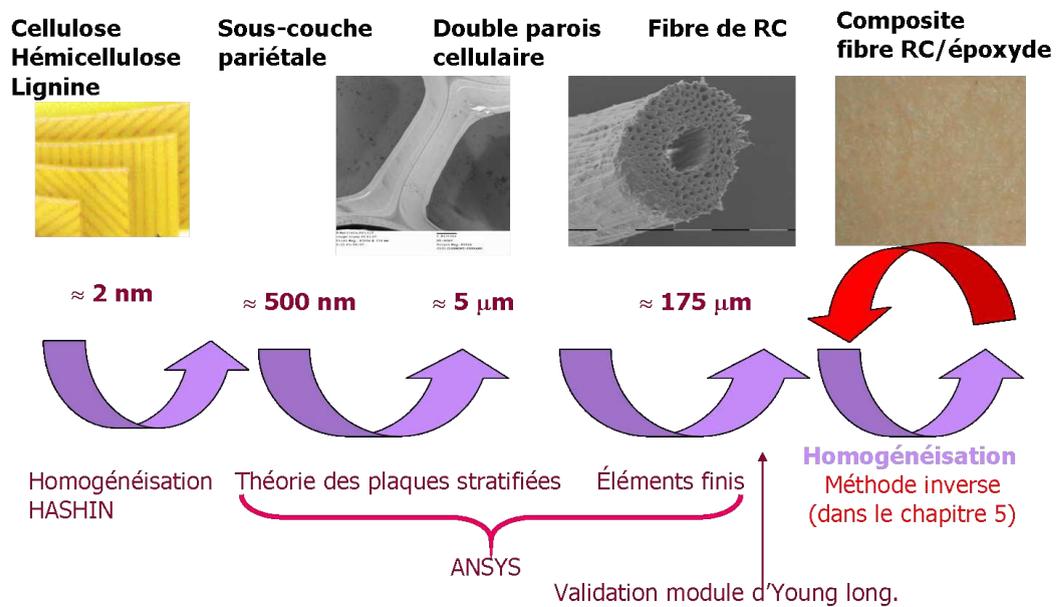


FIG. 6.1: Les différents niveaux d'échelles

6.3 Détermination des propriétés élastiques des couches pariétales

6.3.1 Introduction

Nous considérons ici la caractérisation des couches de la paroi végétale. Nous adoptons une approche analytique simple mais rigoureuse permettant d'atteindre plus rapidement le niveau d'échelle suivant, c'est à dire l'échelle de la fibre. Nous rappelons également que la plupart des travaux s'accordent sur le fait que les différentes parois et leurs sous-couches contribuent diversement au comportement mécanique des fibres végétales. Il convient cependant de donner des précisions sur le modèle géométrique utilisé dans ce contexte.

6.3.2 Modèle géométrique de la microfibre

Différents modèles géométriques de la microfibre, notre VER, sont proposés dans la littérature. Une convergence quant à la forme rectangulaire de la section droite de la microfibre se dégage de ces modèles. Mais aussi quant au fait que les microfibrilles de cellulose sont situées au centre et sont entourées d'une matrice d'hémicellulose et de lignine. Les différences portent en général sur l'organisation des différents constituants de la microfibre. Au nombre des modèles communément rencontrés, citons ceux proposés par Preston [168] et Fengel [169] et illustrés par la figure 6.2. L'arrangement des constituants chimiques n'est pas entièrement

connu, quoique certains travaux [6] indiquent que la représentation de Preston est plus exacte que celle de Fengel.

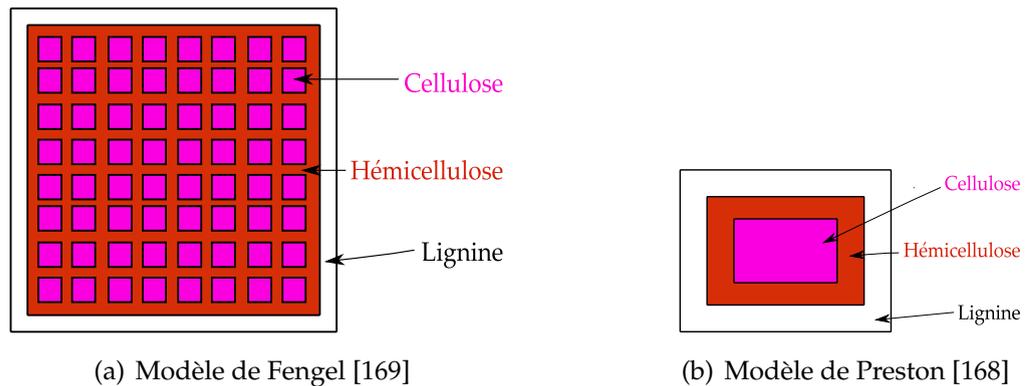


FIG. 6.2: Organisation géométrique des macromolécules dans la microfibre

Les travaux de Pearson [6] sur la détermination numérique des caractéristiques de la paroi végétale montrent eux aussi que le modèle proposé de la figure 6.2(b) permet d'obtenir de bien meilleures prédictions que celui de la figure 6.2(a). Nous avons par conséquent opté pour le modèle proposé par Preston. Nous avons cependant choisi de le "simplifier" pour permettre une détermination analytique des propriétés mécaniques de la paroi. Le modèle utilisé dans ce projet est celui d'un assemblage de trois cylindres concentriques tel qu'illustré par la figure 6.3.

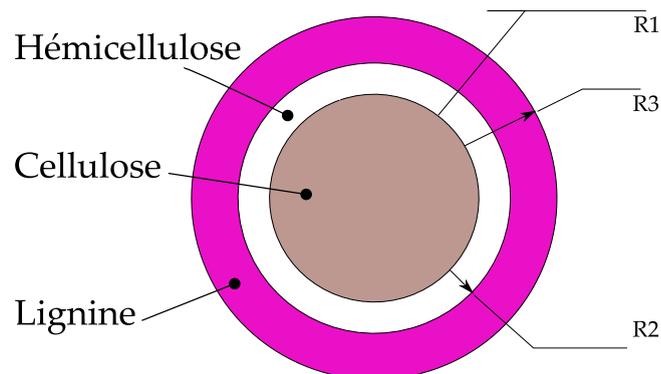


FIG. 6.3: Organisation géométrique des macromolécules de la microfibre adoptée dans ce projet

6.3.3 Propriétés élastiques des couches de la paroi

Sur la base du modèle simplifié de la figure 6.3, la détermination analytique des constantes élastiques d'un tel matériau peut être faite en considérant, comme rapporté à la section 2.4, que ses constituants, cellulose, hémicellulose et lignine,

sont isotropes transverses pour les 2 premiers et isotrope pour le dernier. Les résultats de Hashin [108] sur un assemblage de cylindres à deux phases ont tout d'abord été appliqués au couple (Cellulose, hémicellulose (matériau C-H)), puis appliqués au matériau (C-H)-lignine. Notons qu'une généralisation des résultats de Hashin au composite à n phases a été proposée par Lagoudas et al. [170], mais n'a pas été prise en compte à cette occasion.

Le tableau 6.1 contient les fractions volumiques qui ont été utilisées pour le calcul des propriétés des différentes couches. Les épaisseurs mentionnées dans ce tableau sont celles obtenues à partir des observations TEM de la fibre RC au chapitre 3. Les constantes élastiques des constituants chimiques sont tirées des tableaux 2.2, 2.3 et 2.4.

Couche pariétale	Épaisseur RC (μm)	Teneur (%)		
		Cellulose	Hémicellulose	Lignine
S ₁ +P+M/2	0,53	20	15	65
S ₂	1,6	50	27	23
S ₃	0,6	45	35	20

TAB. 6.1: Fractions volumiques des constituants chimiques et épaisseurs des couches de la paroi

Les tableaux 6.2 et 6.4 résument les caractéristiques mécaniques obtenues pour les couches S₂ et S₃. La paroi primaire P, la sous couche S₁ et la moitié de la lamelle moyenne ont été regroupées en une seule couche (M/2+P+S₁) et leurs caractéristiques sont contenues dans le tableau 6.3.

Propriétés	valeurs calculées	
	12% d'humidité	20% d'humidité
E ₁₁ (GPa)	68,026	67,556
E ₂₂ (GPa)	2,855	2,377
G ₁₂ (GPa)	1,538	1,149
G ₂₃ (GPa)	1,023	1,02
ν_{12} (-)	0,156	0,136
ν_{23} (-)	0,395	0,306

TAB. 6.2: Rigidités élastiques de la couche S₂

Propriétés	valeurs calculées	
	12% d'humidité	20% d'humidité
E_{11} (GPa)	28,425	28,196
E_{22} (GPa)	2,315	2,052
G_{12} (GPa)	1,004	1,0
G_{23} (GPa)	0,802	0,713
ν_{12} (-)	0,258	0,206
ν_{23} (-)	0,443	0,506

TAB. 6.3: Rigidités élastiques de la couche M/2+P+S₁

Propriétés	valeurs calculées	
	12% d'humidité	20% d'humidité
E_{11} (GPa)	61,422	60,762
E_{22} (GPa)	2,386	2,108
G_{12} (GPa)	1,477	2,014
G_{23} (GPa)	0,855	1,5299
ν_{12} (-)	0,164	0,11
ν_{23} (-)	0,394	0,324

TAB. 6.4: Rigidités élastiques de la couche S₃

6.4 Calcul numérique des propriétés élastiques de la fibre de RC

Nous traitons de la détermination des constantes élastiques de la structure fibre de RC dont la morphologie et la microstructure ont été détaillées au chapitre 3. Un modèle géométrique des cellules unitaires est adopté pour construire la structure fibre qui servira aux calculs par éléments finis et aux simulations.

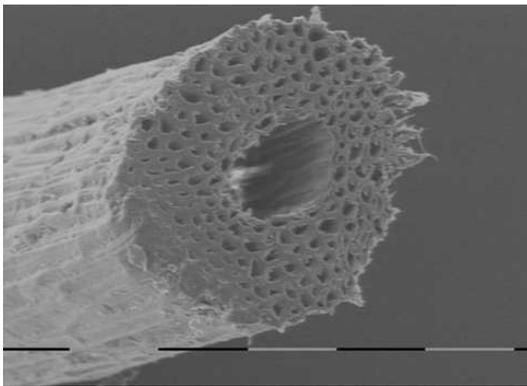
Couche pariétale	Angle χ_2 (°) des microfibrilles
P	aléatoire
S ₁	70
S ₂	40
S ₃	75

TAB. 6.5: Angles des microfibrilles des couches pariétales utilisés dans ce projet

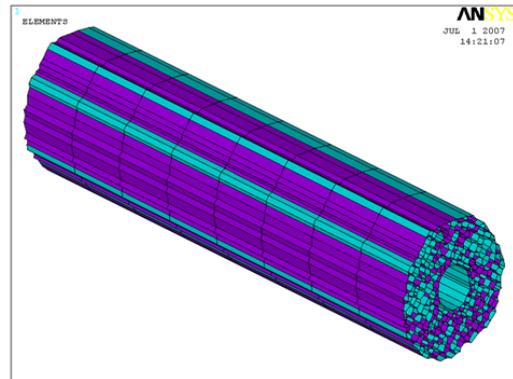
6.4.1 Modèles géométriques des cellules et de la fibres

La géométrie des cellules de la fibre est dérivée des micrographies SEM et TEM du chapitre 3 et reprise ici par la figure 6.4(a). Ces images révèlent évidemment une grande variabilité quant aux dimensions et formes des sections droites de ces cellules unitaires. On observe néanmoins une bonne régularité pour ce qui est de l'arrangement radial des cellules qui sont disposées en rangées quasi concentriques au canal central. En tenant compte de ces résultats et par souci de simplification, nous avons d'abord adopté un modèle hexagonal pour la section droite des cellules représenté par la figure 6.4(c). Une modélisation plus exacte de la géométrie des cellules basée sur l'analyse des micrographies et l'utilisation de l'algorithme de Voronoï a ensuite été effectuée. La figure 6.4(d) représente la géométrie de la section droite ainsi obtenue. Une distinction a été faite entre les par-

Géométrie :



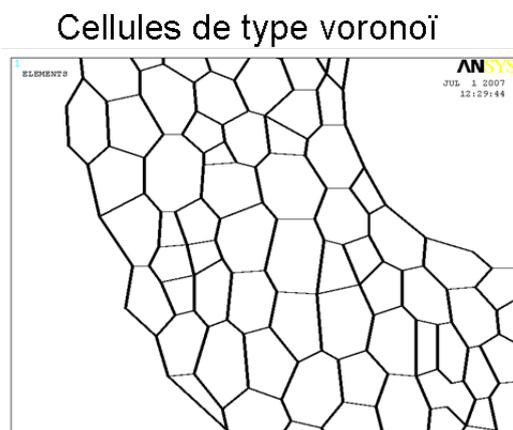
(a) géométrie de la fibre en SEM



(b) géométrie de la fibre sous ANSYS



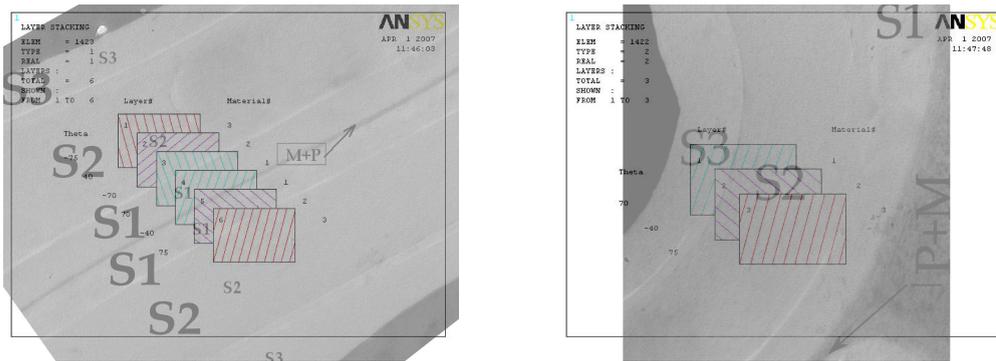
(c) géométrie de la fibre sous ANSYS avec cellules hexagonales



(d) géométrie sous ANSYS avec des cellules de type voronoï

FIG. 6.4: Géométrie de la fibre et des cellules unitaires utilisée dans le modèle EF

ties faisant intervenir une double paroi (voir figure 6.5) (tous les éléments compris entre le diamètre extérieur et le canal central) et les éléments ne faisant intervenir qu'une seule paroi, les couronnes intérieure et extérieure.



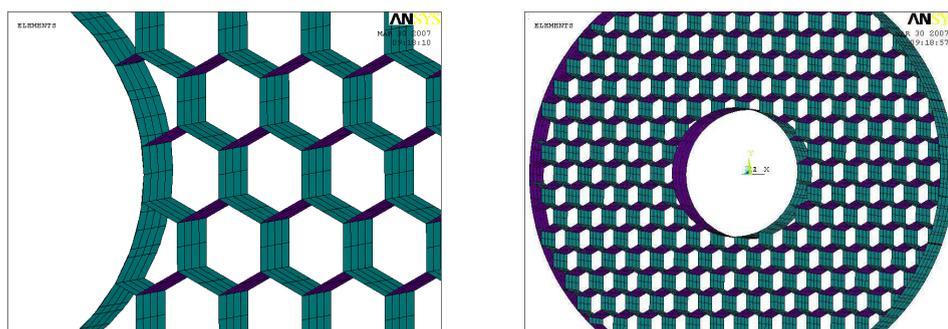
(a) Double paroi

(b) Paroi simple

FIG. 6.5: Représentation de la double paroi du modèle géométrique adopté

6.4.2 Maillage de la fibre

Dans la procédure EF faite sous ANSYS v.10, un maillage intégrant des éléments coques 2D SHELL91 à 8 nœuds, a été utilisé pour la discrétisation des couches de la paroi. L'élément SHELL 91 autorise l'empilement de plusieurs couches, mais aussi un traitement en comportement non linéaire (non abordé ici). Nous avons de même pris en compte l'angle d'orientation des microfibrilles sur chaque couche répertoriée, permettant ainsi le calcul des matrices de rigidité élémentaires des éléments des faces dans le système de coordonnées global. Les valeurs d'angles données dans le tableau 6.5 ont été utilisées; seul l'angle des microfibrilles de S_2 a été mesuré dans ce projet, les autres valeurs proviennent de la littérature [6].



(a)

(b)

FIG. 6.6: Maillage de la fibre

6.4.3 Résultats et commentaires

Pour déterminer les caractéristiques mécaniques de base de la fibre, des chargements élémentaires ont ensuite été imposés. La figure 6.7 représente le cas d'une sollicitation de traction avec un déplacement longitudinal imposé.

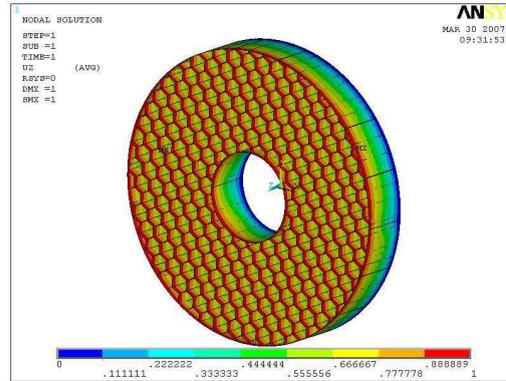
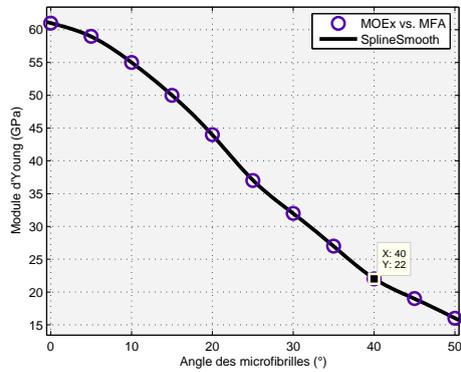


FIG. 6.7: État de contraintes dans la fibre sous chargement axial uz

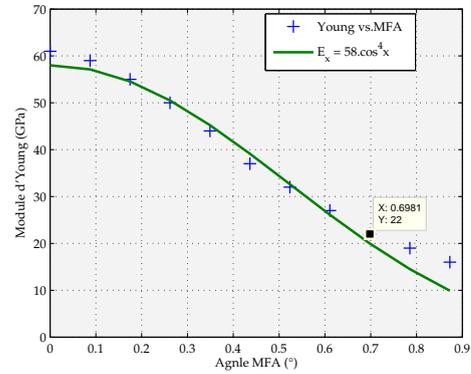
Propriété	Modèle numérique (cellules idéales)	Modèle numérique (cellules de voronoï)	Modèle analytique (méthode inverse)	Essais
E_z^f (GPa)	22,75	20,12	6,82	2-17

TAB. 6.6: Rigidités élastiques de la fibre

Pour valider l'exactitude du modèle adopté ici, nous avons entrepris une étude de sensibilité en modifiant différents paramètres du matériau, notamment les constantes élastiques des couches, et l'angle des microfibrilles de la couche S_2 . Les angles des autres couches de la paroi secondaire sont reconnus ne pas admettre de notables variations dans le cas du bois. Les angles des microfibrilles de ces couches ont été maintenus constants à 70° et 75° (voir tableau 6.5), valeurs préconisées pour les fibres de bois. La figure 6.8 illustre l'évolution du module d'Young en fonction de l'angle des microfibrilles. La valeur du module pour $X_2=40^\circ$ est $E = 22,75$ GPa ; elle est en accord avec les mesures expérimentales effectuées quand on tient compte de toutes les simplifications et hypothèses faites pour ce calcul numérique.



(a) Spline lissée



(b) ajustement modèle de Hearle de (2.4)

FIG. 6.8: Sensibilité du module d'Young à l'angle des microfibrilles

On peut observer la forte dépendance du module à l'angle MFA (X_2), dépendance du reste bien connue et illustrée dans la littérature. Nous avons voulu savoir si le modèle de Hearle donné par la relation (2.4) peut être validé avec le présent modèle EF en ajustant les données à une relation de la forme $E_x = E^* \cos^m X_2$. Les données de la figure 6.8 conduisent à $m=3,64 \approx 4$ et $E^*=57,89 \approx 58$. Nos résultats conduisent plutôt à de meilleures prédictions avec $\cos^4 X_2$ et non $\cos^2 X_2$ tel que suggéré par Hearle. Enfin, la valeur du module d'Young $E = 22,75$ GPa pour $X_2=40^\circ$ constitue un excellent accord avec les résultats d'essais de traction sur la fibre présentés au chapitre 3.

6.4.4 Conclusion

La modélisation numérique abordée dans la dernière partie de ce travail n'a été à notre sens qu'une entrée en matière quant à l'établissement de modèles numériques permettant la prédiction des propriétés des fibres. Quelques unes des hypothèses formulées ici ont permis une simplification du travail de modélisation, mais ont conduit cependant à des résultats satisfaisants sur la détermination du module d'Young longitudinal. Ces résultats peuvent être améliorés par la prise en compte de l'ultrastructure de la fibre telle que révélée par des micrographies. Et des traitements d'images programmables peuvent être mis à contribution pour définir une géométrie plus proche de la réalité. De même prendre en compte la souplesse induite par le "matériau ciment" intercellulaire et traiter les cas de comportement non linéaire et le comportement thermique sont à envisager. La nécessité des modèles numériques pouvant permettre de prédire un nombre varié de caractéristiques mécaniques est impérieuse quand on considère que l'utilisation des fibres végétales est en plein essor. Ces modèles pourraient

tout aussi servir à la compréhension des phénomènes qui se produisent dans la paroi végétale lorsque celle-ci est sollicitée.

Conclusion et Perspectives

Ce travail consacré à la caractérisation des fibres végétales et des composites qu'elles renforcent a permis de mener une étude détaillée sur une nouvelle fibre, le RC qui présente des potentialités d'utilisation intéressantes.

Les travaux menés jusqu'ici sur les NFRCs montrent toute la complexité de ces nouveaux matériaux. La revue de littérature qui leur a été consacrée montre la diversité des NFRCs tant au niveau de leur conception que de leur fabrication et de leur usage. Le choix du traitement de couplage nécessite la définition de la concentration et de la structure chimique des agents de couplage ainsi que la prise en considération de la forme, de la taille et de l'espèce de la fibre végétale et de la matrice. Il est important de tenir compte du taux de fibres végétales, du procédé de fabrication et de l'utilisation finale du produit. Globalement, pour chaque type de composites NFRCs, il existe un traitement de surface capable d'améliorer efficacement ses caractéristiques. Les effets sont variés et ont été longuement évoqués dans la section 1.4.

Au stade actuel de l'utilisation des fibres naturelles dans le domaine des composites, beaucoup reste encore à faire quant à l'obtention de matériaux biodégradables. On a en effet besoin de recherches pour améliorer le lien entre les fibres naturelles et la matrice de polymère qui sert à maintenir les fibres dans les matériaux biocomposites. De même il y a aussi des défis à relever quant à la mise au point des combinaisons de matériaux pour les applications structurales. Il convient néanmoins de se réjouir de ce que les blocages techniques relatifs à l'absorption d'humidité par ces matériaux soient progressivement levés. Des traitements particuliers sont appliqués aux fibres pour ce faire. Ceci augure de nouveaux horizons d'explorations, notamment pour la fabrication de pièces devant fonctionner sous environnement sévère.

La question de l'amélioration de la qualité de la fibre extraite a connu bien des réponses satisfaisantes notamment quant à la possibilité de combiner plusieurs méthodes quant cela s'avère nécessaire. D'autres questions réclament encore des travaux de recherche. Elles incluent entre autres, les conditions de croissance pour la multiplication des semences et la production des fibres; les méthodes de ré-

colte ; l'extraction des fibres et l'optimisation de leur séparation ; le fondement moléculaire de l'amélioration de la décortication et de la performance des fibres. Les connaissances acquises grâce à ce travail sur l'amélioration de l'extraction serviront à concevoir de nouvelles variétés de fibres faites sur mesure pour des applications industrielles particulières.

De même, le recours à la protéomique a été récemment engagé dans l'Union Européenne, pour isoler les gènes qui participent à la biosynthèse de la lignine des parois cellulaires et de l'hémicellulose dans le tabac. Les variations subies par ces composants peuvent affecter la qualité des fibres et la disponibilité de la cellulose. Ces connaissances peuvent servir à orienter des programmes de sélection moléculaire ainsi que les modifications génétiques servant à améliorer la qualité des fibres végétales.

Sur le plan du comportement mécanique des fibres végétales, des développements importants ont été réalisés et ont permis de mettre en évidence l'influence de la composition chimique et des paramètres structuraux de la paroi végétale sur les propriétés à l'étirement de ces fibres. Les aspects relatifs à la microstructure de ces fibres révèlent que celle-ci est d'une grande complexité notamment lorsqu'il s'agit de définir des modèles géométriques et analytiques généralisables pour la décrire. Comme indiqué plus haut, l'amélioration des propriétés mécaniques des fibres passera peut-être par l'introduction de nouveaux types de fibres. Et nous pourrions relever dans ce tableau les recherches en cours sur le filage avec solvant de la cellule naturelle (type I, cristalline) [86], lesquels travaux pourraient aboutir à des fibres de plus grande résistance et de moindre dispersion des propriétés.

Le champ d'exploration des fibres végétales pouvant être exploitées industriellement reste bien ouvert. C'est pourquoi nous avons entrepris une étude en profondeur sur une nouvelle fibre végétale, le *Rhectophyllum Camerunense*. Entre autres, une meilleure connaissance de la microstructure et de la morphologie de la fibre nous a permis de mieux expliciter le comportement de ce matériau en traction. Ses propriétés mécaniques de base ont en outre été déterminées par une analyse statistique minutieuse. L'analyse biochimique de détermination des teneurs de ses composés, notamment le taux de cellulose de 68%, révèle qu'elle possède des atouts intéressants quant à son utilisation mécanique. De plus, grâce à sa masse volumique de 0,94 g/cm³ la plus faible de toutes les fibres jusque là étudiées, son fort taux d'allongement et sa grande résistance à la traction lui confèrent des avantages décisifs pour être utilisée comme renfort dans les composites. D'autres voies d'exploration de cette nouvelle fibre existent et incluraient notamment l'étude de son comportement thermique et ses possibles applications dans l'isolation.

Différentes possibilités de modélisations théoriques du comportement aniso-

trope élastique des matériaux composites existent. Il est apparu que malgré cette abondance, il est difficile de trouver une approche capable de rendre compte du comportement plus complexe de nos composites, relatif à l'anisotropie 3D induite par l'un ou par les 2 constituants (pour un composite à 2 phases). Le cas des NFRCs, supposés orthotropes ici, confirme bien cette problématique. Les fibres végétales utilisées pour le renforcement sont poreuses lorsque les méthodes d'extraction utilisées ne permettent d'atteindre une grande finesse. Ceci pose évidemment le problème même de la nature des concepts théoriques qu'il faut appliquer lorsqu'il s'agit de leur utilisation en l'état comme éléments de renfort. Une étape préliminaire mais non moins importante, a néanmoins été franchie ici, en ce qu'elle a été effectuée afin d'optimiser l'estimation des propriétés mécaniques du stratifié unidirectionnel utilisant les fibres naturelles, à partir de données expérimentales. Les résultats obtenus, indiquent qu'un comportement isotrope transverse des fibres est la meilleure hypothèse du point de vue de la prédiction analytique de l'ensemble des constantes élastiques. Des développements numériques futurs permettront de dire le type de comportement qu'il convient d'adopter pour la fibre. C'est principalement la difficulté de prise en compte de l'adhérence, et les moyens utilisés pour fabriquer les NFRCs qui sont à l'origine des écarts d'estimation dans les différents cas de comportement présentés ici.

La modélisation numérique abordée dans la dernière partie de ce travail n'a été à notre sens qu'une entrée en matière quant à l'établissement de modèles numériques permettant la prédiction des propriétés des fibres. Quelques unes des hypothèses formulées ici ont permis une simplification du travail de modélisation, mais ont conduit cependant à des résultats satisfaisants sur la détermination du module d'Young longitudinal. Ces résultats peuvent être améliorés par la prise en compte de l'ultrastructure de la fibre telle que révélée par des micrographies. Et des traitements d'images programmables peuvent être mis à contribution pour définir une géométrie plus proche de la réalité. De même prendre en compte la souplesse induite par le "matériau ciment" intercellulaire et traiter les cas de comportement non linéaire et le comportement thermique sont à envisager. La nécessité des modèles numériques pouvant permettre de prédire un nombre varié de caractéristiques mécaniques est impérieuse quand on considère que l'utilisation des fibres végétales est en plein essor. Ces modèles pourraient tout aussi servir à la compréhension des phénomènes qui se produisent dans la paroi végétale lorsque celle-ci est sollicitée.

La compréhension de la manière dont la morphologie des fibres influe sur les propriétés des matériaux composites est essentielle pour l'industrie. Plus précisément elle est importante quant au choix de nouvelles fibres, quant aux orientations possibles sur la culture des plantes fibreuses pouvant être génétiquement

sélectionnées. Mais également, ceci permettrait de prédire leur potentialité de renforcement dans d'autres matériaux pour atteindre les propriétés désirées.

Annexes

Annexe A

Ajustement d'une loi de probabilité à un échantillon

Le diagramme de la figure A.1 récapitule les étapes nécessaires pour l'identification du modèle statistique applicable à l'échantillon de données d'essais relatives à un matériau composite. La séquence des opérations qui y sont décrites est évidemment indépendante de la taille de l'échantillon.

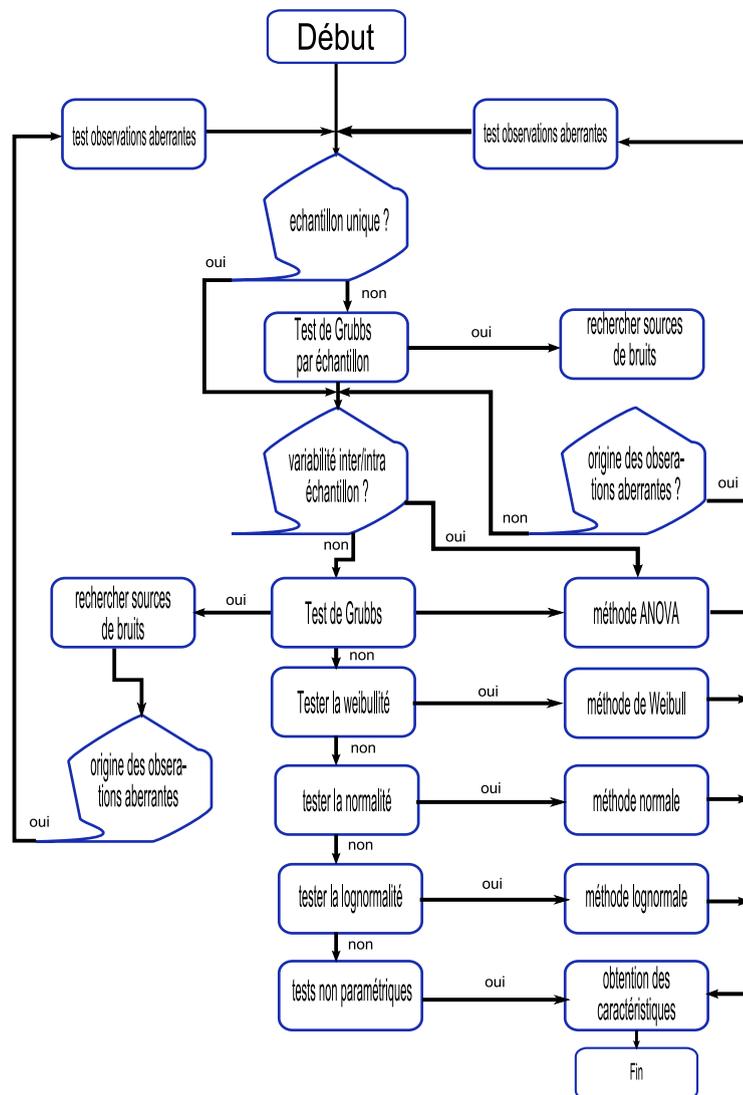


FIG. A.1: Procédure de traitement statistique

L'application de ce diagramme évitera une mauvaise application de la procédure de traitement statistique. Une augmentation des lots techniques (ou échantillons) ou du nombre de spécimens par lot augmente la puissance des tests et la précision des estimations.

A.1 Cas d'un échantillon unique de données

A.1.1 Introduction

Les données sont d'abord scrutées (criblées) pour vérifier la variabilité. Ceci est recommandé pour que l'expérimentateur puisse reconnaître les éventuelle erreurs de manipulation. Les tests d'ajustements permettent ensuite de déterminer

la loi de distribution la plus compatible avec les données. Dans l'ordre de préférence, les distributions de Weibull, de Gauss et lognormale sont les meilleures candidates pour une telle modélisation [171]. Et si aucune d'elles n'est ajustable à l'échantillon, les méthodes non paramétriques peuvent être appliquées.

La détermination des propriétés de base pour plus d'un échantillon exige l'application du test de l'uniformité des populations. Si cette uniformité peut être admise, les données sont groupées et les propriétés extraites comme pour un unique échantillon. Il convient toutefois de vérifier l'hypothèse de l'égalité des variances des différents échantillons.

A.1.2 Test de Grubbs pour détection des observations aberrantes (Cas déviants)

Avant tout Il faut cribler les données pour déterminer la méthode d'analyse la plus appropriée (voir diagramme de la figure A.1). Si les cas déviants existent, ils devraient être traités afin d'en connaître la provenance. On peut ensuite corriger ou enlever les données concernées de l'échantillon. On utilise pour ce faire, plusieurs méthodes statistiques. Le test de Grubbs, en particulier, connu également sous le nom de ESD (Extreme Studentized Deviate) est facile à appliquer.

La première étape pour mettre en oeuvre ce test consiste à quantifier la mesure de la déviation d'une observation par rapport aux autres. On calcule pour cela le quotient :

$$r_i = \frac{|\bar{X} - x_i|}{S_X} \quad (\text{A.1})$$

- si r_i est grand, le quantile x_i est éloigné des autres. Les calculs de la moyenne \bar{X} et l'écart-type S_X intègrent les cas déviants . Étant donné que 5% de valeurs d'une population gaussienne s'écartent de $1,96S_X$ de la moyenne on pourrait de prime abord affirmer que le quantile est tiré d'une population gaussienne.
- si $r_i > 1,96$, cette approximation convient lorsqu'on connaît \bar{X} et S_X de la population représentée par le jeu de données, ce qui est généralement le cas pour les contrôles de qualité mais pas pour les sciences expérimentales. Dans ce dernier cas, S_X et \bar{X} sont fournis par les données et l'on désire savoir si les valeurs des observations sont compatibles les unes par rapport aux autres.

La présence d'un cas déviant accroît S_X . Seulement, étant donné que le numérateur de r_i augmente également, r_i ne croit pas exagérément. En fait, quelle que soit la forme de la distribution, r_i reste inférieur à $(n - 1) / \sqrt{n}$, n étant le nombre d'observations.

Grubbs et al. ont constitué des tableaux de valeurs critiques, CV , définies comme suit :

$$CV = \frac{n-1}{\sqrt{n}} \sqrt{\frac{t^2}{n-2+t^2}} \quad (\text{A.2})$$

avec

t : quantile d'ordre $1 - \alpha/2n$ distribué suivant une loi de Student. α définit le niveau de confiance suggéré (95% pour un unique échantillon de données). On notera que α augmente avec la taille n de l'échantillon

- si $r_i > CV$, l'observation est déclarée aberrante

Remarque : Cette méthode est appliquée pour les valeurs extrêmes, mais en cas de doute, on calcule tous les r_i . Si l'on décide d'extraire le cas déviant, on devrait refaire le test de Grubbs, et si tel est le cas, on n'utilisera pas la même table des CV . Rosner [172] a étendu la méthode à la détection multiple de cas déviants dans le même échantillon.

A.2 Traitement applicable à un unique échantillon

La détection de la variabilité étant faite, l'étape suivante consiste à essayer d'identifier un modèle approprié de distribution en utilisant les méthodes d'ajustement.

A.2.1 Méthode de Weibull

La fonction densité de probabilité de la distribution de Weibull dite cumulative, à 2 paramètres, s'écrit :

$$f(x) = \alpha\beta x^{\beta-1} \exp(-\alpha x^\beta) \quad (\text{A.3})$$

où α, x, β sont tous des réels positifs

avec :

- β : paramètre de forme,
- α : paramètre d'échelle.

Les paramètres α et β sont obtenus par diverses méthodes dont la méthode MLE (estimateur du maximum de vraisemblance) ou par l'analyse linéaire de la régression sur les données, qui sont explicitées aux sections A.3 et A.4.

La probabilité d'apparition d'une observation x est donnée par :

$$P(t \leq x) = \int_0^x f(t)dt = 1 - \exp(-\alpha x^\beta) \quad (\text{A.4})$$

La moyenne est définie par :

$$\mu = \alpha^{-1/\beta} \Gamma\left(1 + \frac{1}{\beta}\right) \quad (\text{A.5})$$

La variance est définie par

$$\langle \sigma \rangle^2 = \alpha^{-2/\beta} \left\{ \Gamma\left(1 + \frac{2}{\beta}\right) - \left[\Gamma\left(1 + \frac{1}{\beta}\right) \right]^2 \right\} \quad (\text{A.6})$$

avec Γ représentant la fonction gamma donnée par :

$$\Gamma(a) = \int_0^{+\infty} x^{a-1} \exp(-x) dx \quad (\text{A.7})$$

Lorsque la distribution de Weibull est appliquée aux fibres, la fonction densité de probabilité f est donnée par

$$f(\sigma) = \frac{L}{\sigma_0} m \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^{m-1} \exp \left[-L \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad (\text{A.8})$$

Ainsi les moyenne et variance données aux équations (A.5) et (A.6) se réécrivent

$$\mu = \sigma_0 L^{-1/m} \Gamma\left(1 + \frac{1}{m}\right) \quad (\text{A.9})$$

et

$$\langle \sigma \rangle^2 = \sigma_0^2 L^{-2/m} \left\{ \Gamma\left(1 + \frac{2}{m}\right) - \left[\Gamma\left(1 + \frac{1}{m}\right) \right]^2 \right\} \quad (\text{A.10})$$

avec :

- m : module de Weibull (le paramètre de forme),
- L : longueur de la fibre (le paramètre d'échelle),
- σ_0 : la résistance caractéristique de la fibre,

Les équations (A.8)-(A.10) sont tirées des équations (A.3), (A.5) et (A.6) par substitution de $\alpha = \frac{L}{\sigma_0^m}$, et de $L_0 = 1$ (par souci de simplification). Les équations (A.9) et (A.10) indiquent clairement que la longueur entre jauges de la fibre a une influence aussi bien sur la moyenne que sur la variance. On peut tout aussi observer que plus le module de Weibull est grand, moins précise devient la détermination des moyenne et variance de la résistance à rupture. Cependant, lorsque m est petit ($2 \leq m \leq 15$), l'incertitude devient grande quant au moment précis de l'avènement d'une défaillance de la fibre. Ainsi, bien que m et σ_0 n'ait aucune signification physique, ces paramètres interviennent dans le calcul des moyenne et variance, et renseignent sur le degré de dispersion des données.

La probabilité de survie est définie par :

$$P_s(x \leq \sigma) = \int_0^\sigma F(x) dx = 1 - \exp \left[-L \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad (\text{A.11})$$

et la probabilité de défaillance est définie par

$$P_s(x \geq \sigma) = 1 - P_s(\sigma) = \exp \left[-L \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad (\text{A.12})$$

A.2.2 Test d'adéquation

Le test d'Anderson-Darling¹ est suggéré pour vérifier la "Weibullité" car il s'accommode bien aux singularités dans les régions extrêmes. Après rangement des quantiles² par ordre croissant, on calcule :

$$Z_{(i)} = \left(\frac{\sigma_i}{\hat{\sigma}_0} \right)^{\hat{m}} \quad (\text{A.13})$$

$\hat{\sigma}_0$ et \hat{m} sont des estimateurs de σ_0 et m respectivement.

Test d'Anderson-Darling

On utilise la statistique AD définie par :

$$AD = \sum_i \frac{1-2i}{n} \{ \ln [1 - \exp(-Z_i)] - Z_{(n+1-i)} \} - n \quad (\text{A.14a})$$

$$OSL = 1 / \{ 1 + \exp[-0,10 + 1,24 \ln(AD^*) + 4,48AD^*] \} \quad (\text{A.14b})$$

$$AD^* = \left(1 + \frac{0,2}{\sqrt{n}} \right) AD \quad (\text{A.14c})$$

OSL : mesure le bon ajustement de la distribution de Weibull à l'échantillon

- $OSL \leq 0,05$: on peut conclure que l'échantillon n'est pas tiré de la population distribuée par une loi de Weibull (à 5% ou moins de risque).
- $OSL > 0,05$: la loi de Weibull peut être utilisée.

A.2.3 Méthode Normale

La fonction de distribution de Gauss s'écrit :

$$F_o(x) = 1/\sqrt{2\pi} \int_{-\infty}^x \exp \left(-(t - \mu)^2 / 2S_X \right) dt \quad (\text{A.15})$$

¹Le test A-D est utilisé pour vérifier si un jeu de données est tirée d'une distribution spécifique. C'est en fait une modification du test K-S (Kolmogorov-Smirnov), plus connu, et donne plus de poids aux queues de distributions que le test K-S. Ce dernier est indépendant de la distribution tandis que le test A-D utilise une distribution particulière pour calculer les valeurs critiques AD ce qui a l'avantage de permettre un test plus sensible, l'inconvénient étant qu'il faut les calculer pour chaque type de distribution.

²observations ou données d'essai

μ : moyenne
 S_X : écart type

$$Z_i = (x_i - \bar{X}) / S_X \quad (\text{A.16a})$$

$$AD = \sum_i \left(\frac{1-2i}{n} \right) [\ln F_o(Z_i) + \ln(1 - F_o(Z_{(n+1-i)}))] - n \quad (\text{A.16b})$$

$$OSL = 1 / \{1 + \exp[-0,48 + 0,78 \ln(AD^*) + 4,58AD^*]\} \quad (\text{A.16c})$$

$$AD^* = \left(1 + \frac{4}{n} - \frac{25}{n^2}\right) AD \quad (\text{A.16d})$$

$$i = 1, \dots, n \quad (\text{A.16e})$$

- $OSL \leq 0,05$: la distribution de Gauss n'est pas adaptée,
- $OSL > 0,05$: on peut utiliser la distribution de Gauss.

A.3 La méthode du maximum de vraisemblance

L'une des principales méthodes utilisées pour l'estimation des paramètres d'une densité de probabilité est la méthode du maximum de vraisemblance. L'idée qui sous-tend cette méthode est de déterminer les paramètres qui maximisent la vraisemblance de l'échantillon de données. D'un point de vue statistique, cette méthode est choisie pour sa robustesse (avec quelques exceptions cependant) car elle fournit des estimateurs de paramètres avec de meilleures caractéristiques statistiques. De plus, elle s'applique à de nombreux modèles mathématiques et divers types de données, et permet de déterminer efficacement l'incertitude sur les paramètres (intervalle de confiance). Cependant, quoique sa méthodologie paraisse simple, son implémentation serait fastidieuse sans l'aide de codes et ordinateurs modernes. une brève description en est faite ci-après.

Pour une fonction densité de probabilité $f(x_i; \alpha, \beta)$, α, β étant les paramètres de la distribution et x la variable, la fonction (l'estimateur) de vraisemblance est définie par :

$$LH(x_1, x_2, \dots, x_n; \alpha, \beta) = \prod_{i=1}^n f(x_i; \alpha, \beta) \quad (\text{A.17})$$

Dans la pratique, on utilise la fonction Λ , logarithme naturel de LH ($\ln LH$), dont la manipulation algébrique est aisée au lieu de LH. Avec la distribution de Weibull (cas général), nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned} \Lambda = \ln((LH(x_1, x_2, \dots, x_n; \alpha, \beta))) &= \ln\left(\prod_{i=1}^n f(x_i; \alpha, \beta)\right) \\ &= \ln\left(\prod_{i=1}^n (\alpha \beta x^{\beta-1} \exp(-\alpha x^\beta))\right) \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

Après manipulation, l'équation (A.18) devient

$$\ln(LH(x_1, x_2, \dots, x_n; \alpha, \beta)) = n \ln(\alpha) + n \ln(\beta) + \sum_{i=1}^n (b-1) \ln(x_i) - \sum_{i=1}^n \alpha x_i^\beta \quad (\text{A.19})$$

La fonction LH atteint son maximum aux points où les dérivées partielles s'annulent ; les estimateurs $\hat{\alpha}$ et $\hat{\beta}$ sont donc solutions du système

$$\begin{cases} \frac{\partial \Lambda}{\partial \alpha} = \frac{\partial \ln(LH(x_1, x_2, \dots, x_n; \alpha, \beta))}{\partial \alpha} = 0 \\ \frac{\partial \Lambda}{\partial \beta} = \frac{\partial \ln(LH(x_1, x_2, \dots, x_n; \alpha, \beta))}{\partial \beta} = 0 \end{cases} \quad (\text{A.20})$$

Après traitement algébrique, le système (A.19) devient

$$\begin{cases} \frac{n}{\beta} + \sum_{i=1}^n \ln(x_i) - \frac{n \sum_{i=1}^n \ln(x_i) x_i^\beta}{\sum_{i=1}^n x_i^\beta} = 0 \\ \alpha = \frac{n}{\sum_{i=1}^n x_i^\beta} \end{cases} \quad (\text{A.21})$$

Le système (A.21) est résolu numériquement pour obtenir les estimations de α et β .

A.4 La méthode de la régression linéaire

La méthode graphique de régression linéaire s'effectue comme suit : on applique membre à membre le logarithme naturel (\ln) à l'équation (A.12) ; après réarrangement on obtient :

$$\ln \left[\ln \left(\frac{1}{1-P} \right) \right] = m \ln(\sigma) - m \ln(\sigma_0) + \ln(L) \quad (\text{A.22})$$

D'après l'équation (A.22), si l'on représente $\ln \left[\ln \left(\frac{1}{1-p} \right) \right]$ en fonction de $\ln(\sigma)$ on obtient une droite de pente m (module de Weibull). L'ordonnée à l'origine de cette droite permet de déduire σ_0 (la résistance caractéristique). Le principal problème de cette méthode est d'obtenir une estimation de P (probabilité de survie) telle que les valeurs résultantes de m et de σ_0 soient des estimations non biaisées des valeurs exactes. Très souvent, la valeur de P est obtenue par des estimateurs ou fréquences empiriques. Quatre méthodes sont largement usitées dans la littérature pour calculer les fréquences empiriques [173, 174, 175, 176] et sont indiquées ci-dessous :

$$P_n = \frac{i - 0,5}{n} \quad (\text{A.23})$$

$$P_n = \frac{i}{n+1} \quad (\text{A.24})$$

$$P_n = \frac{i - 0,3}{n + 0,4} \quad (\text{A.25})$$

$$P_n = \frac{i - \frac{3}{8}}{n + 0,25} \quad (\text{A.26})$$

Les estimateurs des équations (A.23)-(A.26) sont respectivement appelés : valeurs moyenne, médiane,...

Pour calculer P, les données sont classées par ordre croissant et un compteur i (le numéro d'ordre) est affecté à chacune d'elles. Après calcul des valeurs de P, la droite $\ln \left[\ln \left(\frac{1}{1-p} \right) \right] - \ln(\sigma)$ est générée. Les valeurs de m et σ_0 sont ensuite déduites par régression linéaire. La question subséquente est évidemment celle de savoir quel crédit accorder à ces estimations de m et σ_0 . Bergman [175] a étudié les caractéristiques de ces différentes méthodes de calcul des fréquences empiriques, par simulation par la méthode de Monte Carlo et est parvenu à la conclusion que l'estimateur de l'équation (A.23) est le moins biaisé des quatre lorsqu'on a un échantillon de taille supérieure à 20, mais que tous ont le même coefficient de variation. Précédemment, Trustrum et al. [173] ont montré que l'estimateur de l'équation (A.24) était le moins biaisé pour des échantillons de taille supérieure à 40 et que les meilleurs résultats étaient obtenus par la méthode MLE. D'autres travaux [174] sont parvenus au résultat que les valeurs de m et σ_0 obtenues par les méthodes MLE et LR ne sont pas très différentes.

Bibliographie

Bibliographie

- [1] H. Lodish, A. Berk, S.L. Zipursky, P. Matsudaira, D. Baltimore, and J.E. Darnell. *Molecular Cell Biology*. W.H. Freeman and company, New York, New York, 4th edition, 2000.
- [2] FAO. Situation du marché pour les fibres dures, le jute et les autres fibres naturelles. Consultation sur les fibres naturelles, 2007. http://www.fao.org/es/esc/fr/20953/21005/event_110692fr.html.
- [3] Gordon McMichael. La graine de lin. Agriculture et Agroalimentaire Canada, Le Bulletin bimensuel, 2002. <http://www.agr.gc.ca/mad-dam/>.
- [4] A.K. Bledzki and J. Gassan. Composites reinforced with cellulose based fibres. *Progress in Polymer Science*, 24 :221–274, 1999.
- [5] L. Salmén. Micromechanical understanding of the cell wall structure. *Compte Rendus Biologies*, 327 :873–880, 2004.
- [6] K. Persson. *Micromechanical Modelling of Wood and Fibre Properties*. PhD thesis, Lund University, Department of Mechanics and Materials, Lund, Sweden, October 2000.
- [7] W.J. Cousins. Young's modulus of hemicellulose as related to moisture content. *Wood Science and Technology*, 12 :161–7, 1978.
- [8] P.S. Mukherjee and K.G. Satyanarayana. *Journal of Material Science*, 21 :51–56, 1986.
- [9] J.J. Hermans. The elastic properties of fiber reinforced materials when the fibers are aligned. In *Proceedings of Physics Society B*, 1967.
- [10] E.H. Kerner. The elastic and thermo-elastic properties of composite media. In *Proceedings Kon Ned Akad v Wetensch B*, 1956.
- [11] J.J. Harrington, R. Booker, and R.J. Astley. Modelling the elastic properties of softwood - part i : The cell-wall lamellae. *holz roh werkst*, 56(1) :37–41, 1995.
- [12] P. Navi and F. Heger. *Comportement thermo-hydrromécanique du bois : applications technologiques et dans les structures*. Presses polytechniques et universitaires romandes, Lausanne, Suisse, 2005. ISBN 2-88074-620-5.

-
- [13] MN. Belgacem, P. Bataille, and S. Sapiaha. Effect of corona modification on the mechanical properties of polypropylene/cellulose composites. *Journal of Applied Polymer Science*, 53 :379–385, 1994.
- [14] I. Sakata, M. Morita, N. Tsuruta, and K. Morita. *Journal of Polymer Science*, 2(49), 1993.
- [15] S. Dong, S. Sapiaha, and HP. Schreiber. *Polymer Engineering and Science*, 32, 1992.
- [16] TP. Nevell and SH. Zeronian. *Cellulose chemistry and its applications*. Wiley, New York, 1995.
- [17] SCO. Ugbolue. *Text Inst*, 20(4), 1990.
- [18] JL. Kroschwitz. *Polymers : Fibres and textiles*. Willey, New York, 1990.
- [19] RG. Raj, BV. Kokta, and C. Daneault. *Journal of Applied Polymer Science*, 4(40), 1990.
- [20] MA. Semsarzadeh, A.R. Lotfali, and H. Mirzadeh. Jute reinforced polyester structures. *Polymer composites*, 5(2), 1984.
- [21] KL. Mittal. *Silanes and other coupling agents*. VSP BV, Netherlands, 1992.
- [22] P. Gatenholm, H. Bertilsson, and A. Mathiasson. The effect of chemical composition of interphase on dispersion of cellulose fibers in polymers i : Pvc-coated cellulose in polystyrene. *Journal of Applied Polymer Science*, 49(2), 1993.
- [23] P. Ghosh, S. Biswas, and C. Datta. *Journal of Material Science*, 24(2), 1989.
- [24] D. Maldas, B.V. Kokta, and C. Daneault. *Journal of Polymer Science*, 37, 1989.
- [25] JM. Félix and P. Gatenholm. *Journal of Polymer Science*, 42, 1991.
- [26] D. Maldas, BV. Kokta, and C. Daneault. *Vinyl Techn*, 11(2), 1990.
- [27] P. Zadorecki and T. Rönnhult. *Journal of Polymer Science Part A Polym Chem*, 1986.
- [28] P. Zadorecki and P. Flodin. *Journal of Polymer Science*, 31, 1986.
- [29] ETN. Bisanda and MP. Ansell. The effect of silane treatment on the mechanical and physical properties of sisal/epoxy composites. *Composites Science and Technology*, 41, 1991.
- [30] DS. Varna, M. Varna, and IK. Varna. *Res Int*, 54, 1984.
- [31] S. Sreenivasan, P. Bahaman Iyer, and KR. Krishna Iyer. *Journal of Material Science*, 31, 1996.
- [32] SV. Prasad, C. Pavithran, and HK. Pohatgi. *Journal of Material Science*, 18, 1983.

-
- [33] N. Chand and PK. Rohatgi. *Polymer communications*, 27, 1986.
- [34] C. Xing. *Characterization of urea-formaldehyde resin efficiency affected by four factors in the manufacture of medium density fibreboard*. PhD thesis, Département des sciences du bois et de la forêt de l'Université Laval, Québec, Canada, 2003.
- [35] DA. Lange, HM. Jennings, and Shah SP. Analysis of surface roughness using confocal microscopy. *Journal of Material Science*, 28 :3879–3884, 1993.
- [36] M.L Pastor. Étude d'un traitement chimique de la surface des fibres naturelles sisal sur les propriétés d'interface fibre/matrice. Mémoire de DEA Génie Mécanique et Génie Civil, 2004. Université de Clermont-Ferrand II, France.
- [37] B. Riedl and LM. Matuana. *Encyclopedia of Surface and Colloid Science*, chapter Inverse Gas Chromatography of fibers and polymers, page 14. 2001.
- [38] NE. Zafeiropoulos, DR. Williams, CA. Baillie, and FL. Mathews. Engineering and characterisation of the interface in flax fibre/polypropylene composite materials part i : Development and investigation of surface treatments. *Composites, Part A : Applied Science and Manufacturing*, 33 :1083–1093, 2002.
- [39] W. Beckert and B. Lauke. Critical discussion of the single-fibre pull-out test : Does it measure adhesion? *Composite science and Technology*, 57 :1689–1706, 1997.
- [40] Le Centre Alternoval. Compte rendu de la réunion sur le thème : "nouvelles valorisation industrielles des agroressources". <http://europolagro.univ-reims.fr/>, 2002. Reims (France).
- [41] U. Riedel and J. Nickel. Natural fibre-reinforced biopolymers as construction materials : new discoveries. *Angew Makromol Chem*, 272 :34–40, 1999.
- [42] O. Owolabi, T. Czvikovzky, and I. Kovacs. Coconut-fiber-reinforced thermosetting plastics. *Journal of applied polymer science*, 30(5) :1827–1836, 1985.
- [43] BC. Tobias. Stress rupture of natural fibres reinforced composites materials. In 36th *International SAMPE Symposium*, 1991.
- [44] J. Gassan and AK. Bledski. *Die Agnew Makromol Chem*, 236, 1996.
- [45] J. Gassan and AK. Bledski. Stress rupture of natural fibres reinforced composites materials. In 6th *International Techtexil Symposium*, Frankfurt, 1994.
- [46] C. Pavithran, P.S. Mukherjee, and M. Brahmakumar. Coir-glass intermingled fibre hybrid composites. *Journal of Reinforced Plastics Composites*, 10(1) :91–101, 1991.

-
- [47] BC. Tobias. *Tensile and impact behaviour of natural fibre-reinforced composites materials in advanced composite materials*. The Minerals, Metals and Materials Society, 1993.
- [48] K. Hanselka and AS. Hermann. Stress rupture of natural fibres reinforced composites materials. In *7th International Techtexil Symposium*, Frankfurt, 1995.
- [49] D. Banerjee, H. Rho, HE. Jackson, and RN. Singh. Mechanics of load transfer from matrix to fiber under flexural loading in a glass matrix composite using microfluorescence spectroscopy. *Composite science and Technology*, 62 :1181–1186, 2002.
- [50] SK. Batra. *Other long vegetable fibers*, in *Handbook of Fiber Science and Technology : Fiber Chemistry*, volume Vol IV, pages 727–808. Marcel Dekker, 1985.
- [51] JJ. Mukherjee. Long vegetable fibres. *Textile Progress*, 4(4) :8–9, 1972.
- [52] G. Henriksson. Identification and retting efficiencies of fungi isolated from dew-retted flax in the united states and europe. *Applied Environmental Microbiology*, 63(4) :3950–3956, 1997.
- [53] I. Doraiswamy and P. Chellamani. Pineapple-leaf fibers. *Textile Progress*, 24(1) :1–25, 1993.
- [54] J.R. Collier and JB. Collier. Process for obtaining cellulosic fiber bundles at least 2,5 cm long from plant stalk rind. U.S. Patent N° 5718802, 1998.
- [55] P. Bassetti, V. Mediavilla, E. Spiess, H. Ammann, H. Strasser, and E. Mosimann. Culture du chanvre en suisse - histoire, situation actuelle, variétés, techniques culturales et techniques de récolte, aspects économiques et perspectives. *Rapport FAT n° 516*, 1998.
- [56] M. Leupin. Enzymatic degumming through alkalophilic microorganisms-a new approach for bast fibre processing. In *Natural fibres, hemp, flax and other bast fibrous plant-production, technology and ecology*, Poznan, 1998.
- [57] M. Leupin. *Bakterielle Degummierung von Ramie (Boehmeria nivea)*. PhD thesis, ETH, Dissertation N° 11 893, Zürich, 1996.
- [58] RH. Kirby. *Vegetable fibres*. Interscience Publishers, Inc., New York, London, 1963.
- [59] R.M. Rowell, R. Anand, Sanadi, D.L. Caulfield, E. Jacobson Rodney, and L Alcides Leão. *Lignocellulosic-Plastics Composite*, chapter Utilisation of Natural Fibres in Plastics Composites : Problems and Opportunities. Francesco, X. and Carvalho, and Elisabete Frollini, 1997.

-
- [60] P. Majumdar and S. Chanda. Chemical profile of some lignocellulosic crop residues. *Indian Journal of Agriculture and Biochemistry*, 14(1 & 2) :29–33, 2001.
- [61] ND. Saheb and JP. Jog. Natural fiber polymer composites : a review. *Advanced Polymer Technology*, 18(2-4) :351–363, 1997.
- [62] K. Sukumaran et al. Structure, physical and mechanical properties of plant fibres of kerala. *Met Mater Process*, 13(2-4) :121–136, 1997.
- [63] J. Gassan and AK. Bledski. *Composites Part A*, 1997.
- [64] FFP. Kollmann and WAJ. Côté. *Principles of Wood Science and Technology L Solid Wood*. Springer-Verlag-Berlin, Heidelberg, New York, 1968.
- [65] D. Fengel and G Wegener. *Wood : Chemistry, ultrastructure, and reactions*. Walter de Gruyter, 1983.
- [66] DNS. Hon and N Shiraishi. *Wood and Cellulose Chemistry*. Number 2nd édition. Marcel Dekker Inc, New York, Basel, 2001.
- [67] Fink et al. *Polymer communications*, 28(5), 1994.
- [68] A. STAMM. *Wood and Cellulose Science*. Ronald Press, New York, 1964.
- [69] AJ. Kerr and DAL Goring. The ultrastructurel arrangement of the wood cell wall. *Cellulose Chemistry and Technology*, 9 :563–573, 1975.
- [70] K. Ruel. Rapport scientifique 2002-2005. Centre de Recherche sur les Macromolécules Végétales, Grenoble France, 2005. <http://www.cermav.cnrs.fr/>.
- [71] ETN. Bisanda and MP. Ansell. The properties of sisal-cnsl composites. *Journal of Material Science*, 27(40), 1992.
- [72] MK. Sridhar and G Basavarajappa. Evaluation of jute as a reinforcement in composites. *Indian J Textile Res*, 7 :87–92, 1982.
- [73] SH Zeronian. The mechanical properties of cotton fibers. *Journal of Applied Polymer Science*, 47 :445–461, 1991.
- [74] AN. Shan and SC Lakkard. *Fibre Science and Technology*, 15 :41–46, 1981.
- [75] PJ. Roe and MP Ansell. Jute-reinforced polyester composites. *Journal of Material Science*, 20(11) :4015–4020, 1985.
- [76] AC. Khazanchi, M. Saxena, and TC Rao. Textile composites in building constructions. pages 69–76, 1990.
- [77] AJ. Michell and D Willis. *Appita*, 31(3) :347–354, 1978.
- [78] H Saechtling. *International plastics handbook*. München, 1987.
- [79] R. Kolher and M. Wedler. *Landinfo*, 3 :33–38, 1995.

-
- [80] JWS. Hearle and JT. Sparrow. Mechanics of the extension of cotton fibers, part i. experimental studies of the effect of convolutions. *Journal of Polymer Science*, 24(6) :1465–1477, 1979.
- [81] JWS. Hearle. The fine structure of fibres and crystalline polymers iii. interpretation of the mechanical properties of fibres. *Journal of applied polymer science*, 7 :1207–23, 1963.
- [82] Gordon and Jeronimides. 1974.
- [83] G. Jeronimidis. *Wood structure in biological and technological research*, chapter The fracture of wood in relation to its structure, pages 253–265. The University Press, leiden botanical series edition, 1976.
- [84] EC. McLaughlin and RA. Tait. Fracture energy of plant fibres. *Journal of Material Science*, 14(4) :998–999, 1979.
- [85] HA. Krässig. *Cellulose-Structure,accessibility and reactivity*. Gordon and Breach, 1993.
- [86] PA. Fowler, JM. Hughes, and RM. Elias. Biocomposites : technology, environmental credentials and market forces. *Journal of the Science of Food and Agriculture*, 86(5) :1781–1789, 1985.
- [87] FAO. Situation du marché pour les fibres dures, le jute, les autres fibres naturelles. Consultation sur les fibres naturelles, 2000. http://www.fao.org/es/esc/fr/20953/21005/21527/event_38007fr.html.
- [88] C. Ntéppé-Nyame. Une nouvelle espèce pour le genre rhektophyllum. *Adansonia*, 20(4) :451–457, 1981.
- [89] RG. Elenga, P. Djemia, MP. Biget, J. Gomna Maniongui, and G Dirras. Microstructure et propriétés physico-mécanique de la fibre brute de raphia. MATERIAUX 2006 13-17 Novemebre 2006-Dijon, France, 2006.
- [90] MZ. Rong, MQ. Zhang, Y. Liu, GC. Yang, and HM. Zeng. The effect of fibre treatment on the mechanical properties of unidirectional sisal-reinforced epoxy composites. *Composites Science and Technology*, 61 :1437–1447, 2001.
- [91] Y. Li, Y-W. Mai, and Y. Lin. Sisal fibre and its composites : a rewiew of recent developments. *Composites Science and Technology*, 60 :2037–2055, 2000.
- [92] PI. Wilson. *Hard fibres research series*, chapter Sisal vol II. FAO, 1971.
- [93] K. Joseph, S. Thomas, and C. Pavithran. Effect of chemical treatment on the tensile properties of short sisal fibre-reinforced polyethylene composites. *polymer*, 37 :5139–49, 1986.
- [94] W. Pyszinski and Z. Hejnowicz. Is the orientation of the fibrilar helix in the main layer of the cell walls constant or variable wthin the tree. *Acta Soc. Bot. Poloniae*, 41 :27–38, 1972.

-
- [95] C. Huang, NP. Kutscha, GJ. Leaf, and RA Megraw. *Microfibril Angle in Wood*, chapter Comparison of Microfibril Angle Measurement Techniques, pages 177–205. Butterfield, New York, Basel, 1998.
- [96] M. Herman, P. Dutilleul, and T Avella-Shaw. Growth rate effects on intra ring and inter-ring trajectories of microfibril angle in norway spruce (*picea abies*). *IAWA J*, 20(10) :3–21, 1999.
- [97] H. Lichtenegger, A. Reiterer, SE. Stanzl Tschegg, and P. Fratzel. Variation of cellulose microfibril angles in soft woods and hard woods : A possible strategy of mechanical optimization. *Journal of Structural Biology*, 128 :257–269, 1999.
- [98] HF Jang. Measurement of fibril angle in wood fibres with polarisation confocal microscopy. *Journal of Pulp and Paper Science*, 24 :224–30, 1998.
- [99] WS. Rasband. Imagej. National institute of Health, Bethesda, Maryland, USA, 1997. <http://rsb.info.nih.gov/ij>.
- [100] C. Baley. Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 33 :939–948, 2002.
- [101] NE. Zafeiropoulos, GG. Dijon, and CA. Baillie. A study of the effect of surface treatments on the tensile strength of flax fibres : Part ii application of weibull statistics. *Composites, Part A : applied science and manufacturing, in press*, 33, 2006.
- [102] RB. D’Agostino and MA. Stephens. *Goodness-of-fit techniques*. Marcell Dekker, New York, 1986.
- [103] R. Ntenga. Durabilité en fatigue sous traction ondulée d’un jonc d’isolateur électrique en matériau composite unidirectionnel verre/époxyde. Mémoire de DEA Génie Mécanique et Génie Civil, 2002. Université de Clermont-Ferrand II, France.
- [104] S. Zauscher and PE. Humphrey. Orienting lignocellulosic fibers and particles by means of a magnetic field. *Wood and Fiber Science*, 29(1) :35–46, 1997.
- [105] RM. Christensen. *Mechanics of Composite Materials*. Krieger publishing company, Malabar, Folorida, 1991.
- [106] JM. Berthelot. *Matériaux Composites 4^e Comportement et analyse des structures*. Tec et Doc, Lavoisier, 4^e edition, 2005.
- [107] FR-Jr Cichocki and JL. Thomason. Thermoelastic anisotropy of a natural fiber. *Composites Science and Technology*, 62 :669–678, 2002.

-
- [108] Z. Hashin. Analysis of properties of fiber composites with anisotropic constituents. *Journal of Applied Mechanics*, 46 :543–50, 1979.
- [109] Z. Hashin. Analysis of composite materials - a survey. *ASME Journal of Applied Mechanics*, 50 :481–505, 1983.
- [110] R. Hill. Elastic properties of reinforced solids : some theoretical principles. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 11 :357–72, 1963.
- [111] JD. Eshelby. The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion and related problems. In *Proceedings of Royal Society A*, 1957.
- [112] JD. Eshelby. *Progress in Solid Mechanics*, volume 2, chapter Elastic inclusions and inhomogeneities, pages 89–140. Sneddon, I.N. and Hill, R, Amsterdam : North-Holland, 1961.
- [113] T. Mura. *Micromechanics of Defects in Solids*. The Hague : Martinus Nijhoff, 1982.
- [114] M. Taya and T. Mura. On stiffness and strength of an aligned short-fiber reinforced composite containing fiber-end cracks under uniaxial applied stress. *ASME Journal of Applied Mechanics*, 48 :361–7, 1981.
- [115] M. Taya and T-W. Chou. On two kinds of ellipsoidal inhomogeneities in an infinite elastic body : an application to a hybrid composite. *International Journal of Solids Structures*, 17 :553–63, 1981.
- [116] M. Taya. On stiffness and strength of an aligned short-fiber reinforced composite containing penny-shaped cracks in the matrix. *Journal of Composite Materials*, 15 :198–210, 1981.
- [117] GJ. Tandon, GP. Weng. The effect of aspect ratio of inclusions on the elastic properties of unidirectionally aligned composites. *Polymer Composites*, 5 :327–33, 1984.
- [118] M. Taya and RJ. Arsenault. *Metal Matrix Composites : Thermomechanical Behavior*. Pergamon Press, Oxford, 1959.
- [119] JD. Eshelby. The elastic field outside an ellipsoidal inclusion. In *Proceedings of Royal Society A*, 1959.
- [120] WB. Russel. On the effective moduli of composite materials : effect of fiber length and geometry at dilute concentrations. *J Appl Math Phys (ZAMP)*, 24 :581–600, 1973.
- [121] TS. Chow. Elastic moduli of filled polymers : The effect of particle shape. *Journal of Applied Physics*, 48 :4072–75, 1977.
- [122] SF. Steif, PS. Hoysan. An energy method for calculating the stiffness of aligned short-fiber composites. *Mechanics of Materials*, 6 :197–210, 1987.

-
- [123] T. Mori and K. Tanaka. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metallurgica*, 21 :571–74, 1973.
- [124] Y. Benveniste. A new approach to the application of mori-tanaka's theory in composite materials. *Mechanics of Materials*, 6 :147–57, 1987.
- [125] K Wakashima, M. Otsuka, and Umekawa' S. Thermal expansion of heterogeneous solids containing aligned ellipsoidal inclusions. *Journal Composite Materials*, 8 :391–404, 1974.
- [126] GJ. Weng. Some elastic properties of reinforced solids, with special reference to isotropic ones containing spherical inclusions. *International Journal of Engineering Science*, 22 :845–56, 1984.
- [127] TS. Chow. Effect of particle shape at finite concentration on the elastic modulus of filled polymers. *Journal of Polymer Science : Polymer Physics Edition*, 16 :959–65, 1978.
- [128] M. Ferrari. Composite homogenization via the equivalent poly-inclusion approach. *Composites Engineering*, 4 :37–45, 1994.
- [129] R. Hill. A self-consistent mechanics of composite materials. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 13 :213–22, 1965.
- [130] B. Budiansky. On the elastic moduli of some heterogeneous materials. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 13 :223–7, 1965.
- [131] N. Laws and R. McLaughlin. The effect of fibre length on the overall moduli of composite materials. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 27 :1–13, 1979.
- [132] T-W. Chou, S. Nomura, and M. Taya. A self-consistent approach to the elastic stiffness of short-fiber composites. *Journal of Composite Materials*, 14 :178–88, 1980.
- [133] T-W. Chou, S. Nomura, and M. Taya. *Modern Developments in Composite Materials and Structures*, chapter A self-consistent approach to the elastic stiffness of short-fiber composites, pages 149–64. Vinson JR., New York :ASME, 1979.
- [134] SC. Lin and T. Mura. Elastic fields of inclusions in anisotropic media part ii. *Phys Stat Sol (a)*, 15 :281–5, 1973.
- [135] RM. Christensen and KH. Lo. Solutions for effective shear properties in three phase sphere and cylinder models. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 34 :639, 1979.
- [136] C-TD. Wu and RL. McCullough. *Developments in Composites Materials-1*, chapter Constitutive Relationships for Heterogeneous Materials. GS Holister, Applied Science London, 1977.

-
- [137] Z. Hashin and S. Shtrikman. On some variational principles in anisotropic and nonhomogeneous elasticity. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 10 :335–42, 1962.
- [138] Z. Hashin and S. Shtrikman. A variational approach to the theory of the elastic behavior of multiphase materials. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 11 :127–40, 1963.
- [139] L.J. Walpole. On bounds for the overall elastic moduli for inhomogeneous systems-i. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 14 :151–62, 1966.
- [140] L.J. Walpole. On bounds for the overall elastic moduli for inhomogeneous systems-ii. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 14 :289–301, 1966.
- [141] L.J. Walpole. On the overall elastic moduli of composite materials. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 17 :235–51, 1969.
- [142] J.R. Willis. Bounds and self-consistent estimates for the overall properties of anisotropic composites. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 25 :185–202, 1977.
- [143] G.J. Weng. Explicit evaluation of willis' bounds with ellipsoidal inclusions. *International Journal of Engineering Science*, 30 :83–92, 1992.
- [144] R.F. Eduljee, R.L. McCullough, and J.W. Gillespie. The influence of aggregated and dispersed textures on the elastic properties of discontinuous-fiber composites. *Composited Science and Technology*, 50 :381–91, 1994.
- [145] R.F. Eduljee, R.L. McCullough, and J.W. Gillespie. The influence of inclusion geometry on the elastic properties discontinuous-fiber composites. *Polymer and Engineering Science*, 34 :352–60, 1994.
- [146] G. Lielens, P. Pirotte, A. Courniot, F. Dupret, and R. Keunings. Prediction of thermo-mechanical properties for compression-moulded composites. *Composites part A*, 29 :63–70, 1997.
- [147] J.C. Halpin and J.L. Kardos. The halpin-tsai equations : A review. *Polymer Engineering Science*, 16(5) :344–52, 1976.
- [148] R. Hill. Theory of mechanical properties of fibre-strengthened materials : I elastic behaviour. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 12 :199–212, 1964.
- [149] Z. Hashin. On the elastic behaviour of fibre-reinforced materials of arbitrary transverse phase geometry. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 13 :119–134, 1965.
- [150] J.C. Halpin. Stiffness and expansion estimates for oriented short fiber composites. *Journal of Composite Materials*, 3 :732–4, 1969.

-
- [151] E. Ashton, JC. Halpin, and PH. Petit. *Primer on Composite Materials : Analysis Technomic*. Stamford Conn, 1969.
- [152] RL. Hewitt and MC. de Malherbe. An approximation for the longitudinal shear modulus of continuous fibre composites. *Journal of Composite Material*, 4 :280–2, 1970.
- [153] TB. Lewis and LE. Nielsen. Dynamic mechanical properties of particulate-filled composites. *Journal of Applied Polymer Science*, 14 :1449–71, 1970.
- [154] LE. Nielsen. Generalized equation for the elastic moduli of composite materials. *Journal of Applied Physics*, 41 :4626–7, 1970.
- [155] HL. Cox. The elasticity and strength of paper and other fibrous materials. *British Journal of Applied Physics*, 3 :72–9, 1952.
- [156] Z. Hashin and BW. Rosen. The elastic moduli of fiber-reinforced materials. *ASME Journal of Applied Mechanics*, 31 :223–32, 1965.
- [157] BW. Rosen. Mechanics of composite strengthening fiber composite materials. *ASM Metals Park OH*, 3 :37–75, 1964.
- [158] MR. Piggott. *Load bearing fibre composites*. Pergamon Press, Willowdale, Ontario, Canada, 1980.
- [159] S. Toll and JAE. Månson. Elastic compression of a fiber network. *Journal of Applied Mechanics*, 62(1) :223–226, 1995.
- [160] RC. Neagu, EK. Gamstedt, and M. Lindström. Determination of fibre stiffness from compaction and tensile tests of unimpregnated wood-fibre mats. In *11th European Conference on Composite Materials (ECCM11)*, Athènes, Greece, 2004.
- [161] S. Timoshenko. *Résistance des Matériaux Tome 2, Théorie développée et problèmes*. Dunod, Nostrand, New York, 1930. traduit de l'anglais d'après la 2^e édition en 1968.
- [162] AS. Saada. *Elasticity : Theory and Applications*. Pergamon Untied Engineering Series, New York, 1974.
- [163] J. Prescott. *Applied Elasticity*. Pergamon Untied Engineering Series, Dover, New York, 1946.
- [164] RV. Southwell. *An Introduction to the Theory of Elasticity for Engineers and Physicists*. Pergamon Untied Engineering Series, Oxford University Press, London, 1941.
- [165] DR. Adams, DF. Doner. Transverse normal loading of a unidirectional composite. *Journal of Composite Materials*, 1 :152–64, 1967.

-
- [166] RF. Gibson. *Principles of composite material mechanics*. McGraw-Hill Inc., Paris, 1994.
- [167] SA. Suarez, RF. Gibson, CT. Sun, and SK. Chaturvedi. The influence of fiber length and fiber orientation on the damping and stiffness of polymer composite materials. *Journal of Experimental Mechanics*, 26 :175–84, 1968.
- [168] RD. Preston. *The Physical Biology of Plant Cell Walls*. Chapman and Hall, 1974.
- [169] D. Fengel. The physics and chemistry of wood pulp fibres. *TAPPI*, 1970.
- [170] DC. Lagoudas and GD. Seidel. Micromechanical analysis of the effective elastic properties of carbon nanotube reinforced composites. *Mechanics of Materials*, 38 :884–907, 2006.
- [171] JL. Romeu. *Statistical Analysis of Material Data Part III : On the Application of Statistics to Materials Analysis*. IIT Research Institute (Amptiac), 1997.
- [172] WQ. Meeker and LA. Escobar. *Statistical Methods for Reliability Data*. John Wiley & Sons, Inc, New York, 1998.
- [173] K. Trustrum and S. Jayatilaka ADE. *Journal of Material Science*, 14 :1080, 1979.
- [174] RH. Doremus. *Journal of Applied Physics*, 54(1) :193, 1983.
- [175] B. Bergman. *Journal of Material Science Letter*, 4 :1143, 1985.
- [176] ELM. Asloun, JB. Donnet, G. Guilpain, M. Nardin, and J. Schultz. *Journal of Material Science*, 24 :3504, 1989.