



**HAL**  
open science

# Contribution à l'analyse dimensionnelle et mécanique des fibres végétales en environnement humide contrôlé

William Garat

► **To cite this version:**

William Garat. Contribution à l'analyse dimensionnelle et mécanique des fibres végétales en environnement humide contrôlé. Génie des procédés. IMT - MINES ALES - IMT - Mines Alès Ecole Mines - Télécom, 2018. Français. NNT : 2018EMAL0007 . tel-03326291

**HAL Id: tel-03326291**

**<https://theses.hal.science/tel-03326291>**

Submitted on 25 Aug 2021

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

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

# THÈSE POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR D'IMT MINES ALÈS

En Génie des Procédés

École doctorale GAIA : Biodiversité, Agriculture, Alimentation, Environnement, Terre, eau

Unité de recherche du Centre des Matériaux des Mines d'Alès

## CONTRIBUTION À L'ANALYSE DIMENSIONNELLE ET MÉCANIQUE DES FIBRES VÉGÉTALES EN ENVIRONNEMENT HUMIDE CONTRÔLÉ

Présentée par William GARAT  
05 Décembre 2018

Sous la direction de Anne BERGERET

Devant le jury composé de

Christophe BALEY, Professeur, IRDL Bretagne Sud	Rapporteur
Karine CHARLET, Maître de conférence, SIGMA Clermont	Rapporteur
Pierre OUAGNE, Professeur, ENIT de Tarbes	Examineur
Moussa GOMINA, Chargé de Recherche CNRS, ENSICAEN de Caen	Examineur
Pierre-Jacques LIOTIER, Maître Assistant, École des Mines de Saint-Etienne	Examineur
Johnny BEAUGRAND, Directeur de Recherche, INRA de Nantes	Examineur
Anne BERGERET, Professeur, IMT Mines Alès	Directrice de thèse
Nicolas LE MOIGNE, Maître Assistant, IMT Mines Alès	Co-encadrant de thèse
Stéphane CORN, Maître Assistant, IMT Mines Alès	Co-encadrant de thèse







## Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au Centre des Matériaux des Mines d'Alès (C2MA) en collaboration avec l'INRA de Reims. Je tiens à remercier le laboratoire Fractionnement des Agro Ressources et Environnement (FARE, INRA de Reims) de m'avoir accueillie afin de poursuivre mes travaux de recherche et en particulier Johnny Beaugrand et Miguel Pernes.

En premier lieu, je voudrais remercier les membres du jury d'avoir accepté d'évaluer et de juger mes travaux de thèse, Christophe Baley et Karine Charlet en tant que rapporteurs ainsi que Pierre Ouagne, Moussa Gomina, Pierre-Jacques Liotier et Johnny Beaugrand en tant qu'examineurs. Je tiens à remercier l'ensemble du jury pour l'intérêt porté à mes travaux ainsi que pour tous les échanges et les remarques constructives.

Merci à l'ensemble de mon encadrement pour le temps qu'ils m'ont consacré, leur patience et leur savoir-faire technique et scientifique durant ces 3 années de thèse. Anne, merci pour ta confiance, tes conseils et ta grande disponibilité dans les bons comme dans les moments plus difficiles. Nicolas, malgré tes retards en réunion le matin (maintenant que je suis papa je comprends mieux pourquoi^^ ☺) je tiens à te remercier pour ta bonne humeur, ton soutien scientifique et tes encouragements durant ces 3 années de thèse. Enfin Stéphane, je vais essayer d'employer les bons mots cette fois-ci ^^, merci pour ta patience (pas toujours facile avec moi) mais aussi et surtout pour ta réactivité et tes conseils. Mais surtout, MERCI pour votre soutien moral au cours de ces derniers mois de rédaction et de préparation de soutenance qui, avec un bébé de quelques mois à la maison, n'étaient pas faciles.

Merci à toutes les personnes du C2MA de m'avoir accueillies dans ce laboratoire très agréable : l'ensemble des techniciens même si nos échanges étaient majoritairement extra-professionnels. Alain pour les magnifiques sections polies, Jean-Claude le roi de l'observation au MEB, Kévin pour nos discussions moto^^ et aussi pour ta culture cinématographique, Benjamin pour nos matchs de volley et les quelques bières prises au Blues-Heures, Alexandre pour nos échanges de futur papa^^, Loïc... la seule personne qui a réussi à me faire jouer au foot ^^, mais aussi pour nos nombreuses soirées : barbecue, VandB, champions-league et pétanque et enfin Romain, mon poto ! On se connaît depuis bientôt 10 ans, on a fait les 400 coups ensemble. J'espère que Montrichard ne te manque pas trop lol... En tout cas, je suis content d'avoir partagé mes 2 dernières années de thèse avec toi. Puis maintenant j'ai un pied-à-terre sur Alès ☺ (et toi sur Lyon^^). Solange et Danièle, merci pour votre aide tout au long de ces 3 années, mais surtout pour m'avoir supporté ^^ . Vous êtes un peu comme nos mamans

pour nous les doctorants ! Danièle je te souhaite de bien profiter de ta retraite. Solange, promis on va vite revenir avec un petit gâteau fait maison (enfin fait par Alexandra lol).

Merci à l'ensemble des doctorants et post-doctorants que je n'oublierai pas ! Vous avez participé en grande partie au bon déroulement de ces 3 années. Pierre-Baptiste, mon champion, tellement de chose à dire sur toi que je vais me restreindre. Merci pour tous les bons moments (pétanque, barbecues, VandB, footing), nos rigolades et surtout toutes nos discussions. Je crois que sur les 3 ans, seulement 5% d'entre elles concernaient le travail ^^ ☺, c'est pas sérieux ^^.

Marie, la marmotte pipelette du labo ^^.

Tu es l'une des premières personnes que j'ai rencontrées et aussi celle qui a réussi à garer sa cordoba sur le parking de la maison pour me piquer mon voisin Simon. En parlant de toi Simon, que de bons moments partagés et de danses endiablées. Je me rappellerai longtemps de nos discussions sur la terrasse. Quand on y pense, que de chemin parcouru : toi marié et moi papa !

Charlotte, ma voisine de bureau. Le nombre de fois où je suis venu te porter secours face à un petit insecte dans ton bureau ^^.

Magalie et Clément, encore un couple « made in C2MA » !

Lucie, nos chemins se sont rencontrés 2 fois et à chaque fois on a bien rigolé.

Benjamin « présent », le breton célibataire (enfin ex-célibataire) de la bande. Tu te poses trop de questions mais c'est pour cela qu'on t'aime bien, lol, tu nous fais rire.

Haithem, le roi du couscous, encore merci. Ta bonne humeur va me manquer. Courage pour ta fin de thèse, tu es un chef !

Merci aux doctorants du LGEI, Perrine, Pascale, Brahim et Emilie avec qui j'ai passé de très bons moments. Merci également à Damien, Julien, Charles ainsi qu'aux nouveaux arrivés : Rachel, Angélique, Romain, Gisèle, Léa et Ahmed. Profitez de ces 3 ans, c'est une expérience formidable.

Merci à l'ensemble des personnes qui m'ont aidé sur des points précis au cours de cette thèse. Patrick pour son expérience sur la théorie de Weibull et la corrélation d'image, Claire pour sa gentillesse et son aide au quotidien (surtout en traitement de texte^^), Arnaud pour nos échanges scientifiques et son implication dans la fabrication des tamis en impression 3D. Je remercie également tous les gens que j'ai pu côtoyer et avec qui j'ai passé de bons moments : Marie, Youssef, Etienne, Rodolphe, Sylvain, les 2 Laurent, Anne-So, Didier, Romain, Aurélie, Belka, Jean-Christophe, Éric, Nathalie, Monica.

Apparemment on garde le meilleur pour la fin^^, alors je vais remercier la plus belle rencontre que j'ai pu faire au cours de ma thèse, à savoir Alexandra. Outre ton soutien, ta force et ton calme qui me canalise, je te remercie pour tout ce que tu m'apportes chaque jour. Tu m'as fait le plus beau des cadeaux en me donnant la joie de devenir papa d'un joli petit garçon : Esteban !

Pour finir, je remercie le pilier qui fait de moi ce que je suis : ma famille !

# TABLE DES MATIÈRES

<b>INTRODUCTION GÉNÉRALE .....</b>	<b>1</b>
<b>CHAPITRE 1 BIBLIOGRAPHIE.....</b>	<b>5</b>
<b>PARTIE 1 LES MATÉRIAUX COMPOSITES RENFORCÉS PAR DES FIBRES VÉGÉTALES .....</b>	<b>7</b>
I. Du composite au biocomposite .....	7
I.1. Généralités sur les matériaux composites.....	7
I.2. Vers les biocomposites .....	8
II. Les fibres végétales comme renforts .....	11
II.1. Une approche botanique .....	11
II.2. Classification des fibres d'origines végétales.....	12
II.3. Composition et structure des fibres d'origines végétales .....	13
II.4. Propriétés mécaniques en traction des fibres végétales.....	18
III. Conclusion .....	25
<b>PARTIE 2 ANALYSE DE LA MORPHOLOGIE DES FIBRES VÉGÉTALES .....</b>	<b>26</b>
I. Caractérisation des dimensions transversales .....	26
I.1. Importance de la détermination des dimensions transversales.....	26
I.2. Les méthodes de caractérisation appliquées aux fibres végétales.....	27
II. Influence de l'humidité sur la stabilité dimensionnelle des fibres végétales .....	38
II.1. Généralités et modes d'actions .....	39
II.2. Contribution des biopolymères des parois cellulaires.....	41
II.3. Modélisation des processus de diffusion.....	43
III. Conclusion .....	44
<b>PARTIE 3 CARACTÉRISATION DES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DES FIBRES VÉGÉTALES .....</b>	<b>45</b>
I. Etude du comportement mécanique des fibres végétales .....	45
I.1. Méthodologies de caractérisation des propriétés mécaniques appliquées aux fibres végétales ....	45
I.2. Etude du comportement mécanique en traction .....	49
II. Influence de l'humidité sur le comportement mécanique des fibres végétales.....	55
II.1. Généralités et modes d'actions .....	55
II.2. Modification des propriétés mécaniques en traction des fibres végétales.....	57
<b>CONCLUSION CHAPITRE 1 .....</b>	<b>62</b>



<b>CHAPITRE 2 MATERIAUX ET METHODES .....</b>	<b>64</b>
<b>INTRODUCTION CHAPITRE 2.....</b>	<b>66</b>
<b>PARTIE 1 PRÉSENTATION DES FIBRES VÉGÉTALES.....</b>	<b>67</b>
I. Des origines botaniques contrastées .....	67
I.1. Les monocotylédones .....	67
I.2. Les dicotylédones.....	68
II. Analyses biochimiques .....	69
II.1. Teneur en lignine de Klason.....	69
II.2. Teneur en monosaccharides.....	70
<b>PARTIE 2 MÉTHODOLOGIES DE CARACTÉRISATION DES FIBRES VÉGÉTALES.....</b>	<b>71</b>
I. Préparation des échantillons.....	71
II. Les méthodes de caractérisations des fibres techniques.....	72
II.1. Analyse de la morphologie des faisceaux de fibres végétales .....	72
III. Analyse du comportement mécanique des fibres techniques.....	75
III.1. Essai de micro-traction .....	75
III.2. Détermination des propriétés mécaniques en traction .....	77
III.3. Observation du mode de rupture .....	78
IV. Analyse des variations dimensionnelles et du comportement mécaniques des fibres techniques en environnement humide .....	79
IV.1. Teneur en eau en phase vapeur (« Dynamic Vapor Sorption »).....	79
IV.2. Teneur en eau en immersion (« Water Retention Value ») .....	79
IV.3. Analyse en condition hygrothermiques.....	80
IV.4. Analyse en conditions hydrothermiques.....	81
<b>CHAPITRE 3 ANALYSE DES VARIATIONS MORPHOMETRIQUES DES FIBRES VEGETALES PAR BALAYAGE LASER AUTOMATISE : VERS UNE EVALUATION EFFICACE ET FIABLE DE L'AIRES DE LA SECTION .....</b>	<b>84</b>
<b>PRÉAMBULE CHAPITRE 3.....</b>	<b>86</b>
<b>PARTIE 1 RÉSUMÉ EN FRANÇAIS.....</b>	<b>88</b>
<b>PARTIE 2 ANALYSIS OF THE MORPHOMETRIC VARIATIONS IN NATURAL FIBRES BY AUTOMATED LASER SCANNING: TOWARDS AN EFFICIENT AND RELIABLE ASSESSMENT OF THE CROSS-SECTIONAL AREA.....</b>	<b>89</b>
<b>Abstract .....</b>	<b>89</b>
I. Introduction .....	89
II. Experimental section.....	91
II.1. Materials .....	91

II.2. Methods for the measurement of fibre bundle cross-section .....	92
II.3. Results and discussion .....	93
III. Conclusions .....	103
<b>CHAPITRE 4 ETUDE DU COMPORTEMENT EN TRACTION DES FIBRES VEGETALES ET ANALYSE DE LA DISPERSION DES PROPRIETES MECANIQUES .....</b>	<b>106</b>
<b>INTRODUCTION CHAPITRE 4.....</b>	<b>108</b>
<b>PARTIE 1 COMPORTEMENT EN TRACTION DES FAISCEAUX DE FIBRES VÉGÉTALES .....</b>	<b>109</b>
I. Analyse du comportement des faisceaux de fibres végétales par essai de micro-traction .....	109
II. Etude des mécanismes de rupture des faisceaux de fibres végétales.....	111
III. Origine de la dispersion des mesures de propriétés mécaniques en traction des fibres végétales ....	113
<b>PARTIE 2 EFFET DE LA METHODE DE MESURE DE SECTION SUR LA DISPERSION DES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES : CAS DES FAISCEAUX DE FIBRES DE PALMIER ET DE LIN .....</b>	<b>114</b>
I. Méthodologie de caractérisation des dimensions transversales.....	114
I.1. Analyse de la section sans rotation.....	114
I.2. Analyse de la section avec rotation .....	115
II. Représentation statistique du choix du modèle de calcul .....	117
II.1. Dispersion relative des aires de section intra-faisceaux.....	117
II.2. Dispersion relative des aires de section inter-faisceaux.....	118
III. Dispersion des propriétés mécaniques en traction .....	120
III.1. Influence du choix du modèle de calcul de l'aire de la section sur les valeurs de module tangent ultime .....	120
III.2. Influence du choix du modèle de calcul de l'aire de la section sur les valeurs de contrainte à la rupture .....	121
<b>PARTIE 3 AMÉLIORATION DE LA MÉTHODE D'ÉVALUATION DES PROPRIETES MECANIQUES FIBRES VÉGÉTALES .....</b>	<b>124</b>
I. Méthodologie proposée pour l'évaluation de la compliance de l'ensemble du système de micro- traction.....	124
II. Evaluation des propriétés mécaniques en traction des fibres végétales : prise en compte de la compliance .....	125
<b>CONCLUSION CHAPITRE 4 .....</b>	<b>129</b>

<b><u>CHAPITRE 5 VARIATIONS DIMENSIONNELLES ET COMPORTEMENT MECANIQUE DES FIBRES VEGETALES EN CONDITIONS HYDRO/HYGROTHERMIQUES CONTROLEES.....</u></b>	<b>130</b>
<b>INTRODUCTION CHAPITRE 5.....</b>	<b>132</b>
<b>PARTIE 1 CARACTÉRISATION DES VARIATIONS GRAVIMETRIQUES ET DIMENSIONNELLES DES FIBRES VÉGÉTALES EN HUMIDITÉ CONTRÔLÉE .....</b>	<b>133</b>
I. Comportement en sorption des fibres végétales.....	133
I.1. Teneur en eau par adsorption en phase vapeur (Dynamic Vapor Sorption) .....	133
I.2. Teneur en eau en immersion (Water Retention Value) .....	134
II. Influence sur la morphologie des fibres.....	136
II.1. Variation de l'aire médiane de section transversale .....	136
II.2. Variation du facteur de forme .....	138
II.3. Efficacité du gonflement en fonction de la reprise d'eau.....	142
<b>PARTIE 2 CARACTERISATION DU COMPORTEMENT MECANIQUE DES FIBRES VEGETALES EN HUMIDITE CONTROLEE.....</b>	<b>146</b>
I. Influence de l'humidité relative sur le comportement des faisceaux de fibres.....	146
II. Influence de l'humidité relative sur des propriétés mécaniques en traction .....	147
II.1. Evolution du module tangent ultime .....	148
II.2. Evolution de la résistance à la traction .....	149
II.3. Evolution de la déformation à la rupture .....	155
<b>CONCLUSION CHAPITRE 5 .....</b>	<b>157</b>
<b><u>CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES .....</u></b>	<b>159</b>
<b>RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES .....</b>	<b>163</b>
<b>LISTE DES FIGURES.....</b>	<b>174</b>
<b>LISTE DES TABLEAUX.....</b>	<b>179</b>
<b>LIST OF TABLES .....</b>	<b>180</b>
<b>ANNEXES.....</b>	<b>181</b>



# INTRODUCTION GÉNÉRALE

La France, mais aussi la plupart des pays membres de l'organisation de coopération et de développement économique, ont connu après la deuxième guerre mondiale une période de renouveau appelée les « trente glorieuses ». Elle s'est caractérisée par une forte croissance de la production industrielle et de l'économie de marché facilitée par un accès facile aux ressources fossiles, mais aussi par une expansion démographique. Mais les trois chocs pétroliers qu'a subis le monde en 1973, 1979 et 2008 et la probable pénurie des énergies fossiles dans une cinquantaine d'années, imposent un changement de politique. Couplés à une forte nécessité de diminuer les rejets de dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) dans l'atmosphère, responsable du réchauffement climatique, de vastes programmes de recherche et de développement sur les réductions d'énergies ont été engagés par des politiques gouvernementales et publiques ambitieuses.

Des solutions alternatives pour la production d'énergie renouvelable ont notamment vu le jour il y a quelques années (solaire, éolienne...) et permettent de diminuer fortement l'utilisation de ces ressources fossiles et donc de réduire l'empreinte environnementale. Au cours de ces dernières années, l'industrie des composites a également su s'adapter pour répondre aux nouvelles problématiques sociétales et ont montré un intérêt croissant pour le développement des composites biosourcés, c'est-à-dire de matériaux à matrice polymère (éventuellement biosourcée et/ou compostable). Dans ce contexte, l'utilisation d'éléments issus de ressources renouvelables en tant que renforts dans les matériaux composites biosourcés connaissent un véritable essor notamment dans les secteurs du bâtiment, des transports, de l'ameublement et des sports et loisirs. D'un point de vue environnemental, l'utilisation des fibres végétales, en substitution aux fibres de verre ou autres fibres synthétiques, permet d'améliorer la recyclabilité des produits en fin de vie et ainsi réduire l'empreinte environnementale. D'un point de vue industriel, si ces composites biosourcés suscitent un intérêt grandissant, c'est aussi grâce à leur densité plus faible par rapport aux composites traditionnels à base de fibres de verre (environ 1,45 contre 2,54 pour les fibres de verre) qui leur confère de bonnes propriétés mécaniques spécifiques (c.à.d. rapportées à la densité associée). Pour l'industrie automobile par exemple, l'intégration des matières issues de la biomasse et/ou des matières recyclées permet donc de combiner un allègement des structures et une réduction des émissions de gaz à effet de serre. Enfin d'un point de vue économique, les composites biosourcés incitent à développer des technologies nouvelles en intégrant une démarche d'écoconception qui valorise des ressources renouvelables locales issues de l'agriculture et qui permettent ainsi de maintenir la compétitivité des filières agricoles impliquées.

Dans ce contexte, des fibres végétales lignocellulosiques de natures variées sont utilisées comme renforcement de matrices thermoplastiques ou thermodurcissables, en substitution aux fibres de verre généralement employées. Toutefois, le niveau de connaissance des fibres végétales est très varié. Selon un rapport de l'ADEME de 2011\*, si certaines fibres comme les fibres de lin ou de chanvre sont relativement utilisées dans l'industrie des composites, d'autres nécessitent d'avantage de recherche et d'implication (Figure 0-1).

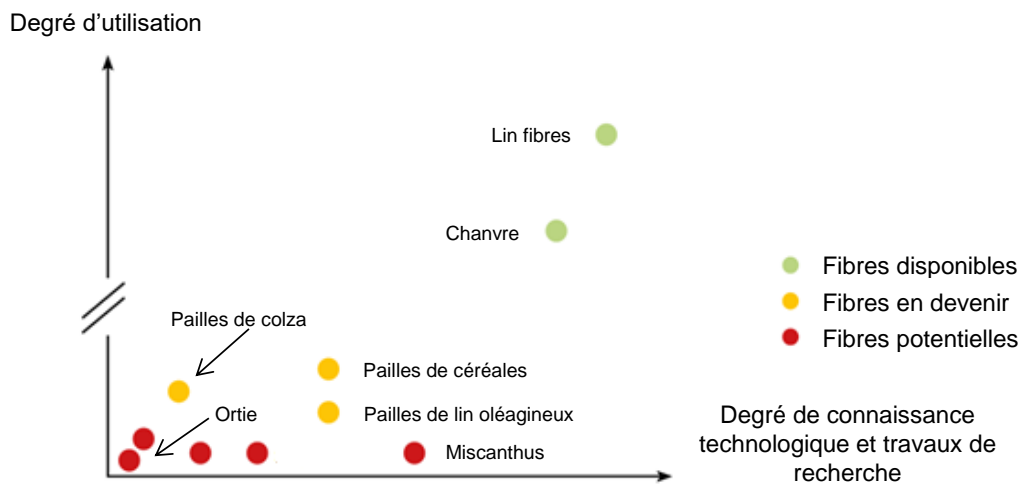


Figure 0-1: Degré de connaissance des fibres utilisées en France\*.

Pour pouvoir revendiquer un niveau de performance technique maîtrisé et constant, certains verrous scientifiques liés à l'utilisation des fibres végétales en tant que renfort dans les matériaux composites demandent à être soulevés. Actuellement, la littérature rend compte d'une grande dispersion des propriétés mécaniques des fibres végétales. Outre la variabilité inhérente au caractère naturel des fibres végétales, liée notamment aux spécificités botaniques, d'autres paramètres liés aux aspects méthodologiques peuvent expliquer et influencer la dispersion des propriétés mécaniques :

- Le premier concerne les méthodes de mesure des dimensions transversales appliquées, qui repose le plus souvent sur des hypothèses de forme de section qui ne reflètent pas la réalité morphologique.
- Le second concerne la forte sensibilité des propriétés physico-chimiques et mécaniques des fibres végétales aux conditions environnementales. Fortement hydrophiles, les fibres végétales sont particulièrement sensibles aux conditions hydro/hygrothermiques. Cette sensibilité des fibres végétales va avoir un impact important sur les propriétés d'usage des biocomposites et donc sur leur vieillissement.

\* Source ADEME. *Evaluation de la disponibilité et de l'accessibilité des fibres végétales à usages matériaux en France*, Mars 2011

C'est pourquoi l'utilisation de ces ressources végétales nécessite une connaissance et une maîtrise approfondies de leurs propriétés morphologiques, physico-chimiques et mécaniques pour prédire leur comportement à court terme (lors des procédés d'élaboration des biocomposites) et en service au sein du composite. C'est cette connaissance approfondie qui permettra aux biocomposites d'être plus compétitifs, notamment pour des applications techniques comme le développement de pièces mécaniques structurelles. Dans ce contexte, l'objectif principal de la thèse était la mise en place de méthodologies de caractérisation et de suivi des propriétés dimensionnelles et mécaniques dans des conditions environnementales contrôlées en lien avec les origines botaniques des fibres. Cela passe par l'étude des caractères morphométriques des fibres végétales, afin de mieux appréhender la mesure de leurs dimensions et réduire l'influence de cette variabilité sur l'estimation de leurs propriétés physiques. Cette thèse s'est déroulée en partenariat entre le laboratoire C2MA de l'IMT Mines d'Alès et le laboratoire Fractionnement des Agro-Ressources et Environnement (FARE) de l'INRA de Reims.

**Ce mémoire se compose de cinq chapitres :**

Le 1<sup>er</sup> chapitre est le chapitre bibliographique. Après quelques généralités, un état de l'art des connaissances des fibres végétales est donné et les verrous scientifiques auxquels elles sont confrontées sont abordés. La seconde partie fait un focus sur les méthodologies de caractérisation morphologique des fibres et l'influence qu'a l'humidité sur les dimensions transversales. La troisième et dernière partie est dédiée à un état de l'art des méthodes de caractérisation des propriétés mécaniques des fibres végétales et l'influence qu'a l'humidité sur le comportement mécanique.

Le 2<sup>nd</sup> chapitre est le chapitre « matériaux et méthodes ». Il est constitué d'une première partie qui présente les fibres végétales sélectionnées dans la thèse. Enfin, les différentes méthodes de caractérisations dimensionnelles et mécaniques utilisées sont détaillées dans une seconde partie. Cette dernière est l'occasion d'expliquer le protocole mis en place pour évaluer la sensibilité des fibres végétales aux conditions hydro/hygrothermiques.

Le 3<sup>ème</sup> chapitre, qui fait l'objet de la publication intitulée: « *Analysis of the morphometric variations in natural fibres by automated laser scanning: towards an efficient and reliable assessment of the cross-sectional area* » publiée dans la revue internationale « Composites Part A » en 2018, concerne l'analyse détaillée des variations morphométriques de cinq espèces végétales phylogénétiquement et morphologiquement différentes.

Le 4<sup>ème</sup> chapitre propose d'étudier le comportement en traction des fibres végétales dans les conditions standards d'humidité et de température (50% HR et 23°C). La première partie, purement

qualitative, fait focus sur le comportement en traction quasi-statique des fibres végétales et sur les mécanismes de rupture mis en jeu. La seconde partie s'attache à évaluer, par une approche statistique, la dispersion des propriétés mécaniques liée aux méthodes appliquées pour estimer l'aire de section. Pour finir, une amélioration de la méthode d'évaluation des propriétés mécaniques en traction par la prise en compte de la compliance du système a été proposée.

Pour finir, dans le 5<sup>ème</sup> et dernier chapitre, une analyse des variations dimensionnelles et mécaniques des fibres végétales en conditions hydro/hygrothermiques contrôlées est donnée. Sur la base de la méthodologie développée dans le *CHAPITRE 3*, l'influence de l'humidité sur la morphologie est analysée dans une première partie. Enfin dans la seconde partie, sur la base d'une amélioration de la méthode d'évaluation des propriétés mécaniques développée dans le *CHAPITRE 4*, l'influence de l'humidité sur le comportement mécanique en traction est évaluée puis modélisée par l'approche statistique de Weibull.

Pour finir, une partie « conclusions et perspectives » permet de faire une synthèse générale des résultats obtenus au cours de la thèse et d'apporter des réponses aux problématiques scientifiques explicitées dans l'introduction générale.



# **CHAPITRE 1**

## **Bibliographie**



# PARTIE 1 LES MATÉRIAUX COMPOSITES RENFORCÉS PAR DES FIBRES VÉGÉTALES

## I. Du composite au biocomposite

### I.1. Généralités sur les matériaux composites

Un matériau composite est constitué d'un assemblage d'au moins deux matériaux non miscibles dont les propriétés sont supérieures à celles des matériaux pris séparément. Ce matériau, hétérogène, présente la plupart du temps un comportement mécanique anisotrope (c'est-à-dire que ses propriétés ne sont pas les mêmes dans toutes les directions). En règle générale, un matériau composite se compose de deux éléments principaux que sont le renfort et la matrice.

#### I.1.1. La matrice

Quelle que soit sa nature, le rôle de la matrice est de protéger et maintenir la disposition géométrique du renfort, de transmettre et répartir les contraintes subies et de conférer ainsi au composite des caractéristiques mécaniques, chimiques et thermiques [1].

On distingue 4 grandes familles de matrice : les matrices organiques, métalliques, céramiques et les matrices minérales (Figure 1-1). Parmi les matrices organiques, on distingue les matrices polymères thermodurcissables comme les résines époxy, polyester insaturé et vinylester et les matrices polymères thermoplastiques comme le polypropylène PP, le polyéthylène PE, le polystyrène PS ou le polyamide PA [2].

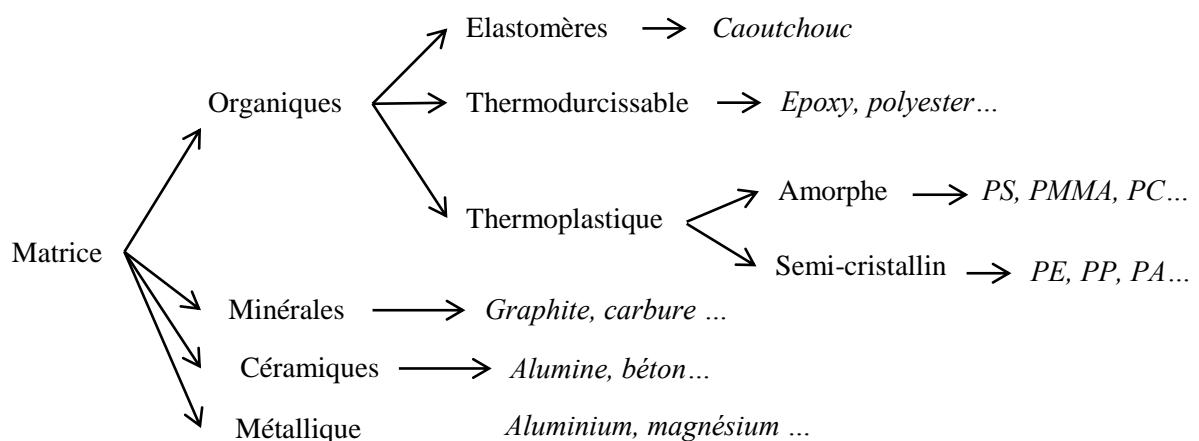


Figure 1-1: Classification des matrices communément employées dans les composites.

Les thermodurcissables ont généralement des propriétés mécaniques élevées et réticulent de manière irréversible après cuisson à haute température pour former un réseau 3D de chaînes macromoléculaires liées par des liaisons covalentes. Les thermoplastiques ont des propriétés

mécaniques généralement plus faibles et peuvent être mises en œuvre de manière réversible à haute température du fait des interactions faibles entre les chaînes (de type van der Waals majoritairement). On distingue les thermoplastiques amorphes (PS, PMMA, PC) des thermoplastiques semi-cristallins (PE, PP, PA, PEEK) qui présentent une structure macromoléculaire organisée sous forme de cristallites.

### 1.1.2. Les renforts

On appelle renfort l'ossature du composite, qui lui confère ses performances mécaniques finales. Les types de renforts sont multiples et se présentent sous plusieurs aspects commerciaux (fils, mèches, mats, tissus, tresses, architecture 3D et associée à l'impression 3D) en fonction de leur utilisation et du procédé de mise en œuvre choisi. Les renforts peuvent être sous forme de fibres longues principalement utilisées dans des applications dont les sollicitations mécaniques sont importantes ou de fibres courtes utilisées pour des applications moins structurales. Il existe plusieurs types de renforts qu'ils soient de nature organique ou inorganique (Figure 1-2) [3]. Ce sont essentiellement les fibres comme les fibres de verre et de carbone qui sont utilisées respectivement dans les composites de grande diffusion et de haute performance. A titre d'exemple, en 2010, les composites renforcés de fibres de verre dominaient largement le secteur de l'industrie du composite avec un volume produit de 85% [4].

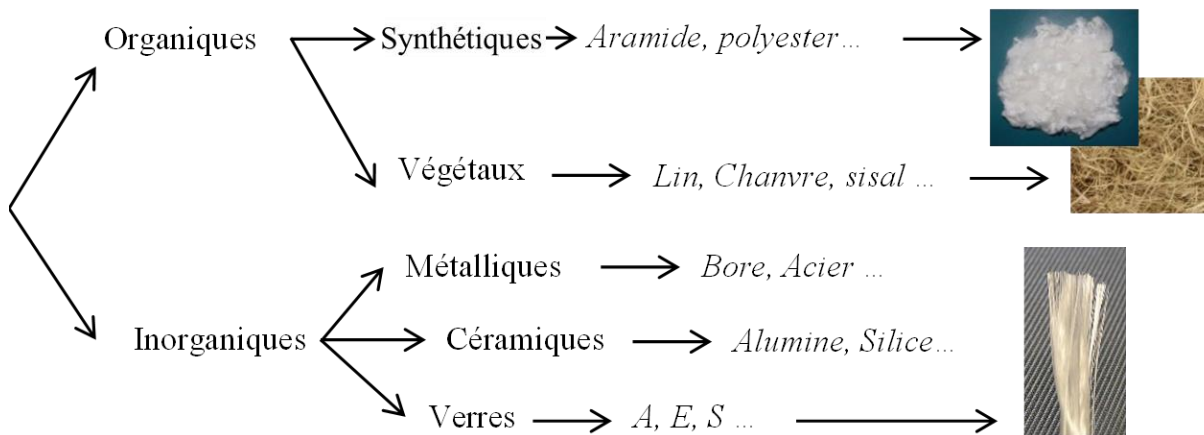


Figure 1-2: Classification des renforts employés dans les composites.

### 1.2. Vers les biocomposites

Les biocomposites sont des matériaux constitués totalement ou partiellement d'agro-ressources. Ils ont fait leur apparition au début des années 1900, pour la réalisation de panneaux industriels et de tubes pour l'électronique à base de coton et de bakélite [5]. Plus tard, on les retrouve dans le secteur automobile : en 1941 grâce à Henry Ford pour la fabrication de panneaux de carrosserie à base de fibres de chanvre et d'une matrice issue de protéine de soja ou encore en 1958 pour la réalisation d'éléments de carrosserie de la Trabant à partir de fibres de coton et de résine phénolique [6].

Longtemps délaissés au profit des composites à fibres synthétiques, on observe depuis les années 70 un engouement autour de ces biocomposites notamment en raison des deux crises pétrolières de 1973 et 1979. Une étude de 2010 a révélé que les biocomposites représentaient près de 13,1% du marché des composites derrière les composites à fibres de verre qui représentent 85% [7] (Figure 1-3). Le terme biocomposites désigne à la fois les composites à base renforts de bois « WPC » (Wood Plastic Composites) et les composites à base de fibres végétales « NFC » (Natural Fibre Composite). Parmi les NFC, les composites bio-sourcés à base de fibres végétales, hors bois et coton, représentent 1,9% des 2,4 millions de tonnes de composites produits par l'Europe en 2010. Ces chiffres sont en constante augmentation. A titre d'exemple, selon l'European Industrial Hemp Association (EIHA), d'ici 2020, la part des biocomposites (WPC et NFC confondus) devrait atteindre 22%.

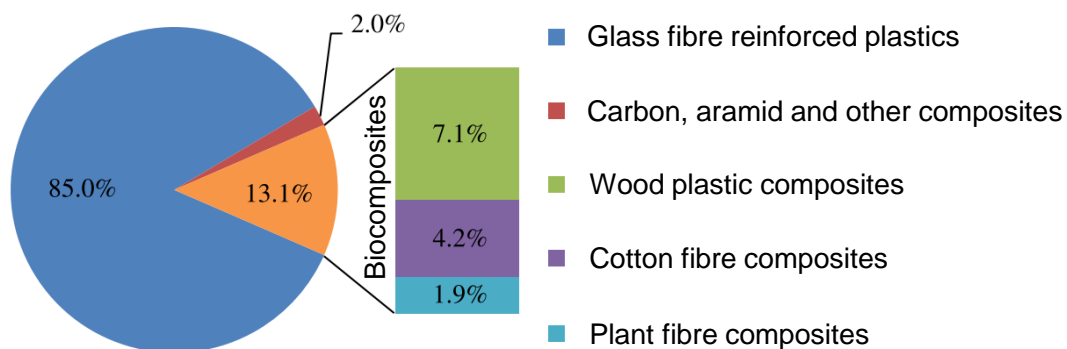
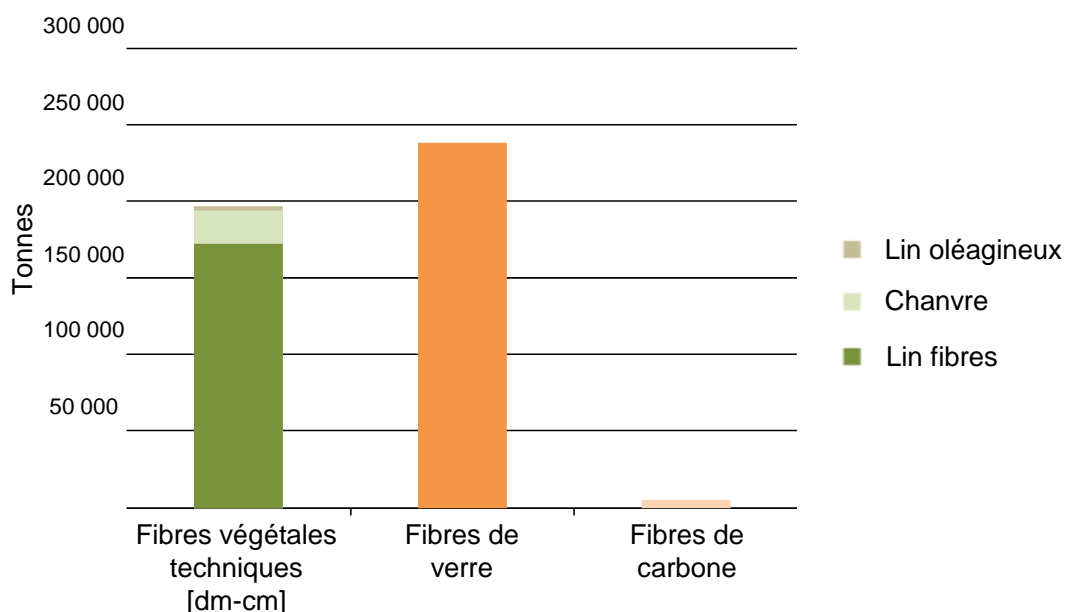


Figure 1-3: Proportion des biocomposites sur la production européenne en 2010 [7].

Les fibres végétales employées dans les composites bio-sourcés, hors bois et coton, présentent de nombreux avantages. Leur faible coût, situé entre 0,5 et 1,5 €/kg, les rendent compétitifs face aux fibres synthétiques comme les fibres de verre (~2 €/kg) [6]. Leur utilisation est également l'occasion d'utiliser et de valoriser une ressource agricole locale. A titre d'exemple, selon un rapport de 2016 de la société Fibres Recherche Développement (FRD) en collaboration avec l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) et la chambre de l'agriculture de l'Aube, le volume de production, en France, des fibres végétales techniques représentait 195000 tonnes, très proche de celui des fibres de verre avec 240000 tonnes (Figure 1-4) [4].



**Figure 1-4: Volume de production des fibres végétales techniques par rapport à la production de fibres de verre et de carbone en France en 2016 [4].**

Aussi, la prise de conscience écologique de ces dernières années ainsi que les nombreuses réglementations en vigueur comme la réglementation 2009/443/CE sur le niveau moyen d'émissions de CO<sub>2</sub> (95g de CO<sub>2</sub>/km d'ici 2020) poussent les industriels, notamment dans le secteur des transports [8–10], à intégrer des matières issues de la biomasse et des matières recyclées [11]. Cet engouement s'explique notamment par leur densité plus faible, située entre 1,15 et 1,60, par rapport aux fibres de verre (~2,54) qui permet d'envisager l'allègement des structures [5]. De nombreux constructeurs conçoivent et développent des pièces non-structurelles à base de fibres végétales. Citons Mercedes-Benz pour la réalisation des garnitures intérieures de portières et d'habillage du coffre ou encore PSA Peugeot-Citroën pour la fabrication de coques de rétroviseur [5,12]. Ils incitent à développer des technologies nouvelles en intégrant une démarche d'écoconception, mais aussi une démarche économique qui valorisent des ressources renouvelables issues de l'agriculture locale permettant ainsi de maintenir la compétitivité des filières agricoles impliquées. Les NFC sont également utilisés dans les domaines du sport et des loisirs ou de l'ameublement même si à l'heure actuelle ce sont les WPC qui sont majoritairement employés pour des applications de construction (terrasses, bois d'aménagement...) et des applications non-structurelles [13] pour leur caractère environnemental (dit « eco-friendly ») [7].

Dans ce contexte, des fibres végétales de natures variées sont utilisées comme renforcement de matrices thermoplastiques ou thermodurcissables, en substitution aux fibres de verre. Malgré les connaissances acquises depuis de nombreuses années en biologie et en chimie du végétal, la question de la tenue mécanique en service des biocomposites soumis aux conditions environnementales (en

lien avec leurs propriétés physico-chimiques) reste un verrou scientifique et technologique majeur. C'est pourquoi l'utilisation de ces ressources végétales nécessite une connaissance et une maîtrise approfondies de leurs propriétés morphologiques, physico-chimiques et mécaniques pour prédire leur comportement à court terme, lors des procédés d'élaboration des biocomposites et en service. C'est l'approfondissement de toutes ces connaissances qui permettra aux biocomposites d'être plus compétitifs, notamment pour des applications techniques comme le développement de pièces mécaniques structurelles.

## II. Les fibres végétales comme renforts

### II.1. Une approche botanique

On dénombre de nombreuses variétés de fibres d'origine naturelle, comme le montre la Figure 1-5 [6]. Celles-ci sont classées en trois groupes : animales, minérales ou végétales [6,14,15]. Ce sont essentiellement les fibres d'origine végétale qui présentent un fort intérêt en tant que renfort dans les NFC. D'un point de vue botanique, elles sont issues des angiospermes (plantes à fleurs ou à fruits) et se répartissent en deux groupes : les monocotylédones et les dicotylédones [6] :

- **Les monocotylédones** sont caractérisées par l'absence de formation de bois secondaire, appelé cambium. C'est la multiplication successive des faisceaux les plus anciens qui entraîne une structure multi-lamellaire de la paroi cellulaire et confère la stabilité mécanique à la plante. Les monocotylédones ont généralement une fonction tissulaire ou de conduction au sein de la plante. On peut distinguer les fibres extraites des feuilles comme les fibres de sisal ou d'abaca de celles extraites des tiges ou de fruits comme la fibre de coco ou de palmier [6].
- **Les dicotylédones** sont caractérisées par la présence d'un cambium. Celui-ci permet, au sein de la tige, la formation de bois secondaire vers l'intérieur et de liber vers l'extérieur. Le bois est hétéroxylé, c'est-à-dire qu'en plus des vaisseaux conducteurs, il possède des fibres disposées en faisceaux qui poussent de façon asymétrique. Les dicotylédones ont principalement une fonction de support structurel de la tige dans la plante. Elles sont le plus souvent extraites de la tige comme les fibres de lin ou de chanvre, mais peuvent également provenir de graines et de fruits comme le coton ou le kapok [6].

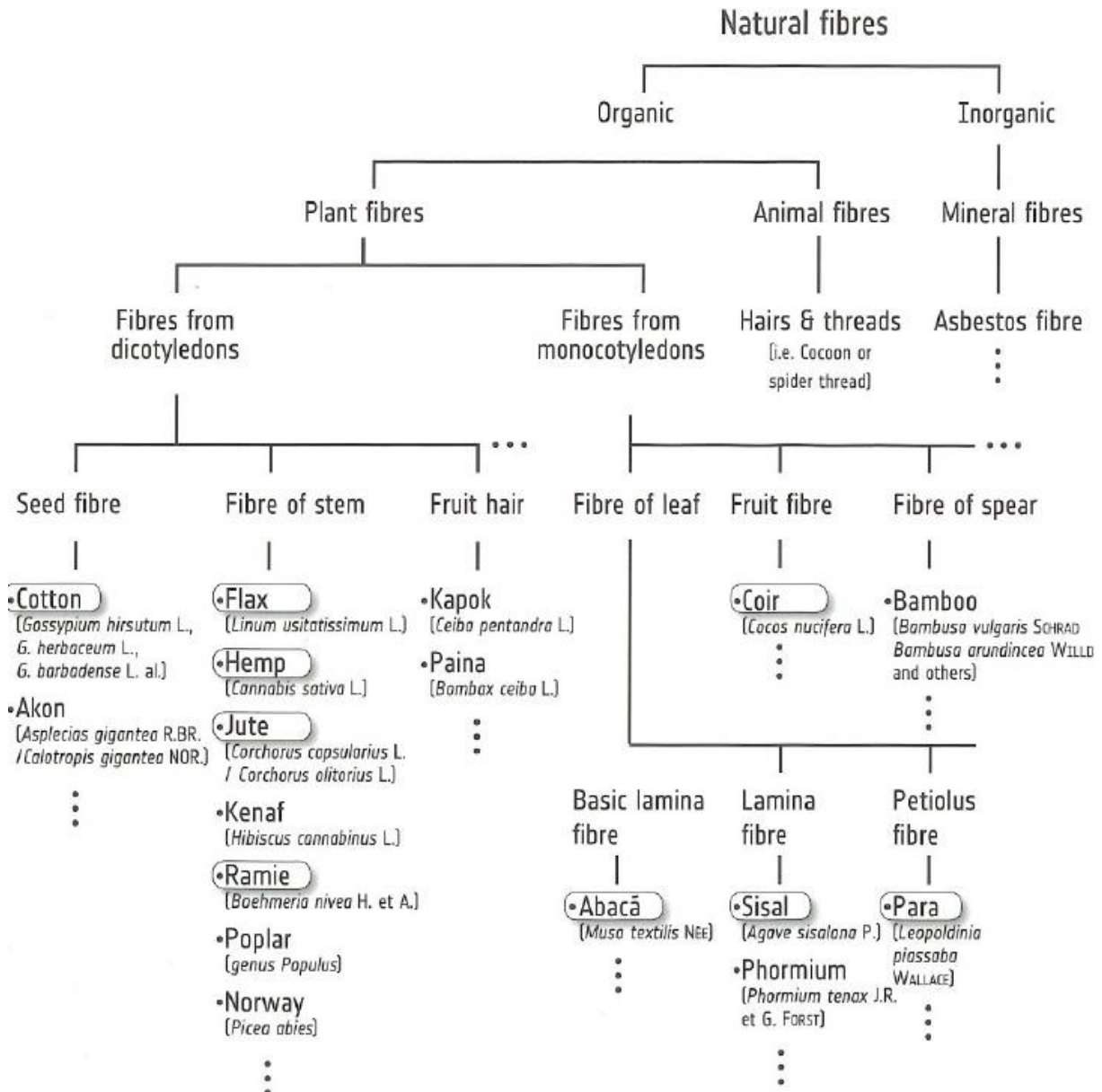


Figure 1-5: Aperçu des variétés de fibres d'origine naturelle [6].

## II.2. Classification des fibres d'origine végétale

Une autre classification des fibres d'origine végétale en fonction de leur localisation dans la plante donnée par Shah *et al.* [16] est présentée dans la Figure 1-6. Si certaines plantes sont cultivées spécifiquement pour leurs fibres primaires comme les fibres libériennes de lin ou de chanvre (appelées « *bast fibres* ») ou les fibres de sisal et de coton, d'autres sont un sous-produit secondaire de la plante comme les fibres de coco ou de banane.

Les fibres d'origine végétale, monocotylédones et dicotylédones confondues, peuvent être divisées en 4 familles : les fibres dures extraites de feuilles comme le sisal ou l'abaca ; les fibres provenant des



poils séminaux des graines comme le coton ; les fibres libériennes extraites des tiges comme le chanvre ou le lin et les autres fibres comme le bambou ou le bois [5,6,16].

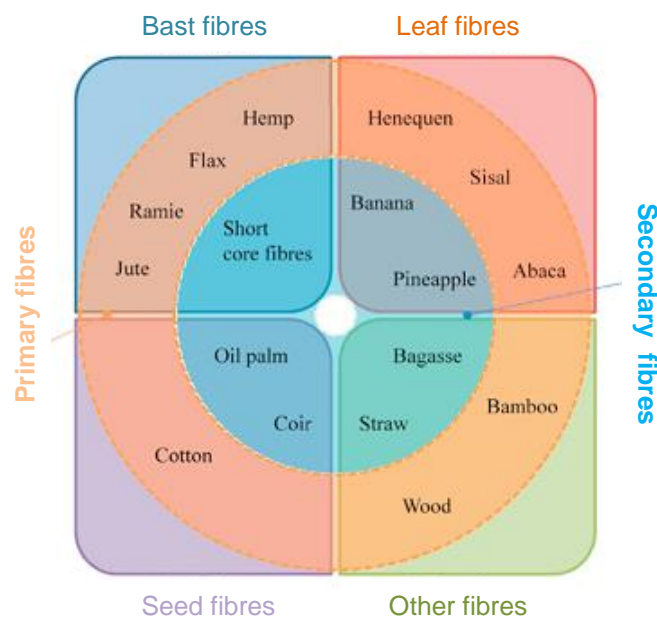


Figure 1-6: Classification des fibres d'origine végétale [16].

On distinguera les fibres issues des plantes annuelles (cycle de vie inférieur à 1 an) comme les fibres libériennes, des fibres issues des plantes vivaces pluriannuelles (cycle de vie sur plusieurs années) comme les fibres de sisal ou de palmier [6]. En raison de leurs bonnes caractéristiques mécaniques spécifiques (c.à.d. les propriétés rapportées à la densité associée) et de leur renouvelabilité, ce sont principalement les fibres libériennes que l'on va retrouver en substitution aux fibres de verre pour des applications composites structurelles [5,6,17,18] (cf. CHAPITRE 1 PARTIE 1 II.4). A titre d'exemple, dans l'industrie automobile européenne en 2012, les composites bio-sourcés à base de fibres libériennes représentaient 32% en volume de produits, derrière les fibres de bois (38%) et devant les fibres de coton (25%) et les autres fibres (7%) [19].

### II.3. Composition et structure des fibres d'origine végétale

#### II.3.1. Composition biochimique

L'ensemble des constituants biochimiques des parois cellulaires joue un rôle plus ou moins important sur le comportement mécanique des fibres. Le Tableau 1-1 présente pour différentes espèces végétales la proportion de quelques constituants majoritairement présents telles que la cellulose, l'hémicellulose, la pectine et la lignine. La dispersion des résultats obtenus lors de la quantification des différents constituants biochimiques est en grande partie attribuée à la variabilité des fibres végétales (cf. CHAPITRE 1 PARTIE 1 II.2). Plusieurs facteurs, tels que les conditions climatiques (lors de la croissance) [20], le niveau de maturité [21], la localisation des fibres dans la plante [22] et leur quantité,

le procédé de rouissage (dégradation des ciments pectiques par une activité enzymatique) [23–25] et les méthodes de mesure [25] (comme c'est le cas pour la mesure du taux de lignine [6]) peuvent également expliquer la dispersion des valeurs des compositions biochimiques retranscrites dans la littérature.

**Tableau 1-1 : Compositions chimiques (% massique) de quelques fibres végétales**

Fibres végétales	Cellulose (%)	Hémicellulose (%)	Lignine (%)	Pectine (%)	Références
Lin	60 - 81	14 - 19	2 - 3	1,72 - 4	[5,17,26,27]
Chanvre	70 - 92	17 - 22	3 - 5	0 - 1	[5,20,26,27]
Ramie	68 - 83	13 - 17	0.6 - 1	1,9 - 2	[5,20,26]
Sisal	67 - 88	10 - 14	8 - 11	0,8 - 10	[5,20,26,27]
Coir	32 - 43	0,15 – 0,25	40 - 45	3 - 4	[5,20,27,28]

Une description plus détaillée des biopolymères présents dans la paroi cellulaire des fibres végétales est donnée ci-dessous [29]:

- **La cellulose** est le principal polysaccharide présent chez les végétaux. C'est un polymère linéaire composés d'unités d'anhydroglucose (AGU) liées par des liaisons  $\beta$ -1,4. Elle est organisée sous forme de microfibrilles de 18 à 36 chaînes de cellulose au sein des parois végétales. Avec un module élastique théorique estimé à 137 GPa [30] et un taux de cristallinité relativement élevé (de l'ordre de 55 à 60% [31]), les microfibrilles de cellulose confèrent à la fibre végétale une bonne rigidité ainsi qu'un caractère hydrophobe [6].
- **Les hémicelluloses**, formés de multiples monosaccharides (glucose, mannose, galactose etc.), sont le deuxième biopolymère constitutif des fibres végétales après la cellulose. Les hémicelluloses sont des polymères très hydrophiles, en grande partie responsables de l'absorption d'eau dans les parois cellulaires [32]. Le module élastique est d'environ 7-8 GPa [33,34].
- **La lignine** s'associe à la cellulose et à l'hémicellulose dans les parois des cellules végétales. C'est un polymère amorphe tridimensionnel et hydrophobe qui confère une bonne rigidité pariétale [6,35] et donc une bonne cohésion des faisceaux de cellules [36]. Les techniques

modernes comme la microscopie à force atomique (AFM) ont permis d'estimer son module aux alentours de 2 GPa [37].

- **La pectine** est un polymère amorphe formé de plusieurs saccharides. De quantité relativement faible dans les fibres de renfort, car dégradée au cours du procédé de rouissage, elle se situe principalement au sein de la lamelle moyenne et de la paroi primaire assurant la cohésion des fibres élémentaires au sein du faisceau.

### II.3.2. Structure des parois cellulaires

La microstructure des fibres végétales est extrêmement complexe en raison de l'organisation hiérarchique des divers constituants. Les fibres végétales sont assimilables à un matériau composite renforcé par des microfibrilles de cellulose [5]. Une organisation hiérarchique s'étend de l'échelle macrométrique à l'échelle nanométrique. Pour décrire cette organisation structurale, nous nous sommes aidés du schéma de la structure multi-échelle d'une tige de lin représentée à la Figure 1-7 par Charlet *et al.* [22].

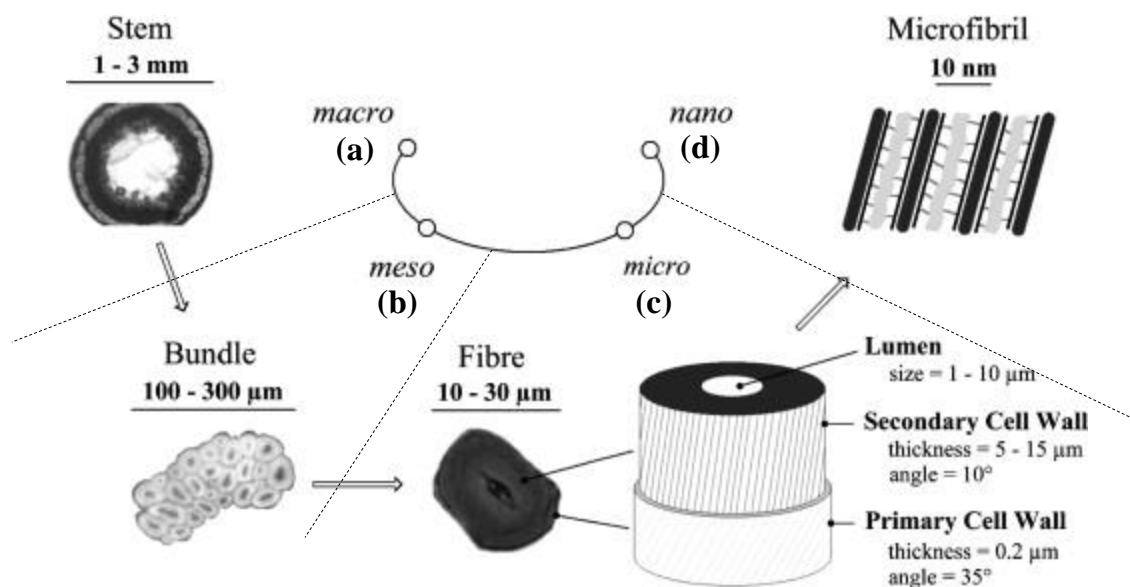
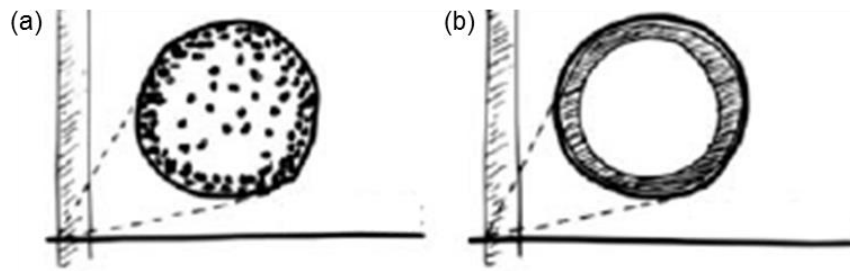


Figure 1-7: Microstructure d'une tige de lin à la microfibrille [22].

A l'échelle macroscopique (Figure 1-7(a)) de la tige, des arrangements microstructuraux contrastés entre les monocotylédones et les dicotylédones ont été observés [6]. Dans le cas des monocotylédones (Figure 1-8(a)), les fibres apparaissent soit liées aux faisceaux vasculaires soit distribuées ou assemblées en petits groupes. Concernant les dicotylédones (Figure 1-8(b)), les fibres sont essentiellement présentes en périphérie de la tige autour d'un canal central appelé lacune.



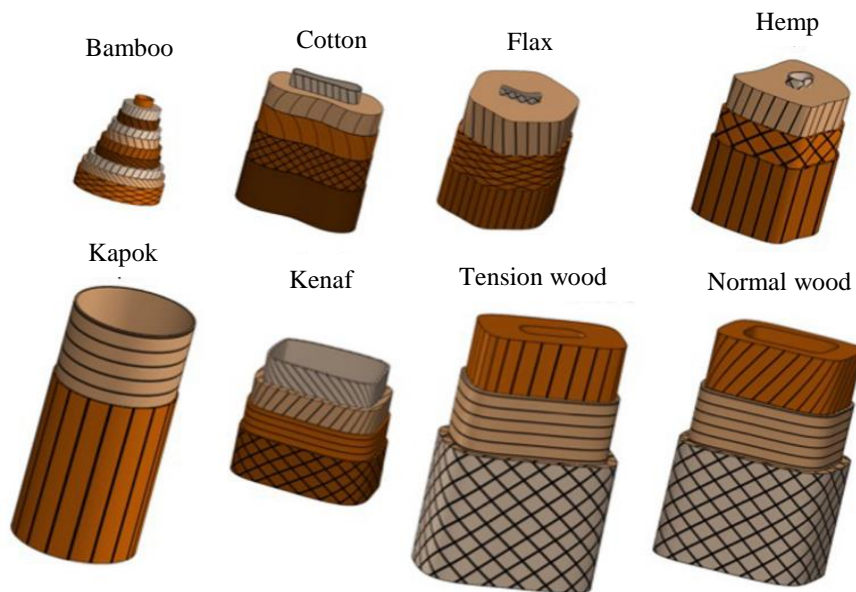
**Figure 1-8 : Arrangement des fibres dans (a) les monocotylédones et (b) les dicotylédones [6].**

A l'échelle mésoscopique (Figure 1-7(b)), une tige se compose de plusieurs faisceaux de fibres dont le diamètre et la longueur sont variables suivant les espèces végétales [6]. La présence de polysaccharide amorphe au niveau de la lamelle moyenne [6,38] assure la cohésion des fibres élémentaires au sein du faisceau.

C'est à l'échelle microscopique (Figure 1-7(c)) que l'on retrouve les fibres élémentaires. Dans la littérature, les fibres élémentaires sont majoritairement définies comme étant constituées de deux parois (primaire et secondaire) et d'un lumen [22,38–40]. La paroi primaire est souple et mince permettant la croissance de la fibre. Elle se compose de microfibrilles de cellulose (Figure 1-7(d)), peu orientées dans une matrice d'hémicellulose, de pectine et/ou de lignine [6]. La paroi secondaire se compose de trois couches (S1, S2 et S3). La couche S2 est plus épaisse et conditionne les propriétés mécaniques. Elle est formée par des microfibrilles de cellulose rigides fortement orientées sous forme d'hélice [18,41,42] parallèlement les unes aux autres autour de l'axe longitudinal de la fibre et noyées dans une matrice de polymères amorphes (hémicelluloses, lignine) [27].

Bourmaud *et al.* [25] ont récemment souligné que les caractéristiques structurales des parois cellulaires décrites dans la Figure 1-7 ne peuvent pas être généralisées à toutes les espèces végétales. Selon eux, le nombre de couches, l'orientation des microfibrilles, la direction de l'hélice (S ou Z), la taille du lumen (de quelques pourcents de la section pour des fibres de lin ou de chanvre à près de 80% pour le kapok) et la morphologie (taille et formes) sont des caractéristiques spécifiques intrinsèques liées aux origines botaniques et aux variétés des plantes [25]. Par des représentations schématiques des parois cellulaires (Figure 1-9), les auteurs ont mis en avant ces différences de microstructures entre les végétaux. L'angle micro-fibrillaire (MFA), qui correspond à l'angle que font les microfibrilles de cellulose, orientées en hélice dans les parois cellulaires, autour de l'axe longitudinal de la fibre, varie selon l'origine botanique et le nombre de couches des parois [43]. Par exemple, les fibres libériennes de lin, de chanvre ou de jute ont un MFA compris entre 6 et 11° [5,6,44], tandis que le sisal et le palmier ont un MFA respectivement de 20° et 45° [5,6]. Des auteurs ont notamment étudié l'influence de l'angle micro-fibrillaire sur les propriétés mécaniques en traction des

fibres végétales et ont montré qu'une diminution de celui-ci augmenterait la rigidité et la résistance à la rupture [6,25].



**Figure 1-9: Représentation schématique (sur Solidworks®) des parois cellulaires de différentes espèces végétales [25].**

Outre la provenance (issue des feuilles, des fruits, des graines ou de la tige (Figure 1-6)) et la fonction de la fibre dans la plante, d'autres paramètres comme les conditions climatiques lors de la croissance ou le niveau de maturité ont un effet sur la morphologie finale de la fibre élémentaire ou du faisceau [6,45–47]. Cette dépendance au caractère naturel des fibres engendre une forte variabilité en termes de taille, de forme et d'épaisseur quelle que soit l'échelle considérée (Tableau 1-2). Si certaines fibres présentent une géométrie de section relativement circulaire comme les fibres de kapok ou de bambou, d'autres comme les fibres de coton, de lin ou de chanvre montrent des formes plus ou moins allongées (Figure 1-9).

**Tableau 1-2 : Variabilité dimensionnelle de quelques fibres d'origines végétales [6]**

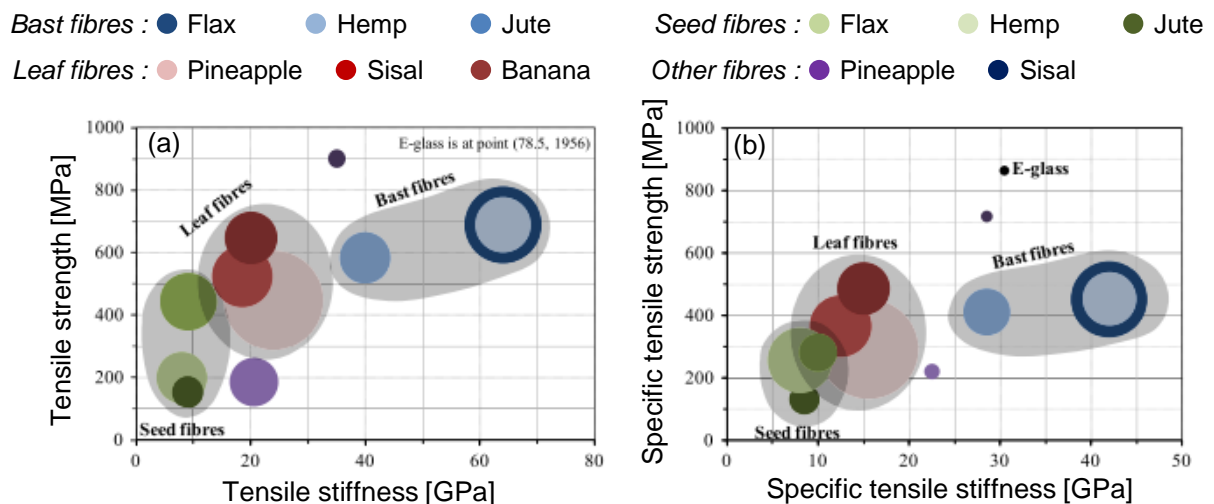
Fibres végétales	Fibre élémentaire		Faisceau de fibres	
	Longueur (mm)	Diamètre ( $\mu\text{m}$ )	Longueur (mm)	Diamètre ( $\mu\text{m}$ )
Lin	4 – 140	2 – 76	100 – 1500	40 – 620
Chanvre	8 – 55	3 – 51	650 – 5000	25 – 500
Sisal	0,5 – 8	4 – 47	40 – 1250	9 – 460
Abaca	2 - 12	6 - 46	60 - 2500	10 - 1000

## II.4. Propriétés mécaniques en traction des fibres végétales

### II.4.1. Propriétés mécaniques en traction

Dans une étude de 2014, Shah a montré par l'intermédiaire de tableaux de sélection de type Ashby que les propriétés mécaniques des fibres végétales pouvaient être reliées à leur origine botanique [16]. Comme le montre la Figure 1-10, outre les groupements correspondant aux classifications des fibres végétales comme les fibres extraites des feuilles, les fibres extraites des graines et les fibres libériennes, des différences en termes de propriétés mécaniques peuvent également être observées.

Parmi toutes ces fibres, les fibres libériennes, et notamment les fibres de lin et de chanvre, montrent une résistance à la traction et un module de Young nettement supérieurs aux autres fibres comme le sisal, le coton ou encore le bambou. Si on s'intéresse maintenant aux propriétés spécifiques, c'est-à-dire rapportées à la densité associée, le niveau de performance des fibres libériennes est proche voire supérieur à celui des fibres de verre. Le second point intéressant concerne les fibres provenant de graines comme le coton. Si les propriétés spécifiques sont considérées, ces fibres sont capables de revendiquer un niveau de performance comparable aux fibres issues des feuilles comme le sisal (Figure 1-10) [16].



**Figure 1-10 : Comparaison entre la résistance à la traction et la rigidité (a) absolues et (b) spécifiques pour différentes familles de fibres végétales en comparaison aux fibres de verre [16].**

Le Tableau 1-3, fait état de l'état de l'art des valeurs de résistance à la traction et de module de Young rapportées dans la littérature en comparaison aux fibres de verre E. Avec une densité moyenne beaucoup plus faible que celle des fibres de verre, respectivement de 1.45 contre 2.54 [5], les fibres végétales, grâce à leurs propriétés mécaniques spécifiques, présentent un avantage pour leur utilisation en tant que renfort dans les matériaux composites bio-sourcés.

**Tableau 1-3 : Propriétés mécaniques (module d'Young et résistance à la traction) de quelques fibres végétales en comparaison avec la fibre de verre E.**

Fibres végétales	Type de fibre	Module de Young (GPa)	Module de Young spécifique (GPa)	Résistance à la traction (MPa)	Résistance à la traction spécifique (MPa)	Références
Lin	Faisceau	27 – 85	18 - 58	345 – 1339	238 - 923	[6,12,22,48]
	Fibre élémentaire	50 – 60	34 - 41	621 – 1339	428 - 923	[5,32,38]
Chanvre	Faisceau	17 – 37.5	11 - 25	315 – 594	210 - 396	[6,49]
	Fibre élémentaire	17 – 64	11 - 42	389 – 1735	259 - 1156	[49–52]
Ramie	Faisceau	61 – 65	40 - 43	400 – 950	265 - 629	[5,6,12]
Sisal	Faisceau	5,3 – 22	3,6 - 15	450 – 820	310 - 565	[6,12,49,53,54]
Coir	Faisceau	3,3 – 6	2,8 - 5	153 – 250	133 - 217	[6,12,55]
Verre - E	Fibre élémentaire	73	28 - 30	2000 – 2400	787 - 944	[5,56]

\*les méthodes de caractérisation des propriétés des fibres végétales seront détaillées dans le CHAPITRE 1PARTIE 3.

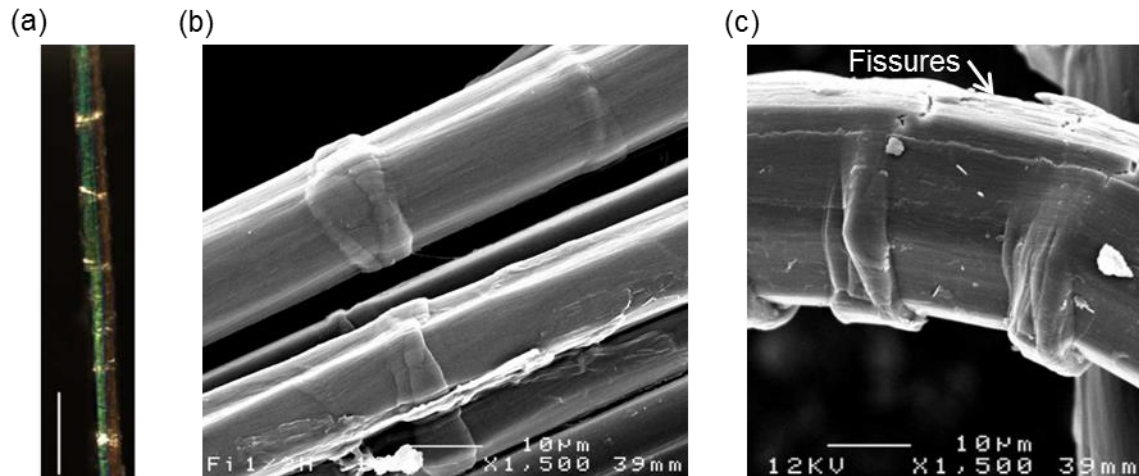
#### II.4.2. Origine de la variabilité

Il apparait, à travers ces valeurs relevées dans la littérature (Tableau 1-3), une grande variabilité des propriétés mécaniques en traction des fibres végétales.

L'origine de cette variabilité est en grande partie liée au caractère naturel des fibres. En effet, l'espèce végétale considérée [57], les conditions de croissance et de culture (sol, traitements, climat), les conditions climatiques, le degré de maturité et la localisation de la fibre dans la plante [12,21,22,42,57,58] influencent la microstructure et la composition biochimique des fibres d'origine végétale, expliquant la variabilité des propriétés mécaniques au sein d'une même espèce. D'autres paramètres peuvent aussi entrer en jeu :

- **La présence de défauts à la surface** inhérent au caractère naturel des fibres végétales peut également jouer un rôle dans la variabilité et la dispersion des résultats mécaniques en traction, notamment pour la résistance à la rupture. Selon Baley [59] et Bos et Donald [60], lors d'un essai de traction, la rupture se produit très souvent là où se trouve un défaut. Il existe plusieurs types de défauts regroupés sous le terme « kink-bands » en anglais. Les dislocations, observées sous microscope optique polarisé par Thygesen *et al.* [61] et caractérisés par la présence de zones blanches (Figure 1-11(a)), correspondent à un changement d'orientation

des microfibrilles de cellulose dans la paroi secondaire créant une discontinuité dans leur alignement [25,61,62]. Ces dislocations font flamber la paroi primaire qui se caractérise par la présence d'un nœud qui modifie la structure intégrale de la fibre (Figure 1-11(b)). Des défauts de compression peuvent également engendrer des fissures en surface (Figure 1-11(c)) [60]. Ces défauts peuvent se produire lors de la phase de croissance de la plante (lors de la synthèse de la cellulose et de la formation des parois cellulaires [25]) ou se former lors de l'étape de rouissage ou être liés aux opérations de transformation (comme les genoux) [5,6,25].



**Figure 1-11 : Exemple de défauts : (a) dislocations, (b) noeuds et (c) fissures [25,61,62].**

- **Le rouissage** est l'opération qui consiste à dégrader, par l'action de micro-organismes (bactéries et/ou champignons), les ciments pectiques présents dans la lamelle mitoyenne, permettant ainsi la décohésion et la séparation des fibres élémentaires au sein du faisceau. Le degré de rouissage et son hétérogénéité sont des paramètres difficiles à contrôler qui peuvent avoir des effets sur la qualité des fibres et donc sur leurs propriétés mécaniques finales. Des auteurs ont notamment montré que la période de récolte (qui modifie le degré de maturité des tiges) et la durée du rouissage des fibres libériennes [6,63–65] ont une influence sur la composition chimique des fibres et donc sur leurs propriétés mécaniques finales. Selon Mazian *et al.* [63] un rouissage au champ de 9 semaines augmente la teneur en cellulose des tiges de chanvre de 63 à 77% et diminue la teneur en pectine de 7,8 à 4,9% pour un prélèvement en milieu de tige et des tiges récoltées en début de floraison par rapport à ces mêmes tiges non rouies. Selon eux, l'augmentation de la teneur en cellulose est directement liée à la dégradation des autres biopolymères amorphes (perte de matière) présents entre les microfibrilles de cellulose. D'un point de vue mécanique, cela se traduit par une augmentation de la résistance à la traction, passant de 174 MPa pour les faisceaux de fibres de chanvre non rouis à 324 MPa après 9 semaines de rouissage. Meijer *et al.* [66] ont également montré



qu'une forte lignification de la tige rendait l'opération de rouissage plus difficile et que la variation du taux de lignine au sein de la tige (bas, milieu et sommet) rendait le rouissage inhomogène.

- **Les procédés d'extraction** peuvent avoir un impact plus ou moins important sur l'intégrité de la structure comme la formation de défauts à la surface des fibres [6,67–69]. Hernandez-Estrada *et al.* [68] et Hänninen *et al.* [69] se sont intéressés à évaluer l'impact des procédés d'extraction sur la structure des fibres libériennes. Selon eux, le mode d'extraction et de transformation a une influence sur la quantité de défauts créés et sur les performances mécaniques finales. Hänninen *et al.* [69] ont montré que le nombre de défauts par longueur de fibre élémentaire de lin augmente considérablement avec les traitements mécaniques, passant de  $17,3 \pm 2.0 \text{ mm}^{-1}$  pour des fibres sans traitement à  $27,6 \pm 5.5 \text{ mm}^{-1}$  après rouissage, décortication et calandrage. Beaugrand *et al.* [43], dans une étude sur les mécanismes d'endommagement des faisceaux de fibre de chanvre, ont montré que les procédés d'extraction provoquent la délamination transversale du faisceau, caractérisée par la présence de bande plissée (repérée « 4 » dans la Figure 1-12). Selon eux, ces défauts transversaux représentent des sites préférentiels d'initiation de fissure impliquant un cisaillement dans le plan avant propagation de la fissure dans le sens longitudinal jusqu'à la rupture totale du faisceau de fibres comme le montre la Figure 1-12.

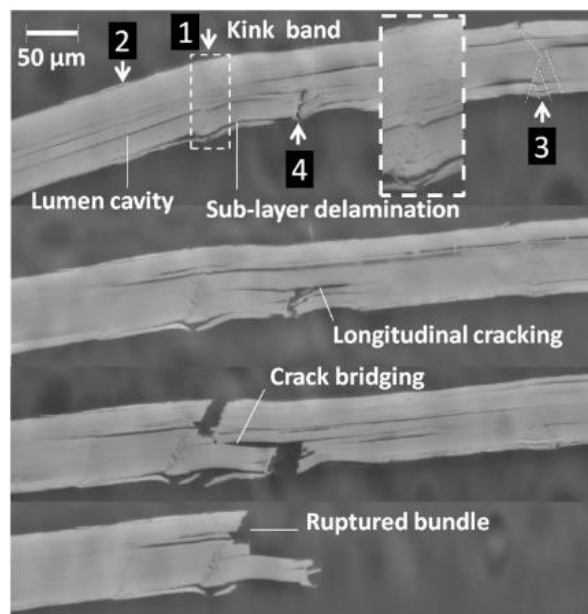


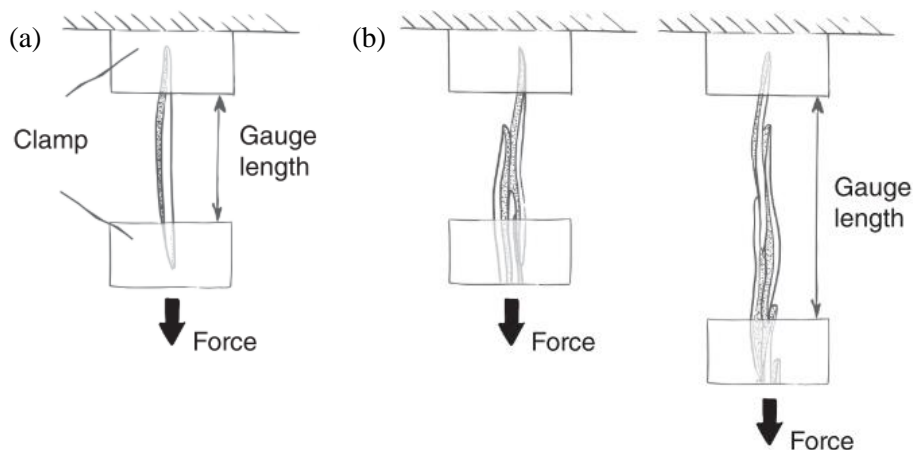
Figure 1-12: Propagation des défauts le long d'un faisceau de chanvre [43].

#### II.4.3. Origine de la dispersion

Outre la variabilité inhérente liée au caractère naturel des plantes, la dispersion des résultats mécaniques est également liée aux méthodes employées pour leur détermination ainsi qu'aux

conditions expérimentales dans lesquelles elles sont réalisées. Plusieurs paramètres peuvent être à l'origine de cette dispersion des propriétés mécaniques en traction des fibres végétales [70]:

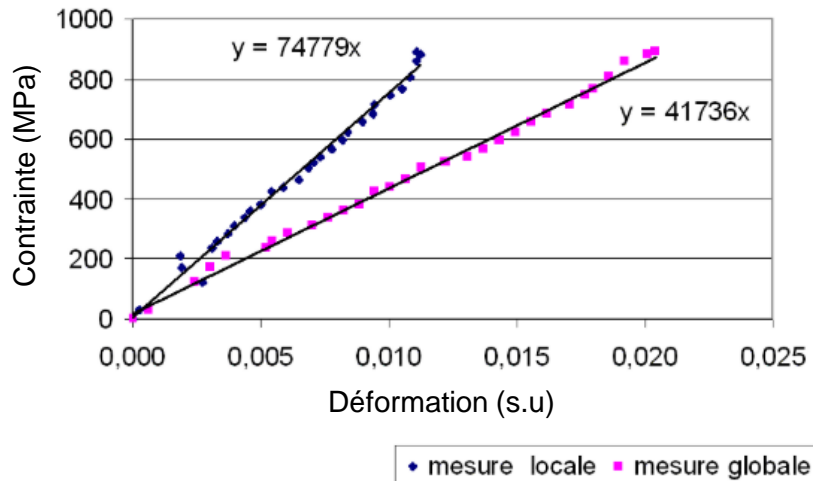
- **La taille de la fibre considérée**, comme le montrent la Figure 1-7 et la Figure 1-9. Il est important de distinguer les fibres élémentaires (échelle microscopique) des faisceaux de fibres (échelle mésoscopique) [71]. On remarque également des morphologies contrastées en terme de taille et de forme [6,72] qui confèrent aux fibres unitaires et aux faisceaux des propriétés différentes [73] (Tableau 1-3). Selon Müssig, le manque d'informations concernant la taille de l'élément testé accentue la dispersion des valeurs dans la littérature [6].
- **La longueur de jauge** utilisée pour les essais de traction peut avoir plus ou moins d'influence suivant la taille de l'échantillon considéré. Comme le montre la Figure 1-13(a), dans le cas d'une fibre élémentaire, l'essai de traction est effectué pour une longueur de jauge plus faible que la longueur de la fibre elle-même. Par conséquent la fibre sera maintenue à chacune de ses extrémités. Dans le cas des faisceaux de fibres (Figure 1-13(b)), si la longueur de jauge est faible, seules quelques fibres élémentaires seront testées. A l'inverse, si la longueur de jauge est trop importante, il est possible que certaines fibres, plus courtes que les autres, ne soient pas sollicitées, ce qui influencerait sur les propriétés mesurées [71,74].



**Figure 1-13: Schémas des différentes longueurs de jauge pour (a) des fibres élémentaires et (b) des faisceaux de fibres [71].**

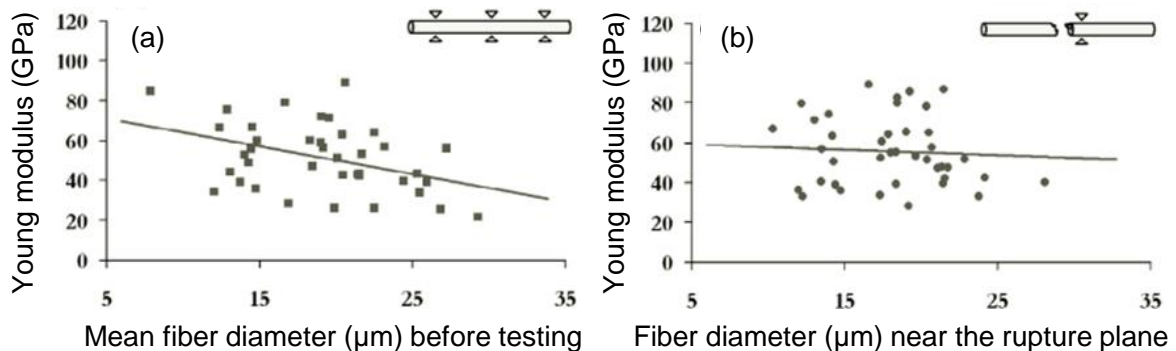
De nombreux auteurs ont étudié l'influence de la longueur de jauge sur les propriétés mécaniques des faisceaux de fibres végétales. Ils ont mis en évidence une baisse de la résistance à la traction et du module de Young avec l'augmentation de la longueur utile de l'échantillon, caractéristique d'une mauvaise interface entre les fibres élémentaires au sein du faisceau [75–78]. Selon Charlet et Béakou [77], une longueur de jauge supérieure à la longueur de la cellule individuelle conduit à mesurer les forces de cisaillement aux interfaces entre les fibres élémentaires plutôt que les propriétés en traction de l'échantillon.

- **La vitesse de déformation** est également un élément à prendre en compte. En raison des composés cristallins et amorphes qui les composent, les fibres d'origine végétale présentent un comportement viscoélastique [70]. A faible vitesse de sollicitation, la mobilité des chaînes peut se faire plus facilement ce qui entraîne une baisse de la rigidité. Mukherjee et Satyanarayana [79] ont d'ailleurs montré, pour des faisceaux de fibres de sisal, une augmentation de la rigidité de 8,41 à 34,16 GPa pour une vitesse de déplacement variant de 1 à 50 mm/min.
- **La sensibilité aux conditions hydro/hygrothermiques** (eau sous phase vapeur ou liquide) à une influence sur la stabilité dimensionnelle et mécanique des fibres végétales. Cela s'explique notamment par une forte affinité des biopolymères amorphes présents dans la paroi cellulaire de la fibre avec l'eau [65,80–82]. Pejic *et al.* [82] ont étudié l'influence des biopolymères non cellulosiques sur les valeurs de rétention d'eau des fibres élémentaires de chanvre. Ils ont montré qu'une élimination des hémicelluloses hydrophiles de 10,72 à 3,29% diminuait les valeurs de rétention d'eau tandis qu'une élimination de la lignine hydrophobe de 6,06 à 3,09% l'augmentait et que ce phénomène était encore plus accentué pour les faisceaux de fibres. D'autres auteurs ont mis en évidence un effet de l'humidité relative sur le changement du comportement mécanique [39,40]. Bruce et Davies [32] ont observé qu'en moyenne le taux de diminution du module de traction était de 0,39 GPa par % HR pour les fibres de lin et de 0,24 GPa par % RH pour les fibres d'ortie dans l'intervalle 30-70% d'humidité relative.
- **La compliance du montage**, qui peut affecter les valeurs de déformation mesurées et donc fausser les valeurs de module de Young [54,83]. Poilâne *et al.* [84], dans une étude sur les fibres de lin, ont par exemple montré que la mesure globale des déformations (c.à.d. issue de la courbe force/déplacement obtenue via un capteur de déplacement monté sur le dispositif de traction) surestimait les déformations, en moyenne de 42%, comparée à un suivi du champ de déplacement local calculé par corrélation d'images numériques, entraînant ainsi une sous-estimation du module de Young de 70% en moyenne. La Figure 1-14 représente la courbe contrainte/déformation obtenue pour une fibre élémentaire de lin.



**Figure 1-14 :** Exemple d'une courbe contrainte/déformation d'une fibre élémentaire de lin obtenue à partir d'une mesure de déformation locale et globale [84].

- Le calcul de l'aire de section**, qui repose le plus souvent sur des méthodes de mesure des dimensions transversales peu adaptées à l'irrégularité dimensionnelle des fibres végétales et sur des hypothèses de forme de section qui prennent rarement en compte la réalité morphologique [70,85], peut introduire un biais dans l'estimation des propriétés mécaniques en traction (cf. CHAPITRE 1 PARTIE 2). Charlet *et al.* [86], dans une étude sur les fibres élémentaires de lin, ont étudié l'influence du choix du diamètre utilisé pour le calcul de l'aire de section sur les valeurs de module de Young. Les auteurs ont montré que lorsque le diamètre moyen augmentait le module de Young diminuait (Figure 1-15(a)). A l'inverse, considérer le diamètre dans la zone de la rupture n'entraîne pas de diminution de la rigidité (Figure 1-15(b)). Pour d'autres auteurs, une des raisons de la sous-estimation des valeurs de module serait la présence du lumen très rarement prise en compte dans le calcul de l'aire de la section [59] (cf. CHAPITRE 1 PARTIE 2 I.1).



**Figure 1-15 :** Evolution du module de Young en fonction du diamètre de la fibre [86].

Comme le montre la Figure 1-16, la dispersion des propriétés mécaniques en traction observée dans la littérature constitue selon Haag et Müssig [70] un obstacle majeur au développement des fibres végétales dans les composites.

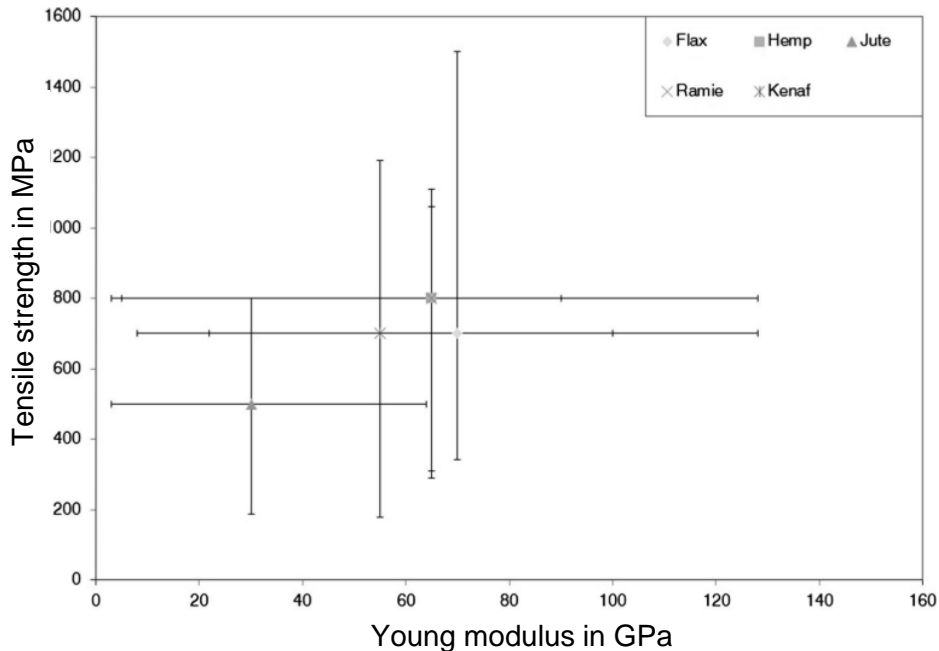


Figure 1-16 : Représentation de la dispersion des propriétés mécaniques en traction des fibres d'origine végétale [70].

### III. Conclusion

Cette première partie donne quelques généralités sur les matériaux composites et introduit la notion de composite bio-sourcé. La substitution des renforts synthétiques par des renforts issus de la biomasse, pour répondre à des problématiques sociales et environnementales, est en constante augmentation. Dans ce contexte, des fibres végétales de natures variées sont majoritairement utilisées comme renfort, compte tenu de leurs propriétés mécaniques spécifiques intéressantes en comparaison aux fibres de verre habituellement employées. Cependant, une forte dispersion des propriétés mécaniques en traction des fibres végétales est observée dans la littérature. Outre la variabilité inhérente liée au caractère naturel des fibres végétales, la dispersion des résultats mécaniques est également liée aux méthodes employées pour leur détermination ainsi qu'aux conditions expérimentales dans lesquelles elles sont réalisées. La suite de ce chapitre fait état de l'art des méthodes de caractérisation, des dimensions transversales et du comportement mécanique, communément employées dans la littérature.

## PARTIE 2 ANALYSE DE LA MORPHOLOGIE DES FIBRES VÉGÉTALES

L'analyse des dimensions transversales des fibres végétales nécessite une attention toute particulière car elle conditionne la détermination des propriétés mécaniques finales telles que le module de Young et la résistance à la traction. Dans cette deuxième partie, nous verrons dans un premier temps l'influence de la méthode appliquée pour estimer l'aire de section à partir de différentes hypothèses de forme de section sur la détermination des propriétés mécaniques en traction, puis nous analyserons la stabilité dimensionnelle des fibres végétales aux conditions hydro/hygrothermiques.

### I. Caractérisation des dimensions transversales

#### *1.1. Importance de la détermination des dimensions transversales*

Les méthodes appliquées pour déterminer les dimensions transversales (diamètre et aire de section) des fibres végétales ont un impact direct sur l'estimation de leurs propriétés mécaniques. Selon Haag et Müssig [70], la dispersion des propriétés en traction trouvée dans la littérature pour les faisceaux de fibres libériennes est en grande partie induite par la méthode utilisée pour estimer l'aire de la section. Dans leur étude de 2016, ils ont montré que le choix de la méthode pouvait induire jusqu'à 300% de variation dans les données de résistance à la traction. La résistance à la traction (Eq.1) est calculée à partir des données brutes force/déplacement. Cette grandeur physique, intrinsèquement liée à la géométrie des fibres végétales, dépend directement du calcul de l'aire de section transversale  $S$ .

$$\sigma = \frac{F}{S} \quad (\text{Eq.1})$$

avec  $\sigma$  la résistance à la traction (en MPa),  $F$  la force appliquée (en N) et  $S$  l'aire de la section transverse de la fibre avant déformation (en mm<sup>2</sup>).

A l'heure actuelle, les méthodes usuelles appliquées pour estimer l'aire de la section transversale des fibres végétales sont basées sur des hypothèses relatives à la forme de la section (circulaire, elliptique, hexagonale ou autres), le plus souvent mal adaptées à la réalité morphologique. Ces méthodes, qui tiennent compte des dimensions apparentes de la fibre, permettent de remonter à une aire de section apparente comme le montre la Figure 1-17. L'aire de section apparente est généralement surestimée par rapport à l'aire de section résistive. En effet, les caractéristiques morphologiques, comme la présence d'un lumen, sont très rarement prises en compte. C'est pourquoi il existe un fort besoin de norme et de standardisation des tests effectués sur les fibres végétales qu'ils soient à l'échelle de la fibre élémentaire ou du faisceau pour se rapprocher au mieux de l'aire de section résistive [70].

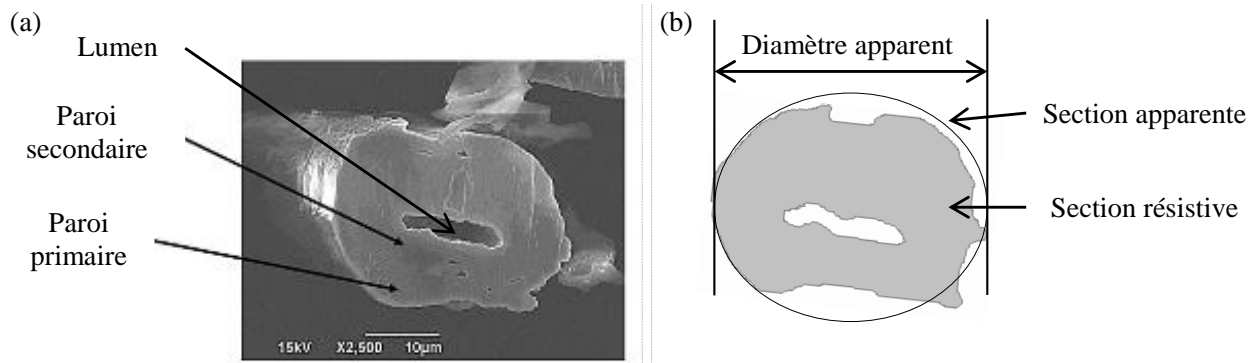


Figure 1-17 : (a) Image au MEB en coupe transversale d'une fibre de lin [87] et (b) représentation schématique de la section apparente et résistive.

### 1.2. Les méthodes de caractérisation appliquées aux fibres végétales

De nombreuses études ont été menées concernant l'analyse dimensionnelle des fibres végétales. Dans la majorité des cas, la fibre est considérée comme un objet de forme circulaire et régulier. D'autres auteurs tiennent compte de leur irrégularité dimensionnelle. Pour cela, ils considèrent des hypothèses de forme de section plus ou moins complexes, permettant de se rapprocher au mieux de la réalité morphologique des fibres végétales. L'objectif de cette partie est de faire état de l'art des méthodes communément utilisées dans la littérature pour mesurer les dimensions transversales des fibres.

#### 1.2.1. Hypothèse de section circulaire

L'hypothèse considérant la section comme de forme circulaire et homogène est majoritairement appliquée dans la littérature pour la caractérisation des fibres végétales. Elle s'appuie sur la norme NF T25-501-3 [85] mise en place en 2015 pour la détermination des propriétés mécaniques en traction (résistance à la traction, déformation à rupture, module d'élasticité) des fibres élémentaires et des faisceaux de fibres de lin. La préparation des échantillons est réalisée selon le montage type présenté dans la Figure 1-18, comme stipulée dans la norme.

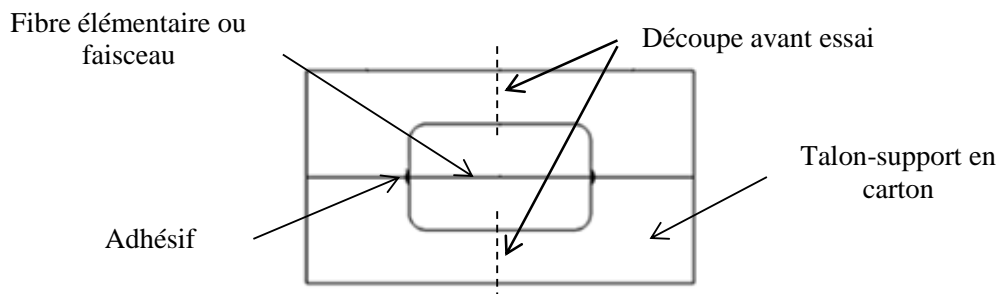


Figure 1-18 : Montage type d'un faisceau ou d'une fibre élémentaire sur un talon-support en carton (norme NF T25-501) [85].

Selon cette norme, deux méthodes expérimentales peuvent être utilisées pour déterminer l'aire de section transversale des fibres : gravimétrique ou microscopique. La méthode gravimétrique consiste à diviser la masse de l'échantillon par la densité moyenne. Peu rapportée dans la littérature, cette technique a été utilisée par Defoirdt *et al.* [88] pour déterminer l'aire de section des fibres unitaires de coco, de bambou et de jute. C'est essentiellement la méthode par microscopie optique (MO) qui est employée dans la littérature [22,38,58,89–91]. Elle consiste à mesurer le diamètre apparent de la fibre en trois points répartis sur la longueur puis à en déduire un diamètre apparent moyen. Généralement assimilée à un cylindre, l'aire de section transversale apparente est estimée à partir de l'équation 2.

$$S = \frac{\pi * d_i^2}{4} \quad (\text{Eq.2})$$

avec S l'aire de la section transversale de la fibre (en mm<sup>2</sup>) et d<sub>i</sub> le diamètre moyen apparent (en mm).

Toutefois, cette technique expérimentale semble peu adaptée à la géométrie particulièrement complexe des fibres végétales. En effet, elle ne tient compte ni de la non-circularité de la section, ni de son irrégularité sur la longueur. D'autres techniques expérimentales, adaptées de cette méthode, ont été recensées dans la littérature :

- **Par analyse d'image et/ou observation optique** : microscope électronique à balayage (MEB) ou microscope optique (MO) [40,48,52,70,86,92–96]

Si la méthode usuelle considère 3 diamètres apparents répartis sur la longueur, d'autres auteurs l'ont adapté en estimant l'aire de la section transversale à partir d'un nombre plus important de diamètres apparents (Tableau 1-4). On peut citer comme exemple Placet *et al.* [52] qui, dans une étude sur les fibres élémentaires de chanvre, ont mesuré 10 diamètres apparents répartis le long du profil par microscopie optique à lumière polarisée (Figure 1-19).



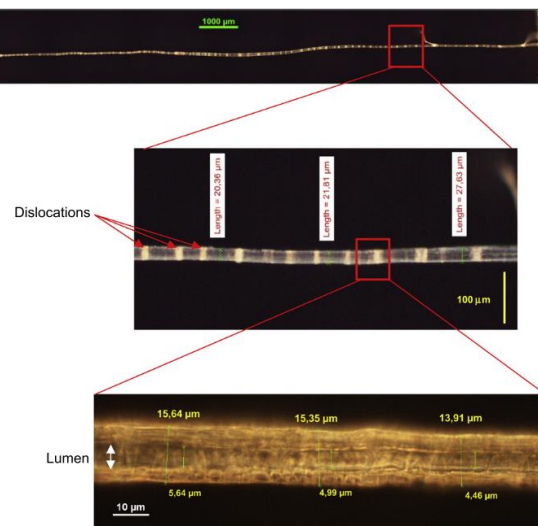


Figure 1-19 : Image au microscope optique polarisée d'une fibre de chanvre [52].

Ilczyszyn *et al.* [97], dans une étude sur les fibres élémentaires de chanvre, sont allés plus loin en proposant une méthode de mesure des dimensions transversales pour différentes orientations angulaires : 0°, 36°, 72°, 108° et 144°. Cette méthode consiste à photographier la fibre dans sa longueur pour chacune de ces orientations à l'aide d'un système d'imagerie optique puis d'en redéfinir le profil grâce à une reconstruction numérique. Enfin, un diamètre apparent moyen, déterminé à partir des valeurs collectées est utilisé pour estimer l'aire de section à partir de l'équation 2.

- **Par numérisation à haute résolution** [70,98]

Dans cette technique, les fibres végétales sont scannées à plat en mode transmission afin de numériser, pour différentes résolutions, une image du profil transverse. Le logiciel de traitement ImageJ® 1,48v est utilisé pour mesurer les dimensions apparentes à partir des coordonnées décrivant le profil, du nombre de pixels qui le compose et connaissant la taille d'un pixel en mètre. Comme pour les autres méthodes expérimentales, l'aire de section est estimée à partir de l'équation 2 sur la base d'une hypothèse de forme circulaire en considérant un diamètre apparent moyen.

- **Par balayage laser** [70,99,100]

Haag et Müssig [70] ont employé cette méthode d'analyse des dimensions transversales pour déterminer la résistance à la traction des faisceaux de fibres de lin. Cette méthode consiste à mettre l'échantillon à tester en rotation et en translation devant un faisceau laser et à observer l'évolution du diamètre apparent pour une rotation de 360°. Une translation du système permet de répéter l'opération et ainsi de mesurer plusieurs sections apparentes le long du profil. Un diamètre apparent est déterminé pour chaque rotation et un diamètre apparent moyen est calculé à partir des valeurs collectées pour chacune d'entre elles, afin de remonter à l'aire de la section (Eq.2). Selon eux, cette méthode permet d'appréhender efficacement la géométrie de la fibre, malgré des erreurs

d'acquisition qui peuvent être engendrées par la présence de défauts à la surface ou de désenchevêtrement dans le cas de faisceaux.

- **Par diffraction de la lumière** [94]

Cette dernière méthode, peu rapportée dans la littérature, repose sur le phénomène des interférences lumineuses générées par diffraction sur un objet fin éclairé en lumière cohérente. Le principe consiste à projeter un faisceau laser (He-Ne) sur un objet et à analyser l'image obtenue sur un plan perpendiculaire distant. Celle-ci présente plusieurs bandes d'interférence. La distance entre deux bandes centrales est mesurée puis intégrée dans la formule de Fresnel permettant de remonter à un diamètre apparent de section.

Romão *et al.* [94] dans leur étude sur les fibres élémentaires de chanvre, ont comparé cette méthode à la méthode d'observation par microscopie optique, toutes deux en considérant la section comme étant circulaire. Selon eux, la méthode par diffraction de la lumière est peu adaptée aux fibres végétales car l'image diffractée peut également être faussée par la présence des défauts à la surface ou de désenchevêtrement dans le cas des faisceaux de fibres. En comparant cette méthode à la méthode usuelle définie par la norme, les auteurs ont montré une légère augmentation de la résistance à la traction de 948 à 1110 MPa ainsi qu'une diminution de la dispersion des résultats.

Le Tableau 1-4 résume ces différentes techniques expérimentales recensées dans la littérature.

**Tableau 1-4 : Etat de l'art des publications faisant l'hypothèse d'une forme de section circulaire.**

Méthodes	Taille des échantillons	Nombre de diamètres par échantillon	Références
Microscope optique	Fibre élémentaire	6	[40,70,92,93]
	Fibre élémentaire et faisceaux	3	[22,38,53,89–91]
	Fibre élémentaire	5	[48,86,94]
	Fibre élémentaire	Non communiqué	[32,101]
SEM	Fibre élémentaire	50	[95]
	Faisceaux	Non communiqué	[96]
Scanner	Faisceaux	6	[70,98]
Diffraction de la lumière	Fibre élémentaire	5	[94]
Balayage laser	Faisceaux	50000	[70,99,100]

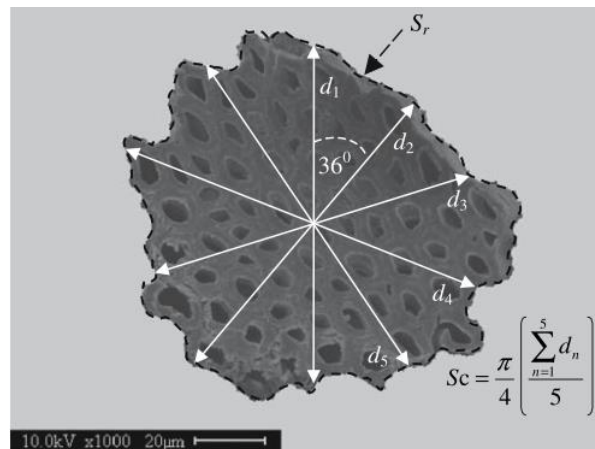
### 1.2.2. Hypothèse de section non-circulaire

La notion de non-circularité et d'irrégularité de la section transversale des fibres végétales le long du profil a été étudiée dans plusieurs travaux, bien que les méthodes expérimentales appliquées soient

encore peu nombreuses. Plusieurs auteurs ont cherché à quantifier le degré d'erreur que pouvait induire une hypothèse de forme de section circulaire sur l'estimation de l'aire de la section transversale et par conséquent sur la détermination des propriétés mécaniques en traction.

- **Par observations microscopiques directes** [73,97,102]

Munawar *et al.* [73] dans une étude sur les faisceaux de fibres de sisal, de ramie et de kenaf, ont comparé deux techniques expérimentales : le microscope électronique à balayage (MEB) et la méthode usuelle au microscope optique. Dans un premier temps, l'aire de section moyenne a été estimée au microscope optique à partir de cinq diamètres apparents mesurés à des intervalles angulaires de  $36^\circ$  et notée «  $S_c$  » sur la Figure 1-20. Puis, l'aire de section réelle, notée «  $S_r$  » sur la Figure 1-20, a été déduite des observations directes au MEB en traçant le contour manuel des fibres à partir des images contrastées à l'aide d'un logiciel de traitement d'image. Les résultats ont montré qu'un coefficient, défini comme étant le rapport entre l'aire section  $S_c$  obtenue et l'aire de section réelle  $S_r$  déduite, pouvait être appliqué. Une sous-estimation de 4 à 8% de l'aire de section par microscopie optique a été observée, avec des coefficients compris respectivement entre 0.92 et 0.96 suivant l'origine botanique du faisceau testé.

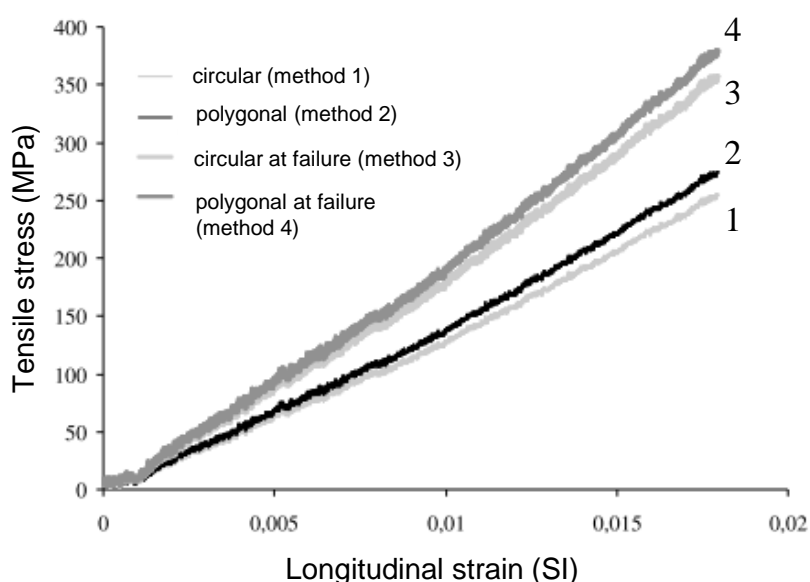


**Figure 1-20 : Section transversale d'un faisceau de fibres de sisal au MEB [73].**

Précédemment, dans les travaux d'Ilczyzyn *et al.* [97], nous avons vu qu'une approche proposant une méthode de mesure des dimensions transversales pour différentes orientations angulaires avait été testée. Dans leur étude, afin d'évaluer l'influence de la méthode appliquée sur la détermination des propriétés mécaniques en traction, cinq hypothèses de forme de section ont été modélisées. La première considère la fibre comme un cylindre. La seconde tient compte de la non-circularité de la section et considère la section de forme polygonale. Deux autres méthodes considèrent la section comme de forme circulaire ou polygonale, mais exploitent cette fois-ci la valeur de l'aire située à l'emplacement de la rupture. Enfin, un modèle géométrique 3D a été généré à partir des valeurs de

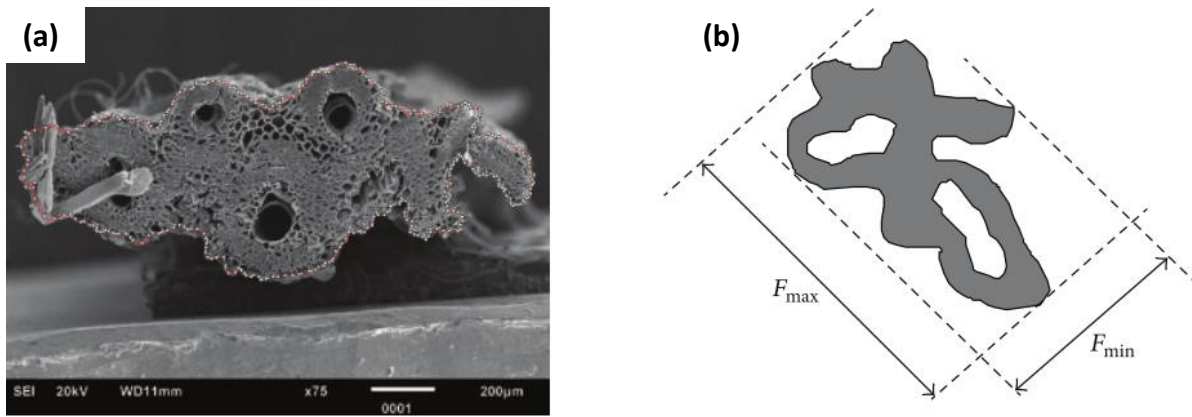
diamètre collectées pour chaque orientation. Cette modélisation permet de tenir compte de la non-circularité de la section et de son irrégularité sur la longueur.

Les résultats ont montré qu'une hypothèse de forme de section circulaire tend à sous-estimer la rigidité d'environ 6,5% par rapport à une hypothèse de forme polygonale. Outre l'hypothèse de forme, les résultats présentés en Figure 1-21 pour les différents modèles, montrent une augmentation de la résistance à la traction en considérant la section à l'emplacement de la rupture. Cependant, on peut se poser des questions quant à la fiabilité des valeurs de diamètre mesurées à l'emplacement de la rupture et ce après les essais de traction en raison du retour élastique dans le cas des faisceaux de fibres. Pour finir, les auteurs ont observé à travers le modèle paramétrique 3D que la rupture ne se produisait pas obligatoirement dans la zone où la section était la plus faible. En effet, comme évoqué par de nombreux auteurs, la rupture des fibres végétales serait plutôt pilotée par la présence de défauts [25,33,41,43].



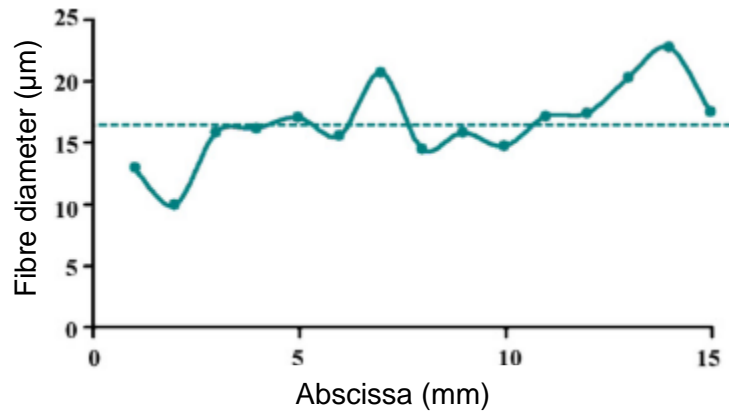
**Figure 1-21 : Evolution de la résistance à la traction en fonction de la méthode appliquée et de l'hypothèse de forme de section [97].**

Les caractéristiques morphologiques des faisceaux de fibres végétales exotiques ont également été étudiées par Navarro *et al.* [102]. Dans un premier temps, des observations directes au MEB ont permis de déterminer une aire de section réelle à partir du périmètre de la fibre repéré en rouge sur la Figure 1-22(a). Puis, une méthode par analyse d'image numérique a été employée afin de déterminer les bornes  $F_{\max}$  et  $F_{\min}$  (Figure 1-22(b)) respectivement liées aux diamètres maximum et minimum orthogonaux. La Figure 1-22(b) n'est qu'une représentation schématique et les lumens n'ont pas été considérés dans cette étude.



**Figure 1-22 : (a) Image MEB d'un faisceau de fibres de *Costus comosus* (famille des Costacées, monocotylédones) et (b) représentation schématique des diamètres de fêret ( $F_{max}$ ) et ( $F_{min}$ ) [102].**

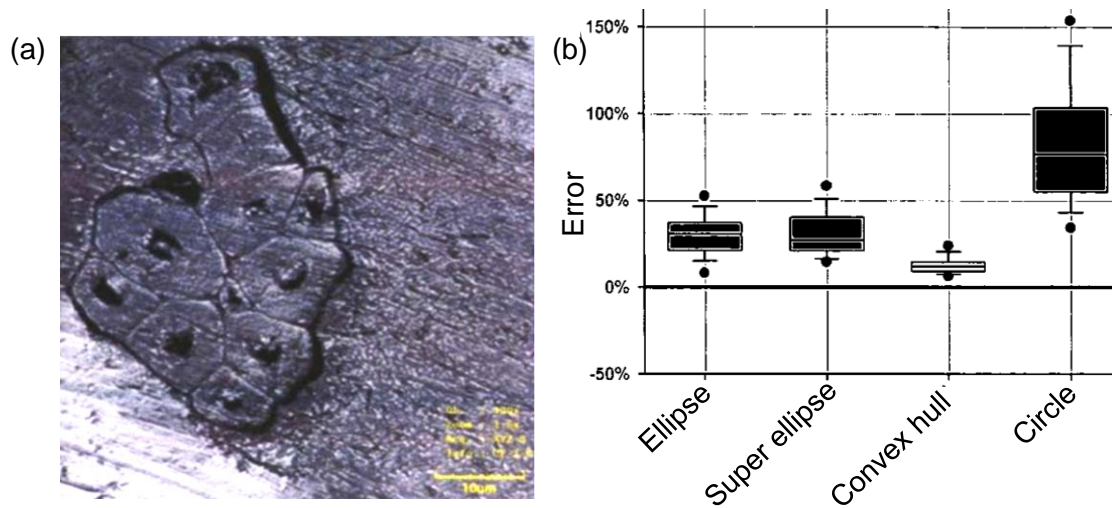
La non-circularité de la section a été mise en évidence en introduisant la notion de facteur de forme, défini comme étant le ratio du diamètre minimum sur le diamètre maximum. Les résultats ont montré une importante non-circularité de la section transversale avec un facteur de forme moyen de  $0.63 \pm 0.14$  pour ce type de fibre végétale (Figure 1-22(a)). L'erreur de mesure entre l'aire de section réelle (quantifiée au MEB) et l'aire de section circulaire estimée à partir du diamètre maximum ou du diamètre minimum, a été calculée. Un test de Student a montré que l'hypothèse d'une forme de section circulaire, calculée à partir d'un diamètre maximum ou minimum, était statistiquement différente de l'aire réelle mesurée au MEB. Outre la forte dispersion observée avec le modèle circulaire, les auteurs ont montré que l'erreur liée à la méthode appliquée pouvait aller jusqu'à 300%. On notera que cette étude est basée sur une observation locale de la section transversale, et qu'elle ne tient pas compte de son irrégularité le long du profil. D'autres auteurs ont utilisé la microscopie optique pour analyser la variation de la section transversale le long de l'axe de la fibre [22,38]. Charlet *et al.* [38], dans une étude sur la caractérisation morphologique multi échelles des fibres élémentaires de lin, ont montré que le diamètre apparent pouvait varier significativement le long du profil comme le montre la Figure 1-23. Selon ces auteurs, l'écart-type relatif par rapport au diamètre moyen est d'environ 20%. Cette valeur qui donne une indication de la variabilité intra-fibre (c'est-à-dire pour une même fibre) a été comparée à la valeur obtenue sur une large population. Selon eux, la variabilité inter-fibres, c'est-à-dire sur un lot de fibres, peut apporter un écart-type relatif par rapport au diamètre moyen plus important, de l'ordre de 25 à 30%.



**Figure 1-23 : Variation du diamètre apparent le long d'une fibre élémentaire de lin mesuré par microscopie optique [38].**

- **Par polissage de la surface** [53,103–105]

Cette notion d'irrégularité de la section le long de l'axe de la fibre a été étudiée par de nombreux auteurs grâce à la méthode d'observation des sections par polissage. Cette méthode consiste à incorporer une fibre végétale verticalement dans un bloc de résine et en réalisant des polissages successifs, à déterminer les caractéristiques morphologiques des sections réelles par des observations sous microscope optique (ou MEB). Virk [103] a utilisé cette méthode pour déterminer l'aire réelle de sections de faisceaux de fibres de jute au MEB (Figure 1-24(a)) en traçant manuellement leur contour. Puis, à partir d'un logiciel de traitement d'image, il a extrait des valeurs de diamètre maximum, minimum et moyen qu'il a utilisé pour modéliser différentes hypothèses de forme : circulaire, elliptique et convexe (modélisées sur Matlab®). Dans cette étude, 106 coupes transversales ont été observées. Comme le montre la Figure 1-24(b), calculer une aire moyenne de section elliptique ( $A_{\text{elliptique}} : 2459 \mu\text{m}^2$ ) ou convexe ( $A_{\text{convexe}} : 2137 \mu\text{m}^2$ ) donne moins de variation et de dispersion que de considérer une section moyenne circulaire ( $A_{\text{circulaire}} : 3404 \mu\text{m}^2$ ), même si ces valeurs restent une surestimation de la valeur réelle moyenne ( $A_{\text{réelle}} : 1896 \mu\text{m}^2$ ) : respectivement de  $27.3 \pm 15.6\%$  pour une section elliptique,  $12 \pm 5.2\%$  pour une section convexe et  $76.6 \pm 47.1\%$  pour une section circulaire. Selon Virk, la différence entre la section réelle et la section elliptique peut donner lieu à un facteur de correction d'aire qui peut être utilisé pour affiner le calcul de la rigidité et de la résistance à la traction. Avec un facteur de correction d'aire de l'ordre de 1,42 pour les faisceaux de fibres de jute, le module de Young augmente de  $8,18 \pm 0,6$  à  $8,24 \pm 0,6$  GPa et la résistance à la traction de  $100 \pm 5,7$  à  $102,86 \pm 5,5$  MPa.



**Figure 1-24 : Faisceaux de fibres de jute : (a) image MEB d'une section (b) box-plots des erreurs de mesure des aires de section en fonction des hypothèses de forme de section [103].**

Thomason *et al.* [53] ont également utilisé la méthode par polissage des sections pour observer la variabilité transversale des faisceaux de fibres de sisal et de lin. Dans leur étude, ils ont comparé l'aire réelle de section mesurée au MEB à l'aire déterminée selon la méthode usuelle communément employée dans la littérature [85]. L'objectif de cette étude était d'évaluer l'influence de la méthode appliquée pour estimer l'aire de section sur la détermination du module élastique et de la résistance à la traction. Dans un premier temps, ils ont montré qu'en plus d'être non-circulaire, la morphologie du sisal est différente de celle du lin, influencée notamment par leur origine botanique contrastée (cf. *CHAPITRE 1 PARTIE 1*).

Pour chaque échantillon, quatre polissages ont été effectués. L'aire réelle de la section a été obtenue en traçant manuellement le contour de la section transversale (Figure 1-25(a)). Concernant la méthode usuelle, l'aire de section a été calculée sur la base d'une hypothèse de forme circulaire, à partir d'un diamètre moyen issu de quatre mesures de diamètre réparties sur la longueur. Les résultats sont en accord avec les travaux de Virk détaillés précédemment et montrent que considérer la section transversale comme cylindrique tend à surestimer l'aire de la section (Figure 1-25(b)) et à sous-estimer les propriétés telles que le module et la résistance à la traction d'un facteur 2 ou plus. Aussi l'erreur de mesure des aires de section semble plus importante pour les faisceaux de fibres de lin que de sisal avec un facteur de correction d'aire respectivement de 2.55 contre 1.99. Le second coefficient concerne la dispersion. Les résultats montrent une dispersion importante pour les faisceaux de fibres de lin et de sisal, avec un coefficient de corrélation respectivement de 0.46 et 0.43.

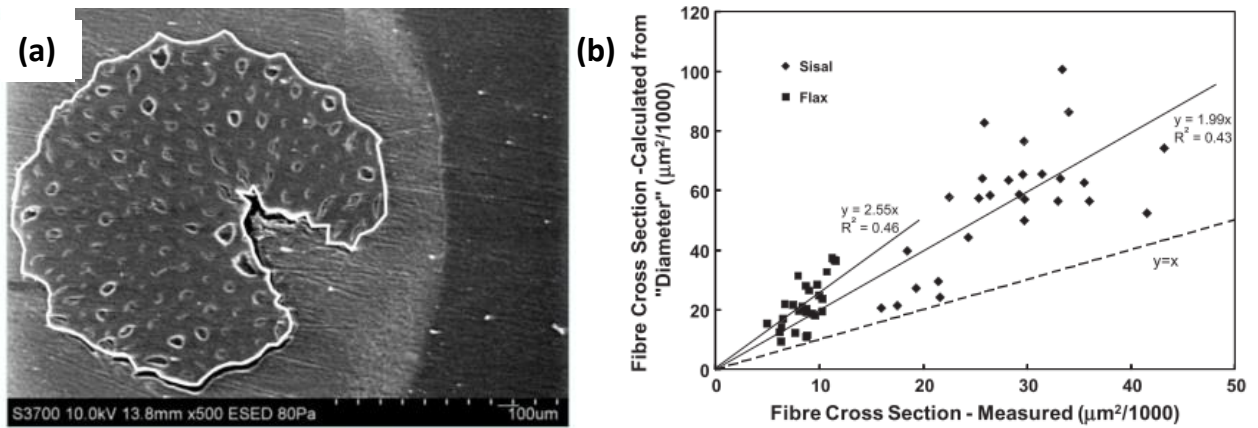


Figure 1-25 : (a) image MEB d'une section d'un faisceau de fibre de sisal et (b) graphique de corrélation entre l'aire réelle et l'aire estimée à partir d'une hypothèse de forme circulaire [53].

La forte variabilité des dimensions transversales des faisceaux de fibres de lin et de sisal a également été mise en avant. La Figure 1-26 montre les résultats de la mesure des aires de section, déterminées au MEB pour douze faisceaux de fibres. Pour chaque échantillon, dix polissages ont été effectués. Si certains faisceaux apparaissent relativement uniformes, d'autres présentent plus de variations sur leur longueur. Selon les auteurs, la variabilité inter-fibres est inhérente au caractère naturel des fibres d'origine végétale. A l'inverse, la variabilité intra-fibres peut être plus ou moins importante suivant l'origine botanique considérée et le mode d'extraction qui peut jouer sur la présence de défauts [6,67–69]. En conclusion, selon les auteurs, considérer une aire de section moyenne, obtenue sur un lot de fibres, entrainerait jusqu'à 60% d'erreur dans le calcul des performances mécaniques.

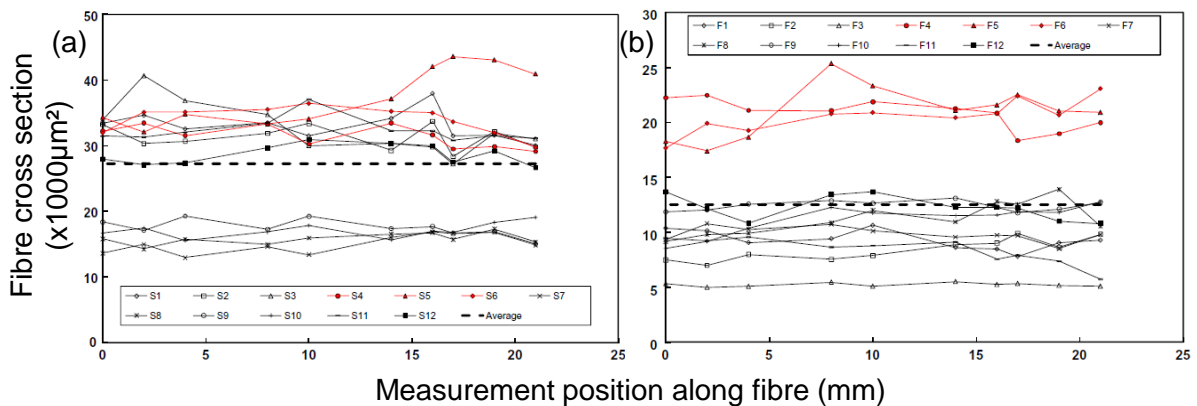


Figure 1-26 : Variation de la section transversale d'un faisceau de (a) sisal et (b) de lin mesurée par méthode de polissage [53].

Enfin, Hu *et al.* [105] ont eux aussi employé cette méthode d'observation des sections polies pour des faisceaux de fibres de lin. Dans leur étude, les auteurs ont proposé de mesurer l'aire réelle de la section transversale dans la zone de rupture après traction. Selon eux, une rupture fragile et un faible allongement (moins de 2%) n'entraînent pas de modification significative de la section le long de la



fibre, même après rupture. Cette méthode a été comparée à la méthode communément employée dans la littérature [85]. Les résultats en termes de résistance à la traction sont respectivement de  $400.6 \pm 40.8$  MPa contre  $205 \pm 87$  MPa pour la méthode usuelle. Cependant, l'hypothèse de non réduction de la section après rupture reste fortement discutable (écrasement du lumen).

- **Par balayage laser**

Pour rappel, la méthode de mesure par balayage laser consiste à mettre l'échantillon en rotation et en translation devant un faisceau laser et à suivre l'évolution du diamètre apparent pour plusieurs sections le long de l'axe de la fibre. Outre l'hypothèse de forme de section circulaire précédemment expliquée, une hypothèse de forme de section elliptique, à partir de la mesure des diamètres apparents maximum et minimum, peut également être appliquée. Comparée aux méthodes habituellement employées et basées sur la mesure d'une petite dizaine de diamètres (Tableau 1-4), cette technique permet d'en mesurer plusieurs milliers et cela le long du profil de la fibre.

Bourmaud *et al.* [99] ont utilisé cette méthode pour analyser les dimensions apparentes transversales des faisceaux de fibres de palmier dattier de diamètre compris entre 100 et 800 $\mu$ m. Pour chaque échantillon, cinq sections ont été observées en rotation et pour chacune d'elles, un diamètre apparent maximum et minimum a été déterminé avant d'être introduit dans l'équation 3 pour estimer l'aire de la section.

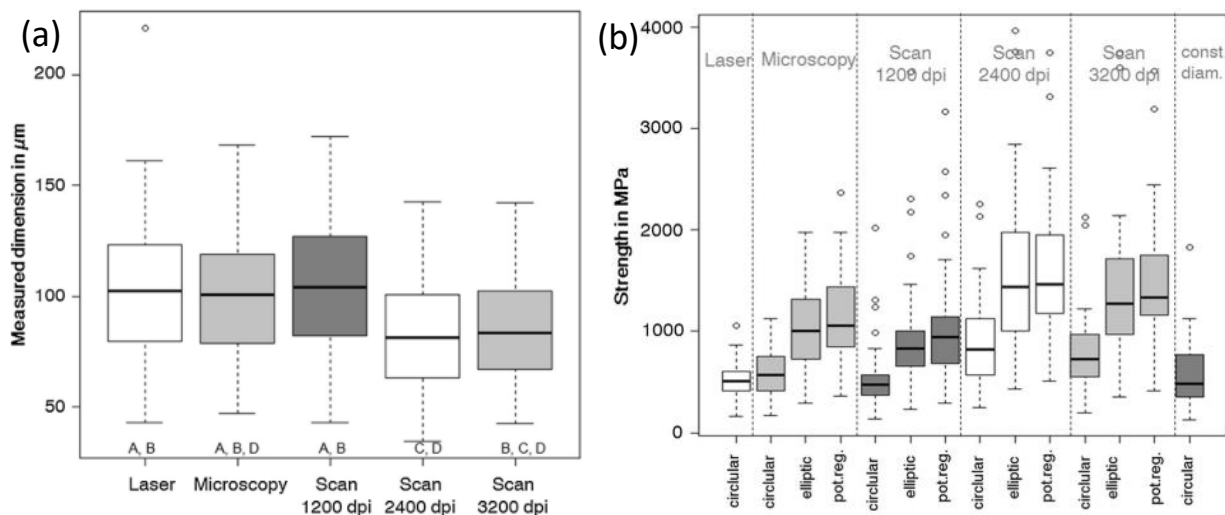
$$S = \frac{\pi}{4} \times (D_{\max} * D_{\min}) \quad (\text{Eq.3})$$

avec S l'aire de la section transversale de la fibre (en mm<sup>2</sup>),  $D_{\max}$  le diamètre apparent maximum (en mm) et  $D_{\min}$  le diamètre apparent minimum (en mm).

L'hypothèse de forme de section elliptique a été comparée à l'hypothèse de forme de section circulaire. Cette dernière a été déterminée à partir de cinq diamètres apparents mesurés au microscope optique le long du faisceau de fibres. Les résultats ont montré que l'approche elliptique permet de mieux appréhender la forme réelle des faisceaux de fibres de palmier dattier. Selon ces auteurs, une hypothèse de forme de section elliptique, déterminée pour cinq sections sur une fibre en rotation, donnerait une aire de section plus grande d'environ  $14 \pm 7\%$  comparée à une aire de section circulaire. Ils expliquent cette sous-estimation de l'aire par l'irrégularité de la section non prise en compte dans les méthodes communément employées.

Haag et Müssig [70] ont également utilisé cette technique pour évaluer l'influence de la méthode de détermination de l'aire de section transversale sur la dispersion des propriétés mécaniques en traction

de faisceaux de fibres de lin. Les résultats ont ensuite été comparés à trois autres techniques : la première utilise un scanner à haute résolution, la seconde une observation par microscope électronique à balayage (MEB) et la troisième tient compte de la méthode usuelle définie par la norme [85]. Pour toutes ces méthodes, les diamètres apparents maximum, minimum et moyen ont été déterminés à six positions le long du profil de la fibre. Différentes hypothèses quant à la forme de la section ont été appliquées pour estimer l'aire. Pour la méthode par scan et par observation microscopique, deux hypothèses de forme de section, circulaire et elliptique, ont été appliquées. Un facteur d'ellipticité, correspondant au rapport du diamètre maximum sur le diamètre minimum, a été utilisé au titre de facteur de correction d'aire. Pour la méthode par balayage laser, seule l'hypothèse d'une section circulaire a été modélisée. Selon les auteurs, la mesure des diamètres apparents lors de la rotation implique de prendre en compte la géométrie particulière de la fibre. Les résultats ont montré que le choix de la méthode appliquée pour mesurer les dimensions transversales a peu d'influence sur la dispersion des valeurs des diamètres (Figure 1-27(a)). A l'inverse, l'hypothèse de forme de section a une influence significative sur les résultats de la résistance à la traction (Figure 1-27(b)). D'après les résultats de cette étude, pour un même lot de 450 faisceaux de fibres de lin, la résistance à la traction peut varier de  $470 \pm 147$  MPa pour la méthode d'observation par microscopie électronique à balayage à près de  $1465 \pm 638$  MPa pour la méthode par scanner, soit un écart total de 300%.



**Figure 1-27 : (a) Effet de la méthode appliquée pour mesurer les dimensions transversales et (b) influence de l'hypothèse de forme de section sur le calcul de la résistance à la traction [70].**

## II. Influence de l'humidité sur la stabilité dimensionnelle des fibres végétales

Les matériaux composites, tout au long de leur durée de vie, sont soumis à diverses sollicitations environnementales comme l'humidité, la température ou le rayonnement UV. Cette exposition aux conditions environnementales est la cause première de leur vieillissement prématuré. Ces mécanismes

de vieillissement demandent une attention toute particulière afin d'évaluer le comportement évolutif de ces matériaux composites au cours de leur usage, et particulièrement ceux des biocomposites renforcés par des fibres végétales.

### II.1. Généralités et modes d'actions

Les fibres végétales peuvent contenir de l'eau sous deux formes : i) l'eau libre qui se trouve dans les micropores des parois cellulaires, remplissant les vides (lumens) et retenue par des mécanismes de pression capillaire et ii) l'eau liée associée en particulier aux groupes hydroxyles -OH des polysaccharides par formation de liaisons hydrogène [106]. La Figure 1-28 donne un schéma du mécanisme de gonflement de la paroi cellulaire du bois. L'eau pénètre dans les parois cellulaires des fibres végétales et est absorbée via la formation de liaisons hydrogène avec les différents biopolymères des parois provoquant un gonflement de la fibre [82]. Au-delà d'une certaine quantité d'eau, qui dépend entre autres de l'espèce végétale considérée, l'eau liée va saturer les parois cellulaires : on atteint alors le point de saturation en eau des parois végétales. Enfin, les cavités cellulaires (lumens et porosités) seront remplies par l'eau libre jusqu'à saturation totale.

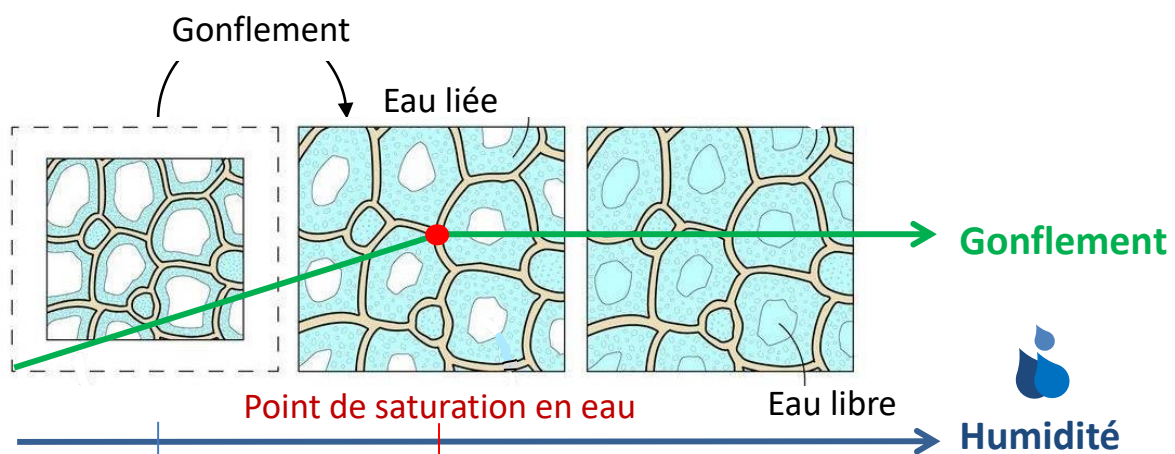
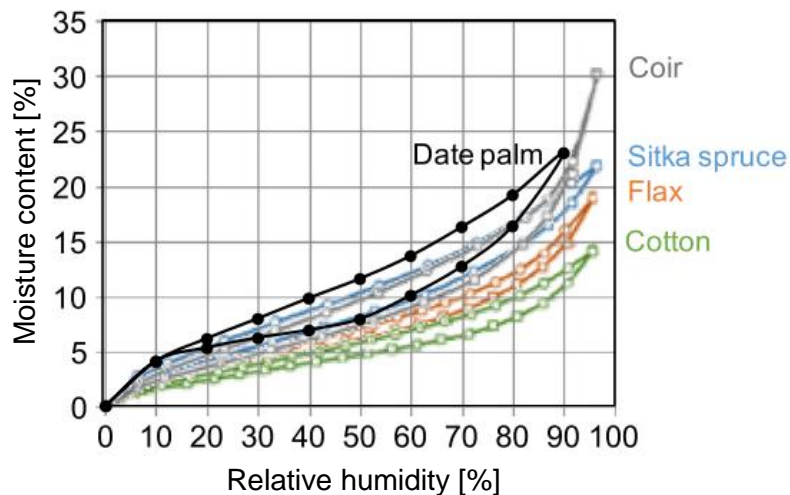


Figure 1-28 : Mécanisme de gonflement de la paroi cellulaire du bois (source: [www.workshopcompanion.com](http://www.workshopcompanion.com) 05/10/2018).

Selon Pejic *et al.* [82], ces interactions au sein des parois cellulaires s'expliquent par la compétition de formation des liaisons hydrogène entre les groupes hydroxyles de la cellulose, ceux des autres polymères constitutifs de la paroi (pectines et hémicelluloses), les composés aromatiques de la lignine et les molécules d'eau. Ce sont principalement les groupements hydroxyles libres, présents dans les zones amorphes qui sont responsables de l'absorption d'humidité [50].

Plusieurs dispositifs de mesure permettent de quantifier la teneur en eau dans les fibres végétales en fonction de l'activité de l'eau. On en retiendra deux :

- La DVS (Dynamic Vapor Sorption) est une technique gravimétrique qui mesure la quantité d'eau absorbée par un échantillon en fonction de l'humidité relative d'équilibre (ou activité de l'eau  $a_w = P/P_0$  avec P la pression de vapeur d'eau à la surface du substrat considéré et  $P_0$  la pression de vapeur saturante de l'eau pure). Plusieurs auteurs l'ont utilisée pour tracer les isothermes de sorption d'eau en partant d'un échantillon sec ou de désorption en partant d'un échantillon saturé en eau [81,99,107]. Un exemple de courbe de DVS de plusieurs espèces végétales est donné dans la Figure 1-29.



**Figure 1-29 : Analyse DVS du comportement en sorption et désorption de cinq espèces végétales [99].**

- La WRV (Water Retention Value) est une méthode de centrifugation permettant de déterminer la valeur de rétention d'eau des fibres végétales après immersion. Elle est régie par la norme ISO 23714 [108].

Plusieurs facteurs peuvent influencer les propriétés de sorption des fibres végétales, comme l'accessibilité des fonctions hydroxyles, le taux de cristallinité, la teneur en polysaccharides amorphes et leur nature hydrophile/hydrophobe. Dans le cas des substrats (ligno-) cellulosiques, on constate la plupart du temps une forte hystérésis entre les isothermes de sorption et de désorption (Figure 1-29). Les origines de ce phénomène d'hystérésis sont encore débattues dans la littérature. Bien qu'il n'y ait pas encore de consensus, plusieurs auteurs attribuent ce phénomène à des processus de plastification et de relaxation des biopolymères amorphes présents dans les parois cellulaires [109,110] en lien avec leur température de transition vitreuse.

Pour finir, Karmaker *et al.* [111] ont montré que le gonflement de la section transversale des faisceaux de jute était anisotrope. Pour cela, ils ont comparé des faisceaux secs aux mêmes faisceaux immergés 2 semaines dans l'eau. Les observations des variations dimensionnelles de plusieurs sections (minimum, moyen et maximum) sous microscope optique ont indiqué que le gonflement maximum se

produisait dans la région du faisceau où les dimensions étaient les plus faibles. Selon eux, dans ces zones minces, les fibres élémentaires sont plus compactées de sorte que, lors de la sorption des molécules d'eau au sein des parois cellulaires, le gonflement de chaque fibre élémentaire va provoquer une plus forte augmentation du diamètre du faisceau (Figure 1-30).

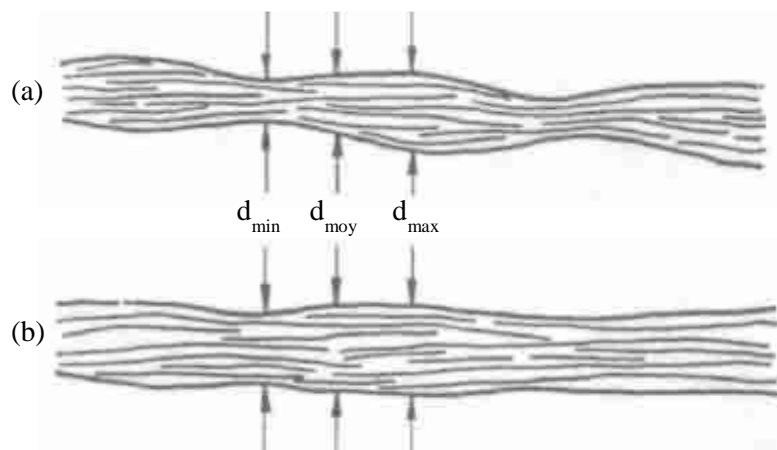


Figure 1-30 : Faisceaux de fibre de jute (a) secs et (b) après 2 semaines en immersion dans l'eau [111].

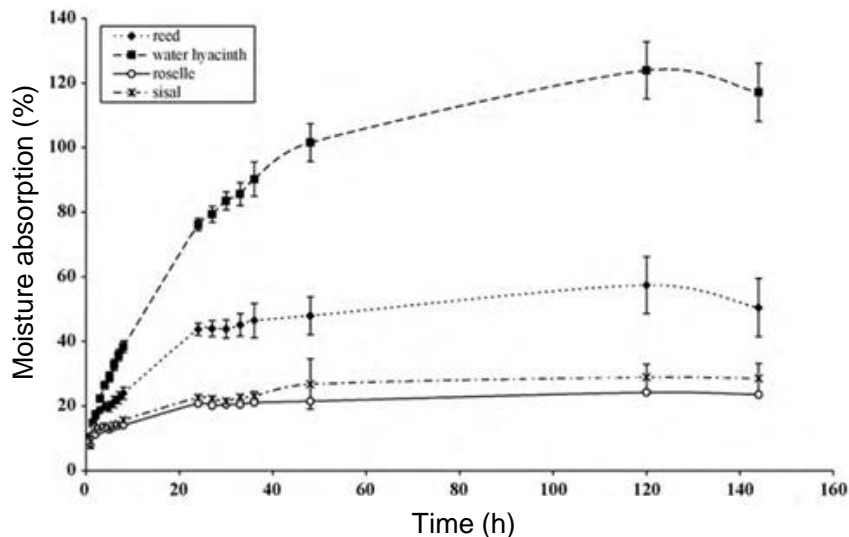
## II.2. Contribution des biopolymères des parois cellulaires

Azwa *et al.* [27] dans une revue de 2013 ont observé que les propriétés d'absorption d'eau des fibres végétales étaient conditionnées par les biopolymères constitutifs de la paroi cellulaire. La diffusion de l'eau va se faire dans les zones amorphes, principalement composées de biopolymères non-cellulosiques comme l'hémicellulose, la lignine et la pectine, et va être fortement influencée par la microstructure et la morphologie des fibres végétales [112]. De nombreux auteurs ont investigué le rôle de ces biopolymères non-cellulosiques sur le phénomène de gonflement et de reprise en eau.

Cousins [34,113] a également étudié, il y a une quarantaine d'années, l'influence de l'humidité relative sur la capacité d'absorption d'eau de l'hémicellulose et de la lignine à l'échelle des constituants natifs. Les résultats ont indiqué que c'est l'hémicellulose qui est majoritairement impacté par l'humidité avec une reprise en eau beaucoup plus importante. Selon l'auteur, la structure moléculaire de l'hémicellulose contient plus de groupements hydroxyles qui réagissent avec l'eau que celle de la lignine qui contient surtout des groupements phénoliques. A titre d'exemple, le module élastique de la lignine de Klason baisse de 4 à 2,3 GPa entre 3 et 12% de teneur en eau [113] tandis que celui de l'hémicellulose chute de 8000 MPa à 10 MPa entre 0 et 10% d'humidité [34].

Selon Methacanon *et al.* [114], plus la quantité d'hémicelluloses est importante dans la fibre, plus la reprise en eau sera grande. C'est ce que l'on peut voir sur la Figure 1-31 qui montre l'évolution de la reprise en eau à 23°C et 97% HR des fibres unitaires de roseau, de jacinthe d'eau, de kenaf (ou roselle)

et de sisal pour des teneurs en hémicelluloses respectives de 18,75 ; 16,78 ; 7,21 et 5,63% massiques. Un point intéressant sur ce graphique concerne les fibres de roseau et de jacinthe d'eau. Malgré une teneur en hémicellulose plus importante pour les fibres de roseau, ce sont les fibres de jacinthe d'eau qui présentent la plus forte reprise en eau. D'après les observations microscopiques qui ont pu être réalisées, cela s'explique par un nombre de pores beaucoup plus important pour les fibres de jacinthe d'eau favorisant la présence d'eau libre.



**Figure 1-31 : Reprise en eau des fibres unitaires de roseau, de jacinthe d'eau, de kenaf (ou roselle) et de sisal lors d'un vieillissement à 23°C et 97%HR [114].**

Pejic *et al.* [82] ont également étudié le rôle des biopolymères non-cellulosiques comme l'hémicellulose et la lignine sur le phénomène de gonflement des fibres de chanvre. Ils ont étudié le comportement d'absorption d'eau en phase vapeur des fibres élémentaires et des faisceaux pour différentes compositions biochimiques après extraction par des traitements chimiques à la soude (notées « H » pour l'hémicellulose dans la Figure 1-32) et au chlorite de sodium (notées « L » pour la lignine dans la Figure 1-32). Les différentes concentrations et les temps de traitement sont également donnés. Ils ont montré qu'une élimination des hémicelluloses de 10,72 à 3,29% diminuait les valeurs de rétention d'eau tandis qu'une élimination de la lignine de 6,06 à 3,09% l'augmentait et que ce phénomène était encore plus accentué pour les faisceaux de fibres (notamment en raison d'une plus grande quantité de polymères amorphes au niveau de la lamelle mitoyenne) ; ce qui confirme les travaux de Hill *et al.* [107] pour qui les phénomènes observés pour les fibres élémentaires de chanvre étaient encore plus accentués pour les faisceaux.

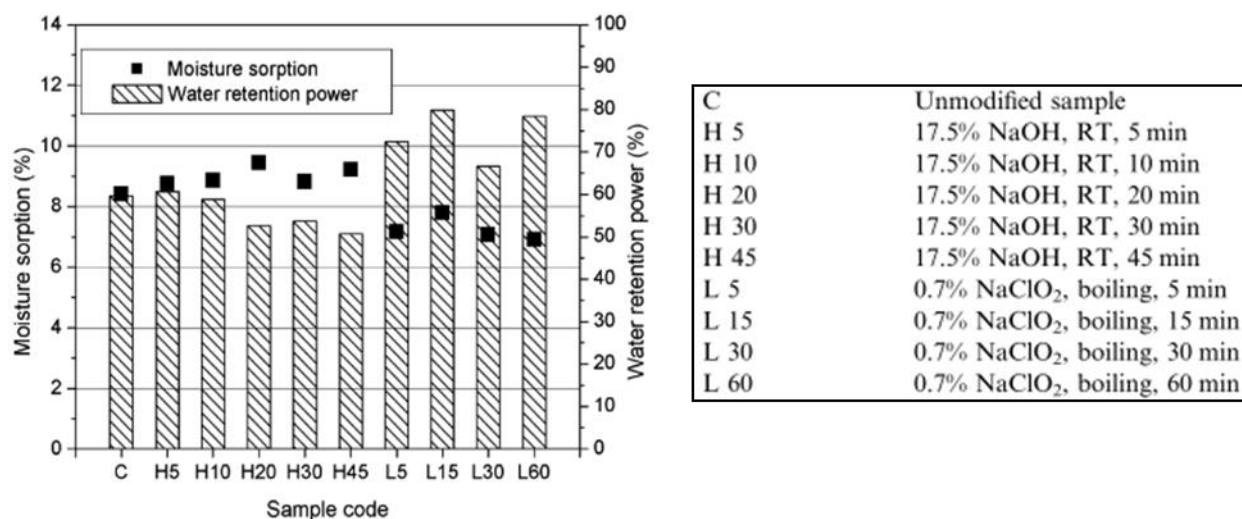


Figure 1-32 : Evolution de l'absorption et de la capacité de rétention d'eau pour des fibres de chanvre non traitées et traitées [82].

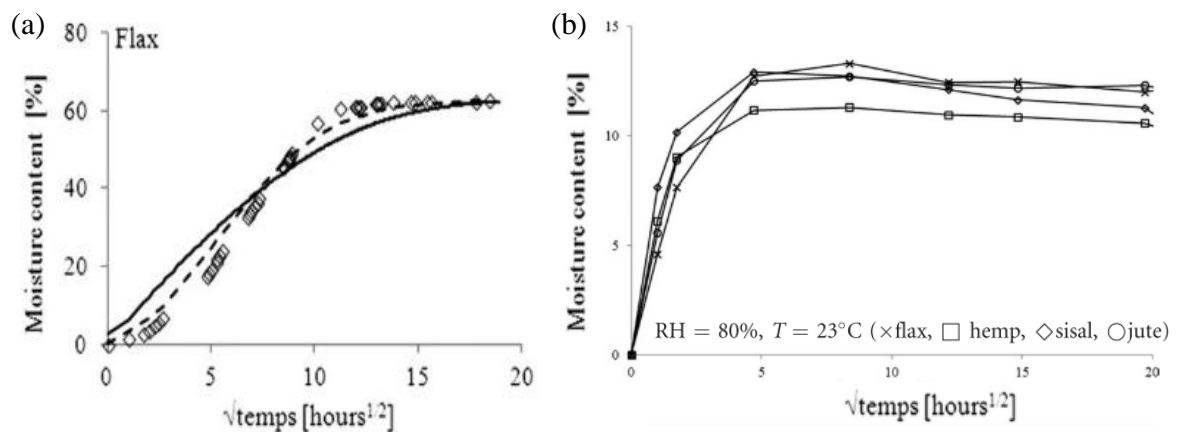
Ces résultats ont également été rapportés par Sukumaran *et al.* [115] qui ont observé un lien entre le gonflement, la composition biochimique et la structure interne des fibres végétales.

L'influence de la microstructure, comme l'angle micro-fibrillaire (MFA), a également été étudiée sur la capacité de gonflement transversale et longitudinale de fibres de bois. Selon Burgert *et al.* [116] et Abe et Yamamoto [117], les fibres présentant un angle micro-fibrillaire élevé, c'est-à-dire les fibres de bois compressées avec un angle de 45°, montrent une elongation longitudinale plus importante et un gonflement transversal plus faible que les fibres de bois présentant un angle micro-fibrillaire de 10°. Selon d'autres auteurs, le changement d'orientation de cet angle suite au gonflement peut également avoir une influence sur la rigidité de la fibre élémentaire [50].

### II.3. Modélisation des processus de diffusion

Plusieurs auteurs ont montré que le comportement de diffusion de l'eau dans les fibres végétales suivait des modèles de comportement comme la loi de Fick ou la théorie de Langmuir. Celino *et al.* [112], dans une étude sur des faisceaux de fibres de chanvre, de lin, de jute et de sisal, ont étudié le phénomène de diffusion de l'eau à température ambiante soit en immersion totale, soit en humidité relative à 80% HR. Selon eux, malgré des compositions chimiques très différentes, chaque faisceau présente une cinétique de prise en eau assez similaire avec toutefois une teneur en eau à l'équilibre différente. Les résultats ont montré que la théorie de Langmuir est plus appropriée pour décrire la cinétique de diffusion en immersion (Figure 1-33(a)) et que la loi de Fick est plus appropriée pour décrire la cinétique de diffusion en phase vapeur (Figure 1-33(b)); mais aucune explication supplémentaire n'est apportée. La prise en eau est également significativement plus importante lors d'un vieillissement en immersion qu'en présence d'humidité relative sous forme vapeur :

respectivement de 62,5% contre 12% à 80%HR pour les fibres de lin. Ces résultats semblent logiques compte tenu de la quantité disponible de molécules d'eau plus importante en immersion. Dans les fibres végétales, le volume libre correspondant à la porosité est important. Dès lors, en immersion, l'eau reste piégée dans les pores des parois cellulaires entraînant une augmentation de la masse des échantillons alors que, dans le cas d'un vieillissement hygrothermique, certaines molécules d'eau restent sous forme gazeuse et sont très rapidement évacuées.



**Figure 1-33 : (a) cinétique de diffusion en immersion d'un faisceau de fibres de lin et (b) cinétique de diffusion en phase vapeur à 80% HR [112].**

### III. Conclusion

Les méthodes appliquées pour estimer l'aire de section des fibres végétales, et plus particulièrement les hypothèses de forme de section, participent fortement à la dispersion des valeurs de propriétés mécaniques observée dans la littérature. Outre une amélioration des techniques expérimentales, cet état de l'art a montré que la caractérisation dimensionnelle des fibres végétales devait tenir compte des particularités morphologiques des fibres. Enfin, d'un point de vue stabilité dimensionnelle, les fibres végétales sont particulièrement sensibles à l'humidité. Les nombreuses études menées, notamment celles sur la contribution des biopolymères des parois cellulaires à réagir avec l'eau, montrent l'importance de tenir compte des caractéristiques intrinsèques, inhérentes aux origines botaniques, pour comprendre les interactions impliquées à l'échelle de la fibre pour ensuite en tirer des conclusions à l'échelle du biocomposite.



## PARTIE 3 CARACTÉRISATION DES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DES FIBRES VÉGÉTALES

Dans cette partie, nous allons aborder dans un premier temps les différentes méthodes de caractérisation mécanique appliquées aux fibres végétales et relatées dans la littérature. Puis nous présenterons leur comportement mécanique en traction et évaluerons l'influence des paramètres environnementaux comme l'humidité sur ce comportement.

### I. Etude du comportement mécanique des fibres végétales

#### *I.1. Méthodologies de caractérisation des propriétés mécaniques appliquées aux fibres végétales*

Nous avons vu précédemment (Chapitre 1, Partie 1) que la dispersion des résultats sur les propriétés mécaniques pouvait être liée aux méthodes employées pour leur détermination ainsi qu'aux conditions expérimentales dans lesquelles elles sont réalisées. C'est pourquoi les méthodes de caractérisation mécanique des fibres végétales demandent une attention toute particulière. En effet, les résultats en termes de propriétés mécaniques serviront à évaluer l'applicabilité de telle ou telle fibre en tant que renfort dans les matériaux composites. Ces différentes méthodes existantes pour caractériser le comportement mécanique se distinguent notamment par le mode et la vitesse de sollicitation ainsi que par la taille de l'échantillon testé. Voici un état de l'art des méthodes employées dans la littérature.

##### *I.1.1. Essais mécaniques quasi-statiques*

La caractérisation en traction uni-axiale dans le sens des fibres est la méthode la plus utilisée dans la littérature pour analyser le comportement mécanique des fibres végétales [53,69,87,97] à l'instar des fibres de verre [5] et de carbone [118].

Dans le cas des fibres végétales, ces essais sont généralement réalisés à vitesse de déplacement constante à l'aide de machines de traction ou micro-traction (système électromécanique) équipées d'un dispositif d'enregistrement de la force et de l'allongement [59,119]. Ces essais sont basés sur la norme française NF T25-501-3 développée pour la détermination des propriétés mécaniques en traction des faisceaux de fibres de lin [85]. Le Tableau 1-5 reprend des exemples de différents essais et les conditions expérimentales associées.

Les fibres végétales étant sensibles aux conditions hydro/hygroscopiques, les essais doivent être réalisés à humidité et température contrôlées (23°C et 50% HR) selon la norme française NF EN ISO 291 [120].

**Tableau 1-5 : Revue des méthodes de traction quasi-statique et des conditions opératoires appliquées aux fibres végétales.**

Taille des échantillons	Vitesse de déplacement (mm/min)	Longueur de jauge (mm)	Cellule de force (N)	Température (°C) et Humidité relative (HR%)	Références
Fibre élémentaire	1	10	2	23°C – 50%HR	[22,39,42,44,48, 58,93,121]
	0,06	6, 10, 60	50	-	[97]
Faisceaux de fibres	10	10	20	20°C – 55%HR	[99]
	0,1	25	-	20°C – 65%HR	[122]
		10, 20, 30, 40	250	22°C – 20%HR	[54]
	-	10, 15, 20, 25, 30	100	23°C – 50%HR	[53]
	0,048	1 - 3	5	23°C – 35%HR	[123]
20	20	20	20°C – 60%HR	[70]	

Le grand nombre de conditions opératoires reportées dans le tableau 1-5 montre la nécessité d'améliorer la standardisation des essais de traction pour la détermination des propriétés des fibres végétales.

Pour la mise en place et la réalisation des essais, les échantillons sont généralement fixés et/ou collés sur un cadre en papier, tel que présenté dans la Figure 1-18 (cf. *CHAPITRE 1 PARTIE 2 I.2*). Ce type de montage permet l'alignement de la fibre élémentaire ou du faisceau et son maintien dans les mors de la machine de traction comme le montre la Figure 1-34(a). Dans certaines études, le cadre en papier peut être remplacé par des supports en plastique, en fonction du dispositif de traction employé [70]. De grandes précautions doivent être prises au niveau de cette étape de préparation.

Avant de démarrer tout essai de traction, les caractéristiques géométriques des fibres élémentaires ou des faisceaux de fibres telles que le diamètre ainsi que la longueur de jauge doivent être déterminées. Suite à l'essai de traction, les grandeurs mécaniques comme le module de Young, la déformation longitudinale et la contrainte à rupture peuvent être déduites à partir de la courbe force/déplacement (Figure 1-34(b)) convertie en courbe de comportement contrainte/déformation à partir de l'aire de section résistive introduite dans l'équation 1 (cf. *CHAPITRE 1 PARTIE 2 I.1*).

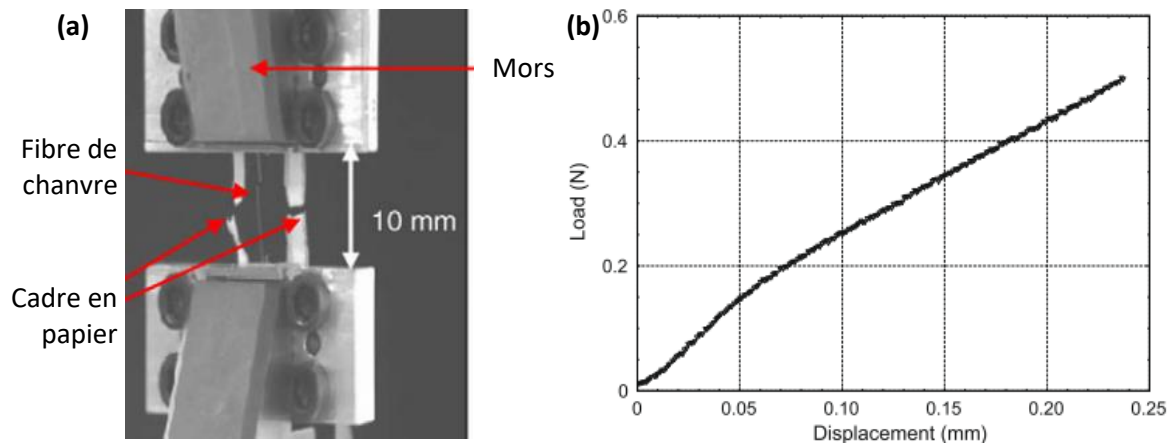


Figure 1-34 : Fibre élémentaire de chanvre : (a) montage sur banc de traction et (b) courbe typique force/déplacement [51].

### 1.1.2. Essais dynamiques

A l'inverse des essais statiques, les essais de caractérisation dynamique sont peu utilisés dans la littérature. Différentes méthodes existent comme l'analyse mécanique dynamique (DMA) ou l'analyse vibratoire.

L'analyse mécanique dynamique est une méthode qui permet d'étudier le comportement viscoélastique des matériaux et traduit l'évolution des propriétés en fonction de la température, du temps et de la fréquence de sollicitation. Le principe de cet essai consiste à soumettre l'échantillon à une sollicitation cyclique et à mesurer la contrainte et/ou la déformation résultante. Les essais étant réalisés dans le domaine de comportement viscoélastique linéaire, le module de conservation  $E'$ , le module de perte  $E''$  et le facteur de perte (tangente delta :  $E''/E'$ ) sont déterminés. Des auteurs comme Cisse *et al.* [124] ont notamment utilisé cette méthode pour caractériser le comportement des fibres élémentaires de chanvre en fluage en utilisant une loi de comportement anisotrope développée par Boubakar *et al.* [125]. Les résultats ont montré qu'un modèle rhéologique basé sur cette loi de comportement décrivait correctement le comportement des fibres élémentaires de chanvre.

La seconde technique, par analyse vibratoire, consiste à étudier le comportement dynamique d'une structure en analysant ses modes propres de vibration [126,127] afin d'identifier sa rigidité (analyse modale). Pour cela, l'échantillon est sollicité par une impulsion mécanique. Ses paramètres dynamiques, tels que fréquences propres et taux d'amortissement, sont estimés à partir de sa réponse en fréquence analysée par un logiciel d'analyse modale. Corn *et al.* [128] ont utilisé cette technique d'analyse modale pour identifier les propriétés mécaniques dynamiques d'un composite chargé de billes de verre. Cette méthode d'analyse non-destructive nécessite de connaître la fréquence de résonance, les dimensions de l'objet et sa densité.

### I.1.3. Essais de nanoindentation

Les essais de nanoindentation consistent à faire pénétrer une pointe, généralement en diamant (dont les propriétés et la géométrie sont connues) de façon perpendiculaire dans un matériau et d'en mesurer la profondeur d'enfoncement. Cette technique permet de déterminer, à l'échelle de la paroi cellulaire (nanométrique), le module élastique ainsi que ses propriétés viscoplastiques.

Utilisée depuis quelques années pour déterminer les propriétés mécaniques transversales des fibres synthétiques, cette méthode est depuis peu appliquée aux fibres végétales notamment pour souligner leur comportement anisotrope [59]. Bourmaud *et al.* [119], dans une étude sur les fibres de sisal, de lin et de chanvre, ont pu mettre en évidence grâce à la détermination des modules transverses par nanoindentation l'anisotropie très marquée des fibres végétales. Ils ont relevé un écart important entre les valeurs de modules transverses et les valeurs de modules longitudinaux, avec un facteur multiplicateur entre ces deux paramètres de l'ordre de 6.5 à 9.22 respectivement pour les fibres de sisal et de lin. L'influence du procédé de rouissage sur la rigidité transversale a également été observée par ces auteurs avec un module longitudinal plus faible dans le cas d'un lin roui, respectivement de  $12,7 \pm 1,1$  GPa contre  $15,2 \pm 1,4$  GPa pour un lin vert. Ces valeurs de modules sont relativement faibles en comparaison aux valeurs de la littérature. Selon Gindl *et al.* [129], cet écart entre les valeurs de module peut être causé par le mode de sollicitation de la pointe, mal adaptée aux fibres d'origine végétale. Plus récemment, Keryvin *et al.* [130] ont étudié le comportement viscoélastique de la paroi secondaire des fibres de lin lors des essais de fluage et de relaxation par nanoindentation. Les faibles temps de relaxation observés peuvent s'expliquer selon eux par les mécanismes de déformation des polymères non-cellulosiques et de la cellulose amorphe, contribuant pour une part importante au comportement viscoélastique. D'autres auteurs ont utilisé cette méthode, comme Gindl *et al.* [129] qui ont déterminé un facteur d'anisotropie, de 1,5, correspondant au ratio du module longitudinal et du module transverse pour les fibres de viscose, ou encore Yu *et al.* [131] qui ont déterminé un facteur d'anisotropie de 2,7 à partir du module longitudinal et transverse des fibres de bambou, respectivement de 16,1 et 5,91 GPa. L'inconvénient majeur de cette technique réside dans le fait que les mesures sont réalisées de façon locales ou surfaciques.

Parmi les autres méthodes qui existent, on peut noter la caractérisation nano-mécanique par microscope à force atomique (AFM) qui permet de comprendre les processus à l'échelle des parois cellulaires [132,133]. Capron *et al.* [133] ont utilisé cette technique pour la caractérisation nano-mécanique des fibres de bois de châtaignier. La Figure 1-35(a) donne des informations sur la topographie de la section de la fibre. On distingue bien les cellules individuelles, les lumens et la lamelle mitoyenne. La Figure 1-35(b) met en évidence la présence d'un gradient de rigidité au sein de la paroi cellulaire : entre 5 et 15 GPa.

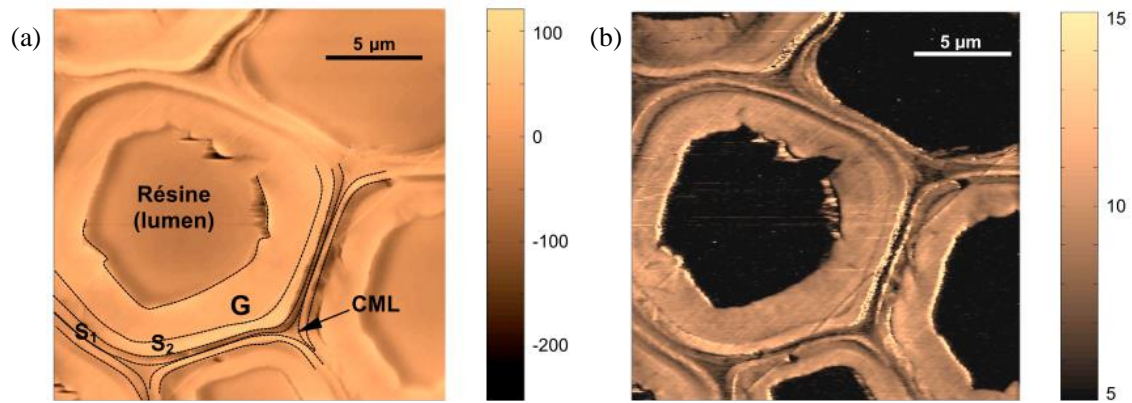


Figure 1-35 : Fibre de bois de châtaignier : (a) image AFM en topographie (nm) et (b) cartographie du module longitudinal (GPa) [133].

## 1.2. Etude du comportement mécanique en traction

### 1.2.1. Types de comportement observés

En contraste des fibres synthétiques comme les fibres de verre, une des caractéristiques de la déformation en traction des fibres végétales est la non-linéarité de leur comportement. De nombreuses recherches ont été menées afin de comprendre et d'interpréter le comportement élasto-visco-plastique des fibres végétales. La Figure 1-36(a) montre les différentes courbes contrainte/déformation que peuvent présenter les fibres végétales. Trois réponses types ont été observées : la première de type I correspond à un comportement parfaitement élastique fragile, la seconde de type II à un comportement non linéaire à 2 zones et la troisième de type III à un comportement non-linéaire à 3 zones [25,48,58,59,86,92,130].

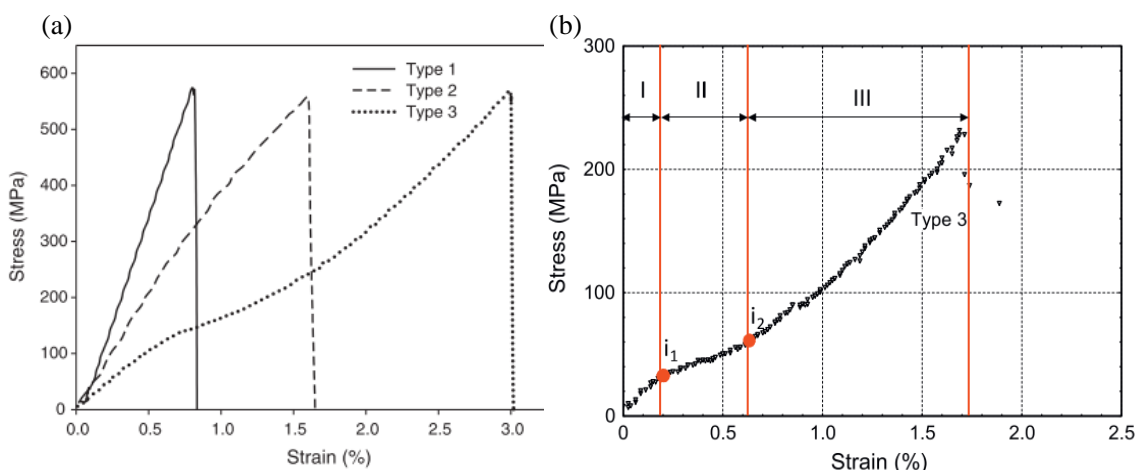
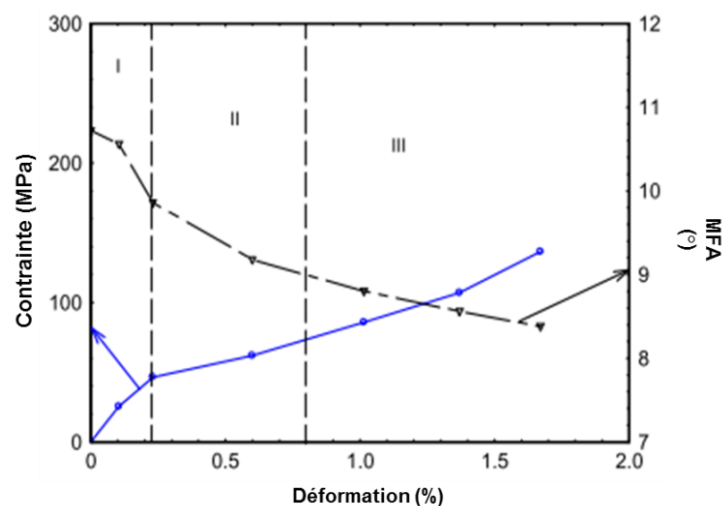


Figure 1-36 : (a) Exemples des trois types de comportement des courbes contrainte/déformation [58] et (b) courbe de comportement d'une fibre élémentaire de chanvre [134].

C'est le comportement de type III qui est majoritairement retrouvé dans la littérature pour les essais de traction quasi-statiques sur les fibres végétales [40]. Cisse [135], dans ses travaux sur la caractérisation du comportement hygro-mécanique des fibres élémentaires de chanvre, a montré que

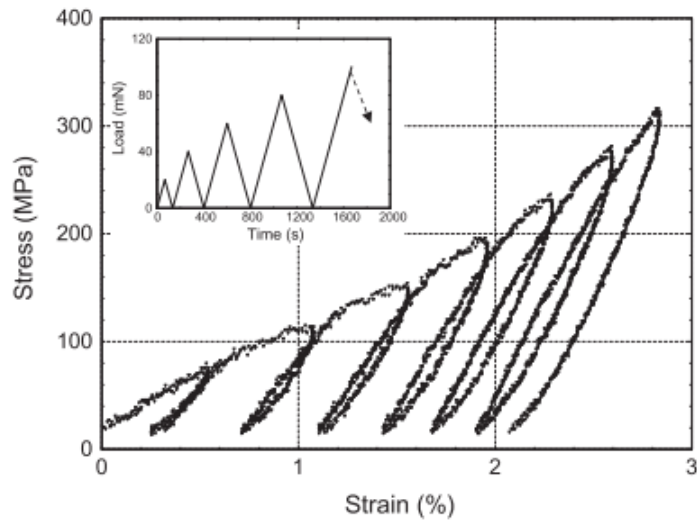
les essais décrivant un comportement de type III représentaient 41% de l'effectif étudié contre 38% pour le type I et 21% pour le type II. Il a également observé une augmentation du nombre de fibres élémentaires de chanvre décrivant un comportement de type III avec l'augmentation de l'humidité relative.

Le comportement de type III a été fortement commenté dans la littérature et de nombreuses hypothèses ont été avancées pour le décrire. Comme le montre la Figure 1-36(b) pour une fibre élémentaire de chanvre, trois zones marquées par deux points d'inflexion notés  $i_1$  et  $i_2$  décrivent ce comportement non-linéaire. Selon Nilsson et Gustafsson [136], la non-linéarité du comportement des fibres végétales résulterait de la rotation locale des microfibrilles de cellulose à la suite du cisaillement élasto-plastique des hémicelluloses amorphes. C'est d'ailleurs cette hypothèse de réalignement progressif des microfibrilles dans la matrice amorphe lors de la mise sous tension qui est majoritairement avancée [5,59,86,137,138]. Selon Baley [59], la réorganisation structurale des microfibrilles de cellulose entraîne une réorientation de l'angle micro-fibrillaires, responsable de l'évolution de la rigidité. Récemment, Placet *et al.* [139] ont confirmé cette hypothèse par un suivi des réarrangements microstructuraux induits par des sollicitations mécaniques sur des fibres élémentaires de chanvre par diffraction des rayons X. Ils ont observé une diminution de  $3^\circ$  de l'angle micro-fibrillaire, passant de  $10,8^\circ$  à  $7,8^\circ$  entre 0 et 2% de déformation (Figure 1-37).



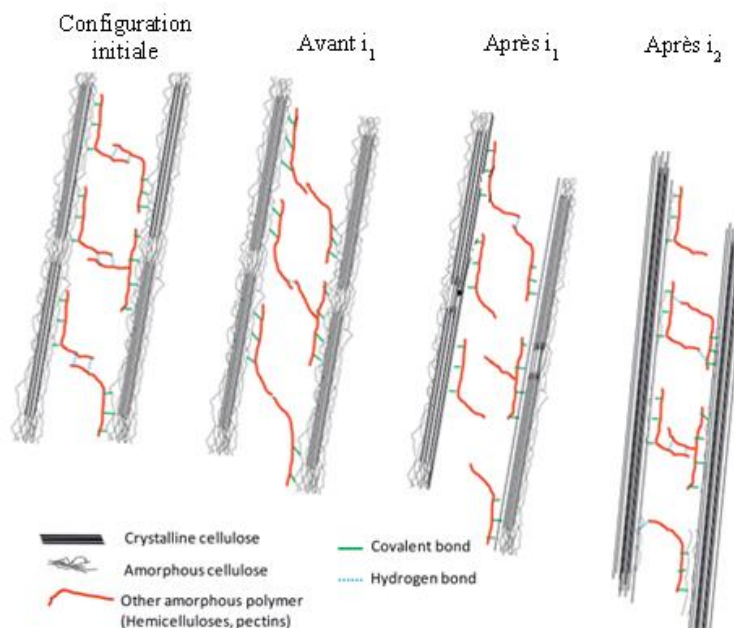
**Figure 1-37 : Evolution du MFA et de la contrainte à rupture pour une fibre élémentaire de chanvre (21°C et 25%HR) [139].**

Placet *et al.* [134] sont allés plus loin dans l'analyse du comportement non-linéaire des fibres végétales en réalisant des essais de charge/décharge sur des fibres élémentaires de chanvre. Ils ont montré une augmentation progressive du point d'inflexion  $i_1$  après chaque phase de chargement ainsi que la persistance d'une déformation résiduelle comme le montre la Figure 1-38.



**Figure 1-38 : Courbe contrainte/déformation résultante d'un essai cyclé charge/décharge réalisé sur une fibre élémentaire de chanvre [134].**

Sur la base de ces résultats, un scénario permettant d'expliquer le comportement non-linéaire des fibres élémentaires de chanvre a été proposé par ces mêmes auteurs (Figure 1-39). La première zone linéaire correspondrait à la déformation élastique des microfibrilles de cellulose et des constituants amorphes des parois cellulaires (principalement hémicellulose et pectine) [48,134]. La seconde zone, non linéaire (entre  $i_1$  et  $i_2$  sur la Figure 1-36(b)), correspondrait à la cristallisation partielle de la cellulose amorphe engendrée par la contrainte de cisaillement interfaciale induite par la torsion des microfibrilles. Le point d'inflexion  $i_2$  correspondrait à la cristallisation complète de la cellulose amorphe. Au-delà de ce point, la déformation élastique des microfibrilles de cellulose réalignées et stabilisées se produirait à la suite de la reformation des liaisons hydrogène [92,134].



**Figure 1-39 : Schéma du scénario de comportement non-linéaire des fibres élémentaires de chanvre [134].**

1.2.2. Détermination des propriétés mécaniques en traction

La contrainte (Eq. 1) et la déformation (Eq. 4) sont déterminées à partir des données brutes force/déplacement. La contrainte à rupture et la déformation ultime sont le plus souvent déterminées à la rupture. Le module d'élasticité E est déterminé d'après la norme en faisant une régression linéaire de la courbe contrainte/déformation [85], dans la zone précédant la rupture (Figure 1-40(a)).

$$\sigma = \frac{F}{S} \tag{Eq.1}$$

$$\varepsilon = \frac{(L - L_0)}{L_0} \tag{Eq.4}$$

avec F la force à rupture (en N), S l'aire de la section transversale de la fibre (en mm<sup>2</sup>), L la longueur de l'échantillon (en mm) et L<sub>0</sub> la longueur initiale de l'échantillon (en mm).

D'autres auteurs, comme Lefevre *et al.* [40], ont proposé une analyse complète des courbes contrainte/déformation. Pour cela, l'évolution du module tangent obtenu à partir de la dérivée de la courbe contrainte/déformation a été tracée comme le montre la Figure 1-40(b). Selon eux, il est possible de définir deux domaines: le premier, associé au comportement non-linéaire de la fibre caractérisé par un module tangent noté « E<sub>1T3</sub> » et le second, associé au comportement linéaire avant rupture, caractérisé par un module tangent ultime noté « E<sub>rT3</sub> ». Les résultats de cette étude ont démontré que les valeurs de module tangent ultime à la rupture étaient proches des valeurs de module de Young habituellement calculées à partir de la norme NF T25-501-3 [85] dans la zone linéaire proche de la rupture, comme indiqué sur la Figure 1-40(a).

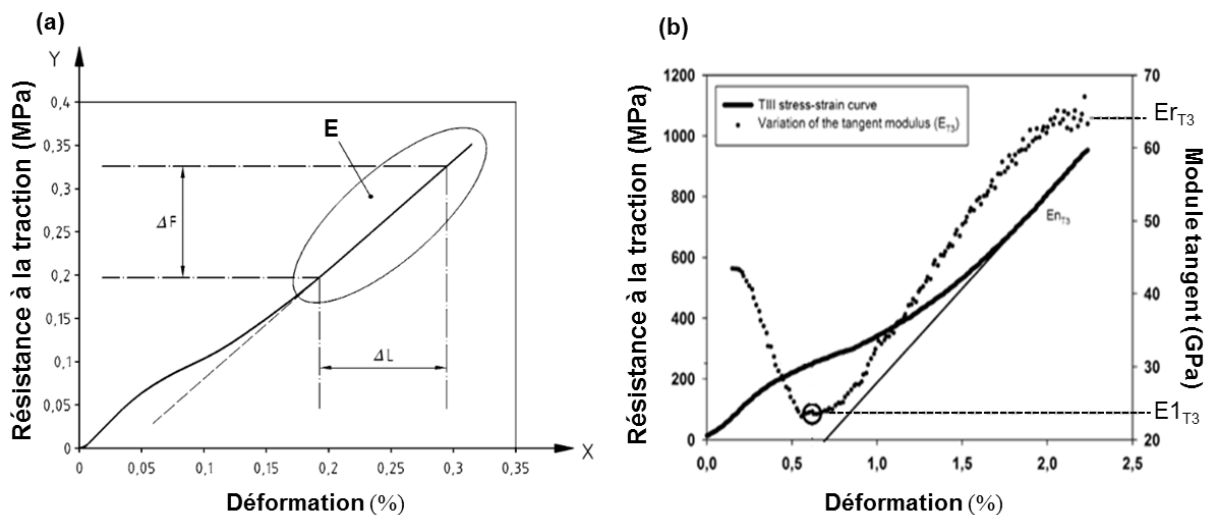


Figure 1-40 : Fibre de lin : (a) exemple de courbe de contrainte/déformation et (b) variation du module tangent en fonction de la déformation [40,85].



### 1.2.3. Modélisation probabiliste du comportement à rupture : analyse de Weibull

Nous avons vu dans la première partie de ce chapitre que les valeurs de résistance à la rupture rapportées dans le Tableau 1-3 et extraites de la littérature présentaient une forte dispersion. Pour analyser la variation statistique de la résistance à la rupture des matériaux, Waloddi Weibull a adopté en 1951 les statistiques de l'extrême [140]. Cette approche utilise une fonction de distribution de probabilité qui caractérise la contrainte à rupture locale. Dans le cadre de cette théorie, il est admis que la rupture s'initie sur un défaut et qu'elle se propage instantanément dans la structure. La fonction de distribution classique utilisée pour déterminer la contrainte à rupture des fibres élémentaires ou des faisceaux de fibres suit la loi de Weibull à deux paramètres et est donnée par l'équation 5.

$$P_f = 1 - \exp\left(-\left(\frac{\sigma}{\sigma_r}\right)^m\right) \quad (\text{Eq. 5})$$

avec  $P_f$  la probabilité de rupture de la fibre,  $\sigma_r$  le paramètre d'échelle (ou contrainte caractéristique),  $\sigma$  la contrainte ultime déterminée expérimentalement et  $m$  le paramètre de forme (ou module de Weibull).

La probabilité de rupture, propre à chaque essai, est déduite du rang  $k$  correspondant à la contrainte à rupture expérimentale associée et est donnée par la relation suivante :

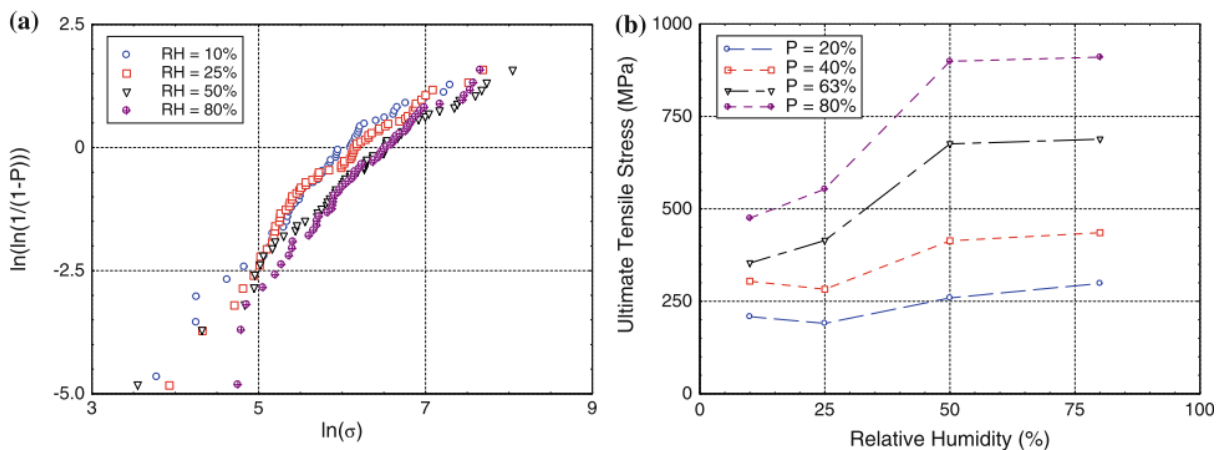
$$P_f = \frac{k-0,5}{N} \quad (\text{Eq. 6})$$

avec  $k$  le rang de la contrainte à rupture expérimentale associée et classée par ordre croissant et  $N$  le nombre total d'échantillons.

La linéarisation de l'équation 5 à partir de l'équation 6 permet de représenter la distribution de Weibull en fonction de la contrainte expérimentale. Pour cela, en traçant  $\ln(-\ln(1/(1-P_f)))$  en fonction de  $\ln \sigma$ , on obtient une droite dont la pente correspond au module de Weibull. La contrainte caractéristique est ensuite déterminée à partir de l'équation 5. Le module de Weibull  $m$  caractérise le degré d'homogénéité de la structure. Lorsque le module de Weibull est faible, la répartition des défauts au sein de l'échantillon est très hétérogène, et on observera une grande dispersion des contraintes à rupture. A l'inverse, une valeur de module élevée correspond à une répartition homogène des défauts et on observera également une faible dispersion des contraintes à rupture. Cette approche statistique permet de tenir compte de la répartition des contraintes dans le volume de l'échantillon pour le calcul de la probabilité de rupture soumis à des sollicitations statiques. De nombreux auteurs ont utilisé cette approche statistique de Weibull pour analyser l'évolution de la résistance à la rupture des fibres synthétiques [141–143] et des fibres d'origine végétale [50,54,78,144–148]. Placet *et al.* [50] ont utilisé cette approche pour caractériser l'influence de l'humidité relative (HR) sur le comportement

mécanique à rupture des fibres élémentaires de chanvre. A partir de l'équation 6, ils ont tracé  $\ln(\ln(1/(1-P)))$  en fonction de  $\ln \sigma_r$  qui permet de représenter la distribution de Weibull à partir des données expérimentales comme le montre la Figure 1-41(a) pour quatre humidités relatives, respectivement 10, 25, 50 et 80% HR. Les modules de Weibull correspondent au coefficient directeur de la pente obtenue par régression linéaire. Les contraintes caractéristiques  $\sigma_0$  associées ont, quant à elles, été déterminées pour différentes probabilités de rupture, respectivement 20, 40, 63 et 80% (Figure 1-41(b)).

Les résultats de cette étude ont indiqué que, pour des niveaux d'humidité relative élevée (50 et 80% HR), les fibres élémentaires de chanvre présentent une contrainte caractéristique environ 1,5 fois plus élevée que les fibres testées aux niveaux d'humidités relative inférieur (10 et 25% HR). Cette augmentation est attribuée à une modification de la microstructure des parois cellulaires associée à la reprise en eau. En revanche, aucune influence de l'humidité relative n'a été observée sur la valeur de module de Weibull, qui reste faible (environ  $1,64 \pm 0,1$ ) traduisant la dispersion des valeurs de contrainte à rupture et l'hétérogénéité de répartition des défauts au sein de la structure. Ces valeurs de module de Weibull se situent tout de même à proximité de celles obtenues par Kompella et Lambros [147] sur des fibres unitaires de coton et de bois (respectivement de 1,77 et 1,26) mais sont cependant légèrement inférieures à celles déterminées par Silva *et al.* [54] pour des faisceaux de sisal (4,6). A titre indicatif, la valeur du module de Weibull des fibres de carbone est de 6,7 selon Pickering et Murray [142].



**Figure 1-41 : (a) Distribution de Weibull et (b) contrainte ultime pour différentes probabilités de rupture (P=20, 40, 63 et 80%) issues de l'étude du comportement mécanique à rupture des fibres élémentaires de chanvre en fonction de l'humidité relative [50].**

Une des raisons qui peut expliquer ces écarts entre les valeurs de module de Weibull a été abordée par Silva *et al.* [54] Selon eux, la longueur de jauge peut avoir une influence sur la distribution de Weibull. Ils ont rapporté que, pour les faisceaux de sisal, le module de Weibull diminuait de 4,6 à 3 lorsque la longueur de jauge passait de 10 à 40 mm. L'approche statistique de Weibull traduit la

répartition des défauts au sein d'un échantillon. Si sa longueur augmente, le nombre de défauts est également susceptible d'augmenter [54]. L'influence de la longueur de jauge a également été observée par Xia *et al.* [145] dans leurs travaux sur les faisceaux de fibres de jute. Pour quatre longueurs de jauge, respectivement de 5, 10, 15 et 20 mm, le module de Weibull diminue progressivement, passant de 2,18 pour 5 mm à 1,19 pour 20 mm. Romhãny *et al.* [78], dans une étude sur les faisceaux de fibres de lin, ont également constaté que la longueur de jauge pouvait modifier les paramètres de Weibull et notamment le paramètre d'échelle  $\sigma_0$ . La Figure 1-42 montre l'évolution de la contrainte ultime  $\sigma_r$  en fonction de la probabilité de Weibull pour 2 longueurs de jauge, respectivement de 20 et 80 mm. Ils ont observé une baisse de la contrainte de 685 MPa pour une longueur de jauge de 20 mm à une contrainte de 299 MPa pour une longueur de 80 mm, avec modification de la valeur du module de Weibull : respectivement de 1,5 et 2,2.

Selon une étude de 2013, ce type d'approche nécessite quelques précautions d'usage [148]. Néanmoins, l'approche statistique de Weibull montre un bon intérêt pour l'étude du comportement à rupture des fibres végétales en raison de la complexité dans la préparation des échantillons, causée par la taille des fibres élémentaires et/ou des faisceaux, et dans l'analyse des comportements mécaniques. C'est également une bonne approche pour prendre en compte la dispersion liée au caractère naturel de ces fibres.

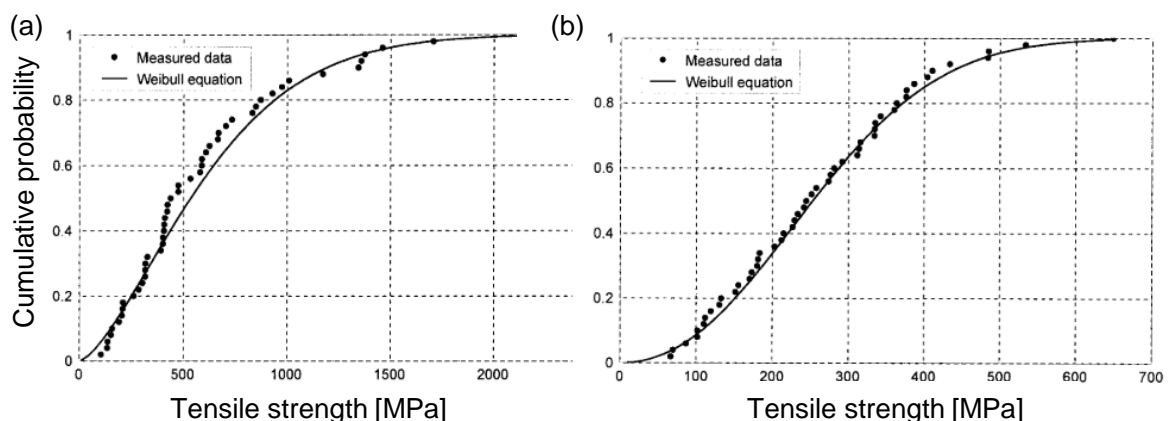


Figure 1-42 : Probabilité de rupture de faisceaux de lin pour une longueur de jauge de (a) 20mm et (b) 80mm [78].

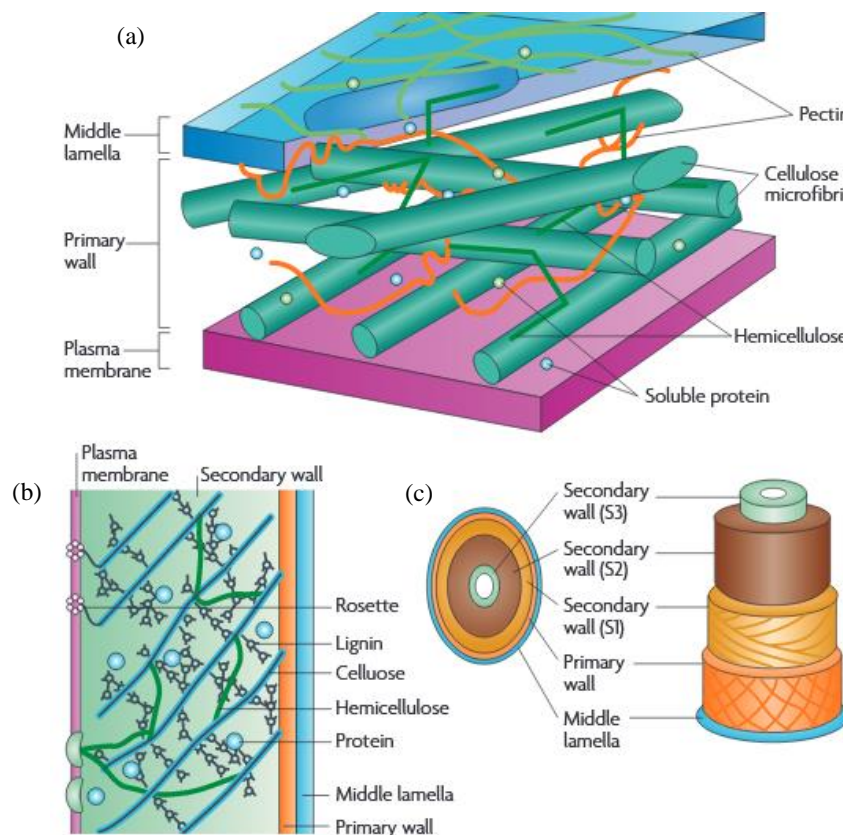
## II. Influence de l'humidité sur le comportement mécanique des fibres végétales

### II.1. Généralités et modes d'action

Selon Azwa *et al.* [27], une absorption d'eau au sein des biocomposites va entraîner une variation dimensionnelle des fibres élémentaires ou des faisceaux via un phénomène de gonflement et une circulation des molécules d'eau à l'interface fibre/matrice conduisant à une décohésion interfaciale et

donc à une perte des propriétés mécaniques. Si de nombreuses recherches ont été menées concernant l'influence de l'humidité sur la modification du comportement mécanique des biocomposites, les mécanismes de plastification (interactions eau/biopolymères) aux différentes échelles : faisceau de fibres, parois cellulaires et moléculaire, ont été moins étudiées.

Comme expliqué précédemment, les molécules d'eau présentes dans la fibre peuvent se trouver sous deux états : libre ou liée. L'eau liée correspond à un état où les molécules d'eau interagissent avec la structure moléculaire de la fibre et l'eau libre à un état sans interaction forte. A l'échelle moléculaire, l'eau va interagir avec les groupements fonctionnels hydrophiles (-OH) des biopolymères en créant des liaisons hydrogène. Tous les polymères de la paroi cellulaire sont plus ou moins hydrophiles. Dans l'ordre, on retrouvera l'hémicellulose, la cellulose amorphe (qui représente 40%), la pectine et la lignine très faiblement [149]. A l'échelle de la fibre élémentaire, la paroi primaire (Figure 1-43(a)) se compose de microfibrilles de cellulose cristalline peu orientées dans une matrice constituée majoritairement d'hémicelluloses et de pectines. La paroi secondaire (Figure 1-43(b)), se compose majoritairement de microfibrilles de cellulose cristalline orientées dans une matrice d'hémicelluloses, de cellulose et de lignine. A l'échelle du faisceau, on retrouvera une lamelle mitoyenne constituée principalement de pectines permettant la cohésion des fibres élémentaires entre elles [5,6,150].



**Figure 1-43 : Schématisation (a) de la paroi primaire, (b) de la paroi secondaire et (c) de la microstructure d'une fibre élémentaire en fonction des biopolymères [150].**

L'absorption d'eau de chaque polymère constitutif de la paroi cellulaire dépend non seulement de son degré de cristallinité mais également de l'accessibilité à ses groupements hydroxyles [149]. La cellulose tout d'abord, présente une partie non cristalline (environ 40%) dont les groupements hydroxyles (-OH) sont facilement accessibles par les molécules d'eau et une partie cristalline (environ 60%) qui ne l'est pas. Tout comme la cellulose amorphe, les hémicelluloses sont particulièrement sensibles à l'humidité en raison de leur nombre important de groupements hydroxyles. A l'inverse, la lignine présente une structure moléculaire réticulée (réseau 3D). En plus d'un nombre de groupements hydroxyles moins important, elle présente des cycles aromatiques qui lui confèrent une meilleure résistance à l'eau [151,152].

A l'échelle de la fibre, nous avons vu que l'eau pénètre dans les parois cellulaires pour y être absorbée et provoquer un gonflement [82]. La formation de liaisons hydrogène entre les groupements hydroxyles (-OH) et les molécules d'eau va entraîner une diminution des interactions intra et intermoléculaires, en particulier avec les hémicelluloses et la cellulose amorphe qui se traduit par un phénomène de gonflement. D'un point de vue mécanique, la diminution des liaisons hydrogène intra et intermoléculaires entre les biopolymères présents dans la paroi cellulaire conduit à un changement dans la mobilité des microfibrilles de cellulose [27,50]. L'eau joue alors le rôle de plastifiant, augmentant ainsi la flexibilité du réseau et diminuant donc la rigidité des parois [50,153,154]. Le schéma de principe du phénomène de plastification d'un polymère par l'eau est donné dans la Figure 1-44.

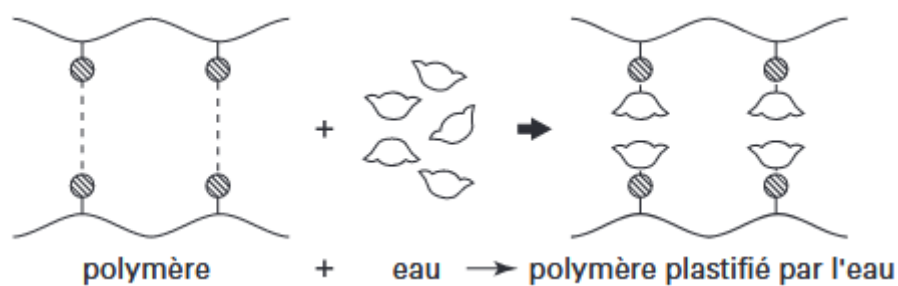


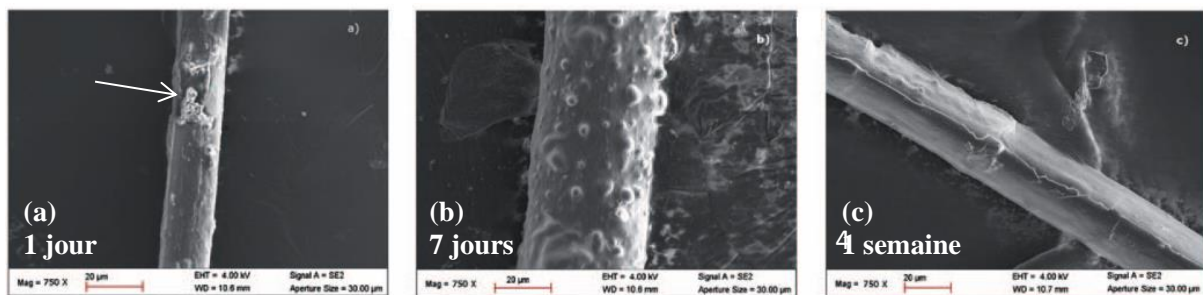
Figure 1-44 : Effet de plastification d'un polymère par l'eau [155].

## II.2. Modification des propriétés mécaniques en traction des fibres végétales

Peu d'études ont été menées sur l'influence de l'eau sur le comportement des fibres végétales. La plupart d'entre elles ont été réalisées à l'échelle de la fibre élémentaire et ont été commentées à partir des connaissances sur les interactions eau/biopolymères.

Stamboulis *et al.* [157] ont étudié l'influence de l'humidité relative sur la résistance à la rupture des fibres élémentaires de lin et ont constaté que celle-ci restait presque constante jusqu'à 66%HR avec une légère augmentation de 619 MPa pour 30% HR à 760 MPa pour 66% HR. Cependant, à plus haute

humidité relative (> 66% HR), ils ont constaté un effet plastifiant dû à la présence d'eau « libre » qui pénètre dans les parois cellulaires diminuant ainsi une partie de la rigidité de la microstructure. D'autres auteurs ont observé ce comportement sur la résistance à la rupture. Thuault *et al.* [158] pour les mêmes fibres, ont montré une augmentation de la résistance à la traction jusqu'à 900 MPa pour une humidité de 68% HR avant de chuter à 780 MPa pour une humidité relative de 85% HR. Selon eux, ces modifications de la résistance sont attribuées à une modification de la microstructure des parois cellulaires des fibres de lin suite à l'augmentation de la prise en eau. En effet, des observations MEB ont montré qu'après 1 jour d'exposition à 100% HR, l'eau s'infiltre dans la fibre jusqu'à la paroi primaire. Après 7 jours, des cloques apparaissent à la surface et après 4 semaines, la paroi cellulaire se fissure (Figure 1-45). A l'inverse, le module de Young ne semble pas impacté mais aucune explication n'est apportée par les auteurs quant à ce résultat. Van Voorn *et al.* [159] ont également observé, pour des fibres de lin et de sisal testées sur une plage d'humidité relative de 22 à 98% HR, une résistance à la traction maximale atteinte à 70% HR, sans donner plus d'explication.



**Figure 1-45 : Image SEM de la surface d'une fibre de lin après vieillissement à 20°C et 100% HR pendant (a) 1jour, (b) 7 jours et (c) 4 semaines [158].**

La variation du module et de la résistance à la traction pour des fibres élémentaires de lin et d'ortie a également été étudiée par Bruce et Davies [32]. Pour cela, les fibres ont été testées mécaniquement pour des humidités relatives respectives de 30, 40, 50, 60 et 70 %. Les résultats ont montré que le taux de diminution moyen du module élastique était de 0,39 GPa/% HR pour les fibres de lin contre 0,24 GPa/%HR pour les fibres d'ortie sur la plage 30-70% d'humidité relative. Ces résultats montrent bien que la composition biochimique et la structure propre à chaque espèce végétale influencent de façon importante le comportement mécanique des fibres végétales en environnement humide.

Plus récemment, Placet *et al.* [50] ont montré que la sorption d'eau a une influence significative sur la rigidité en traction quasi-statique ainsi que sur la résistance des fibres élémentaires de chanvre. Concernant les essais quasi-statiques réalisés pour des humidités relatives de 10, 25, 50 et 80% HR, les résultats ont montré une augmentation moyenne du module apparent de 0,105 GPa/%HR jusqu'à une humidité relative comprise entre 50 et 70% HR, suivie d'une reprise accélérée du module d'environ 0.168 GPa/%HR jusqu'à 80% HR. Ces résultats sont en contradiction explicite avec les données

collectées dans la littérature [32,157,159,160] compte tenu de l'effet plastifiant de l'eau sur les polymères amorphes constitutifs de la paroi cellulaire. Selon ces auteurs, ce phénomène s'expliquerait par des interactions à l'échelle moléculaire, entre les molécules d'eau et les molécules de cellulose amorphe, de lignine et d'hémicellulose, qui amélioreraient la souplesse du réseau.

L'hypothèse avancée par les auteurs pour expliquer cette reprise de rigidité des fibres élémentaires de chanvre réside dans le réalignement de la cellulose cristalline suite à la relaxation de la matrice amorphe. En effet, des essais spécifiques réalisés pour suivre la rotation des microfibrilles sous chargement statique en humidité contrôlée ont montré une rotation d'environ 25° entre 10 et 80%HR pour les fibres de chanvre.

Afin de comprendre ce phénomène, les auteurs ont réalisé des essais dynamiques de sorption/désorption sous chargement cyclique (Figure 1-46). À 20% HR, les résultats ont montré une augmentation du module de conservation  $E'$  de 15% et une diminution du facteur d'amortissement d'environ 30%. Au passage de 20 à 70% HR, les auteurs ont observé une diminution du module de conservation  $E'$  et une augmentation du facteur d'amortissement, à des valeurs respectives de 1,2 GPa et 0,18%, suivi d'une reprise de rigidité inattendue (2,5 GPa) et une chute du facteur d'amortissement (0,06%) pour une humidité relative supérieure à 70% HR. Selon eux, jusqu'à cette valeur seuil d'humidité relative, l'adhérence à l'interface cellulose cristalline/biopolymères amorphes des parois cellulaires serait améliorée avant apparition du phénomène de plastification. L'augmentation de la déformation à la rupture jusqu'à 2,25% à 90%HR confirme d'ailleurs cette hypothèse.

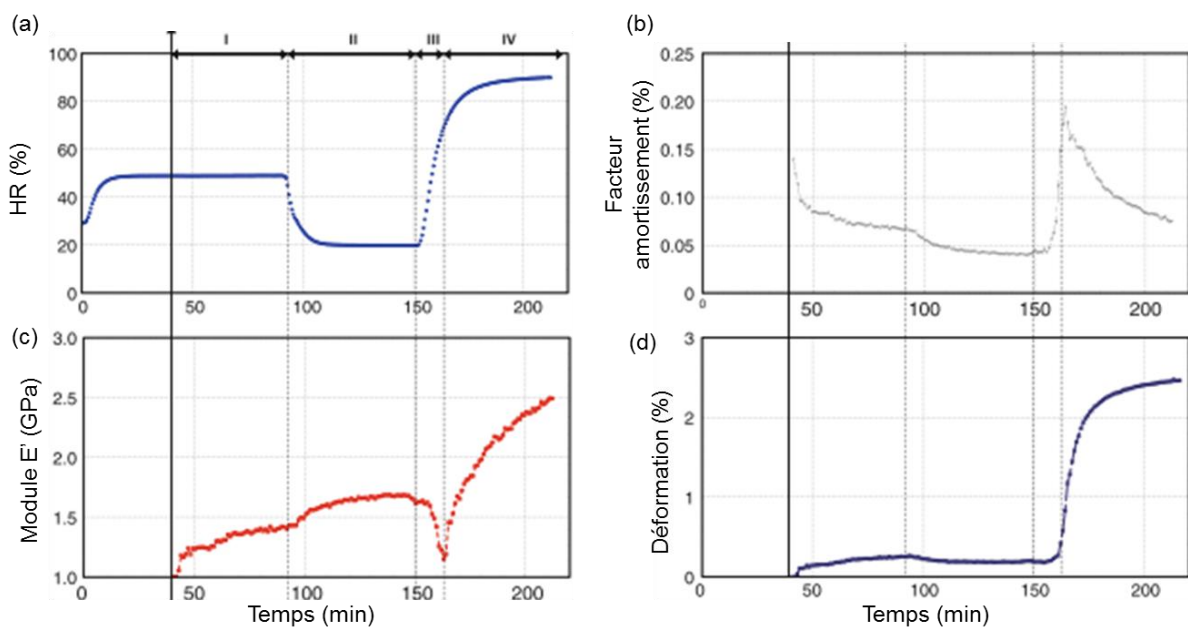
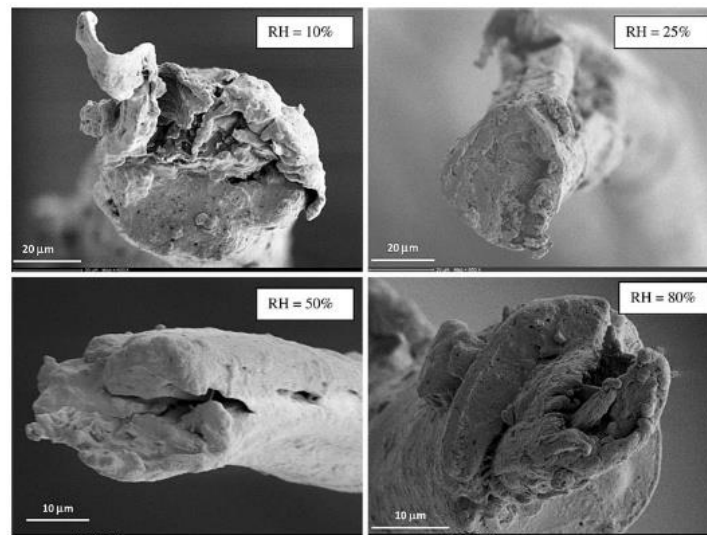


Figure 1-46 : Evolution (a) de l'HR, (b) du facteur d'amortissement, (c) du module de conservation  $E'$  et (d) de la déformation en fonction du temps de sorption/désorption sous chargement cyclique [50].

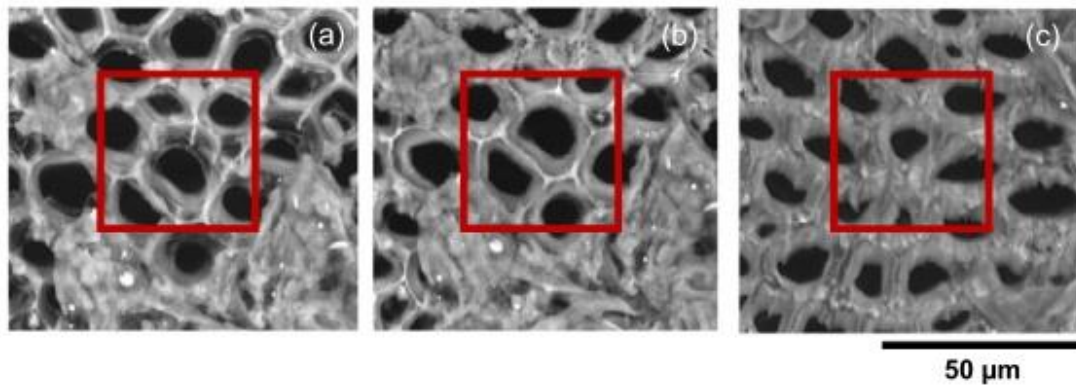
Les mécanismes de rupture ont également été analysés au MEB comme le montre la Figure 1-47. Les observations des faciès de rupture ont montré des ruptures plutôt fragiles pour des faibles taux d'humidité et des ruptures plutôt ductiles pour des taux d'humidité élevées. Concernant les fibres élémentaires de chanvre à 10% HR, les observations ont révélé des microfissures inter-laminaires à la surface de la fibre probablement responsables de la faible résistance à la traction à ce taux d'humidité relative. Le retrait d'eau a probablement engendré d'apparition de défauts.



**Figure 1-47: Faciès de rupture (essai de traction quasi statique) des fibres élémentaires de chanvre pour différentes humidités [50].**

Les résultats des essais dynamiques de sorption/désorption sous chargement cyclique mettent en avant la rapidité d'absorption et/ou de désorption des fibres végétales [50]. On notera par ailleurs que des cycles de séchage/réhydratation peuvent avoir un effet irréversible sur les propriétés mécaniques des fibres d'origine végétale [156]. Dans une étude de 2005, Baley *et al.* [156] ont montré que le séchage des fibres de lin avait une influence sur la résistance à la traction, entraînant une chute des propriétés mécaniques de 42% même après réhydratation. Selon eux, ces résultats s'expliquent par la création de dommages irréversibles dans la fibre et par la modification de la structure au sein des parois. Cette irréversibilité serait attribuée à la fermeture et/ou au rétrécissement des pores, appelée aussi processus d'hornification. Récemment, Ferreira *et al.* [161] ont étudié l'effet d'hornification sur la structure et les propriétés en traction des faisceaux de fibres de sisal et de jute. Ils ont observé une réduction des diamètres des lumens, respectivement de 15 et 17% après 10 cycles de mouillage/séchage (Figure 1-48). D'un point de vue mécanique, ils ont montré une chute de la rigidité de 20 à 18 GPa pour les faisceaux de fibres de sisal et de 44 à 38 GPa pour les faisceaux de fibres de jute.





**Figure 1-48 : Image MEB d'un faisceau de fibres de sisal en fonction du nombre de cycle de mouillage/séchage: (a) 0, (b) 5 et (c) 10 cycles [161].**

## CONCLUSION CHAPITRE 1

Ce chapitre a pour but de constituer l'état de l'art de ce manuscrit de thèse. Nous avons vu dans une première partie que les fibres végétales présentaient de nombreux avantages, à la fois économiques et mécaniques, pour être utilisées comme renfort dans les matériaux composites en substitution aux fibres de verre le plus souvent employées. Toutefois, cette substitution est un processus complexe, en raison du caractère naturel des fibres d'origine végétale, qui demande un fort approfondissement des connaissances actuelles.

De nombreux paramètres peuvent être à l'origine de la variabilité et d'autres peuvent influencer la dispersion des propriétés mécaniques des fibres végétales, comme :

- l'origine botanique des fibres d'origine végétale, qui a une influence sur leur composition biochimique et leur structure,

- l'estimation de l'aire de section transversale qui ne prend pas toujours en compte la réalité morphologique des fibres,

- la sensibilité aux conditions hydro/hygroscopiques, qui a un impact sur la stabilité dimensionnelle et sur la tenue mécanique,

- la méthode de caractérisation mécanique (longueur de jauge, vitesse de déplacement, compliance du système...), qui peut introduire un biais dans les mesures et participer à la dispersion des résultats,

- les procédés d'extraction (rouissage et extractions mécaniques) qui peuvent modifier la qualité et la composition biochimique de la fibre mais surtout engendrer l'apparition de défauts au sein de la structure.

Dans la suite des travaux de thèse, l'accent a été mis sur plusieurs paramètres et notamment sur la nécessité de tenir compte des caractéristiques morphologiques particulières des fibres végétales pour améliorer l'estimation de leurs propriétés mécaniques.

Dans un premier temps, le *CHAPITRE 3* propose une étude approfondie concernant la méthodologie de caractérisation de la morphologie des fibres végétales menée en lien avec l'origine botanique.

Puis, dans le 4<sup>ème</sup> chapitre de ce manuscrit (*CHAPITRE 4*), nous nous intéressons à évaluer l'influence que peut avoir le choix de la méthode appliquée pour estimer l'aire de section à partir de différentes hypothèses de forme de section (circulaire, elliptique...) sur la variation dimensionnelle et la dispersion

des propriétés mécaniques en traction. Puis, à partir d'une hypothèse de forme de section permettant de se rapprocher au mieux de la réalité morphologique, nous proposons une amélioration de la méthode d'évaluation des propriétés mécaniques des fibres végétales.

Enfin, dans le dernier chapitre (*CHAPITRE 5*), une analyse de la sensibilité des fibres végétales aux conditions hydro/hygroscopiques est proposée. L'effet de l'humidité sur la morphologie et sur le comportement mécanique des fibres végétales est étudié en lien avec leurs origines botaniques.

## **CHAPITRE 2**

### **Matériaux et méthodes**



## INTRODUCTION CHAPITRE 2

La première partie de ce chapitre présente les différents matériaux utilisés dans la thèse à savoir les différentes fibres végétales choisies. Dans cette étude, nous avons fait le choix de travailler sur les fibres techniques (ou faisceaux de fibres) car ce sont elles majoritairement qui sont employées pour la fabrication des biocomposites. La seconde partie concerne la présentation des méthodologies de caractérisation mises en place dans la thèse, à savoir le mode de préparation des échantillons de fibres végétales, les analyses dimensionnelles et l'étude du comportement mécanique en humidité contrôlée puis en immersion.

## PARTIE 1 PRÉSENTATION DES FIBRES VÉGÉTALES

### I. Des origines botaniques contrastées

Toutes les fibres végétales techniques ont été fournies par l'UMR Fractionnement des Agro-Ressources et Environnement (FARE) de l'INRA de Reims après avoir été caractérisées biochimiquement. Chaque fibre technique a été extraite de cinq espèces végétales phylogénétiquement et morphologiquement différentes, possédant chacune des fonctions différentes dans la plante [5,72,99] : les monocotylédones et les dicotylédones.

#### I.1. Les monocotylédones

Comme expliqué dans le *CHAPITRE 1*, les monocotylédones sont caractérisées par l'absence de bois secondaire, appelé aussi cambium. Fortement lignifiées, ces espèces végétales n'ont généralement qu'une simple fonction tissulaire ou de conduction au sein de la plante. Dans le cadre de la thèse, deux espèces monocotylédones ont été étudiées : le palmier et le sisal. Le Tableau 2-1 et le Tableau 2-2 en indiquent la teneur en lignine et en monosaccharide.

##### I.1.1. Le palmier

Les fibres techniques de palmier ou *Phoenix dactylifera* (Al-Ahsa, Arabie Saoudite) utilisées dans cette étude se présentent sous forme de tapis de graine foliaire entourant la tige et n'ont pas de fonction mécanique *in planta*. Ces fibres n'ayant subi aucune étape d'extraction, elles forment des fibres longues, relativement régulières et de diamètre compris entre 100 et 300  $\mu\text{m}$  (Figure 2-1).



**Figure 2-1 : Faisceaux de fibres de palmier (ou *Phoenix dactylifera*).**

##### I.1.2. Le sisal

Les fibres techniques de sisal ou *Agave sisalana* (FRD, Fibre Recherche Développement®, Troyes) employées dans cette étude ont été extraites des feuilles d'Agave par séparation mécanique simple. Elles forment des fibres longues, assez régulières et de diamètre également compris entre 100 et 300  $\mu\text{m}$  (Figure 2-2).



**Figure 2-2 : Faisceaux de fibres de sisal (ou *Agave sisalana*).**

### **1.2. Les dicotylédones**

Les dicotylédones sont caractérisées par la présence d'un cambium, bois secondaire permettant de garantir la stabilité mécanique. Faiblement lignifiés, ces fibres ont une fonction de support structurel de la tige dans la plante. Dans le cadre de la thèse, trois espèces dicotylédones ont été étudiées : le lin, et le chanvre en culture annuelle de fibres et l'ortie comme plante herbacée pérenne. Leurs teneurs en lignine et en monosaccharide sont données dans le Tableau 2-1 et le Tableau 2-2.

#### **1.2.1. Le lin**

Les fibres techniques de lin ou *Linum usitatissimum* (Alizée, Grandvilliers, Picardie, 2012) utilisées dans cette étude se présentent sous forme de filasse. Elles ont d'abord subi un rouissage qui permet de décomposer les ciments pectiques qui assurent le collage des fibres entre elles et avec le reste de la tige.

Une opération de teillage a permis ensuite, par battage mécanique, de séparer complètement les fibres de la tige. Elles forment un faisceau de fibres longues (assemblage de fibres élémentaires) et épaisses intimement unies entre elles pour former des faisceaux de fibres de diamètre compris entre 45 et 150  $\mu\text{m}$  (Figure 2-3).



**Figure 2-3 : Fibres techniques de lin (ou *Linum usitatissimum*).**

#### **1.2.2. Le chanvre**

Les fibres techniques de chanvre ou *Canabis sativa* (Fédora 17, Champagne Ardenne, 2012) se présentent sous forme de filasse et ont subi le rouissage et le teillage comme le lin. On les retrouve



sous forme de faisceaux de fibres longues et épaisses intimement unies entre elles pour former des faisceaux de fibres de diamètre compris entre 50 et 200  $\mu\text{m}$  (Figure 2-4).



**Figure 2-4 : Fibres techniques de chanvre (ou *Canabis sativa*).**

### I.2.3. L'ortie

Les fibres techniques d'ortie ou *Urtica dioica* (2014, Lorraine) présentent les mêmes caractéristiques que le lin. Nous sommes donc en présence de faisceaux de fibres longues, relativement fines et de diamètre compris entre 55 et 160  $\mu\text{m}$  (Figure 2-5).



**Figure 2-5 : Fibres techniques d'ortie (ou *Urtica dioica*).**

## II. Analyses biochimiques

L'objectif de ces analyses a été de déterminer la teneur en lignine et en monosaccharide des différentes espèces végétales. Les essais ont été réalisés au laboratoire Fractionnement des AgroRessources et Environnement (FARE) de l'INRA de Reims.

### II.1. Teneur en lignine de Klason

La détermination de la teneur en lignine a été réalisée selon la méthode de Klason, également décrite dans la norme TAPPI T222-om-02 [162]. Cette méthode consiste à mesurer le résidu acide restant après hydrolyse dans une solution d'acide sulfurique à 72%. Après filtration, le résidu est séché 4 heures à 500°C [163]. La lignine de Klason étant le seul composé insoluble, elle est facilement séparée. Le Tableau 2-1 en indique la teneur pour les cinq espèces végétales. On peut souligner la forte teneur en lignine des faisceaux de fibres de palmier et de sisal comparée aux faisceaux de fibres libériennes de chanvre, de lin et d'ortie.

**Tableau 2-1 : Teneur en lignine selon la méthode de Klason.**

Espèce végétale	Lignine (%)
Palmier	16,2 ± 0,3
Sisal	9,3 ± 0,1
Chanvre	4,7 ± 0,3
Ortie	4,6 ± 0,2
Lin	3,7 ± 0,3

### II.2. Teneur en monosaccharides

L'identification et la quantification de chaque monosaccharide a été déterminée par analyse chromatographique en phase liquide à haute performance (HPLC). C'est une méthode séparative qui permet d'identifier et de doser différents composés au sein d'un mélange. 5 à 10 mg de matière ont été cryo-broyés pour éviter l'échauffement avant hydrolyse. Les analyses ont été effectuées en utilisant des concentrations standards de glucides neutres comme étalon interne pour quantifier chaque monomère comme : le glucose (Glc), l'acide galacturonique et glucuronique (GalA et GlcA), le rhamnose (Rha), le galactose (Gal), le xylose (Xyl), le mannose (Man), l'arabinose (Ara) et le fucose (Fuc).

La teneur en monosaccharide est donnée dans le Tableau 2-2. La quantité cellulosique a été estimée en faisant l'hypothèse qu'elle est entièrement représentée par le glucose et que les autres monomères représentent la quantité non-cellulosique.

**Tableau 2-2 : Teneur en monosaccharide des cinq espèces végétales.**

Espèces	Non-cellulosique (%_sec)	Cellulosique (%_sec)	Autres (pectine, cires, cendres...) (%_sec)
Palmier	27,7 ± 4,9	45,1 ± 3,4	8
Sisal	23,3 ± 2,1	60,1 ± 1,2	8
Lin	9,9 ± 3,9	64,9 ± 2,9	21
Ortie	9,9 ± 1,2	51,7 ± 0,9	33
Chanvre	9,8 ± 1,8	68,8 ± 1,3	16

## PARTIE 2 MÉTHODOLOGIES DE CARACTÉRISATION DES FIBRES VÉGÉTALES

Toute la partie expérimentale présentée ci-dessous, de la préparation des échantillons aux essais mécaniques, s'est déroulée dans une pièce régulée en température et en humidité (23°C et 50%RH).

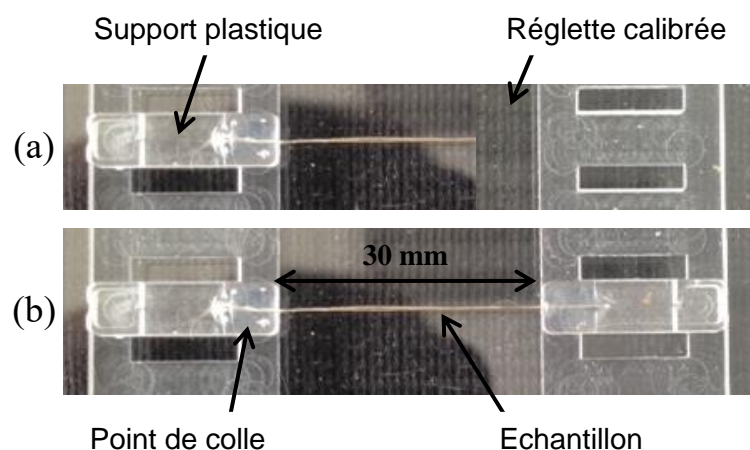
Pour la suite de la compréhension, ces conditions hydrothermiques constituent les conditions standards de cette étude.

### I. Préparation des échantillons

La préparation des échantillons suit un protocole identique à celui décrit dans la norme NF T25-501 [85]. Chaque faisceau de fibres est délicatement coupé à l'aide d'un scalpel, puis positionnée manuellement sur une languette en plastique avant d'y être collée. Il existe deux méthodes de préparation des échantillons :

- La première consiste à coller la fibre technique sur une de ses extrémités et de laisser l'autre libre (Figure 2-6(a)). Ce type de préparation sera utilisé dans le *CHAPITRE 3*.
- La seconde consiste à coller la fibre technique à ses deux extrémités (Figure 2-6(b)). Elle sera employée dans le *CHAPITRE 4* et le *CHAPITRE 5*.

On utilise pour le collage une colle époxy basée sur la photopolymérisation (DYMAX, Wiesbaden, Allemagne). La photopolymérisation est réalisée grâce à une source lumineuse pE-100 (CoolLED Ltd., Andover, Royaume-Uni) de longueur d'onde 400 nm, pour un temps d'exposition de 10 s à une puissance lumineuse de 30%. Cette technique de préparation a déjà été utilisée par Haag et Müssig [70].



**Figure 2-6 : Montage d'une fibre végétale sur les supports plastique.**

Ce montage a également pour objectif de faciliter la manipulation des échantillons entre les équipements. De plus, il est possible d'ajuster la longueur utile du faisceau à tester grâce à plusieurs

réglées de différentes longueurs : 4, 12, 20 et 30 mm. A noter qu'avant tout préparatif expérimental, les échantillons ont été conditionnés pendant 13 heures à une température de 23 °C et une humidité de 50%HR.

## II. Les méthodes de caractérisations des fibres techniques

### II.1. Analyse de la morphologie des faisceaux de fibres végétales

Après avoir isolé et préparé les fibres techniques, une analyse dimensionnelle détaillée a été réalisée. Comme nous avons pu voir dans le chapitre bibliographique, les méthodes utilisées à l'heure actuelle ne permettent pas de revendiquer un niveau de performance maîtrisé et constant. C'est pourquoi, une méthodologie de caractérisation des variations dimensionnelles des cinq espèces végétales a été mise en place au cours de cette thèse, en comparant une méthode automatisée par balayage laser déjà utilisée par Haag et Müssig [70] et une méthode par observations microscopiques utilisée par Thomason *et al.* [53].

#### II.1.1. Balayage laser automatisé

La méthode de mesure automatisée par balayage laser utilise le dispositif FDAS-770 (« Fibre Dimensional Analysis System ») contrôlé par un logiciel d'acquisition UvWin 3.60 (Diastron Ltd., Hampshire, Royaume-Uni). Cet appareil, initialement conçu pour l'industrie capillaire, a été utilisé pour mesurer les dimensions transversales apparentes des fibres techniques étudiées.

Grâce à un système de mesure laser de haute précision (LSM 500S, Mitutoyo, Japon), le dispositif FDAS-770 offre une résolution de mesure de 0,01  $\mu\text{m}$ . Son principe de fonctionnement est simple. Un système pneumatique maintient les fibres techniques, préalablement fixées sur les languettes en plastique (Figure 2-6), sur le dispositif FDAS. Lors de l'essai, la fibre technique tourne et translate devant un laser (Figure 2-7). Chaque balayage rotatif de 360° permet de mesurer, pour une section du faisceau, jusqu'à 600 valeurs de diamètre apparent. Après chaque rotation, le dispositif translate d'un pas imposé pour mesurer les dimensions apparentes transversales d'une nouvelle section.

Il est important de souligner que le dispositif FDAS fonctionne sur le principe de la mesure par ombroscopie laser. Par conséquent, les zones concaves ne peuvent pas être mesurées et une fibrillation du faisceau peut également impacter la mesure du laser et ainsi surestimer la section réelle.

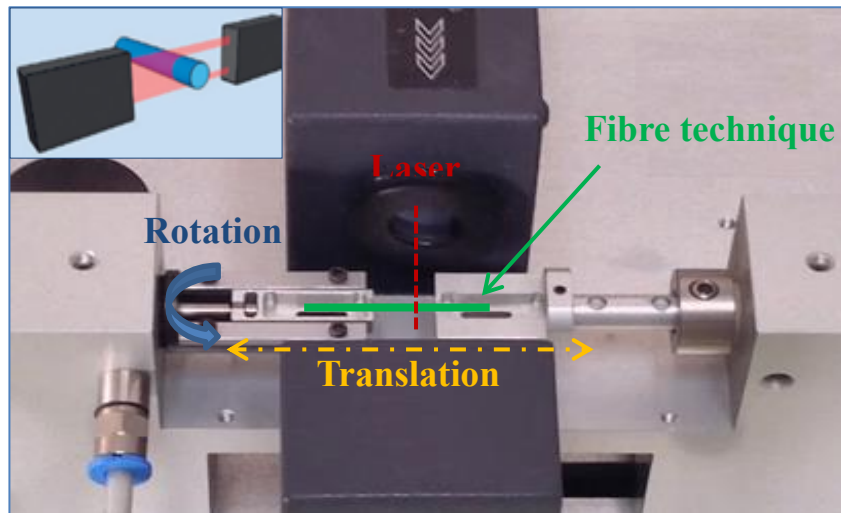


Figure 2-7 : Principe de fonctionnement du FDAS-770 (Diastron Ltd., Hampshire, Royaume-Uni).

Le nombre de sections est fonction de la longueur utile de la fibre technique et du pas imposé. Dès lors, on peut déduire pour chaque section transversale et ce le long du faisceau de fibres des dimensions transversales apparentes telles que les diamètres maximum, minimum et moyen comme le montre la Figure 2-8. Ces valeurs dimensionnelles transverses constituent une base expérimentale à exploiter afin de déterminer l'aire de section transversale de la fibre.

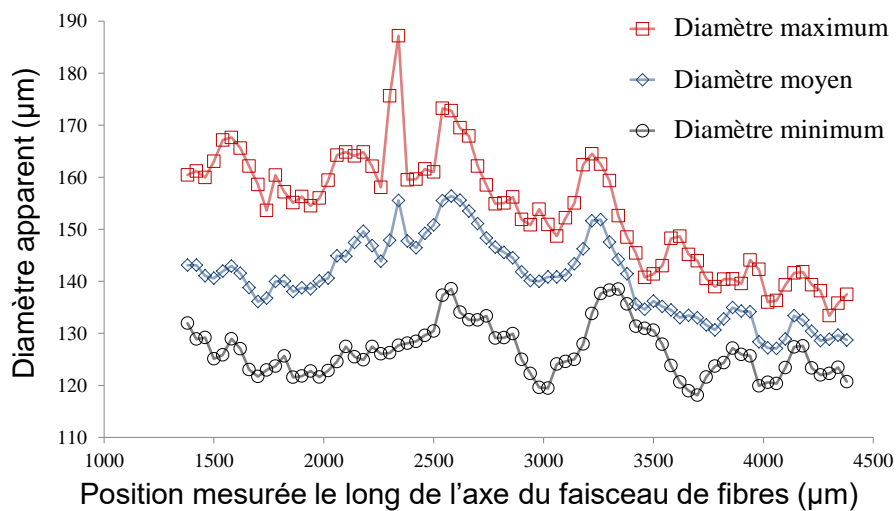


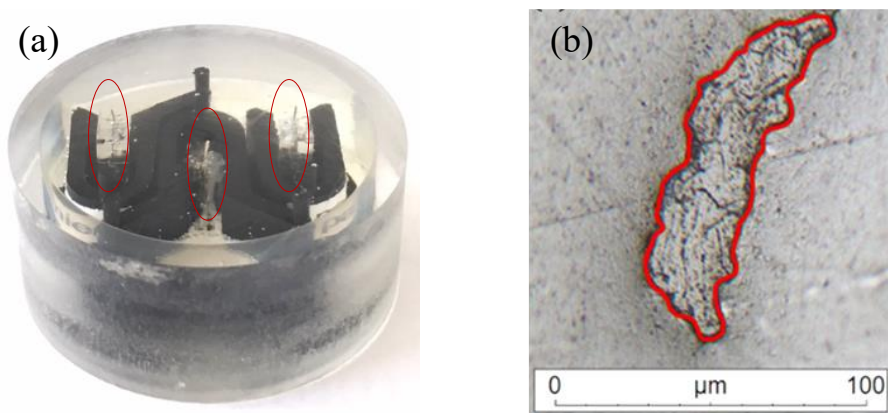
Figure 2-8 : Evolution des diamètres apparents maximum, minimum et moyen le long du profil de la fibre technique mesurés au FDAS.

### II.1.2. Observation microscopique

Afin d'éviter de dégrader les échantillons lors des observations comme cela peut être le cas par microscopie électronique à balayage environnemental, mais aussi pour un confort de manipulation, il a été choisi d'effectuer les observations sous microscope optique en mode réflexion (Leica Laborlux 12 POL S équipé d'un appareil photo numérique mono-CDD Sony 1600 x 1200 pixels). L'analyse de la section transversale par microscopie optique s'est appliquée aux faisceaux de fibres préalablement

analysés au FDAS selon la configuration « single-ended ». Pour cela, 60 faisceaux (12 pour chaque espèce végétale) ont été plongés verticalement dans un tampon de résine époxyde transparente de type Geofix® (ESCIL, Chassieu, France) spécialement formulée pour imprégner des échantillons (grande fluidité et faible retrait) avec un temps de durcissement, à température ambiante, de 24 heures (Figure 2-9(a)) [53].

La position verticale le long des faisceaux de fibres à l'intérieur du tampon de résine a été déterminée avec précision pour que les sections mesurées, propre à chaque coupes transversales observées par microscopie optique, puissent être directement comparées une à une avec les sections mesurées par balayage laser automatisé.



**Figure 2-9 : (a) 3 faisceaux de fibres inclus verticalement dans un tampon de résine époxyde et (b) tracé manuel du contour d'une section transversale.**

Chaque support contient 3 fibres techniques (Figure 2-9(a)). Ils ont été ponçés graduellement de façon à observer une section tous les 300 µm. Pour cela, une machine de polissage GEOPOL (PRESI, Eybens, France) (Figure 2-10) à vitesse variable et plateau tournant a été employée et une procédure de 12 séquences de polissage (Tableau 2-3) utilisant différents papiers abrasifs [53] humidifiés avec de l'éthanol a été mise en place. Enfin, une finition au feutre ALD diamant extrêmement fin (0,1 µm) a permis d'enlever les dernières traces de polissage et d'assurer une qualité d'observation de la section polie optimale.



**Figure 2-10 : Machine de polissage GEOPOL (PRESI, Eybens, France).**

**Tableau 2-3 : Séquences de polissage des tampons de résine contenant les faisceaux de fibres.**

Séquences de polissage	Papier abrasif (grammage)	Temps (s)	Nombre d'opération	Ethanol (oui/non)
1	600	30	1	Oui
2	2400	30	2	Oui
3	4000	60	4	Oui
4	Feutre ALD diamant (0,1 µm)	60	5	non

Après chaque séquence de polissage, la section transversale de chaque faisceau de fibres a été observée sous microscope optique [53]. Le contour de la fibre technique a été tracé manuellement et ainsi une aire de section transversale a pu être calculée (Figure 2-9(b)) grâce au logiciel d'acquisition et de traitement d'images Archimede® (Microvision Instruments, France).

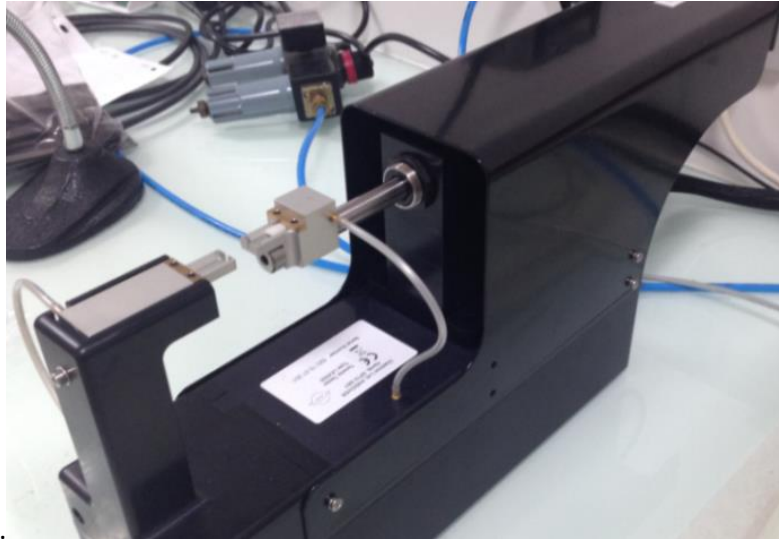
La méthodologie de caractérisation des dimensions transversales est décrite plus en détail dans le *CHAPITRE 3 : « Analyses dimensionnelles détaillées de 5 espèces végétales phylogénétiquement et morphologiquement différenciées »*.

### III. Analyse du comportement mécanique des fibres techniques

#### III.1. Essai de micro-traction

A la suite des analyses dimensionnelles des fibres techniques avec la configuration « double-ended », le comportement mécanique en traction a été étudié. Pour rappel, 20 fibres techniques de longueur 30 mm ont été testées pour chaque espèce végétale.

Un banc de micro-traction LEX-810 (« Linear EXtensometer ») contrôlé par un logiciel d'acquisition UvWin 3.60 (Diastron Ltd., Hampshire, Royaume-Uni), déjà employé par Haag et Müssig [70], a été utilisé. Cet appareil dispose d'une cellule de force de 20N sur une gamme de longueur de jauge allant de 4 à 50 mm (Figure 2-11). Dans notre étude, une vitesse de déplacement de 1,2 mm/min et une précharge de 20 mN ont été choisies afin d'être sûr de ne pas avoir de jeu et que la fibre soit bien tendue au début de l'essai. Les essais ont été menés jusqu'à rupture. Les fibres techniques n'ayant pas atteint la rupture (le seuil de la cellule de force étant fixé à 16N) ou ayant rompu dans les supports de fixation ont été écartées des résultats.



**Figure 2-11 : Banc de micro-traction LEX-810 (Diastron Ltd., Hampshire, Royaume-Uni).**

Le Tableau 2-4 reprend les principales caractéristiques pour la réalisation des essais de micro-traction. Les essais ont été réalisés selon la norme NFT 25-501 [85] qui tient compte de la compliance du système. Pour déterminer cette valeur de compliance, la méthode de corrélation d'image numérique, déjà employée par Poilâne *et al.* [84], a été utilisée. Cette technique permet de mesurer le champ de déformation local des faisceaux de fibres végétales et de le comparer au champ de déformation global donné par le dispositif de micro-traction (LEX).

**Tableau 2-4 : Caractéristiques des essais de micro-traction.**

Paramètres	
Capacité de la cellule de force (N)	20
Vitesse de déplacement (mm/s)	0,02
Précharge (mN)	20
Longueur de jauge (mm)	30
Température (°C)	23
Humidité (%HR)	Paliers variables

Les résultats ont donné une valeur de compliance moyenne notée «  $C_m$  » de 0,015835 mm/N qui a été désormais introduite dans l'équation 7 et l'équation 8 afin de tenir compte de la souplesse du système et ainsi corriger les valeurs de module et de déformation à la rupture.

$$\frac{1}{E} = \frac{1}{E'} - \left( \frac{S_0}{L_0} * C_m \right) \quad (\text{Eq. 7})$$



$$\varepsilon = \varepsilon' - \left( C_m * \frac{F}{L_0} \right) \quad (\text{Eq. 8})$$

avec, E le module corrigé en (MPa), E' le module apparent mesuré (en MPa), S<sub>0</sub> la section transversale du faisceau (en mm<sup>2</sup>), L<sub>0</sub> la longueur initiale (en mm), C<sub>m</sub> la compliance du système soit 0,015835 (en mm/N), ε la déformation de la fibre (en %), ε' la déformation apparente mesurée (en %) et F la force à rupture (en N).

La démarche permettant de remonter à la valeur de la compliance du système est donnée dans le CHAPITRE 4 : « Etude du comportement en traction des fibres végétales et analyse de la dispersion des propriétés mécaniques »

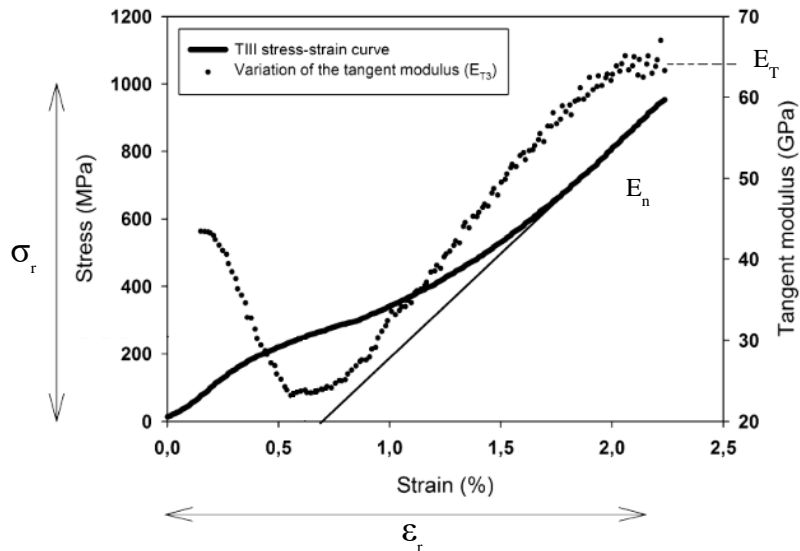
### III.2. Détermination des propriétés mécaniques en traction

Dans le cadre de la thèse, nous nous sommes appuyés sur les travaux de Lefeuvre *et al.* [39] pour déterminer les propriétés mécaniques en traction des faisceaux de fibres végétales. Ainsi, le comportement non-linéaire, lors d'un essai de traction, permet de déterminer un module tangent ultime noté « E<sub>T</sub> », ainsi qu'une résistance à la traction notée « σ<sub>r</sub> » et une déformation à la rupture notée « ε<sub>r</sub> » (Figure 2-12). Selon ces mêmes auteurs, les valeurs de module élastique calculées à partir de la norme NF T25-501 [85] et les valeurs de module tangent ultime sont relativement proches, avec un écart de l'ordre de 3,5%.

Les propriétés mécaniques des faisceaux de fibres utilisés dans la thèse, ont été calculées selon cette même méthodologie. Pour cela, un module tangent ultime, une résistance à la traction et une déformation à la rupture ont été déterminés. La notation de ces grandeurs caractéristiques employées dans la suite du rapport est résumée dans le Tableau 2-5.

**Tableau 2-5 : Grandeurs caractéristiques des essais de micro-traction.**

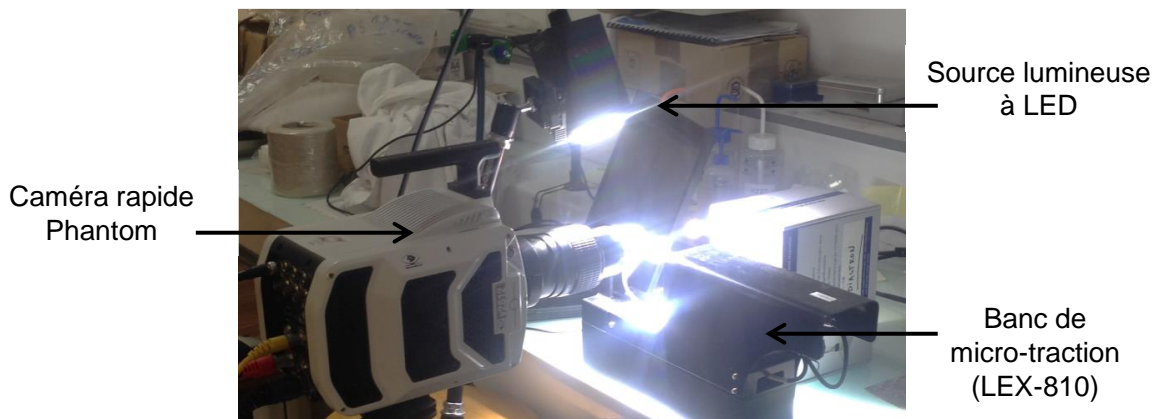
Paramètres	
Module tangent ultime (GPa)	E <sub>T</sub>
Déformation à rupture (%)	ε <sub>r</sub>
Résistance à la rupture (MPa)	σ <sub>r</sub>



**Figure 2-12 : Courbe contrainte/déformation obtenue lors d'un essai de traction sur fibre élémentaire et évolution du module tangent associé [39].**

### III.3. Observation du mode de rupture

Une caméra rapide Phantom V2512, équipée d'un objectif Canon MacroMPE65 X5, a permis d'observer les mécanismes de rupture des fibres techniques. Elle permet une distance de travail de 41 mm et une région d'observation intéressante (ROI) de 7 x 4,5 mm<sup>2</sup> (Figure 2-13) sur des fibres techniques de longueur 4 mm.



**Figure 2-13 : Photo du montage des essais en caméra rapide Phantom.**

Deux types de configuration ont été testés :

- La première permet l'observation de l'intégralité de l'essai de traction, de la mise sous tension des fibres techniques jusqu'à leur rupture. Une résolution de 1024x192 permettant une acquisition de 5000 fps (images par seconde) a été choisie.
- La seconde permet l'observation de la rupture des fibres techniques pour une résolution de 768x480 permettant de faire une acquisition de 30000 fps. La caméra rapide dotée d'une mémoire tournante (enregistrement en continu) et d'un déclencheur manuel d'acquisition

permet, grâce à ce dernier, placé en fin de mémoire tournante, de remonter au moment précédant la rupture.

#### IV. Analyse des variations dimensionnelles et du comportement mécanique des fibres techniques en environnement humide

L'objectif de ces essais *in situ* par régulation hydro/hygrothermique contrôlée est de pouvoir analyser l'influence de l'humidité sur la morphologie et sur le comportement mécanique des fibres techniques. En effet, la sensibilité des fibres végétales aux variations d'humidité a un impact important sur les propriétés d'usage des biocomposites et sur leur durabilité [80,81,156,158,164].

##### IV.1. Teneur en eau en phase vapeur (« Dynamic Vapor Sorption »)

La détermination des isothermes d'adsorption et de désorption des fibres végétales a été réalisée par analyse gravimétrique. Dans le cadre de la thèse, c'est la méthode dynamique utilisant un appareillage DVS (Dynamic Vapor Sorption) qui a été employée. Elle permet de mesurer la variation de masse d'un échantillon en fonction de la pression de vapeur d'eau. Ces essais ont également été réalisés au laboratoire Fractionnement des AgroRessources et Environnement (FARE) de l'INRA de Reims, sur une plage d'humidité relative comprise entre 0 et 90% HR, à un intervalle de 10% avec une quantité de matière d'environ 5 mg.

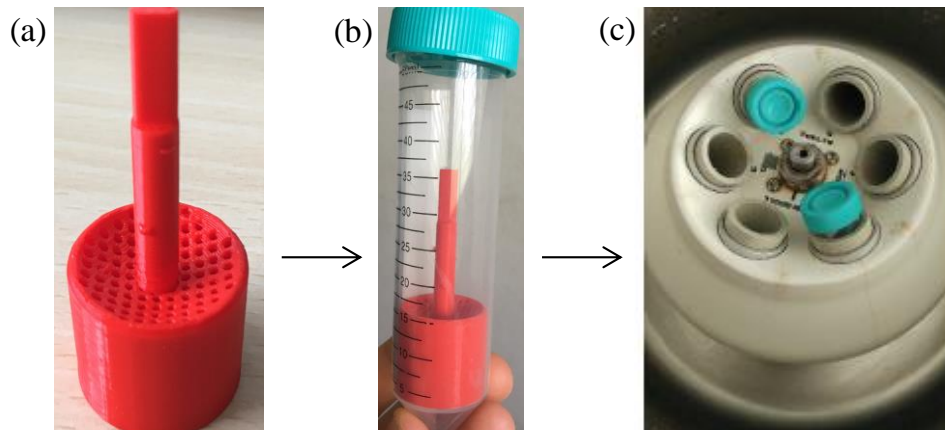
##### IV.2. Teneur en eau en immersion (« Water Retention Value »)

Une méthode par centrifugation a été modifiée et adaptée pour être appliquée à l'évaluation de la valeur de rétention d'eau (WRV) conformément à la norme ISO 23714 [108]. Elle permet, pour chacune des cinq espèces végétales, de déterminer la teneur en eau dans des conditions d'immersion (100% HR). Les tamis, employés pour la filtration, ont été fabriqués en PLA par impression 3D (modèle A4v3, société 3ntr, Italie) comme le montre la Figure 2-14(a) avant d'être placés dans des tubes à centrifuger (Figure 2-14(b)). Pour chaque espèce végétale, 3 échantillons ont été testés. Lors d'un essai, les faisceaux de fibres (masse moyenne : 0,3g) sont immergés dans de l'eau déionisée pendant 5 minutes à 23°C puis placés dans le tube pour être centrifugés pendant 30 minutes (Figure 2-14(c)). La force centrifuge relative (RCF) définie dans la norme tient compte essentiellement du rayon de centrifugation et de la vitesse de centrifugation. Avec un RCF standard de 3000 g, la vitesse de rotation a été fixée à 5175 tr/min selon l'équation 9. Pour finir, les teneurs en eau en immersion (WRV) ont été déterminées à partir d'essais thermogravimétriques réalisés pendant 10 min à 105 ° C à partir d'un dessiccateur d'humidité IR Sartorius-MA160 (GROSSERON SAS, Coueron, France) et calculées à partir de l'équation 10.

$$RCF(g) = 1.18 \times 10^{-5} \times N^2 \times r \quad (\text{Eq. 9})$$

$$WRV(\%) = \frac{M_i - M_s}{M_s} \times 100\% \quad (\text{Eq. 10})$$

avec,  $M_i$  la masse des fibres après immersion et centrifugation (en g),  $M_s$  la masse anhydre des fibres (en g),  $N$  la vitesse de rotation (en tr/min) et  $r$  le rayon de centrifugation (en cm) entre le centre de la centrifugeuse et l'échantillon (soit 10 cm dans cette étude).



**Figure 2-14 : (a) tamis en impression 3D, (b) tamis positionné dans le tube à centrifuger et (c) tubes à centrifuger placés dans la centrifugeuse.**

### **IV.3. Analyse en conditions hygrothermiques**

Pour analyser la morphologie et le comportement mécanique des fibres techniques pour différentes conditions hygrothermiques, les équipements de caractérisation dimensionnelle (FDAS-770) et mécanique (LEX-810) ont été placés dans une chambre climatique régulée (Figure 2-15) de la société ETS (Electro-Tech Systems Inc, Pennsylvania, USA). C'est une enceinte étanche (type « boîte à gants ») qui permet de travailler en atmosphère contrôlée (humidité et température). Dans le cadre de la thèse, différents taux d'humidité relative (%RH) : 20, 50 et 73%RH, ont été choisis de manière à pouvoir observer plus largement l'influence des conditions hygrothermiques sur le comportement des fibres techniques. La température a été fixée à 23°C. Elle a été choisie à l'aide du diagramme de Mollier pour éviter toute condensation quelle que soit la teneur en humidité relative testée (inférieure au point de rosée).

L'analyse en conditions hygrothermiques des fibres végétales a permis de suivre le gonflement apparent d'un même faisceau de fibres pour les différentes humidités relatives à partir de l'équation 11.

$$G_{\text{section}} (\%) = \frac{S_i - S_0}{S_0} \quad (\text{Eq. 11})$$

avec,  $G_{\text{section}}$  le gonflement de la section transversale(en %),  $S_i$  l'aire de section pour une humidité donnée (en  $\mu\text{m}^2$ ) et  $S_0$  l'aire de section initiale (en  $\mu\text{m}^2$ , à 50% HR).



Figure 2-15 : Enceinte étanche régulée en humidité et en température (Electro-Tech Systems Inc, Pennsylvania, USA).

#### IV.4. Analyse en conditions hydrothermiques

L'immersion des fibres techniques s'est faite grâce à l'utilisation d'un module de gonflement adapté au dispositif de mesure morphologique par balayage laser (FDAS-770). Ce module se compose d'une cellule d'immersion DSM-770 (Diastron Ltd., Hampshire, Royaume-Uni) spécifiquement conçue pour suivre le gonflement des fibres dans l'eau. Les essais, en configuration « double-ended », ont été réalisés en environnement contrôlé standard : 23°C et 50%RH. Le principe de fonctionnement est relativement simple. La cellule est fendue sur sa longueur (Figure 2-16(a)) pour permettre le passage du faisceau de fibres (le diamètre maximum à ne pas dépasser est de 400 $\mu\text{m}$ ), et est ajourée en son centre pour permettre le passage du laser. Quatre vis permettent son maintien sur le dispositif FDAS (Figure 2-16(b)) et un coating hydrophobe recouvre la cellule afin de contenir l'eau pendant les essais. Lors de l'essai, la fibre tourne devant le laser sans qu'aucune translation ne soit possible, c'est-à-dire que le suivi gonflement s'effectue sur une seule section du faisceau de fibres (i.e. une seule position longitudinale).

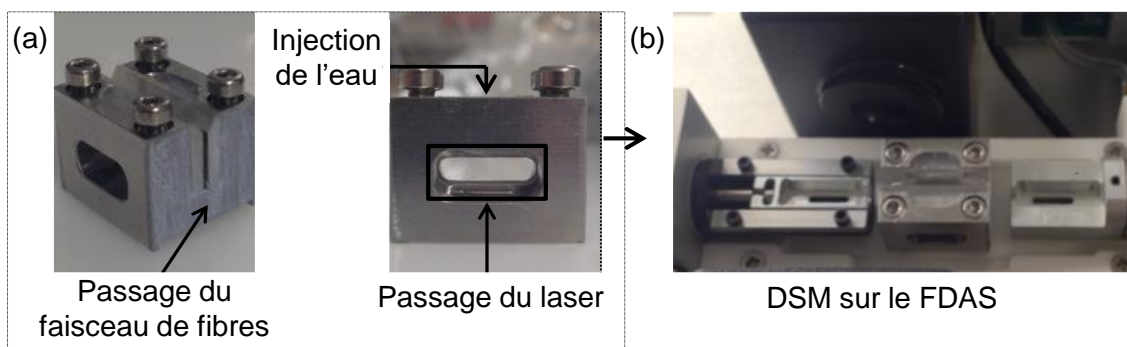
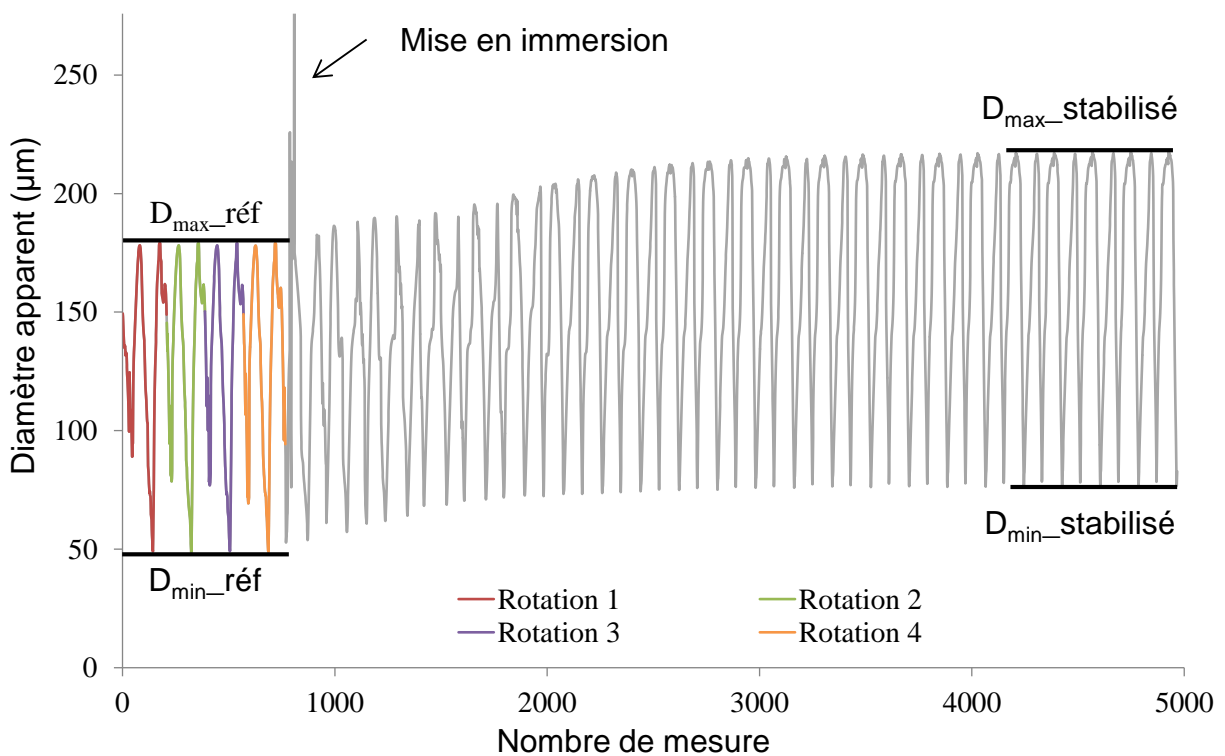


Figure 2-16 : Cellule d'immersion DSM-770 (Diastron Ltd., Hampshire, Royaume-Uni).

Un protocole de suivi du gonflement adapté aux faisceaux de fibres étudiés a été mis spécifiquement en place. Ne connaissant pas la cinétique de gonflement (temps avant saturation en eau), le nombre de rotation a été fixé à 30. Comme le montre la Figure 2-17, les 4 premières rotations se font à sec, ce qui permet de déterminer les dimensions initiales de la section et notamment le diamètre maximum noté «  $D_{\max}$  » et le diamètre minimum notée «  $D_{\min}$  ». Puis, l'eau est injectée manuellement à l'aide d'une pipette au début de la 5<sup>ème</sup> rotation afin de suivre le gonflement apparent de la section du faisceau de fibres sur les 25 dernières rotations. Il est intéressant de noter la présence d'un pic caractéristique lors de l'injection de l'eau.



**Figure 2-17 : Evolution du diamètre apparent transverse en immersion à 23°C.**

On observe au cours des 25 rotations qui suivent la mise en immersion, une évolution des diamètres apparents maximum et minimum jusqu'à des valeurs stabilisées après immersion, noté «  $D_{\max\_immersion}$  » et «  $D_{\min\_immersion}$  ». C'est cet accroissement des diamètres maximum et minimum (Eq. 12 et Eq. 13) qui sera utilisé pour déterminer le gonflement apparent de la section transversale en immersion (Eq. 14).

$$G_{dmax} (\%) = \frac{D_{max\_immersion} - D_{max}}{D_{max}} \quad (\text{Eq. 12})$$

$$G_{dmin} (\%) = \frac{D_{min\_immersion} - D_{min}}{D_{min}} \quad (\text{Eq. 13})$$

$$G (\%) = \frac{S_{immersion} - S_0}{S_0} \quad (\text{Eq. 14})$$

avec,  $G_{dmax}$  et  $G_{dmin}$  les accroissements des diamètres maximum et minimum (en %),  $D_{max\_immersion}$  le diamètre maximum après immersion (en  $\mu\text{m}$ ),  $D_{min\_immersion}$  le diamètre minimum après immersion (en  $\mu\text{m}$ ),  $D_{max}$  et  $D_{min}$  les diamètres maximum et minimum initiaux (en  $\mu\text{m}$ , à 50% HR),  $G$  le gonflement de la section transversale,  $S_{immersion}$  l'aire de section après immersion (en  $\mu\text{m}^2$ ) et  $S_0$  l'aire de section initiale (en  $\mu\text{m}^2$ , à 50% HR).

## **CHAPITRE 3**

**Analyse des variations morphométriques des  
fibres végétales par balayage  
laser automatisé : vers une évaluation  
efficace et fiable de l'aire de la section**





## PRÉAMBULE CHAPITRE 3

Afin de pouvoir contrôler, modéliser et prédire le comportement mécanique des biocomposites, il est essentiel d'avoir une connaissance approfondie des caractéristiques morphologiques des fibres végétales. En effet, Haag et Müssig [70] ont établi un lien entre la dispersion des propriétés en traction relevée dans la littérature pour des faisceaux de fibres de lin et la variété des méthodes utilisées pour déterminer leurs dimensions transversales. Ce *CHAPITRE 3* s'intéresse donc aux caractéristiques morphologiques des fibres végétales et à leurs méthodes de mesure. De grandes variations dimensionnelles sont observées, qui dépendent fortement de l'origine botanique ainsi que des processus d'extraction des fibres végétales (cf. *CHAPITRE 1*). A l'heure actuelle, les méthodes de mesure usuelles des dimensions transversales des fibres sont peu adaptées à l'irrégularité dimensionnelle des fibres végétales et, de plus, le calcul de l'aire de section qui en découle est généralement basé sur des hypothèses de forme qui ne tiennent pas compte de leur réalité morphologique. En général, ces hypothèses ne tiennent compte ni de la non-circularité de la section, ni de son irrégularité sur la longueur. Haag et Müssig [70] ont ainsi montré que le choix de la méthode appliquée pour estimer l'aire de section, à partir de différentes hypothèses de forme de section (circulaire, elliptique ou elliptique corrigée), peut induire jusqu'à 300% d'écart dans les valeurs de résistance à la traction et donc de modules. Ainsi, il existe un fort besoin d'amélioration et de standardisation des méthodologies de caractérisation dimensionnelle et mécanique des fibres végétales.

La publication 1 intitulée « Analysis of the morphometric variations in natural fibres by automated laser scanning: towards an efficient and reliable assessment of the cross-sectional area », publiée dans la revue internationale « Composites Part A » en 2018 [100], présente l'analyse dimensionnelle détaillée de 5 espèces de fibres végétales phylogénétiquement et morphologiquement différentes. La méthodologie de mesure et de calcul proposée dans cet article repose sur la confrontation des résultats obtenus par deux approches expérimentales très différentes, à savoir : l'observation directe par microscopie optique des sections et une technique d'ombroscopie latérale par balayage laser automatisé. Les résultats de ces travaux ont permis d'établir une corrélation entre la morphologie des fibres étudiées et le groupe végétal auquel l'espèce correspondante appartient. Les monocotylédones, comme le sisal et le palmier, présentent une section transversale régulière avec peu de variation sur la longueur tandis que les dicotylédones, comme les fibres libériennes (lin, chanvre, ortie), montrent une plus forte variation dimensionnelle longitudinale ainsi qu'une forte irrégularité de section. Cette hétérogénéité dimensionnelle au sein des espèces végétales a par ailleurs été mise en évidence par l'utilisation d'un facteur de forme de section transversale défini comme le ratio du diamètre maximum

sur le diamètre minimum (pour chaque section mesurée). Simple et rapide à calculer, ce facteur de forme s'avère être un bon indicateur de la circularité des sections pour les fibres étudiées. Sur la base de ces résultats et à partir des mesures de diamètres par balayage laser, deux modèles géométriques ont été appliqués pour calculer l'aire de section transversale : circulaire et elliptique. Toutefois, la mesure des dimensions transverses des fibres végétales par balayage laser n'est pas exempte de difficultés. En effet, les valeurs des diamètres maximum et minimum peuvent être faussées par le possible désenchevêtrement local des fibres végétales. Une méthode de filtrage comme post-traitement des données a été implémentée afin de corriger cet éventuel biais de mesure et un modèle elliptique filtré a été développé. Les résultats ont montré, pour les faisceaux de fibres de palmier et de sisal, que l'aire de section peut être évaluée de manière satisfaisante à partir d'un modèle circulaire. En revanche, pour les faisceaux de lin, de chanvre et d'ortie, l'hypothèse d'une géométrie de section circulaire n'est pas adaptée. Celle-ci tend à surestimer de manière significative l'aire de la section transversale comparée au modèle elliptique filtré.

## **PARTIE 1 RÉSUMÉ EN FRANÇAIS**

Le développement des fibres végétales dans les applications d'ingénierie nécessite une évaluation fiable et précise de leurs caractéristiques dimensionnelles et de leurs propriétés mécaniques. La section transversale des fibres (CSA) obtenue à partir des mesures dimensionnelles latérales doit tenir compte de la forme transversale spécifique des fibres végétales et de ses variations morphométriques longitudinales. Dans cette étude, une analyse dimensionnelle détaillée a été effectuée sur un panel de fibres végétales sélectionnées, possédant des caractéristiques morphométriques contrastées et appartenant à diverses espèces végétales phylogénétiques associées à des fonctions dissemblables *in planta*. Une technique de balayage laser automatisé a été utilisée ; des modèles géométriques et une méthode de filtrage des données ont été développés pour fiabiliser le calcul des aires de section transversale adapté à chaque espèce de fibre végétale. Les résultats montrent que les aires de section transversale des faisceaux de fibres de palmier et de sisal peuvent être évaluées de manière satisfaisante par un modèle circulaire avec un traitement statistique minimal, tandis que les faisceaux de chanvre, de lin et d'ortie nécessitent un filtrage spécifique des données.

**Article publié dans Composites Part A 108 (2018) 114-123**

**DOI: 10.1016/j.compositesa.2018.02.018**

# PARTIE 2 ANALYSIS OF THE MORPHOMETRIC VARIATIONS IN NATURAL FIBRES BY AUTOMATED LASER SCANNING: TOWARDS AN EFFICIENT AND RELIABLE ASSESSMENT OF THE CROSS-SECTIONAL AREA

William GARAT<sup>1</sup>, Stephane CORN<sup>1\*</sup>, Nicolas LE MOIGNE<sup>1\*\*</sup>, Johnny BEAUGRAND<sup>2,b</sup>,

Anne BERGERET<sup>1</sup>

<sup>1</sup> C2MA, IMT Mines Ales, Université de Montpellier, 6 avenue de Clavières, 30319 Ales Cedex, France <sup>a</sup>

<sup>2</sup> Fractionnement des Agro Ressources et Environnement (FARE), INRA, Université de Reims Champagne-Ardenne, 2 esplanade Roland Garros, F-51100 Reims, France

<sup>a</sup> C2MA is member of the European Polysaccharide Network of Excellence (EPNOE),

<sup>b</sup> Current address: Biopolymères Interactions Assemblages (BIA), INRA, Nantes, France

## Abstract

The development of natural fibres in engineering applications requires the reliable and accurate assessment of their dimensional characteristics and mechanical properties. Fibre cross-sectional area (CSA) obtained from lateral dimensional measurements should consider the specific cross-sectional shape of natural fibres and its wide lengthwise morphometric variations. In this study, a detailed dimensional analysis was conducted on a selected panel of natural fibres with contrasted morphometric characteristics belonging to various phylogenetic plant species with dissimilar functions *in planta*. An automated laser scanning technique was used, and geometrical models and filtering data method were developed for calculation of reliable CSAs adapted to each plant fibre species. Results show that CSAs of palm and sisal fibre bundles can be satisfactorily assessed by a circular model with minimal data processing, whereas hemp, flax and nettle fibre bundles require specific data filtering due to partial splicing, and can be better assessed by an elliptic model.

### Keywords

A. Natural fibres; B. Optical properties/techniques; C. Statistical properties/methods; D. Optical microscopy; (additional keyword: morphometric analysis)

### I. Introduction

Composite industry shows growing interest in the development of biocomposites. Natural fibres of various botanical origins, such as hemp, flax or sisal, have been used as reinforcement in polymer composites [5,12,14,26,41,165,166] in substitution for glass fibres [167]. They offer a solution to current environmental issues, such as the reduction of greenhouse gas emissions and pollution,

through the use of renewable and biodegradable resources for the development of lightweight materials [168]. However, natural fibres do not yet benefit from a sufficient scientific and technological background to offer a controlled and constant level of performances adapted to engineering applications as is the case of synthetic fibres [53,57,72,158]. In this regard, researchers, industrials and natural fibre producers investigate potential solutions to better control, model and predict the mechanical behaviour of biocomposites, by improving the extraction of technical natural fibres, the manufacturing of biocomposites and their conditions of service use [5]. This requires a thorough knowledge of the morphological characteristics of natural fibres, in particular their cross-sectional area (CSA) [21,50,91,157,169–171]. Indeed, the accuracy of the CSA measurements is crucial since the evaluation of the mechanical properties of natural fibres directly relies on the collected dimensional data and the data processing methods used to calculate their CSAs [70].

Several measurement methods based on Scanning Electron Microscopy (SEM) observations, optical microscopy and scanner measurements and observations of polished cross-section have been used to assess the dimensions of natural fibres [49,92,94,95,102,103,172–175]. Some authors [38,53,70,72,176] also related the measurement of the length, width and CSA of various natural fibre species with their mechanical properties. They evidenced wide variations both in terms of morphometric characteristics and resulting mechanical properties. However, several of these studies are based on simplified assumptions of the cross-sectional shape that could be valid for synthetic fibres but not for the specific shape and dimensional irregularities of natural fibres [72]. Indeed, in many cases, an assumption considering cross-section of natural fibres as circular and homogeneous is used, though natural fibres, whatever their botanical origin and the scale considered (i.e. elementary fibre cells or fibre bundles), show wide variations in their dimensional and morphometric features. Besides, their cross-sectional shape can vary from fibre to fibre and along their length [22,53,73,176–179]. This partly explains the large scattering in fibre mechanical properties reported in literature since many years [12,14,72,171]. Studying the tensile properties of flax fibre bundles, Haag and Müssig [70] proposed an advanced measurement technique of the CSA based on an automated laser scanning that has the advantage to measure the cross-sections dimensions all along the fibre and to be highly reproducible and not influenced by user. Nevertheless, the authors pointed out that errors can occur during laser measurements if partly spliced fibre bundles are measured instead of the whole element. They assume that filtering procedures can be necessary to exclude falsified data from the evaluation.

The purpose of this study is to develop a methodology to better assess the dimensional and morphometric characteristics of natural fibres from various botanical origin. Cross-sectional measurements obtained from optical microscopy observations are correlated with measurements recorded with an automated laser scanning technique. Based on these measurements, data processing

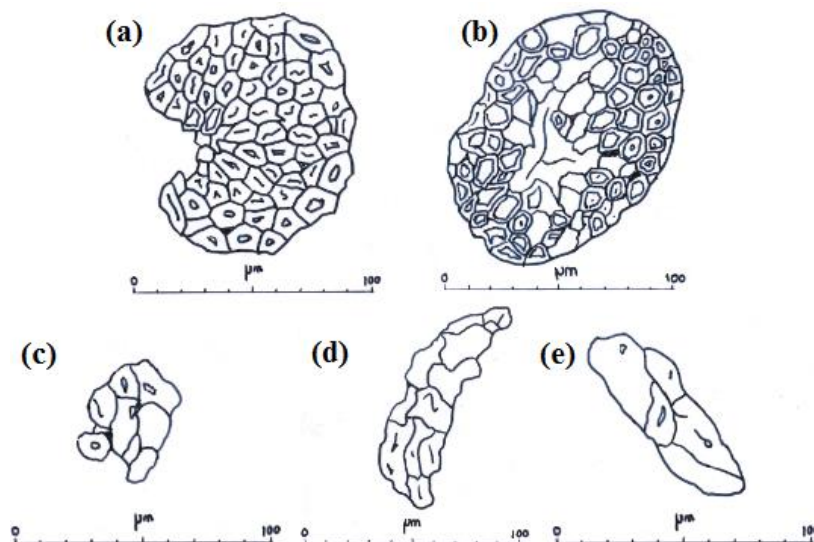
approaches adapted to the morphometric characteristics of each plant fibre species are proposed for the reliable calculation of natural fibres CSAs.

## II. Experimental section

### II.1. Materials

The dimensional and morphometric analysis of natural fibres was conducted on fibre bundles from five different plant species, three of them belonging to Eudicots and are commonly called ‘bast fiber’, poorly lignified, with a support function of the stem *in planta*: flax (*Linum usitatissimum*) and hemp (*Canabis sativa*) as annual fibre crop (after retting step) and nettle (*Urtica dioica*) as an perennial herbaceous plant. The other two species are from perennial Monocots, highly lignified, with a dominant conducting tissues function *in planta*: sisal (*Agave sisalana*) coming from the leaf of agave and Palm (*Phoenix dactylifera*) are mats of leaf sheath surrounding the palm tree stems.

Due to either their various botanical origins and functions in plant (strength versus conducting), these fibre bundles are likely to show contrasted dimensional and morphometric characteristics as described in literature [5,72,99] and observed in Figure 3-1. Wide variations in their cross-sectional dimensions as well as variations in their cross-sectional shape in terms of ellipticity and concavity are clearly observed.



**Figure 3-1: Typical cross-sections of (a) sisal *Agave sisalana*, (b) palm *Phoenix dactylifera*, (c) flax *Linum usitatissimum*, (d) nettle *Urtica dioica*, and (e) hemp *Canabis sativa* drawn from optical microscopy observations.**

## II.2. Methods for the measurement of fibre bundle cross-section

### II.2.1. Automated laser scanning measurements

For the automated laser scanning measurement, twelve fibre bundles of each plant species were cut to a length of roughly 3 mm. Then, each fibre bundle was positioned in a plastic tab before being fixed quickly (approximately 5 seconds) with a photo-curing glue (DYMAX, Wiesbaden, Germany). This step prevents fibre bundles from slipping out of the support due to gentle tension applied during measurements. Before automated laser scanning measurements, fibre bundles were conditioned at 23°C and 50% RH overnight (12 hours).

The automated laser scanning method used the Fibre Dimensional Analysis System (FDAS) device controlled by UvWin 3.60® software (Diastron Ltd., Hampshire, UK). This apparatus allows measuring apparent transverse dimensions of the fibre bundles with a resolution of 0.01  $\mu\text{m}$ , thanks to a high accuracy non-contact laser measuring system (LSM 500S, Mitutoyo, Japan). Fibre bundles fixed on plastic tabs are maintained by a pneumatic system which allows 360° rotative scanning all along their length (Figure 3-2(a)). For each scan position with a pitch of 40  $\mu\text{m}$  along the fibre, up to 600 apparent diameters were measured on the rotating fibre bundle. This leads to more than 45.000 values of apparent diameter for a fibre bundle of 3 mm length. Then, apparent transverse dimensions such as maximum, minimum and average diameters can be deduced for each cross-section and along the fibre bundle (Figure 3-2(b)). It should be pointed out that considering the measurement principle which is based on laser ombroscopy; concave surfaces cannot be measured with this device.

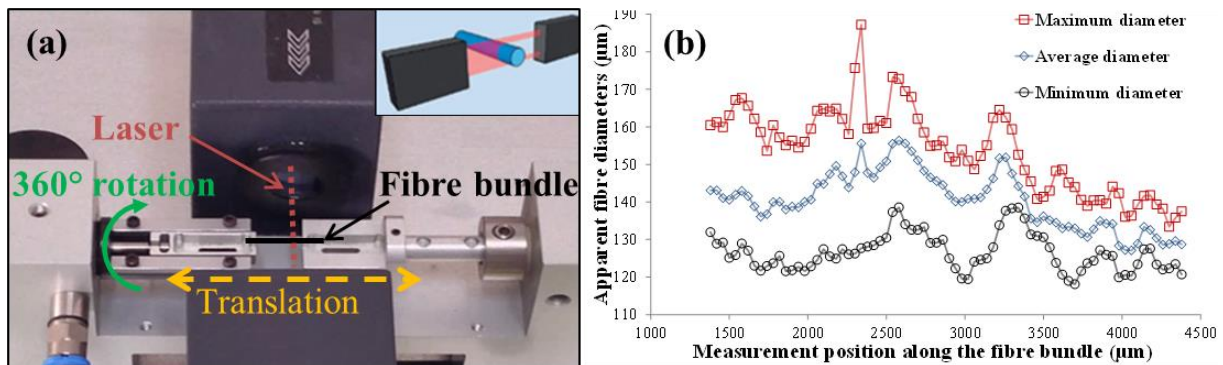


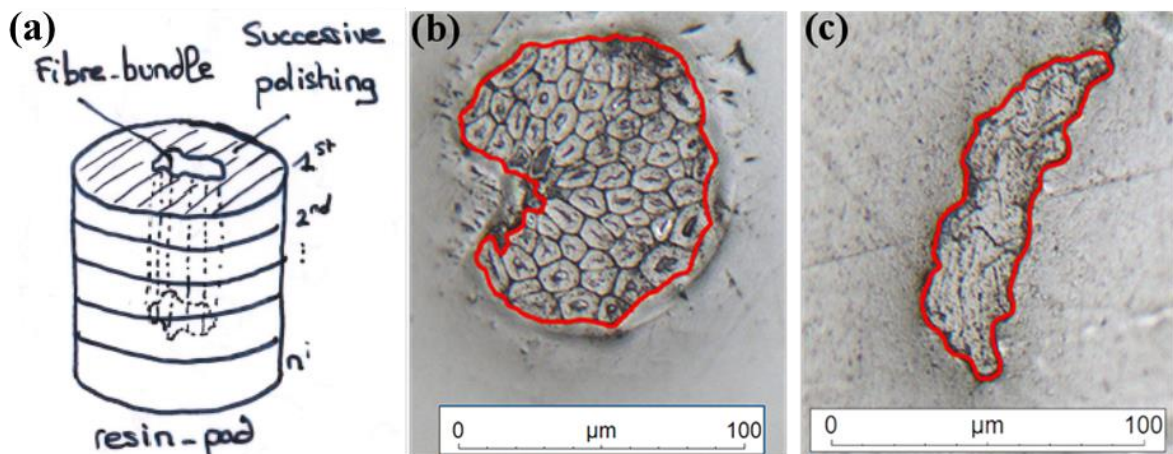
Figure 3-2: (a) FDAS device principle and (b) minimum, maximum and average diameters along a palm fibre bundle as measured with the FDAS device.

### II.2.2. Optical microscopy measurements

Direct optical microscopy observations of the fibre bundles cross-sections were performed with a Leica Laborlux 12 POL S optical microscope in reflection mode equipped with a 1600 x 1200 pixels mono-CDD Sony digital camera. This method was used by Virk [103] for jute fibres, by Müssig et al. [72] and



Thomason et al. [176] for flax and sisal fibres and by Navarro et al. [102] for less common plant fibre bundles. The fibre bundles analysed by the automated laser scanning technique beforehand were then embedded vertically in an epoxy resin-pad. The geofix<sup>®</sup> resin (ESCIL, Chassieu, France) was used. It is a transparent resin specially formulated to impregnate samples (high fluidity and low shrinkage) with a curing time at room temperature of 24 hours. Fibre bundles axial position within the epoxy resin-pad was precisely determined so that the cross-sections measured by optical microscopy can be directly compared one to one with those measured by the automated laser scanning technique. The resin-pads containing the fibre bundles were gradually sanded with a pitch of roughly 300 µm. A ten-polishing sequences procedure using different fine polishing papers (600, 2400, 4000 grade) wetted with ethanol was achieved to ensure optimum observation quality (Figure 3-3(a)). After each sanding and polishing step, the cross-section of each fibre bundle was observed under the optical microscope and their cross-sectional areas ( $CSA_{OM}$ ) were measured with the image acquisition and processing software (Archimede<sup>®</sup>, Microvision Instruments, France). As shown in Figure 3-3(b) and Figure 3-3(c), the outline of the fibre bundle cross-section was cropped manually to calculate its area. With 12 fibre bundle samples and 10 successive sanding and polishing sequences, this leads to approximately 120  $CSA_{OM}$  measurements for each of the five plant species.



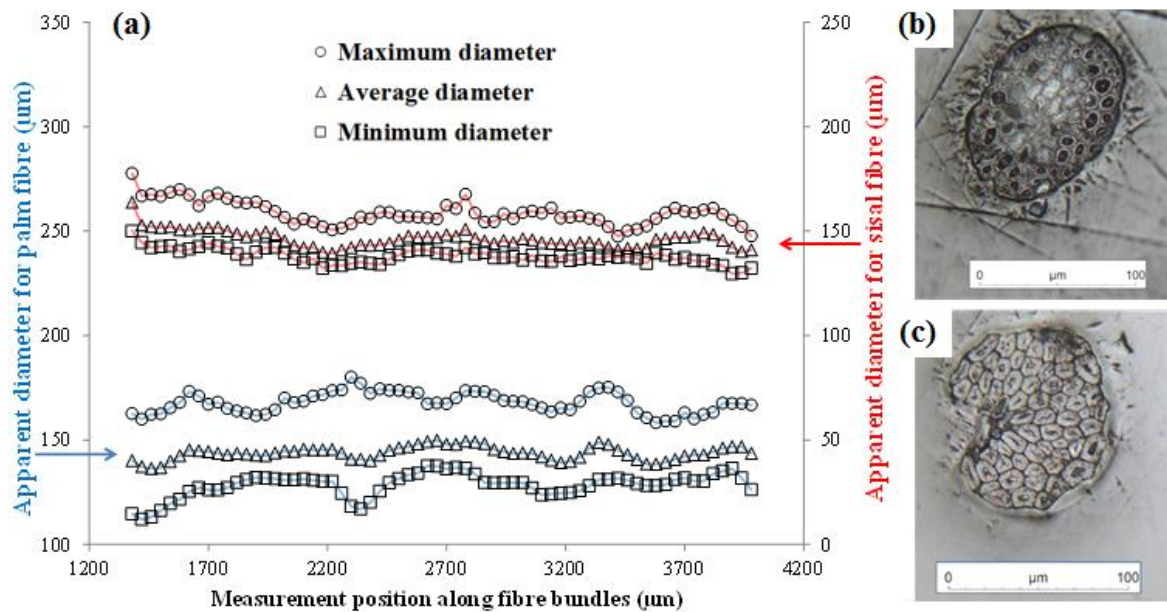
**Figure 3-3: (a) Scheme of an embedded fibre bundle in an epoxy resin-pad; Manual outline of the fibre bundle perimeter with the image processing software (Archimede<sup>®</sup>, Microvision Instruments, France) for (b) sisal and (c) nettle.**

### **II.3. Results and discussion**

#### **II.3.1. Lengthwise morphometric variations in fibre bundles from various plant species**

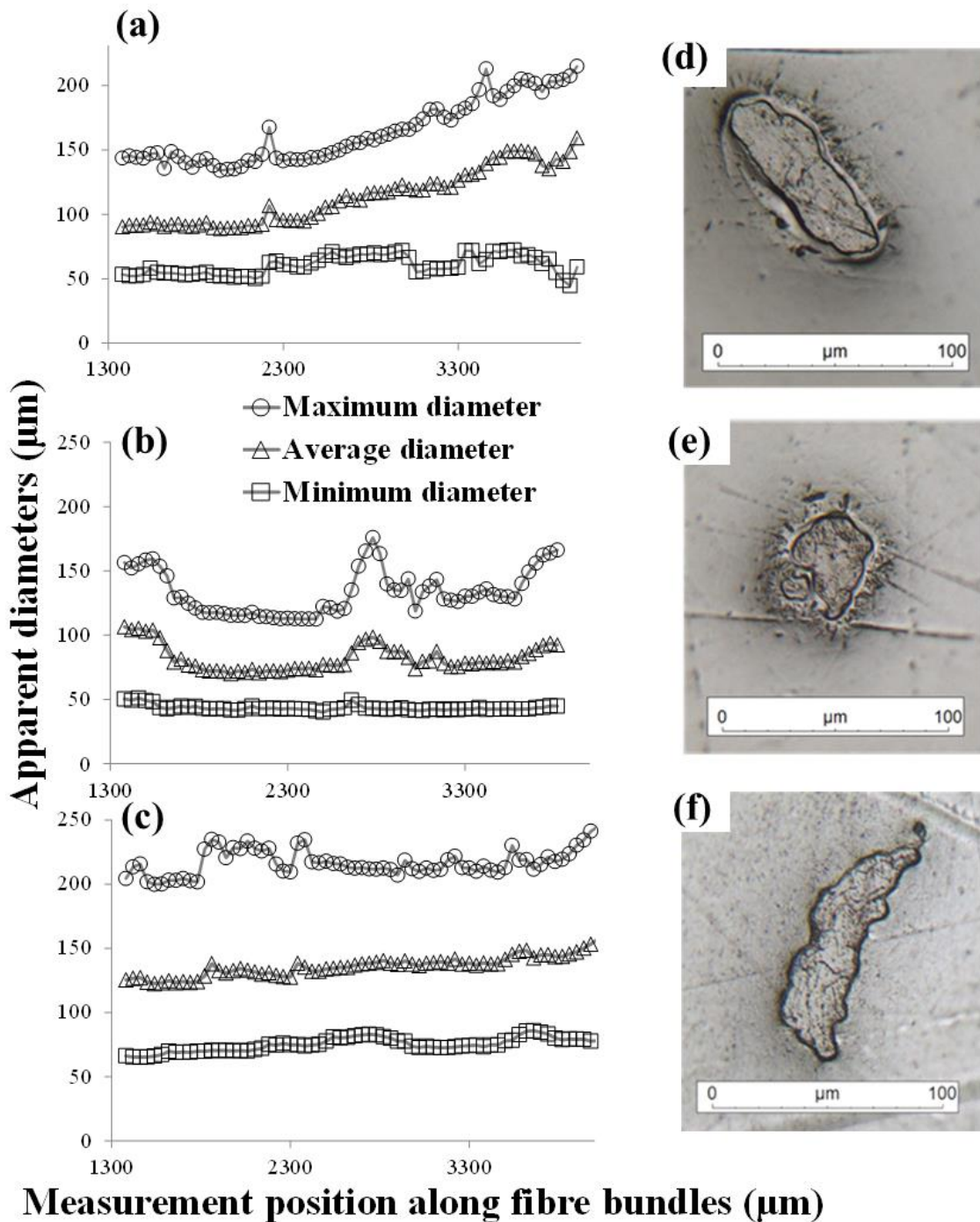
Based on the FDAS measurements, two main morphotypes among the five plant species were observed. Palm and sisal fibre bundles appear relatively uniform and regular with low intra-fibre variability, i.e. the minimum, maximum and average diameters are relatively constant along the fibre bundles (Figure 3-4(a)). Moreover, the average diameter and maximum and minimum diameters are relatively close, suggesting that their cross-sectional shape is almost circular (Figure 3-4(b) and Figure

3-4(c)). Similar results were obtained for each fibre bundle samples from the same plant species, suggesting that, for the tested batch of sisal and palm fibre bundles, low inter-fibre bundles variability occurred. It should be pointed out that the cross-sections of sisal fibre bundles always showed a kidney shape which should be taken into account as the concave surfaces cannot be measured with the FDAS device (see section II.2.1.). Besides, palm and sisal fibre bundles are composed of many strongly packed elementary fibres, reported as highly lignified, with large lumen for some of them.



**Figure 3-4: (a) Lengthwise morphometric variations for palm and sisal fibre bundles from the FDAS, and typical cross-section of (b) palm and (c) sisal fibre bundles embedded in epoxy resin-pad as observed by optical microscopy.**

Flax, hemp and nettle fibre bundles are much more irregular with wide variations in the minimum, maximum and average diameters along their length, i.e. high intra-fibre variability (Figure 3-5(a)). The large difference measured between their maximum and minimum diameters confirms their non-circularity, as can be evidently concluded from optical microscopy observations (Figure 3-5(b), Figure 3-5(c) and Figure 3-5(d)). Besides, the analysis of the whole data set available for flax, hemp and nettle fibre bundles showed that there is more inter-fibre bundles variability for these plant species. This has to be related to their botanical origin but also their harvesting and extraction conditions. In particular, the presence of elementary fibres detached from the main bundle was observed for retted flax fibres due to their lower intercellular cohesion that favoured fibre bundles splicing.



**Figure 3-5: Lengthwise morphometric variations (minimum, maximum and average diameters) for (a) hemp, (b) flax and (c) nettle fibre bundles, and typical cross-section of (d) hemp, (e) flax and (f) nettle fibre bundles embedded in epoxy resin-pad as observed by optical microscopy.**

Based on these first observations, it is obvious that the simplifying geometrical assumption that considers natural fibre bundle cross-sections as being purely circular and uniform is not appropriate. In the following, a correlation between the data obtained from optical microscopy measurements and those measured by the automated laser scanning is carried on.

II.3.2. Morphometric indicators of the (non-)circularity of natural fibre cross-section

Figure 3-6 correlates the apparent median diameter  $D_{median}$  measured with the FDAS for each cross-section of each fibre bundle sample and the CSAOM of the corresponding cross-section (as determined by optical microscopy measurements). A data table gives the minimum, maximum and median apparent diameters and CSAOM of the tested fibre bundles for the five plant species. For each plant species, the set of data pairs, i.e. CSA<sub>OM</sub> from optical microscopy and corresponding  $D_{median}$  from FDAS, was fitted with a circular-like model by least squares method according to Equation 15:

$$CSA_{OM} = k \times D_{median}^2 \quad (\text{Eq.15})$$

Where,  $k$  is an adjustable parameter that equals to  $\pi/4$  (i.e. 0.785) for a perfect circular shape. The typical curve that should be obtained for a perfect circular shape was superimposed.

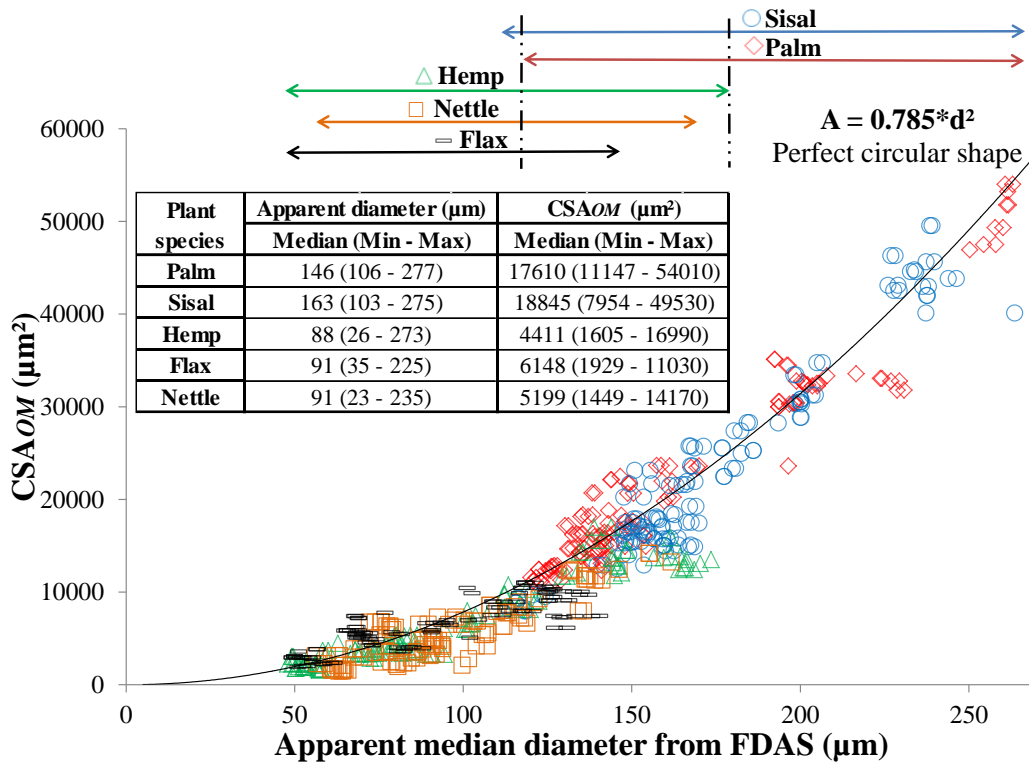


Figure 3-6: Correlation between CSA<sub>OM</sub> measured by optical microscopy and corresponding apparent median diameters ( $D_{median}$ ) measured by FDAS for sisal, palm, hemp, nettle and flax fibre bundles. (Full line corresponds to the curve obtained for a perfect circular shape).

As seen in Table 3-1, a good correlation to the circular model was obtained for palm and sisal fibre bundles with  $k$  parameters equal to 0.778 and 0.702 respectively, very close to that of a perfect circular shape (0.785), and good coefficients of determination  $R^2$  of 0.94 and 0.93 respectively. For the other plant species,  $k$  parameters were much lower, 0.605, 0.660 and 0.485 for hemp, flax and nettle fibre bundles, respectively, suggesting a strong deviation to the circular shape for these fibre bundles. Larger scattering to the best fit obtained with  $k$  was also observed with coefficients of determination  $R^2$  of 0.88, 0.68 and 0.79, respectively. It should be pointed out that deviations to the circular model do not

seem to be diameter dependent because there is substantial overlapping of apparent median diameter values between the different plant species considered in this study.

**Table 3-1 : Fibre cross-sectional shape analysis based on a circular model.**

Fibre bundles	Number of data pairs ( $CSA_{OM} - D_{median}$ )	k	R <sup>2</sup>
Perfect cylinder	-	0.785	1
Palm	140	0.778	0.94
Sisal	138	0.702	0.93
Hemp	125	0.605	0.88
Flax	130	0.660	0.68
Nettle	120	0.485	0.79

To complete this first approach and determine if morphometric indicators can be attributed to each plant fibre species, shape factors  $\alpha$  were calculated based on the ratio of the maximum to the minimum diameters obtained by FDAS measurement for each fibre bundle cross-section of the different plant species (Equation 16):

$$\alpha = \frac{D_{max}}{D_{min}} \quad (\text{Eq.16})$$

Exhibiting median shape factors of 1.17 and 1.24, respectively, cross-sectional shapes of palm and sisal fibre bundles appear to be close to a circular shape (Figure 3-7). In contrast, hemp, flax and nettle fibre bundles present median shape factors of 2.35, 2.58 and 2.74, respectively, with a wider dispersion. These results are in agreement with previous observations and conclusions made from the results presented in Figure 3-5 and Figure 3-6, and suggest that a geometrical model based on the assumption of an elliptical cross-sectional shape would be more suitable for the calculation of CSAs for hemp, flax and nettle fibre bundles. Furthermore, the determination of shape factors from FDAS measurements appears as an easy-to-calculate and robust morphometric indicator to assess the circularity of cross-sections in natural fibre bundles, whatever the diameter considered (Figure 3-6).

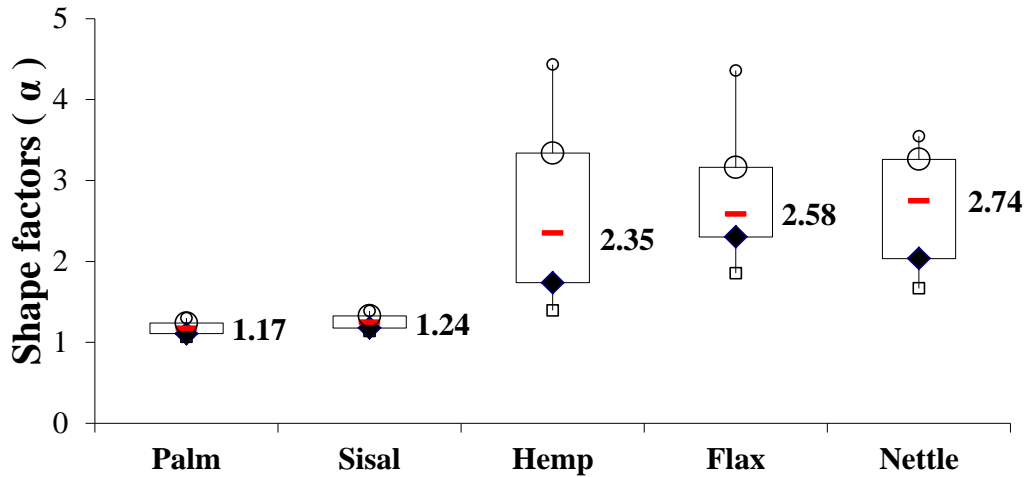


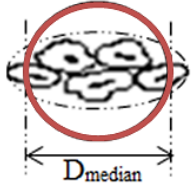
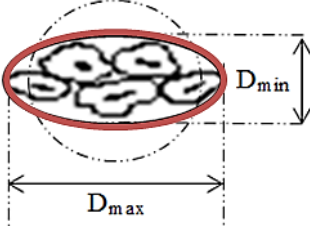
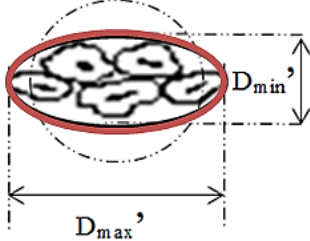
Figure 3-7: Boxplots of fibre bundles shape factors  $\alpha$  for the different plant species (palm, sisal, hemp, flax, and nettle).

### II.3.3. Geometrical models and filtering method for the determination of CSAs in natural fibre bundles

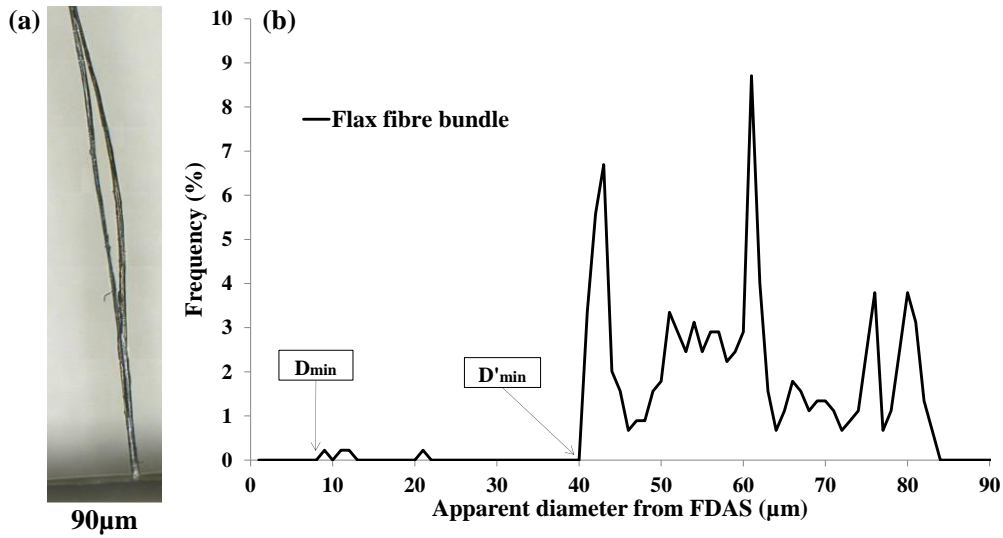
Several studies have been conducted on natural fibre dimensional measurements, i.e. diameters and sections. Many studies considered natural fibres as circular and regular objects [103,180]. This hypothesis does not take into account the non-circularity of the fibre cross-section, neither does the variability of the fibre cross-section along their length [53]. Other authors took into account the irregularity of the section and considered the cross-section as elliptic [53,70], hexagonal [104] or as a convex hull [181] to better assess the real cross-sectional shape of natural fibres. It should be pointed out that all these assumptions on the cross-sectional shape of the fibres directly influence the evaluation of their mechanical properties and can contribute to the large scattering found in literature for tensile strength and elastic modulus of natural fibres.

Because of the considerable number of apparent diameter values that can be collected in a reasonable time, the use of an automated laser scanning device appears as a relevant and robust method which should allow taking into account apparent dimensional irregularities of natural fibre bundles. Based on the morphometric analysis, two morphotypes have been identified: (i) palm and sisal fibre bundles which present a lengthwise regular cross-sectional shape and low shape factors close to 1, and (ii) hemp, flax and nettle fibre bundles which present wide lengthwise dimensional variations as well as irregular cross-sectional shapes with high shape factors up to 2.74. According to these morphometric features, different approaches of data processing and geometrical models were applied to FDAS data for CSA calculation as shown in Table 3-2.

**Table 3-2: Geometrical models and data processing approaches used to calculate the CSA from FDAS measurements.**

Method	Geometric representation	Calculation formula
Circular model		$CSA = \frac{\pi}{4} \times D_{median}^2$ (Eq.17)
Elliptic model		$CSA = \frac{\pi}{4} \times D_{min} \times D_{max}$ (Eq.18)
Filtered elliptic model		$CSA = \frac{\pi}{4} \times D'_{min} \times D'_{max}$ (Eq.19)

The simplest approach is the circular model (Eq.17) which considers the apparent median diameter of each cross-section, determined from 600 diameter values, to calculate the CSA. It is valid for fibre bundles having a nearly circular cross-sectional shape. The elliptic model (Eq.18) uses the maximum and minimum apparent diameters of each cross-section, extracted from 600 values, to calculate the CSA. The filtered elliptic model (Eq.19) has been developed in this work to exclude wrong data obtained with FDAS device, due to partly spliced fibre bundles with detached elementary fibres (Figure 3-8(a)) that can greatly mislead the determination of the maximum and minimum diameters. This model is based on a statistical approach that considers the occurrence frequency of apparent diameters during the data acquisition. As shown in Figure 3-8 for the scan of a flax fibre bundle cross-section, the presence of detached elementary fibres can be identified by the appearance of peaks of low frequency (< 0.5%), generally located at small diameter range of the order of the elementary fibre cell (Figure 3-8(b)). It is then possible to identify, for each cross-section scan, the wrong values and exclude them from the statistical dataset. Filtered minimum  $D'_{min}$  and maximum  $D'_{max}$  diameters can be identified and used for the calculation of the CSA (Eq.19).

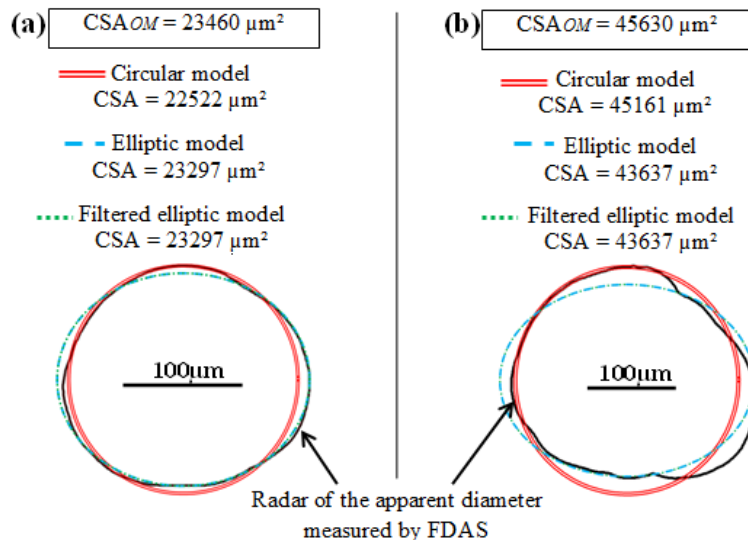


**Figure 3-8: (a) Optical micrograph of a flax fibre bundle with a detached elementary fibre, (b) corresponding occurrence frequency of diameters (interval unit: 1 µm) for one cross-section scan.**

The three methods of data processing described in Table 3-2 to determine CSA from FDAS measurements were applied to the five plant fibre species, and the resulting  $CSA_{FDAS}$  were compared to the  $CSA_{OM}$  measured by optical microscopy.

*II.3.3.1. Natural fibres with regular cross-sectional shape and low shape factor*

Figure 3-9 shows a radar graph of the apparent diameters obtained from FDAS measurements for one specific cross-section of a palm (a) and sisal (b) fibre bundle. For palm, the radar pattern appears relatively circular, with a low deviation to the three models, and  $CSA_{OM}$  is very close to CSAs obtained from the models (23460 µm<sup>2</sup> versus 25522 µm<sup>2</sup> and 23297 µm<sup>2</sup> for circular and elliptic models, respectively). For sisal, the deviation is slightly increased because of its particular kidney shape cross-section (Figure 3-1(a)).



**Figure 3-9: Radar of the apparent diameters from FDAS and corresponding modelled cross-sections for one palm (a) and sisal (b) fibre bundle cross-section.**

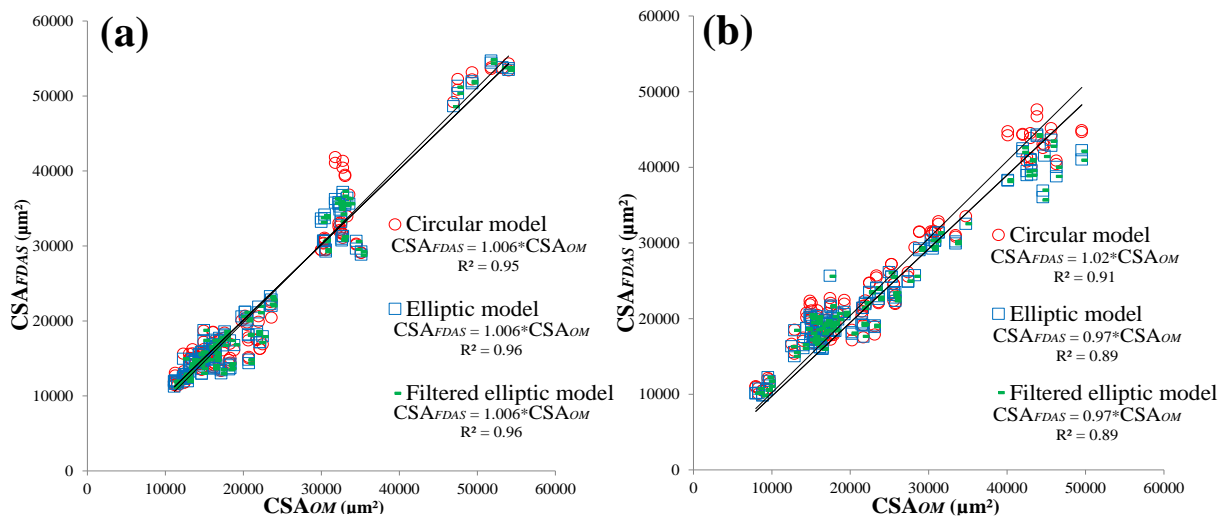


*Partie 2: Analysis of the morphometric variations in natural fibres by automated laser scanning: towards an efficient and reliable assessment of the cross-sectional area*

Considering now the whole data set, a good correlation was found between  $CSA_{OM}$  and  $CSA_{FDAS}$  values for palm fibre bundles (Figure 3-10(a)), whatever the model used, with coefficients of determination higher than 0.95. Moreover, the correction factor  $C$  defined by  $CSA_{FDAS} = C \times CSA_{OM}$  was close to 1, attesting for a very good estimation of the CSA with the automated laser scanning method.

For sisal fibre bundles (Figure 3-10(b)), only slight differences between the three models are observed. Coefficients of determination are roughly 0.9, and the analysis of correction factors  $C$  showed that the circular model slightly overestimates  $CSA_{OM}$  with a  $C$  value of 1.02, whereas both elliptical models slightly underestimate  $CSA_{OM}$  with a  $C$  value of 0.97. The kidney shape of sisal fibre bundles and the resulting concave surfaces do not seem to hamper the reliable and accurate determination of their CSA.

Our results thus show that CSAs of regular palm and sisal fibre bundles can be satisfactorily approached from the FDAS measurements using a circular model with minimal data processing. Indeed, the filtered elliptic model does not enhance accuracy since the intercellular cohesion within the fibre bundles is sufficient to avoid any fibre bundle splicing. It should be pointed out that no fibre sample pre-treatments aiming at fibre individualization were used for sisal or palm fibre bundles. Also, both bundles are reported to be highly cohesive thanks to a high lignin amount, arguably in their middle lamellas.



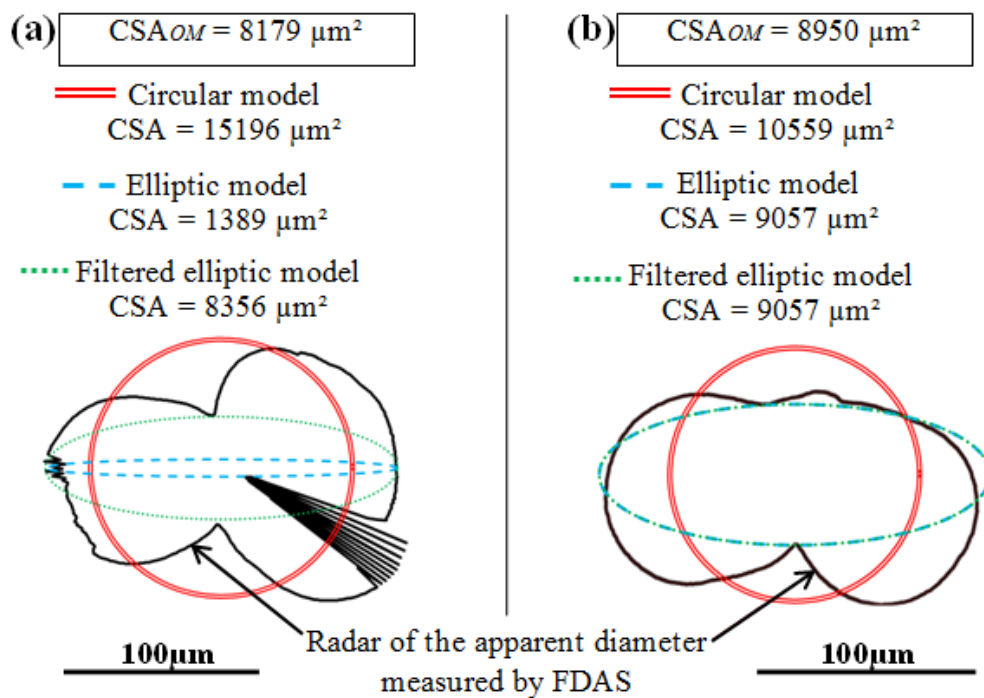
**Figure 3-10: Correlation between  $CSA_{FDAS}$  and  $CSA_{OM}$  for circular, elliptic and filtered elliptic models for (a) palm and (b) sisal fibre bundles.**

*II.3.3.2. Natural fibres with irregular cross-sectional shape and high shape factor*

For hemp, flax and nettle fibre bundles, an important deviation from circularity characterised by high shape factors was found (Figure 3-7). Moreover, large lengthwise morphometric variations were

highlighted. In this regard, the use of an elliptical model appears more appropriate to determine the CSA.

Figure 3-11 shows the radar of the apparent diameter obtained from FDAS measurements for one flax cross-section with fibre bundle splicing and one without. In both cases, the radar patterns are close to that of an ellipse. In the absence of measurement defects, the elliptic model is appropriate with CSA of  $9057 \mu\text{m}^2$  compared to  $CSA_{OM}$  of  $8950 \mu\text{m}^2$  (Figure 3-11(b)). On the other hand, the use of a filtered elliptic model is mandatory to identify and eliminate wrong apparent diameter values, responsible for the large deviation of the simple elliptic model as evidenced in Figure 3-11(a) with a large error in the CSA determination ( $1389 \mu\text{m}^2$  versus  $8179 \mu\text{m}^2$  for the  $CSA_{OM}$ ).



**Figure 3-11: Radar of the apparent diameters from FDAS and corresponding modelled cross-sections for one flax fibre bundle cross-section, (a) with fibre bundle splicing, and (b) without fibre bundle splicing.**

Considering the whole data set for hemp and flax fibre bundles (Figure 3-12(a) and Figure 3-12(b)), the circular model gives higher coefficients of determination. However, this model significantly overestimates the CSA. For nettle fibre bundles (Figure 3-12(c)), the elliptic model is better with a slightly higher coefficient of determination and a correction factor  $C$  of 1.01.

For all these fibre bundles, the filtered elliptic model appears to greatly enhance the quality of the correlation with  $CSA_{OM}$ . Coefficients of determination are indeed greatly increased and correction factors are closer to 1. This is explained by the numerous splicing of fibre bundles related to lower intercellular cohesion, that produce wrong data for these plant fibres, especially low apparent diameter values originating from detached elementary fibres. These wrong data must be excluded

from the analysis, and the filtered elliptic model developed in this study greatly enhances the determination of the CSA for the irregular cross-sectional shapes encountered in natural fibres. This filtering method can be implemented in routine as an automated post-processing of the data obtained from the laser scanning method.

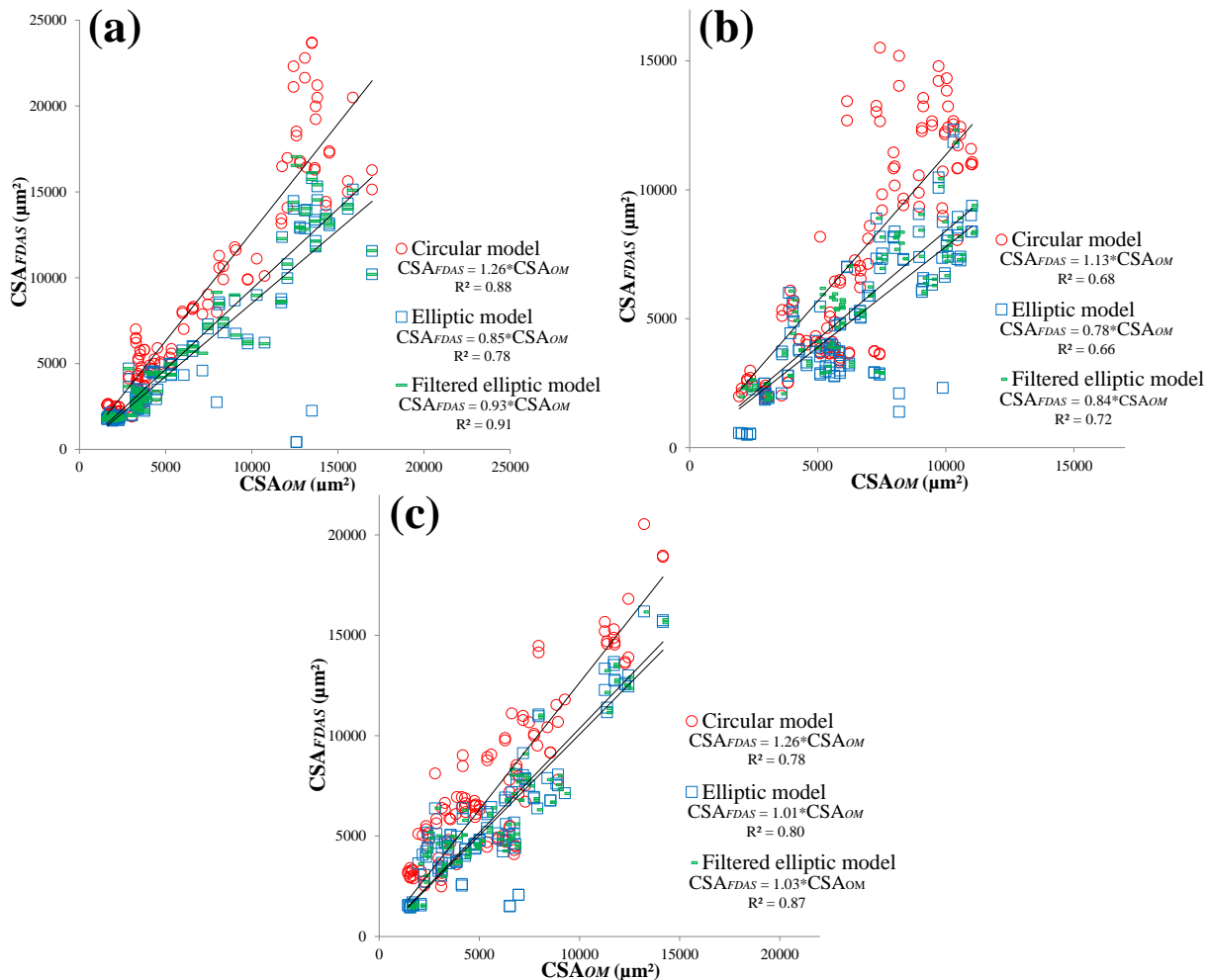


Figure 3-12: Correlation between  $CSA_{FDAS}$  and  $CSA_{OM}$  for circular, elliptic and filtered elliptic models for (a) hemp, (b) flax and (c) nettle fibre bundles.

### III. Conclusions

The morphometric variations occurring in natural fibres have been investigated. Various plant fibre species (sisal, palm, flax, hemp, and nettle) having contrasted morphometric characteristics were analysed by optical microscopy and automated laser scanning (FDAS) measurements. Two main morphotypes have been identified: (i) monocots palm and sisal fibre bundles from leaves which presented a lengthwise regular cross-sectional shape and low shape factor close to 1, and in contrast (ii) eudicots hemp, flax and nettle fibre bundles from bast fibres which presented wide lengthwise dimensional variations as well as irregular cross-sectional shape and high shape factors up to 2.74. Based on these observations, geometrical models and a filtering method were applied to the FDAS

data so as to determine the best approach to calculate the cross-sectional area (CSA) of each plant fibre species. Our results show that CSAs of regular palm and sisal fibre bundles can be satisfactorily assessed from the FDAS measurements using a circular model with minimal data processing. For more irregular cross-sectional shape encountered in natural fibres such as hemp, flax and nettle, the filtered elliptic model developed in the present study greatly enhances the determination of the CSA. This filtering method can be implemented in routine as an automated post-processing of the data obtained from the FDAS. Furthermore, based on the CSA measured by optical microscopy, CSA correction factors were determined for each plant fibre species and the applied geometrical models so that an accurate CSA can be calculated from the automated laser scanning data. The methodology developed in this study appears as a fast, efficient and reliable approach for the assessment of the cross-sectional area in natural fibres. This opens interesting perspectives for a better assessment of natural fibre tensile properties both for research and quality control purposes in industry.

### **Acknowledgements**

William GARAT thanks Montpellier SupAgro for funding its thesis scholarship. The authors thank Alain DIAZ (IMT Mines Ales, C2MA) for technical support on the preparation of the samples and Arnaud DAY (Fibres Recherche Développement, Troyes, France) for providing the nettle fibres.



## **CHAPITRE 4**

**Etude du comportement en traction des  
fibres végétales et analyse de la dispersion  
des propriétés mécaniques**



## INTRODUCTION CHAPITRE 4

Il ressort de la littérature, une forte dispersion des propriétés mécaniques en traction des fibres végétales [70]. Nous avons vu dans le *CHAPITRE 1* que l'origine de cette dispersion pouvait résulter de la variabilité inhérente à l'origine naturelle des fibres végétales [6,22,57], ou être induite par les méthodes de caractérisations dimensionnelles et mécaniques conventionnelles généralement peu adaptées à l'évaluation de ces objets [70,85,98]. Dans le cadre de la thèse, une méthodologie de caractérisation et de suivi des dimensions des fibres végétales par balayage laser automatisé [100] a été mise en place. Les premiers résultats, détaillés dans le *CHAPITRE 3*, ont permis d'identifier des morphologies types en lien avec les origines botaniques variées des fibres végétales de l'étude. La section des faisceaux de fibres de palmier et de sisal apparaît relativement circulaire en contraste avec celle des faisceaux de fibres libériennes (lin, chanvre, ortie) qui est généralement plus aplatie. Sur la base de ces résultats, un modèle elliptique filtré a été développé, permettant d'évaluer avec plus de précision la géométrie de la section [100].

Dans le présent chapitre, une méthodologie de caractérisation du comportement mécanique en traction des mêmes 5 espèces végétales, dans des conditions standards d'humidité et de température (50% HR et 23°C) a été mise en place dans le but de fiabiliser l'évaluation des propriétés mécaniques des fibres végétales.

Dans la première partie, le comportement en traction et les mécanismes de rupture des différentes espèces végétales ont été analysés. Ensuite, une évaluation statistique de la dispersion des propriétés mécaniques dans les conditions standards d'humidité et de température (50% HR et 23°C) a été appliquée à deux espèces végétales à comportement mécanique contrasté et présentant des morphologies types spécifiques : le palmier et le lin [100]. La méthodologie appliquée pour estimer l'aire de section à partir de 4 différentes hypothèses de forme de section est exposée. Ainsi, le modèle elliptique filtré développé au cours de la thèse a été comparé à 3 modèles circulaires employés dans la littérature [38,40,70] et définis selon la norme NF T25-501-3 [85]. L'impact du choix du modèle sur la dispersion relative du module tangent ultime et de la contrainte à la rupture a été évalué. Pour l'analyse de la résistance à la rupture, une approche statistique de Weibull a été mise en place. Additionnellement, une instrumentation du dispositif de micro-traction par une caméra rapide permet de déterminer la compliance de l'ensemble du système de micro-traction sur la base d'une extensométrie par corrélation d'images numériques.



## PARTIE 1 COMPORTEMENT EN TRACTION DES FAISCEAUX DE FIBRES VÉGÉTALES

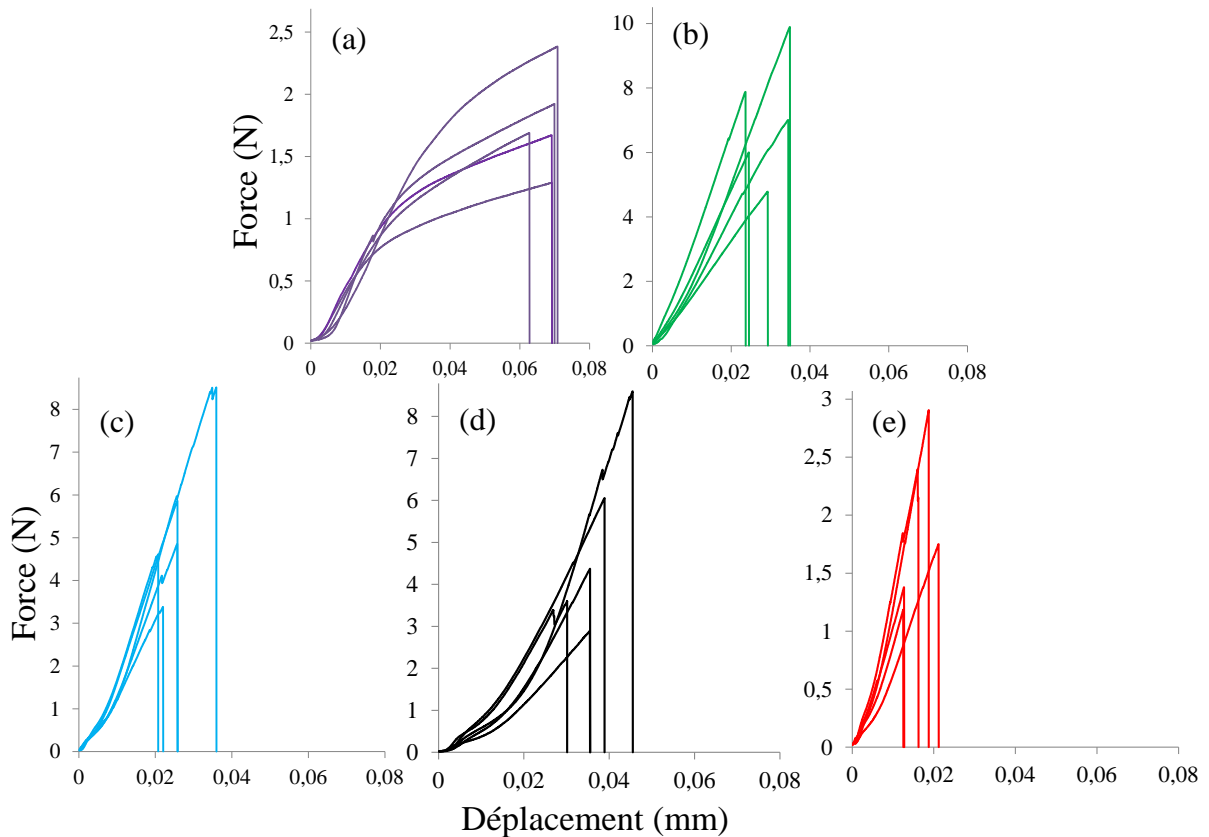
Dans cette partie, une étude du comportement en traction des faisceaux de fibres végétales a été menée. Pour cela, des essais de micro-traction ont été réalisés et couplés avec une caméra rapide afin d'effectuer une analyse des mécanismes de rupture des faisceaux de fibres mis en jeu. L'origine des dispersions des propriétés mécaniques est ensuite discutée.

### I. Analyse du comportement des faisceaux de fibres végétales par essai de micro-traction

Préalablement aux essais de micro-traction, la préparation des échantillons a été réalisée selon le protocole défini dans la norme NF T25-501-3 [85] (cf. *CHAPITRE 2*). Les faisceaux de fibres, de longueur 30 mm, ont été collés sur des supports en plastique selon la méthode « two-part » avant d'être conditionnés dans les conditions standards d'humidité et de température (23°C et 50% HR) [120]. Pour rappel, les essais ont été réalisés à une vitesse de déplacement de 1,2 mm/min et une précharge de 20 mN a été appliquée. Suite aux essais, les courbes de comportement force/déplacement ont été tracées pour chacune des cinq espèces végétales (Figure 4-1). Trois types de comportements expérimentaux bien distincts, déjà observés dans la littérature (cf. *CHAPITRE 1*), ont été identifiés.

Les faisceaux de fibres de palmier (Figure 4-1(a)) présentent un comportement de type II. Ce type de comportement a déjà été observé par Bourmaud *et al.* [99] qui ont montré l'existence d'une région linéaire en début d'essai puis la présence d'un point d'inflexion, correspondant à une limite d'élasticité. Au-delà de cette limite, une forte plasticité est observée jusqu'à la rupture.

Les faisceaux de fibres de sisal montrent deux types de comportement (Figure 4-1(b)). Tout d'abord le comportement de type I, quasiment linéaire durant tout le chargement. Il représente près de 60% des échantillons testés. Le second comportement observé est celui de type II. Moins marqué que pour le palmier, il est caractérisé par la présence d'une région non-linéaire en début de courbe. Selon Silva *et al.* [54], ce type de comportement, déjà observé sur les faisceaux de fibres de sisal, résulterait de la décohésion entre les fibres élémentaires au niveau de la lamelle mitoyenne.



**Figure 4-1 : Exemple de courbe de force/déplacement des faisceaux de fibres (a) de palmier, (b) de sisal, (c) de lin, (d) de chanvre et (e) d'ortie à 50% HR et 23°C.**

Concernant les faisceaux de fibres libériennes de lin (Figure 4-1(c)), de chanvre (Figure 4-1(d)) et d'ortie (Figure 4-1(e)), c'est le comportement de type III qui a été identifié. Il se différencie des autres par la présence de deux points d'inflexion caractéristiques [134]. Ce comportement fortement non-linéaire a déjà été observé par de nombreux auteurs, non pas pour les faisceaux de fibres mais pour les fibres élémentaires de lin [22,42,59,86] et de chanvre [50,58]. La première partie de la courbe, pour des faibles déplacements, est relativement linéaire jusqu'au premier point d'inflexion. Celui-ci marque le début d'une baisse du module apparent. Le second point d'inflexion apparaît pour un déplacement plus important et correspond à une reprise de la rigidité jusqu'à la rupture finale. Ce comportement non-linéaire est fréquemment attribué au réalignement des microfibrilles de cellulose cristalline [5,48,59]. Cette hypothèse a été confirmée par Nilsson et Gustafsson [62] qui ont proposé que cette non-linéarité du comportement résultait de la rotation locale des microfibrilles de cellulose à la suite du cisaillement visco-élasto-plastique des hémicelluloses présents dans la paroi cellulaire. Plus récemment, Placet *et al.* [134] ont proposé un scénario pour expliquer ce comportement. Selon eux, la première zone correspondrait à la déformation élastique des microfibrilles de cellulose et des biopolymères amorphes des parois cellulaires, la seconde zone à la cristallisation partielle de la cellulose amorphe due au cisaillement interfacial et la troisième zone à la déformation élastique des microfibrilles de cellulose réalignées et stabilisées. Cependant, toutes ces hypothèses ont été avancées

dans le cas des fibres élémentaires et ne peuvent s'appliquer aux faisceaux de fibres. La présence de la lamelle mitoyenne joue également un rôle dans le comportement à rupture [86,185] (cisaillement interfaciale, glissement des fibres élémentaires).

## II. Etude des mécanismes de rupture des faisceaux de fibres végétales

Les mécanismes de rupture des différents faisceaux de fibres ont été analysés grâce aux essais filmés en caméra rapide. Outre le contraste déjà mis en évidence par l'analyse de l'allure des courbes de comportement, les mécanismes de rupture présentent également des différences qui peuvent s'expliquer d'un point de vue botanique. Les faisceaux de fibres de sisal et de palmier présentent une forte teneur en biopolymères non-cellulosiques tels que la lignine et la pectine. Ces biopolymères, présents au sein des parois végétales et de la lamelle mitoyenne (majoritairement de la pectine), jouent le rôle de ciment et assurent la bonne cohésion des fibres au sein du faisceau [182,183]. Sur les analyses vidéo présentées en Figure 4-2, aucune décohésion du faisceau n'est observée, que ce soit pour le palmier (Figure 4-2(a)) ou le sisal (Figure 4-2(b)). La rupture est nette, avec peu de projection de fragments des parois cellulaires ce qui suppose que la longueur des fibres élémentaires doit être supérieure à la longueur de jauge.

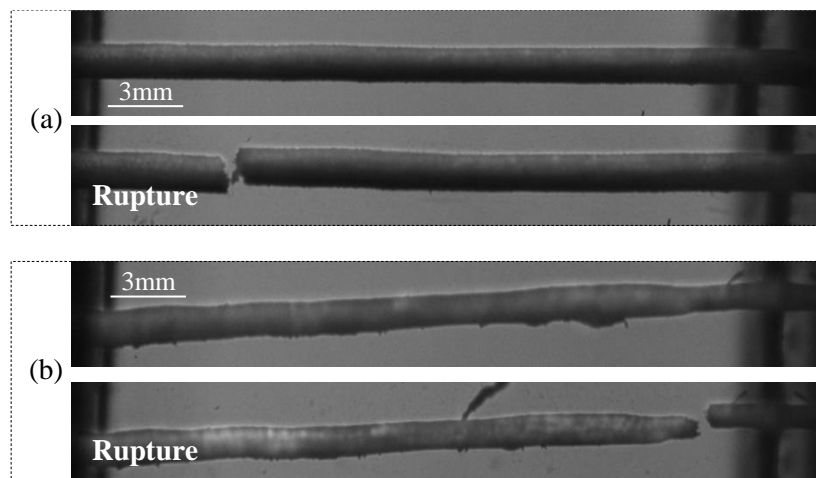
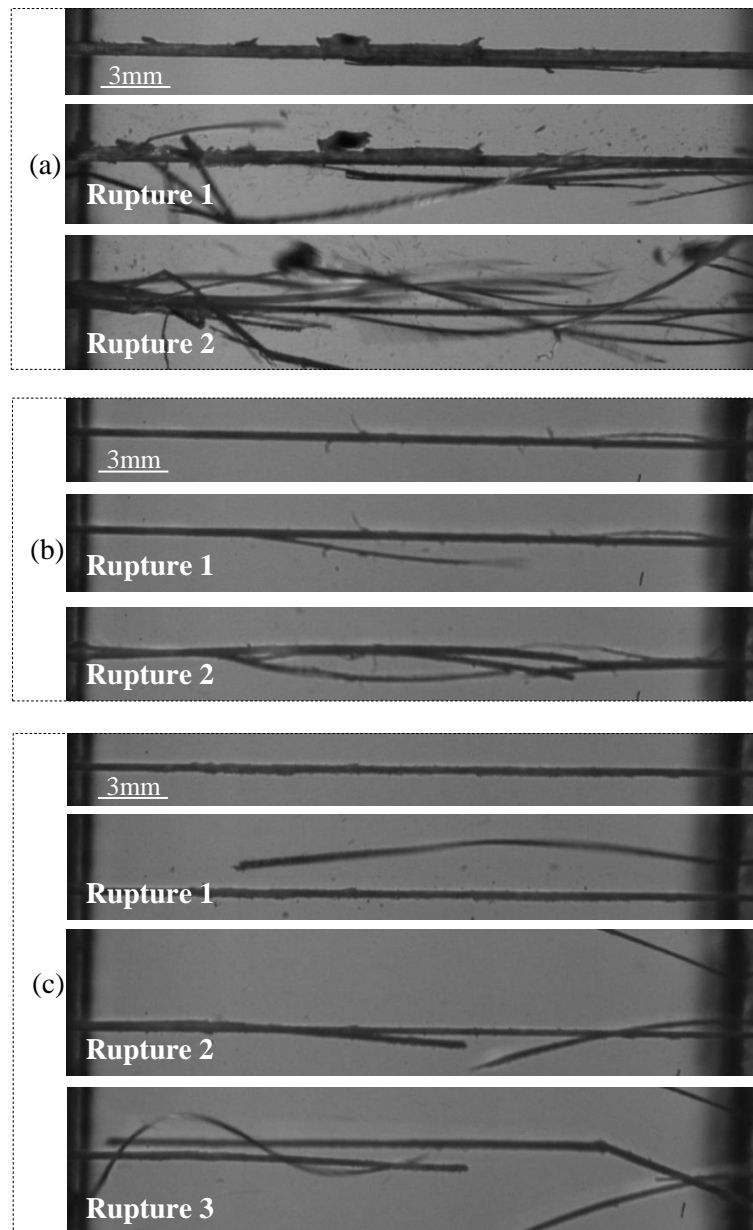


Figure 4-2: Mécanismes de rupture des faisceaux de fibres (a) de palmier et (b) de sisal observés au cours des essais de micro-traction filmés en caméra rapide à 30000 im/s.

A l'inverse, pour les faisceaux de fibres libériennes, la teneur en biopolymères non-cellulosiques est nettement plus faible. Aussi ces fibres végétales ont été rouies. Cela se traduit par une plus faible cohésion des fibres élémentaires entre elles au sein du faisceau. Selon Eichhorn *et al.* [184] la rupture des faisceaux de fibres résulterait d'une mauvaise interface entre les fibres élémentaires. Sur la Figure 4-1, que ce soit pour les faisceaux de fibres de lin, de chanvre ou d'ortie, des faibles pics de rupture successifs correspondant aux ruptures des fibres élémentaires sont observés. Cela entraîne une diminution progressive de la rigidité apparente du faisceau jusqu'à la rupture totale. Ce phénomène est appelé « pop-in » [78]. Charlet *et al.* [86,185] ont également mis en évidence, pour des paires de

fibres élémentaires de lin, un changement du comportement mécanique en traction causé par l'endommagement de l'interface entre les fibres par fissuration avant rupture finale (Figure 4-4). Outre le phénomène de « pop-in », clairement visible sur la Figure 4-3, d'importantes projections de fragments des parois cellulaires sont également observées. Dans le cas des fibres libériennes, la longueur des fibres élémentaires est certainement plus faible que la longueur de jauge.



**Figure 4-3: Mécanismes de rupture des faisceaux de fibres (a) de lin, (b) de chanvre et (c) d'ortie observés au cours des essais de micro-traction filmés en caméra rapide à 30000 im/s.**

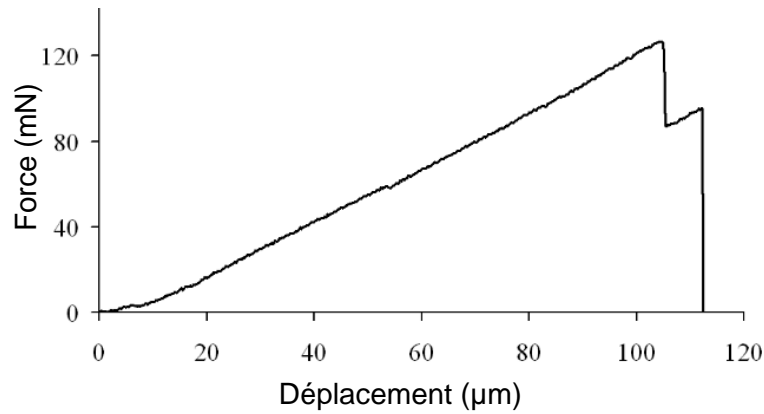


Figure 4-4: Courbe force/déplacement en traction d'une paire de fibres élémentaires de lin [185].

### III. Origine de la dispersion des mesures de propriétés mécaniques en traction des fibres végétales

Les propriétés mécaniques en traction telles que le module tangent ultime ( $E_T$ ), la résistance à la traction ( $\sigma_r$ ) et la déformation à la rupture ( $\epsilon_r$ ) sont déduites des courbes force/déplacement de la Figure 4-1 (cf. *CHAPITRE 2*) converties en courbes de comportement contrainte/déformation, à partir de l'aire de section résistive introduite dans l'équation 20.

$$\sigma = \frac{F}{S_0} \quad (\text{Eq.20})$$

avec  $F$  la force appliquée (en N),  $S_0$  l'aire de la section résistive du faisceau de fibres (en  $\text{mm}^2$ )

Selon Haag et Müssig, la méthode employée pour estimer l'aire de la section transversale peut induire jusqu'à 300% de variation dans les valeurs de résistance à la traction ou de module pour les faisceaux de fibres libériennes [70]. A l'heure actuelle, les méthodes appliquées pour mesurer les dimensions transversales sont mal adaptées aux morphologies particulières des fibres végétales. Par conséquent, l'estimation de l'aire de section qui en découle est le plus souvent basée sur des hypothèses de forme de section qui ne tiennent pas compte de la réalité morphologique de l'objet. La méthode de mesure usuelle, employée pour les fibres végétales et définie selon la norme NF T25-501-3 [85], ne tient compte ni de la non-circularité de la section, ni de son irrégularité sur la longueur. L'aire de section résistive est estimée à partir d'un diamètre apparent moyen issu de la mesure de trois diamètres apparents repartis sur la longueur.

Cependant, les résultats obtenus dans le *CHAPITRE 3* ont montré l'existence de morphologies contrastées selon les espèces végétales considérées. Les indicateurs morphométriques qui ont été développés, et notamment le facteur de forme, ont permis d'identifier et de quantifier l'écart à la circularité pour chacune des cinq espèces de fibres végétales et montrent bien l'importance quant au choix du modèle géométrique à adopter pour fiabiliser l'estimation de l'aire de section transversale.

## PARTIE 2 EFFET DE LA METHODE DE MESURE DE SECTION SUR LA DISPERSION DES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES : CAS DES FAISCEAUX DE FIBRES DE PALMIER ET DE LIN

Suite à l'étude du comportement mécanique en traction des fibres végétales, l'objectif de cette partie est d'évaluer la pertinence de la méthode appliquée pour estimer l'aire de section et son influence sur la dispersion des valeurs de module et de résistance à la traction, en lien avec les morphologies types identifiées dans le *CHAPITRE 3*. Pour cela, nous nous sommes focalisés sur les faisceaux de fibres de palmier et de lin, soit deux espèces végétales qui présentent à la fois des comportements (Figure 4-1) et des morphologies (Figure 4-5) contrastés. Dans un premier temps, nous détaillerons la méthodologie utilisée à partir de différentes hypothèses de forme de section. Puis nous analyserons l'influence de ces différentes hypothèses de forme de section sur le calcul et la dispersion relative des aires de section avant de nous intéresser aux modules tangents ultimes et aux contraintes à la rupture.

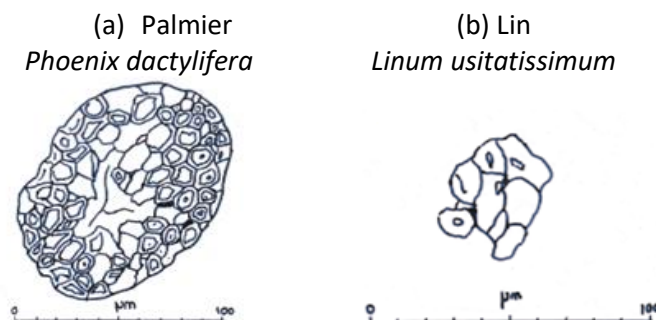


Figure 4-5 : Section transversale des faisceaux de fibres (a) de palmier et (b) de lin [100].

### I. Méthodologie de caractérisation des dimensions transversales

Plusieurs hypothèses de forme de section ont été utilisées pour estimer l'aire de section transversale. Pour cela, la méthodologie de caractérisation dimensionnelle automatisée par balayage laser utilisant le dispositif FDAS a été adaptée et deux configurations ont été utilisées : l'une avec rotation de la fibre devant le laser et l'autre sans rotation.

#### I.1. Analyse de la section sans rotation

Dans cette configuration, aucune rotation du faisceau de fibres devant le laser n'a été appliquée et les dimensions transversales apparentes ont été mesurées directement le long de l'axe du faisceau de fibres de longueur 30 mm. Cette configuration permet de simuler, à partir du dispositif FDAS, les différentes méthodes usuelles de mesure telles que la mesure par microscopie optique ou par scanner. Deux protocoles de mesure ont été appliqués. Le premier (Figure 4-6(a)) considère 3 diamètres apparents repartis sur la longueur. Cette méthode s'apparente à la méthode communément appliquée

aux fibres végétales selon la norme NF T25-501-3 [85]. Le second (Figure 4-6(b)) s'apparente cette fois-ci à une méthode par scan et considère 42 diamètres apparents repartis sur la longueur. Cette technique permet de prendre en compte de la variabilité longitudinale apparente.



Figure 4-6: Représentation des deux techniques de mesure des dimensions transversales apparentes au FDAS sans rotation du faisceau de fibres.

Pour chacune des deux techniques de mesure, un diamètre médian a été calculé puis introduit dans l'équation 21 pour estimer l'aire de section résistive à partir d'une hypothèse de forme de section circulaire.

$$S_0 = \frac{\pi * d_{\text{médian}}^2}{4} \quad (\text{Eq. 21})$$

avec  $S_0$  l'aire de la section résistive du faisceau (en  $\text{mm}^2$ ) et  $d_{\text{médian}}$  le diamètre médian apparent (en mm).

### 1.2. Analyse de la section avec rotation

Dans cette configuration, le dispositif FDAS a été utilisé comme expliqué dans le CHAPITRE 2. Pour cela, 42 sections réparties régulièrement sur toute la longueur du faisceau de fibres ont été analysées en rotation (Figure 4-7) et pour chacune d'entre elles jusqu'à 600 valeurs de diamètre apparent ont été mesurées.



Figure 4-7: Représentation de la technique de mesure des dimensions transversales apparentes pour chaque rotation de 360° au FDAS.

A partir de ce jeu de données collectées et pour chacune des 42 sections, les diamètres apparents maximum, minimum et médian ont été extraits. Ils ont permis d'estimer les aires de section résistive sur la base de deux hypothèses de forme de section : circulaire (Eq.21) et elliptique (Eq.22). Pour l'hypothèse de section elliptique, c'est le modèle elliptique filtré, développé dans le CHAPITRE 3, qui a été utilisé [100].

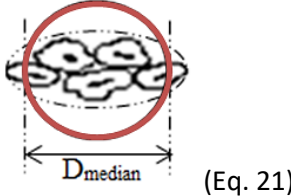
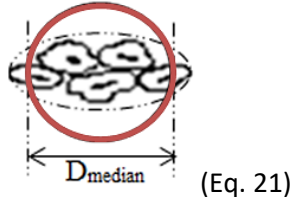
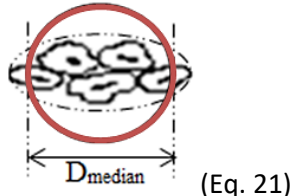
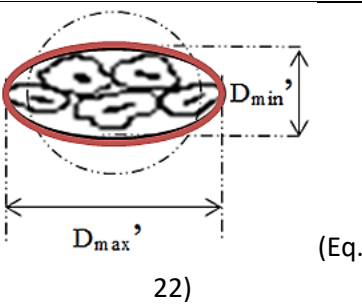
$$S_0 = \frac{\pi * (d_{max} * d_{min})}{4} \quad (\text{Eq.22})$$

avec  $S_0$  l'aire de la section résistive du faisceau (en  $\text{mm}^2$ ),  $d_{max}$  le diamètre maximum apparent (en mm) et  $d_{min}$  le diamètre minimum apparent (en mm).

L'aire de section finale du faisceau correspond à la médiane des 42 aires de section.

Le Tableau 4-1 fait un récapitulatif des différentes méthodologies appliquées pour déterminer l'aire de section transversale des faisceaux de fibres de lin et de palmier à partir des différentes hypothèses de forme de section (circulaire et elliptique). Pour plus de clarté, les modèles correspondants à chaque hypothèse de forme ont été numérotés, i.e. modèle A et modèle B pour les modèles circulaires sans rotation du faisceau de fibres devant le laser, modèle C pour le modèle circulaire avec rotation et modèle D pour le modèle elliptique filtré avec rotation.

**Tableau 4-1: Méthodologie de calcul de l'aire de section appliquée aux faisceaux de fibres (données issues de [100])**

Configuration	Nombre de diamètre apparent / section	Hypothèse de forme de section	Modèle associé
Sans rotation des faisceaux de fibres	Circulaire (3 diamètres apparents) NF T25-501-3 [85]		<b>Modèle A</b>
	Circulaire (42 diamètres apparents)		<b>Modèle B</b>
Avec rotation des faisceaux de fibres	Circulaire (42 sections de 600 diamètres apparents)		<b>Modèle C</b>
	Elliptique filtré [100] (42 sections de 600 diamètres apparents)		<b>Modèle D</b>



## II. Représentation statistique du choix du modèle de calcul

L'influence de l'hypothèse de forme de section sur la dispersion des propriétés mécaniques passe par l'étude de la mesure de l'aire de section résistive. Les résultats ont été présentés statistiquement à l'aide de « boxplot ». Dans ce type de diagramme, on a représenté la médiane, les quartiles Q1 et Q3 qui correspondent aux valeurs qui séparent les 25% inférieurs et supérieurs respectivement, et les 1<sup>er</sup> et 9<sup>ème</sup> déciles qui correspondent aux valeurs extrêmes, respectivement 10 et 90%. La dispersion relative finale, notée « DR », a été exprimée à partir des valeurs aux déciles, c'est-à-dire pour 80% de la population, selon l'équation 23.

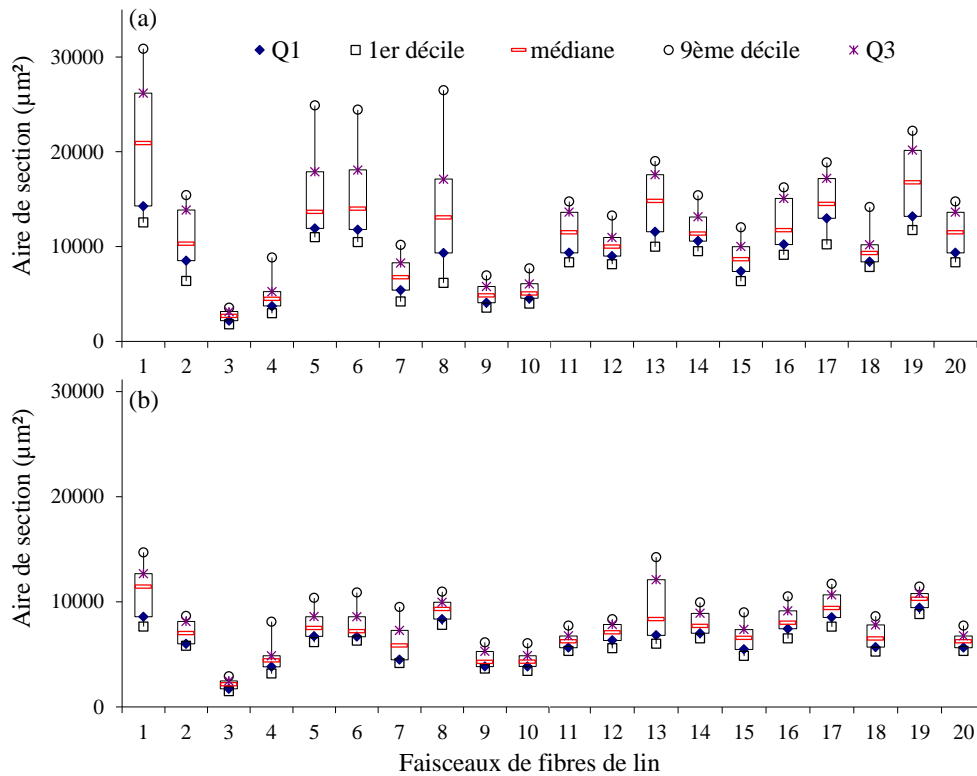
$$DR = \frac{(9^{\text{ème}} \text{ décile} - 1^{\text{er}} \text{ décile})}{\text{médiane}} \quad (\text{Eq. 23})$$

Selon Thomason *et al.* [53], pour les faisceaux de fibres de lin, la dispersion relative des aires de section inter-faisceaux serait supérieure à celle des aires de section intra-faisceaux. Fort de ce constat, nous avons cherché dans un premier temps à évaluer et à quantifier ces dispersions intra- et inter-fibres, pour les faisceaux de fibres de lin et de palmier. Dans un premier temps, la dispersion intra-faisceau (c'est-à-dire pour un même faisceau de fibres) a été analysée à partir des deux hypothèses de forme de section : circulaire (modèles C) et elliptique (modèle D) afin de tenir compte de la variabilité longitudinale. Puis, la dispersion inter-faisceaux (c'est-à-dire pour un lot de faisceaux de fibres) a été étudiée en tenant compte, cette fois-ci, des 4 modèles associés aux différentes hypothèses de forme de section.

### II.1. Dispersion relative des aires de section intra-faisceaux

La représentation statistique, donnée dans la Figure 4-8 pour les faisceaux de fibres de lin, montre l'influence quant à la forme de section sur l'estimation des aires de section résistive pour chacun des 20 faisceaux de fibres pris séparément. En plus de présenter une forte dispersion, un modèle de section circulaire tend à surestimer les valeurs moyennes d'aire, i.e.  $10802 \pm 3681 \mu\text{m}^2$  (Figure 4-8(a)) contre  $7211 \pm 1764 \mu\text{m}^2$  pour l'hypothèse d'une forme elliptique (Figure 4-8(b)). On retrouve également cette tendance pour les faisceaux de fibres de chanvre et d'ortie. A l'inverse, les faisceaux de fibres de palmier, qui présentent une section quasiment circulaire avec un facteur de forme  $\alpha$  de  $1,20 \pm 0,07$  (rapport entre le diamètre maximum et le diamètre minimum), sont moins impactés par le choix du modèle. Les résultats ont donné une aire de section résistive moyenne pour le modèle circulaire et elliptique filtré respectivement de  $18506 \pm 9170 \mu\text{m}^2$  et  $18133 \pm 9113 \mu\text{m}^2$ . Cette tendance se retrouve également pour les faisceaux de sisal.

La dispersion relative moyenne intra-faisceau est présentée dans le Tableau 4-2. La méthode appliquée pour estimer l'aire de section a peu d'influence sur les faisceaux de fibres qui présentent une section relativement circulaire, comme le palmier, avec une dispersion relative équivalente entre les deux modèles testés, i.e. 48% (modèle C) et 45% (modèle D). En revanche, pour les faisceaux de fibres de lin qui présentent des sections plus aplaties avec un facteur de forme de  $2,41 \pm 0,42$ , une hypothèse de forme de section circulaire n'est pas appropriée. La dispersion relative est nettement plus faible avec le modèle elliptique filtré, environ 58% contre 79% pour le modèle circulaire.



**Figure 4-8: Représentation statistique des aires de section des 20 faisceaux de fibres de lin pour (a) le modèle C et (b) le modèle D, à 50%HR et 23°C.**

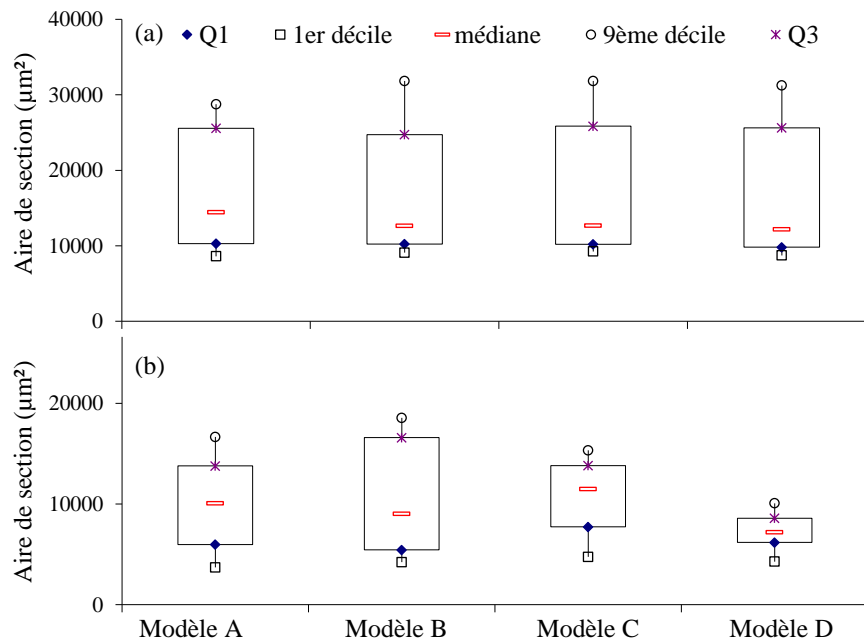
**Tableau 4-2 : Dispersion relative moyenne (DR) intra-faisceau des aires de section résistive en fonction du modèle géométrique de section utilisé.**

	Modèle C	Modèle D
Faisceaux de lin	79 %	58 %
Faisceaux de palmier	48 %	45 %

## II.2. Dispersion relative des aires de section inter-faisceaux

La Figure 4-9 donne une représentation statistique de l'influence du choix du modèle appliqué pour la mesure de l'aire de section résistive d'un lot composé de 20 faisceaux de fibres. L'influence de la méthode appliquée et donc de l'hypothèse de forme de section sur la dispersion relative des valeurs

d'aire de section des faisceaux quasiment circulaire ( $\alpha = 1,20 \pm 0,07$ ) est peu significative (Figure 4-9(a)). Quelle que soit l'hypothèse de forme de section considérée, la dispersion relative se situe aux alentours de 120%. Ces résultats sont en accord avec ceux observés dans le CHAPITRE 3.



**Figure 4-9: Représentation statistique des aires de section en fonction des différents modèles de calcul de l'aire de la section pour (a) les 20 faisceaux de palmier et (b) les 20 faisceaux de lin à 50% HR et 23°C.**

A l'inverse, les faisceaux de fibres présentant une section non-circulaire sont nettement plus sensibles au modèle appliqué. L'aire de section des faisceaux de fibres de lin (Figure 4-9(b)) est nettement surestimée avec l'utilisation d'une hypothèse de forme circulaire, quels que soient le nombre de valeurs utilisées pour l'estimation et la configuration avec ou sans rotation. La dispersion relative des valeurs d'aire de section donnée dans le Tableau 4-3 est fortement diminuée lorsque l'hypothèse de forme de section elliptique est considérée, i.e. 33% contre 78% pour l'hypothèse de forme circulaire qui correspond à la méthode usuelle utilisée dans la norme NF T25-501 [85]. Pour les faisceaux de fibres de palmier, une dispersion relative inter-faisceaux (Tableau 4-3) plus importante que la dispersion relative intra-faisceau (Tableau 4-2) est observée. Cette hétérogénéité au sein d'un lot de fibres végétales s'explique selon Thomason *et al.* [53] par le caractère naturel et évolutif des fibres végétales.

Ces résultats montrent la limite de l'utilisation de la méthode usuelle communément utilisée pour estimer l'aire de section des fibres végétales.

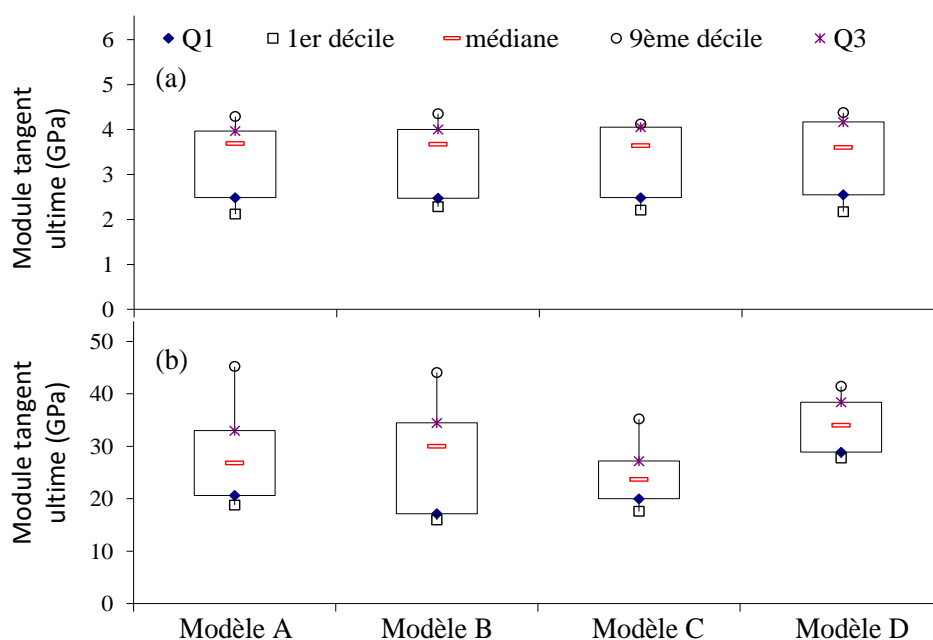
**Tableau 4-3: Dispersion relative moyenne (DR) inter-faisceaux des aires de section pour le lin et le palmier à 50% HR et 23°C en fonction des différents modèles de calcul de l'aire de la section.**

	Modèle A (circulaire)	Modèle B (circulaire)	Modèle C (circulaire)	Modèle D (elliptique filtré)
Faisceaux de lin	78 %	124 %	53 %	33 %
Faisceaux de palmier	110 %	115 %	124 %	120 %

### III. Dispersion des propriétés mécaniques en traction

#### III.1. Influence du choix du modèle de calcul de l'aire de la section sur les valeurs de module tangent ultime

L'influence de la méthode de calcul de l'aire de section sur les valeurs de module tangent ultime est présentée dans la Figure 4-10. On peut constater qu'il y a très peu d'influence pour les faisceaux de fibres à section plutôt circulaire comme pour les faisceaux de fibres de palmier (facteur de forme de  $1,20 \pm 0,07$ ). La dispersion relative reste identique aux alentours de 60% quel que soit le modèle de section utilisé. (Tableau 4-4).



**Figure 4-10 : Représentation statistique des valeurs de module tangent ultime en fonction des différents modèles de calcul de l'aire de la section pour (a) les faisceaux de palmier et (b) les faisceaux de lin à 50% HR et 23°C.**

En revanche, la rigidité des faisceaux qui présentent une section non-circulaire comme les faisceaux de lin (facteur de forme de  $2,41 \pm 0,42$ ) est fortement impactée par la méthode appliquée pour estimer l'aire de section. Une surestimation de l'aire de section avec une hypothèse de forme circulaire

(modèle A) entraînerait une sous-estimation du module de 23% par rapport au modèle D. A l'inverse, une hypothèse de forme de section elliptique permet de prendre en compte la géométrie particulière de la section. De plus, la dispersion des valeurs est plus faible, respectivement de 40% pour le modèle D (elliptique filtré) contre 99% pour l'hypothèse de forme circulaire (modèle A) employé habituellement pour la caractérisation des fibres végétales [85].

**Tableau 4-4 : Dispersion relative (DR) du module tangent ultime en fonction des différents modèles de calcul de l'aire de la section à 23°C et 50% HR pour les faisceaux de fibres de palmier et de lin.**

	Modèle A	Modèle B	Modèle C	Modèle D
Faisceaux de lin	99 %	94 %	74 %	40 %
Faisceaux de palmier	59 %	56 %	53 %	60 %

### III.2. Influence du choix du modèle de calcul de l'aire de la section sur les valeurs de contrainte à la rupture

Afin d'évaluer l'influence de la méthode appliquée pour estimer l'aire de section sur les valeurs de résistance à la rupture, l'approche statistique de Weibull à 2 paramètres a été employée. La détermination des paramètres de Weibull a été faite sur la base d'une minimisation au sens des moindres carrés et calculée pour une probabilité de rupture  $P_f$  de 50% à partir de l'équation 24.

$$P_f = 1 - \exp\left(-\left(\frac{\sigma}{\sigma_r}\right)^m\right) \quad (\text{Eq. 24})$$

avec  $P_f$  la probabilité de rupture de la fibre,  $\sigma_0$  la contrainte caractéristique,  $\sigma$  la contrainte ultime déterminée expérimentalement et  $m$  le module de Weibull.

Pour rappel, le module de Weibull  $m$  quantifie la dispersion des valeurs de résistance à la rupture consécutive à l'hétérogénéité de distribution des défauts microstructuraux. Quelle que soit la méthode appliquée pour estimer l'aire de section, les valeurs de module de Weibull restent assez proches, soit entre 3 et 3,4. Ces valeurs sont légèrement plus faibles que celle trouvée dans la littérature (valeur de 4,45 [186]) pour des faisceaux de palmier. Il en est de même pour les valeurs de contrainte de Weibull qui se situent aux alentours 128 MPa [186] contre 88 MPa dans notre étude (Tableau 4-5).

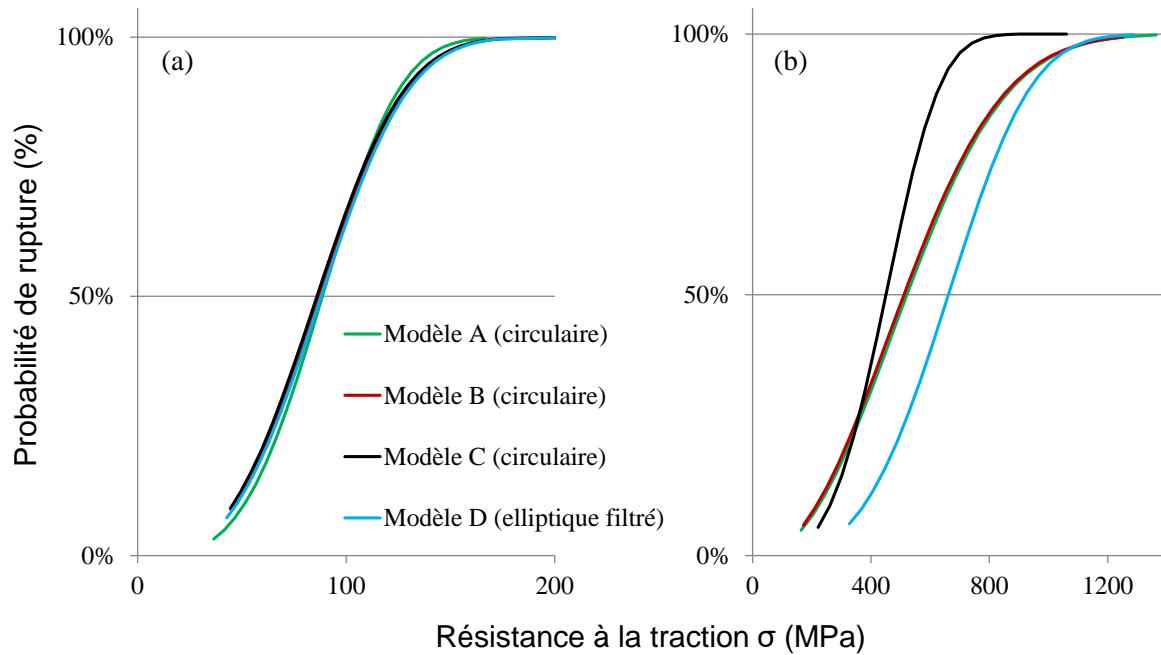
Pour les faisceaux de fibres de lin, le module de Weibull est fortement influencé par la méthode d'estimation de l'aire de section utilisée. Les résultats reflètent une forte dispersion pour les modèles circulaires A et B caractérisée par un faible module de Weibull, i.e. 2,3 et 2,2 respectivement. A l'inverse, une plus faible dispersion est constatée pour le modèle circulaire C et elliptique D avec des valeurs de module respectivement de 3,5 et 3,4. A titre indicatif, Romhany *et al.* [78], dans une étude

sur les faisceaux de fibres de lin, avaient trouvé un module de Weibull compris entre 1,5 et 2,1 pour des longueurs de jauge respectivement de 20 et 40 mm à partir d'une hypothèse considérant la section comme parfaitement circulaire.

**Tableau 4-5 : Résistance à la traction ( $\sigma$ ) et module de Weibull ( $m$ ) en fonction des différents modèles de calcul de l'aire de la section à 23°C et 50% HR pour les faisceaux de fibres de palmier et de lin.**

Faisceau de fibre	Paramètres de Weibull ( $P_f=50\%$ )	Hypothèse de forme de section			
		Modèle A	Modèle B	Modèle C	Modèle D
Palmier	$\sigma_{r,50\%}$ (MPa)	88	87	86	88
	$m$	3,4	3,1	3	3,1
Lin	$\sigma_{r,50\%}$ (MPa)	521	511	450	661
	$m$	2,3	2,2	3,5	3,4

Le choix d'une forme de section circulaire tend à surestimer l'aire de la section et donc à sous-estimer les propriétés mécaniques. Les valeurs de résistance à la traction caractéristique  $\sigma_r$ , données dans le Tableau 4-5, vont d'ailleurs dans ce sens. Les résultats montrent des faibles valeurs de contrainte à rupture pour les hypothèses de forme circulaire comparées à l'hypothèse de forme elliptique pour les faisceaux de fibres de lin. Cette sensibilité au modèle d'aire de section est clairement visible sur la Figure 4-11. Pour les faisceaux de fibres de palmier, l'allure des courbes est identique quel que soit le modèle de calcul considéré. A l'inverse, pour les faisceaux de fibres de lin, on observe un changement dans l'allure des courbes avec des pentes différentes. La pente correspond au module de Weibull et traduit le degré d'homogénéité, c'est-à-dire que plus la pente est importante et plus la répartition des défauts au sein des fibres végétales est homogène.



**Figure 4-11 : Distribution de Weibull pour les faisceaux de fibres de (a) palmier et (b) lin en fonction différents modèles de calcul de l'aire de la section à 23°C et 50% HR.**

En conclusion, pour les faisceaux de fibres présentant une forme de section quasi-circulaire comme le palmier avec un facteur de forme proche de 1, i.e.  $1,20 \pm 0,07$ , les résultats ont montré peu d'influence du choix du modèle de calcul de l'aire de section sur la dispersion des propriétés mécaniques telles que le module tangent ultime et la contrainte à la rupture. En revanche, pour les faisceaux présentant une section plus aplatie, comme les faisceaux de fibres de lin avec un facteur de forme de  $2,41 \pm 0,42$ , une hypothèse de section circulaire s'est avérée mal adaptée. Les résultats ont montré une surestimation des aires de section qui se traduit par une sous-estimation des valeurs de module et de contrainte. Outre ces résultats, on observe également une diminution de la dispersion des valeurs d'aires de section des fibres végétales à partir d'une hypothèse de forme de section elliptique par rapport à la méthode usuelle [85].

Dans la suite du manuscrit, afin d'améliorer l'estimation des propriétés mécaniques en traction, le modèle elliptique filtré [100] a été systématiquement employé. Dans la 3<sup>ème</sup> et dernière partie de ce chapitre, une amélioration de l'évaluation des propriétés mécaniques des fibres végétales reposant sur la détermination et la prise en compte de la compliance du système de mesure est proposée.

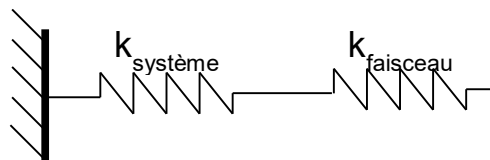
## PARTIE 3 AMÉLIORATION DE LA MÉTHODE D'ÉVALUATION DES PROPRIÉTÉS MECANIQUES FIBRES VÉGÉTALES

Si la dispersion des propriétés des fibres végétales est en grande partie liée à leur caractère naturel ou à l'estimation de l'aire de section résistive, Poilâne *et al.* [84], dans une étude sur les fibres élémentaires de lin, ont également montré que la mesure de la déformation globale (c'est à dire issue de la courbe force/déplacement) pouvait surestimer considérablement (jusqu'à 42%) la déformation moyenne de l'échantillon entraînant ainsi une sous-estimation du module de Young moyen de 70%.

L'objectif de cette partie est d'évaluer l'effet de la prise en compte de la compliance du système sur la dispersion des propriétés mécaniques des faisceaux de fibres végétales mesurés en traction.

### I. Méthodologie proposée pour l'évaluation de la compliance de l'ensemble du système de micro-traction

La compliance est une grandeur mécanique qui est associée à la « souplesse » induite par différents éléments de la chaîne de micro-traction tels que la déformabilité des tablettes de fixation des échantillons et du collage associé ou les pièces mécaniques du système. Dans une modélisation simplifiée de la situation, on peut considérer l'association de deux ressorts en série (Figure 4-12), l'un correspondant au faisceau de fibres et l'autre correspondant au système, chacun des ressorts possédant une raideur propre notée « k » (Eq. 6).



**Figure 4-12: Modélisation de la compliance de l'ensemble - système de micro-traction + faisceaux de fibres végétales - par 2 ressorts en série de raideur  $k_{\text{système}}$  et  $k_{\text{faisceau}}$ .**

La raideur apparente, mesurée lors d'un essai, est donc la combinaison de ces deux raideurs respectives (Eq. 25). La valeur de la compliance  $C_s$  (inverse de la raideur  $k_s$ ) du système peut généralement être déterminée à partir d'un essai réalisé sur un échantillon de raideur connue.

$$\frac{1}{k_a} = \frac{1}{k_f} + \frac{1}{k_s} = \frac{1}{k_f} + C_s \quad (\text{Eq. 25})$$

Soit :

$$\frac{k_a}{k_f} = \frac{E'}{E} = \frac{1}{1 + C_s * k_f} \quad (\text{Eq.26})$$



avec  $k_a$  la raideur apparente expérimentale (en N/m),  $k_f$  la raideur du faisceau de fibre (en N/m) et  $k_s$  la raideur du système (en N/m),  $C_s$  la compliance du système (en mm/N),  $E'$  le module apparent mesuré expérimentalement (en GPa) et  $E$  le module du faisceau (en GPa).

Pour déterminer la compliance du système  $C_s$ , une méthode d'extensométrie par corrélation d'images, déjà employée par Poilâne *et al.* [84] a été mise en œuvre. Cette technique repose sur la mesure optique du champ de déformation locale des faisceaux de fibres lors de l'essai de traction. La région d'observation, dans la zone utile du faisceau de fibres, a été filmée via une caméra rapide (cf. CHAPITRE 2). La détermination de  $C_s$  a été réalisée à partir de faisceaux de fibres de sisal, tel que présenté sur la Figure 4-13, compte tenu de leurs diamètres importants, compris entre 125 et 300  $\mu\text{m}$ , ainsi que de leur comportement à la rupture simple à analyser (bonne cohésion des fibres élémentaires au sein du faisceau qui exclut le phénomène de « pop-in », cf. CHAPITRE 4 PARTIE 1).

Le logiciel de corrélation d'images nommé CinEMA<sup>®</sup>, développé par l'Ecole des Mines d'Alès, a été utilisé pour le suivi de la déformation par corrélation d'images. Les détails de la détermination de  $C_s$  sont donnés dans l'annexe A.

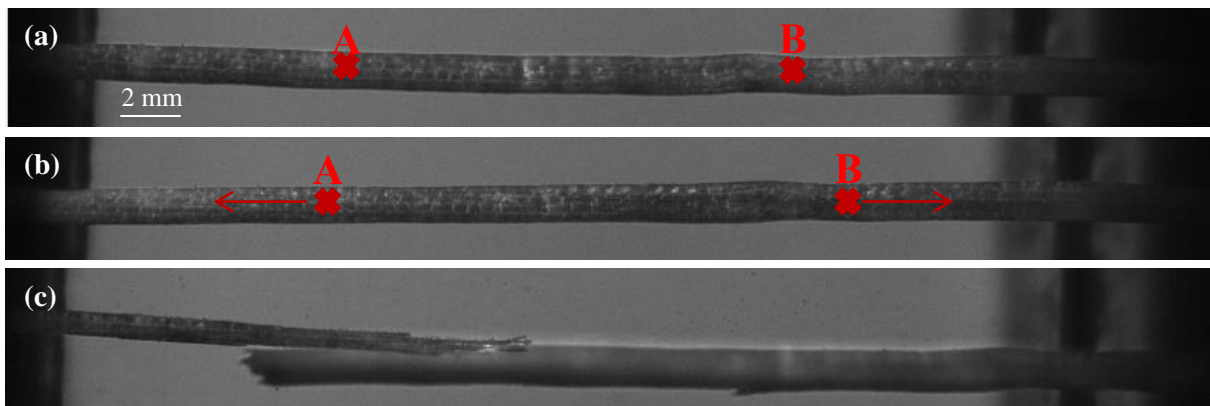


Figure 4-13: Faisceaux de sisal : (a) 1<sup>ère</sup> image, (b) 723<sup>ème</sup> image et (c) 724<sup>ème</sup> et dernière image correspondant à la rupture du faisceau. A et B : points suivis par corrélation (mors mobile à droite de l'image)

## II. Evaluation des propriétés mécaniques en traction des fibres végétales : prise en compte de la compliance

Pour tenir compte de la compliance ( $C_s = 0,01585$  mm/N) dans le calcul du module et de la déformation à la rupture des faisceaux de fibres de différentes natures, à partir du dispositif de micro-traction LEX, un calcul de correction a été appliqué à partir des relations des équations 27 et 28. Les résultats sont donnés dans le Tableau 4-6 sous forme de moyennes et écarts-types.

$$\frac{1}{E} = \frac{1}{E'} - \left( \frac{S_0}{L_0} * C_s \right) \quad (\text{Eq.27})$$

$$\varepsilon = \varepsilon' - \left( C_s * \frac{F}{L_0} \right) \quad (\text{Eq.28})$$

avec, E le module corrigé du faisceau en (GPa), E' le module apparent mesuré (en GPa), S<sub>0</sub> l'aire de section transversale du faisceau (en mm<sup>2</sup>), L<sub>0</sub> la longueur initiale (en mm), C<sub>s</sub> la compliance du système (en mm/N), ε la déformation de la fibre (en %), ε' la déformation totale expérimentale (en mm), ε<sub>s</sub> la déformation du système de micro-traction (en %) et F la force à rupture (en N).

**Tableau 4-6: Propriétés mécaniques (module tangent ultime et déformation à la rupture) des différents faisceaux de fibres à 50% HR et 23°C avant (E' et ε') et après (E et ε) prise en compte de la compliance C<sub>s</sub>.**

	Module tangent ultime (GPa)		Déformation à la rupture (%)	
	E'	E	ε'	ε
Palmier	3,4 ± 0,9	3,5 ± 0,9	5,2 ± 1,3	5,1 ± 1,3
Sisal	18,2 ± 1,9	21,4 ± 2,7	3,3 ± 0,4	3,0 ± 0,4
Lin	34,0 ± 5,1	38,9 ± 5,8	2,5 ± 0,4	2,2 ± 0,4
Chanvre	23,8 ± 5,4	26,7 ± 6,3	2,8 ± 0,7	2,6 ± 0,6
Ortie	34,6 ± 9,1	36,7 ± 9,3	1,4 ± 0,4	1,3 ± 0,4

Si on ne prend pas en compte la compliance, une sous-estimation des valeurs de module ainsi qu'une surestimation des valeurs de déformation à la rupture sont observées. L'évolution du rapport entre le module apparent et le module corrigé a été tracée en fonction de l'aire de la section résistive déterminée à partir du modèle elliptique filtré (Figure 4-14). Sans surprise, les résultats montrent une correction de module d'autant plus grande que la section résistive est importante et que la fibre est rigide. Cela correspond à une surestimation de la déformation en moyenne de 2, 12, 11, 7 et 15% ainsi qu'une sous-estimation du module tangent ultime en moyenne de 3, 17, 15, 12 et 6% pour les faisceaux de fibres de palmier, de sisal, de lin, de chanvre et d'ortie respectivement.

Pour finir, la Figure 4-15 montre l'évolution du module apparent corrigé par la prise en compte de la compliance en fonction de l'aire de section pour chacune des cinq espèces végétales. Ces résultats sont très intéressants car, même après la prise en compte de la compliance, on observe une tendance décroissante du module, plus ou moins prononcée selon la nature du faisceau de fibres, avec l'augmentation de l'aire de section résistive apparente. Si les faisceaux de fibres de lin et d'ortie montrent une perte de rigidité importante, les faisceaux de fibres de chanvre semblent moins impactés. Un temps de rouissage différent serait une des hypothèses pour expliquer cette différence

de résultats. Aussi, les faisceaux de fibres palmier et de sisal semblent peu impactés. Ainsi, des paramètres intrinsèques aux fibres végétales et associés à leur structure multi-échelle comme la présence du lumen ou les mécanismes de transfert de charge au niveau de la lamelle mitoyenne pectique (associée au nombre de fibres élémentaires présentes dans le faisceau de fibres) peuvent participer et avoir une influence sur cette perte de rigidité. Plusieurs travaux peuvent être entrepris afin de fournir des éléments de réponse comme jouer sur le temps de rouissage et donc sur la composition biochimique (teneur en pectine). En effet, plus les dimensions du faisceau sont importantes, plus il y aura de fibres élémentaires *in situ* et donc plus la teneur en pectine sera également importante. Aussi, une caractérisation structurelle plus approfondie par ultramicrotomie permettrait de mesurer la quantité de lumen.

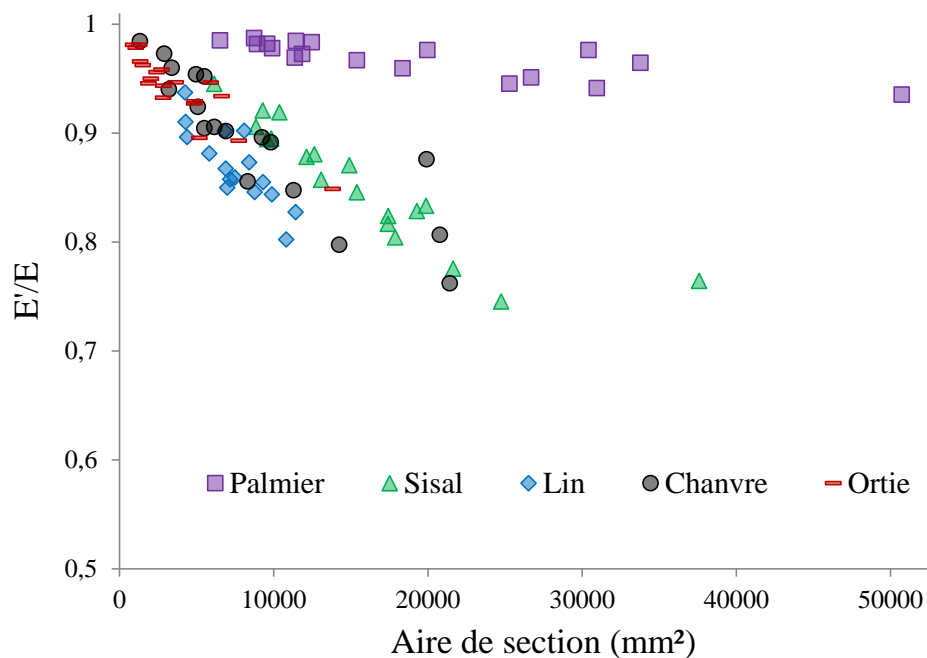
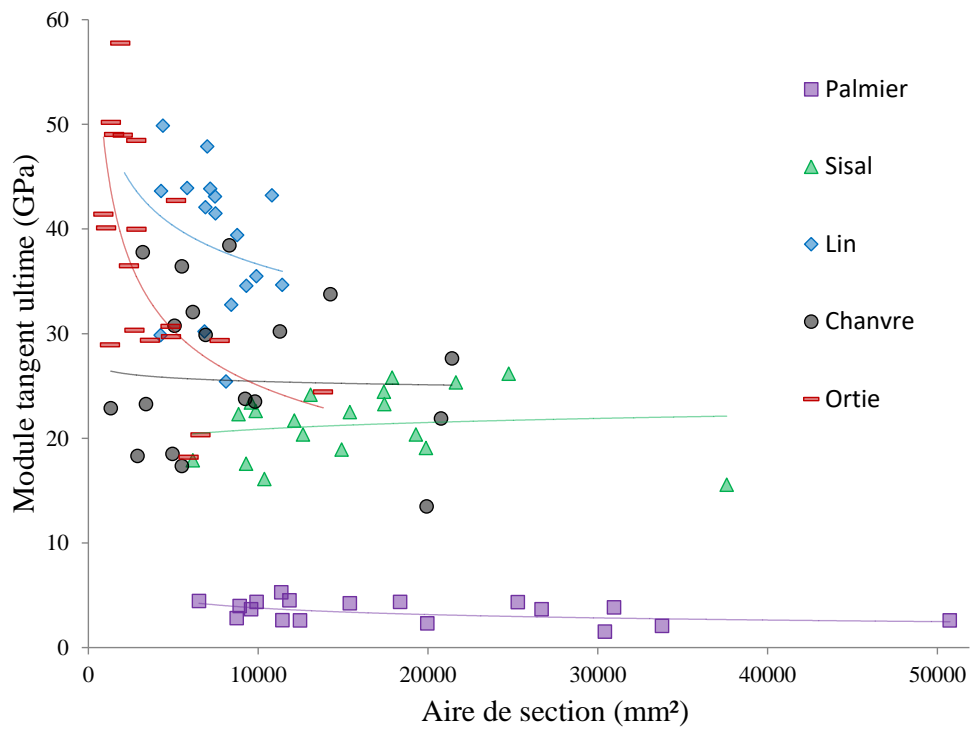


Figure 4-14 : Evolution du ratio du module apparent ( $E'$ ) sur le module apparent corrigé ( $E$ ), par la prise en compte de la compliance du système en fonction de l'aire de section apparente pour les différentes fibres végétales.



**Figure 4-15: Evolution du module apparent corrigé ( $E$ ) en fonction de l'aire de section apparente pour les différentes fibres végétales**

## CONCLUSION CHAPITRE 4

Ce chapitre avait pour objectif d'analyser l'origine de la dispersion des propriétés mécaniques des fibres végétales et de proposer une méthodologie de caractérisation plus fiable adaptée aux particularités géométriques des faisceaux de fibres d'origines botaniques différentes.

Dans un premier temps, les courbes force/déplacement, extraites d'essais de micro-traction, ont été analysées. Les résultats ont montré des comportements contrastés entre les espèces végétales. Les faisceaux de fibres de palmier et de sisal présentent un comportement de type I ou II avec une forte cohésion inter-faisceaux. A l'inverse, plusieurs pics de rupture successifs ont été observés pour les faisceaux de fibres libériennes qui peuvent s'expliquer par la faible cohésion entre les fibres élémentaires. Une des hypothèses avancées pour expliquer ces comportements contrastés est la différence de composition biochimique entre les fibres végétales et notamment les teneurs en biopolymères non-cellulosiques qui semblent jouer un rôle significatif dans le mécanisme de rupture. L'étape de rouissage qui consiste à dégrader les ciments pectiques présents dans la lamelle mitoyenne semble également jouer un rôle dans le mécanisme de rupture des faisceaux de fibres libériennes de chanvre, de lin et d'ortie (faible cohésion des fibres élémentaires au sein du faisceau).

Dans un second temps, pour déterminer les propriétés mécaniques à partir de ces courbes de comportement contrainte/déformation, les aires de section résistive ont été estimées. La dispersion relative liée à la méthode appliquée pour estimer ces aires de section à partir de différentes hypothèses de forme de section a été évaluée. Les résultats ont montré peu d'influence du choix du modèle sur les faisceaux de section quasiment circulaire comme les faisceaux de fibres de palmier. En revanche, pour les faisceaux présentant une section plus aplatie comme le lin, le chanvre et l'ortie, l'hypothèse d'une forme de section circulaire s'avère mal adaptée car elle conduit à surestimer de manière significative l'aire de la section transversale. Enfin, un modèle de section elliptique, qui tend à se rapprocher de la réalité morphologique, permet de diminuer drastiquement la dispersion des mesures de propriétés mécaniques de ces faisceaux.

Sur la base de ce modèle fiabilisé, l'évaluation des propriétés mécaniques des faisceaux de fibres a été améliorée en intégrant la compliance du système de mesure dans le calcul. Celle-ci est évaluée en instrumentant l'essai de micro-traction à l'aide d'une caméra rapide et en réalisant une analyse numérique par corrélation d'images. Les résultats ont montré que la non prise en compte de la compliance conduirait à une surestimation de la déformation en moyenne de 2, 12, 11, 7 et 5% ainsi qu'une sous-estimation du module tangent ultime en moyenne de 3, 17, 15, 12 et 6%, respectivement pour les faisceaux de fibres de palmier, de sisal, de lin, de chanvre et d'ortie.

## **CHAPITRE 5**

# **Variations dimensionnelles et comportement mécanique des fibres végétales en conditions hydro/hygrothermiques contrôlées**



## INTRODUCTION CHAPITRE 5

Le comportement des biocomposites et leur durabilité sont influencés en grande partie par la différence de propriétés intrinsèques entre les espèces végétales ainsi que par la forte sensibilité de ces renforts aux conditions hydro/hygrothermiques. Pour comprendre ces phénomènes, nous avons étudié dans une première partie l'effet de l'humidité relative (HR) et de l'immersion dans l'eau sur les variations dimensionnelles et gravimétriques de faisceaux de fibres végétales aux caractéristiques morphométriques et structurelles (composition biochimique et organisation des parois cellulaires) contrastées (*CHAPITRE 3*). Dans une deuxième partie, nous nous sommes intéressés au comportement mécanique de ces faisceaux de fibres végétales en conditions hydro/hygrothermiques contrôlées.



# PARTIE 1 CARACTÉRISATION DES VARIATIONS GRAVIMÉTRIQUES ET DIMENSIONNELLES DES FIBRES VÉGÉTALES EN HUMIDITÉ CONTRÔLÉE

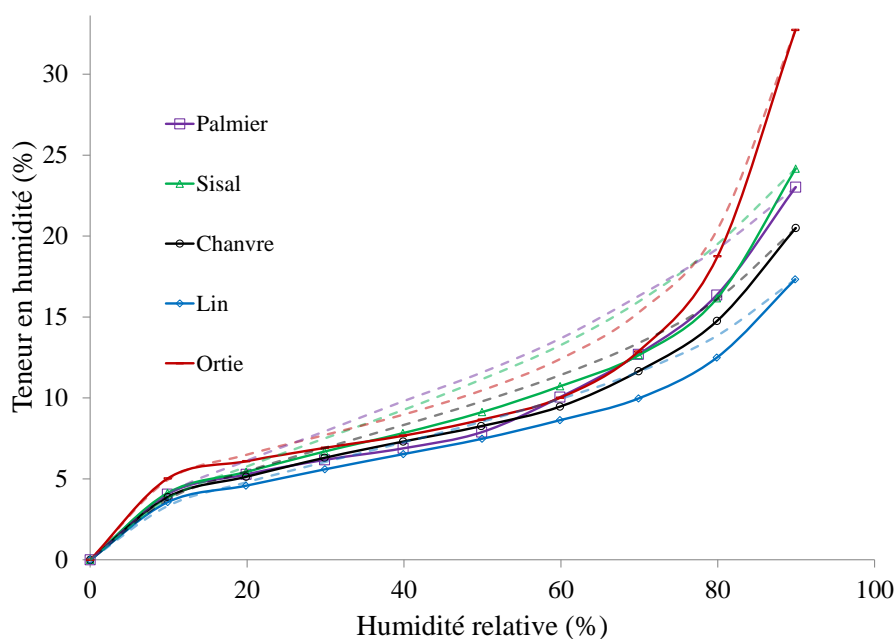
## I. Comportement en sorption des fibres végétales

Les matériaux et les méthodes utilisés dans cette partie sont expliqués en détail dans le *CHAPITRE 2*. Pour rappel, les mesures dimensionnelles ont été réalisées à trois niveaux d'humidité relative (20, 50 et 73% HR) ainsi qu'en immersion dans l'eau à une température de 23°C.

### *I.1. Teneur en eau par adsorption en phase vapeur (Dynamic Vapor Sorption)*

La teneur en eau à l'équilibre des différentes espèces de fibres végétales a été quantifiée à partir des courbes d'adsorption et de désorption présentées dans la Figure 5-1 et obtenues par analyse de la teneur en eau en phase vapeur (Dynamic Vapor Sorption). La variation de l'humidité relative au cours de l'essai s'est faite entre 0 et 90% HR. Quelle que soit l'espèce végétale considérée, l'allure des courbes reste identique et de type sigmoïde (type II) ; elle résulte de la combinaison de différents mécanismes de sorption. Les isothermes de sorption peuvent être divisés en trois zones [107]. Dans la première zone, entre 0 et 10% HR, l'eau est principalement adsorbée et liée via des liaisons hydrogène aux hydroxyles des biopolymères amorphes (pectines, hémicelluloses et certaines celluloses) présents dans les parois cellulaires et la lamelle mitoyenne. On parle de la formation d'une première couche mono-moléculaire d'eau sur les sites privilégiés d'adsorption. Dans la seconde zone, entre 10 et 60% HR, l'eau est adsorbée en multicouches au sein des parois cellulaires et du réseau microporeux. Enfin, au-delà de 60% HR, sont en jeu les processus de condensation capillaire qui se traduisent par la formation d'eau libre dans les pores et dans les lumens jusqu'à la saturation en eau des faisceaux de fibres végétales.

Pour finir, il est important de noter le retour à l'origine des courbes de sorption/désorption. Il n'y a donc pas d'interactions moléculaires non-réversibles entre les biopolymères constitutifs des parois cellulaires et les molécules d'eau. Il est relevé dans la littérature que, suite à des cycles d'adsorption/désorption successifs, un processus d'hornification a lieu engendrant une réduction progressive et irréversible du gonflement des fibres et des surfaces accessibles, en lien avec la modification du réseau de liaisons hydrogène inter- et intra-fibrillaires et une agrégation des microfibrilles de cellulose [161,187].



**Figure 5-1 : Isothermes de sorption (trait plein) et de désorption (trait pointillé) en phase vapeur pour les cinq espèces végétales.**

### 1.2. Teneur en eau en immersion (Water Retention Value)

Des essais de rétention d'eau (Water Retention Value, WRV) ont été réalisés et associés aux essais de DVS pour déterminer la teneur en eau des fibres végétales après immersion. Un protocole spécifique d'immersion et de centrifugation, basé sur la norme ISO 23714 [108], est décrit dans le CHAPITRE 2. Un récapitulatif de la teneur en eau à l'équilibre pour les trois niveaux d'humidité relative (20, 50 et 73% HR) obtenue par DVS pour 1 échantillon et de la teneur en eau moyenne en immersion obtenue par WRV sur 3 échantillons est donné dans le Tableau 5-1.

**Tableau 5-1 : Tableau récapitulatif de l'évolution de la teneur en eau à l'équilibre (en %) en fonction des humidités relatives de l'étude pour chaque espèce végétale à 23°C.**

	Conditions hygro/hydrothermiques			
	20% HR	50% HR	73% HR	Immersion (WRV)
Palmier	5,3	7,9	14,4	48,8 ± 2,0
Sisal	5,4	9,1	14,2	60,4 ± 1,0
Chanvre	5,1	8,3	13,1	62,8 ± 0,7
Lin	4,6	7,5	11,1	60,9 ± 0,7
Ortie	6,1	8,7	15,5	112,2 ± 1,2

La Figure 5-2 représente l'évolution de la reprise en eau en fonction de l'humidité relative. Entre 0 et 50% HR, la reprise en eau des différentes espèces végétales est faible et relativement identique, soit

en moyenne  $5,3 \pm 0,4\%$  avec un écart inférieur à 28%. Entre 50 et 73% HR, une légère évolution de la reprise en eau est observée quelles que soient les espèces considérées mais elle n'est pas significative. En revanche, dans le voisinage du point de saturation des parois cellulaires (teneur en eau d'environ 30%) et dans les conditions d'immersion (formation d'eau libre dans les pores et les lumens), la reprise en eau augmente considérablement et de grandes différences sont observées en fonction des espèces de fibres végétales. Les faisceaux de fibres de palmier et de sisal présentent les plus faibles reprises en eau,  $48,8 \pm 2,0\%$  et de  $60,4 \pm 1,0\%$  respectivement, suivis des faisceaux de fibres de lin et de chanvre avec des teneurs en eau respectivement de  $60,9 \pm 0,7\%$  et de  $62,8 \pm 0,7$ . On note que les faisceaux de fibres d'ortie présentent un caractère fortement hygroscopique avec une reprise en eau de  $112,2 \pm 1,2\%$ , soit pratiquement deux fois supérieur aux faisceaux de fibres de lin et de chanvre. Une des hypothèses pour expliquer cette forte reprise en eau, comparée aux autres fibres libériennes de lin et de chanvre, serait un mauvais rouissage (teneur en pectine élevée).

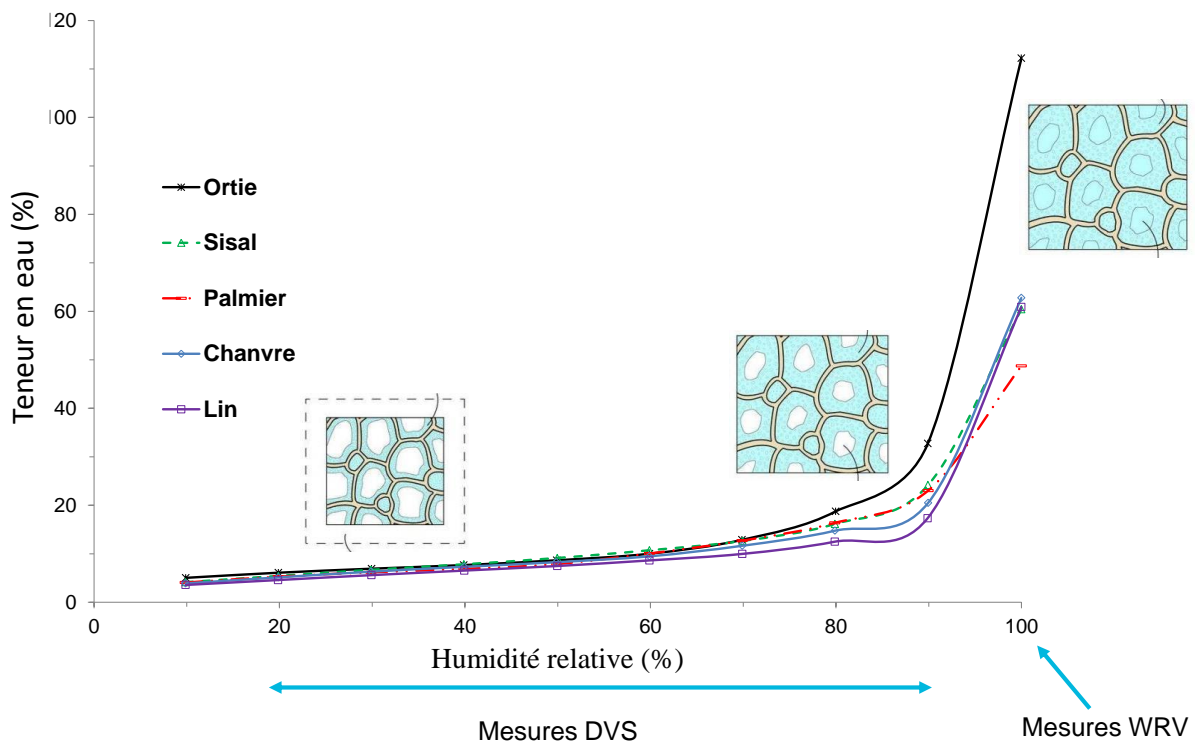


Figure 5-2 : Comportement de sorption d'eau en phase vapeur (DVS) et en immersion (WRV) pour les cinq espèces végétales à 23°C.

La composition biochimique contrastée entre les espèces peut expliquer cette différence de sensibilité aux conditions hydro/hygroscopiques. Pejic *et al.* [82] en 2008 ont étudié l'influence des biopolymères non-cellulosiques telle que la lignine sur l'absorption d'eau et ont montré qu'une forte teneur en lignine tend à limiter la capacité de rétention d'eau des fibres végétales. La teneur en lignine de Klason des cinq espèces végétales employées dans la thèse est donnée dans le Tableau 5-2 ci-dessous.

**Tableau 5-2 : Teneur en lignine des cinq espèces végétales évaluée selon la méthode de Klason.**

	Palmier	Sisal	Chanvre	Lin	Ortie
Lignine (%)	16,2 ± 0,3	9,3 ± 0,1	4,7 ± 0,3	3,7 ± 0,3	4,6 ± 0,2

Nos résultats sont en accord avec les travaux de Pejic *et al.* [82]. Avec les teneurs en lignine plus importantes, les faisceaux de fibres de palmier et de sisal sont également ceux qui présentent la plus faible reprise en eau. Les faisceaux de fibres libériennes de lin, de chanvre et d'ortie présentent des teneurs en lignine plus faibles et des reprises en eau légèrement plus importantes. Cependant, on remarque que faisceaux de fibres d'ortie présentent un caractère fortement hydroscopique avec une reprise en eau pratiquement deux fois supérieure aux faisceaux de lin et de chanvre.

Sur la base des résultats obtenus, nous sommes maintenant capable de faire une correspondance entre l'humidité relative du système et la teneur en eau présente au sein des parois cellulaires et de la lamelle mitoyenne.

## II. Influence sur la morphologie des fibres

### II.1. Variation du facteur de forme

Dans le *CHAPITRE 3*, il a été déterminé un facteur de forme médian ( $\alpha$ ) calculé sur la base du rapport des diamètres maximums sur les diamètres minimums, mesurés pour chacune des sections du faisceau considéré à partir des analyses par balayage laser. Ce facteur de forme apparaît comme un indicateur morphométrique simple et rapide à calculer pour évaluer la non-circularité des sections transversales quelle que soit la taille du faisceau considérée [100]. Les résultats obtenus dans le *CHAPITRE 3* ont montré qu'avec des facteurs de forme de  $1,20 \pm 0,06$  et  $1,29 \pm 0,14$  (à 50% HR, 23°C), les sections transversales des faisceaux de fibres de palmier et de sisal présentent une forme géométrique proche d'une forme circulaire. En revanche, les sections transversales des faisceaux de chanvre, de lin et d'ortie apparaissaient plus aplaties, avec des facteurs de forme largement supérieurs à 2.

La Figure 5-3 montre, pour les différentes espèces de fibres végétales, l'évolution du facteur de forme médian ( $\alpha$ ) en fonction de l'humidité relative ; le Tableau 5-3 en fait une synthèse. Pour les faisceaux de fibres de palmier et de sisal, l'humidité relative a peu d'influence sur les facteurs de forme qui restent proches de 1, c'est-à-dire qu'ils conservent des sections transversales de forme quasi-circulaire. Leurs facteurs de forme médians restent similaires, soit aux alentours de 1,20 et 1,29 respectivement (Tableau 5-3), sur toute la gamme d'humidité relative étudiée (de 20% HR à l'immersion). En revanche, les faisceaux de fibres de chanvre, de lin et d'ortie présentent des facteurs

de forme médians beaucoup plus élevés et dispersés, qui sont fortement influencés par l'humidité relative en particulier en immersion. Pour ces trois espèces, on observe une relative stabilité du facteur de forme médian entre 20 et 73% HR avant qu'il diminue fortement en immersion pour atteindre environ 1,9.

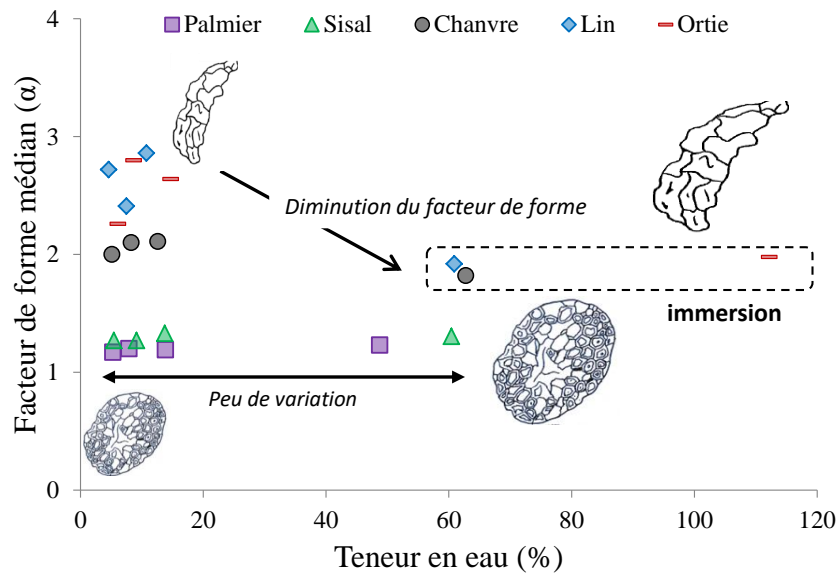


Figure 5-3 : Evolution du facteur de forme médian  $\alpha$  en fonction de la teneur en eau à 23°C pour les différents faisceaux de fibres végétales.

Le Tableau 5-4 donne un aperçu des variations mesurées en immersion des diamètres maximum et minimum (par rapport à ceux mesurés à 50% HR et 23°C). Pour les faisceaux de sisal et de palmier, outre les facteurs de forme qui restent similaires, on constate peu de différence entre l'accroissement des diamètres maximum et minimum (aux alentours de 10% pour le palmier et 18 % pour le sisal). Le gonflement de la section transversale pour ces faisceaux de fibres est donc isotrope. A l'inverse, pour les faisceaux de lin, de chanvre et d'ortie, le gonflement de la section transversale est fortement anisotrope. Cette anisotropie du gonflement est caractérisée par un accroissement médian du diamètre minimum très supérieur à celui du diamètre maximum, conduisant à une diminution significative du facteur de forme de section en condition d'immersion (teneur en eau supérieure à 60%).

A titre d'exemple, l'accroissement du diamètre minimum pour les faisceaux de fibres de lin et de chanvre est environ deux fois supérieur à celui du diamètre maximum, et jusqu'à trois fois supérieur pour les faisceaux d'ortie. Il en résulte des facteurs de forme médians en immersion de  $1,82 \pm 0,26$  ;  $1,92 \pm 0,42$  et  $1,98 \pm 0,69$ , pour les faisceaux de fibres de chanvre, de lin et d'ortie, respectivement, ce qui implique que leur section est moins aplatie dans ces conditions d'humidité.

**Tableau 5-3 : Evolution des facteurs de forme médian  $\alpha$  des cinq faisceaux de fibres pour différentes conditions hygro/hydrothermiques à 23°C.**

	Faisceau de fibre				
	Palmier	Sisal	Chanvre	Lin	Ortie
20% HR	1,17 ± 0,05	1,27 ± 0,13	2 ± 0,60	2,72 ± 0,37	2,26 ± 0,40
50% HR	1,20 ± 0,07	1,27 ± 0,11	2,10 ± 0,35	2,41 ± 0,42	2,80 ± 0,55
73% HR	1,19 ± 0,07	1,33 ± 0,21	2,11 ± 0,46	2,86 ± 0,44	2,64 ± 0,50
Immersion	1,23 ± 0,06	1,31 ± 0,12	1,82 ± 0,26	1,92 ± 0,42	1,98 ± 0,69

Au sein d'une tige, les fibres qui poussent en périphérie d'une lacune, entre l'écorce et le xylème, sont regroupées en faisceaux écrasés. Par conséquent, on peut supposer que ce mode de croissance intrusive de ces fibres, ainsi que le dessèchement progressif des cellules en fin de croissance, après récolte et coupe des tiges ou feuilles entraînent ce phénomène de gonflement anisotrope lors de la réhydratation des fibres élémentaires.. Ainsi, plus l'épaisseur des parois cellulaires sera faible, plus l'effet d'aplatissement sera important lors de la dessiccation et plus la diminution du facteur de forme lors de la réhydratation sera importante et plus on tendra vers une géométrie de forme circulaire.

**Tableau 5-4 : Suivi de l'accroissement médian des diamètres maximum et minimum de la section transversale en immersion (par rapport à ceux mesurés à 50% HR et 23°C).**

Faisceau de fibre	Conditions hygro/hydrothermiques	Accroissement médian (%)	
		Diamètre maximum	Diamètre minimum
Palmier	Immersion	9 ± 3,7	10 ± 1,8
Sisal	Immersion	14 ± 4	23 ± 5
Chanvre	Immersion	15 ± 2,5	27 ± 6,8
Lin	Immersion	17 ± 5	35 ± 8
Ortie	Immersion	18 ± 5,5	54 ± 16

## **II.2. Variation de l'aire médiane de section transversale**

Nous avons montré que les fibres végétales testées présentent un fort caractère hygroscopique principalement pour de forte humidité relative. La perte ou la reprise d'eau est donc susceptible d'avoir un effet important sur les dimensions des faisceaux de fibres végétales en lien avec le gonflement des parois cellulaires et de la lamelle mitoyenne. L'objectif est ici d'évaluer l'influence de l'humidité relative sur ces variations dimensionnelles et en particulier sur le gonflement de la section

transversale des faisceaux de fibres. Les conditions hygrothermiques initiales à partir desquelles les essais en hygro/hydrothermie contrôlée ont été menés sont de 23°C et 50% HR. Pour calculer le gonflement médian  $G_s$  d'un faisceau de fibre (cf. CHAPITRE 2, Eq.5 et Eq.8), l'évolution de l'aire de la section médiane aux différents HR a été normalisée par rapport à l'aire de la section médiane mesurée à 50% HR. Les résultats représentés sur le Figure 5-4 en fonction de la teneur en eau sont également reportés, pour chaque taux d'humidité relative et l'immersion, dans le Tableau 5-5.

**Tableau 5-5 : Evolution du gonflement médian  $G_s$  (en %) des cinq espèces végétales à 23°C.**

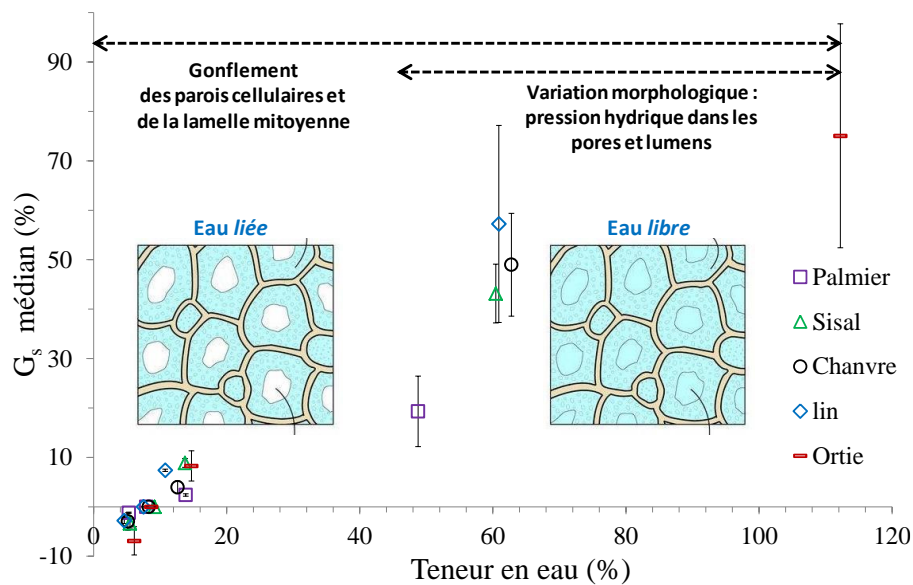
	Conditions hygro/hydrothermiques		
	20% HR	73% HR	Immersion
Palmier	-1,2 ± 0,1	2,4 ± 0,2	19,3 ± 7,1
Sisal	-3,3 ± 1,0	8,9 ± 0,9	43,2 ± 5,9
Chanvre	-3,0 ± 1,8	3,9 ± 1,0	49,0 ± 10,4
Lin	-2,8 ± 0,6	7,4 ± 0,2	57,2 ± 19,9
Ortie	-6,9 ± 2,9	8,3 ± 3,0	75,1 ± 22,6

A 20% HR, soit pour une teneur en eau inférieure à 5%, le retrait de la section transversale des fibres végétales est faible, soit en moyenne  $3,5 \pm 1\%$ , bien qu'il soit plus prononcé dans le cas des faisceaux de fibres d'ortie avec une diminution de la section médiane de  $6,9 \pm 2,9\%$  par rapport à cette même section médiane à 50% HR. À 73% HR, pour des teneurs en eau comprises entre 10,8 et 14,7% selon le type de fibre végétale, on observe un faible gonflement, inférieur à 10% avec une faible dispersion. Ce sont les faisceaux de fibres d'ortie qui présentent le plus fort gonflement de la section transversale médiane entre 20 et 73% HR avec 15,2 %. A l'inverse, les faisceaux de fibres de palmier semblent moins sensibles aux variations d'humidité relative avec un gonflement de la section transversale médiane de 3,6 %. Dans cette gamme d'humidité relative (20 à 73% HR) correspondant à des teneurs en eau d'environ 5 à 15%, le gonflement des faisceaux de fibres végétales est principalement associé à des processus s'opérant au niveau des parois cellulaires et dans la lamelle mitoyenne du fait de la sorption d'eau liée par les biopolymères.

Dans les conditions d'immersion maintenant, soit pour des teneurs en eau supérieures à 40%, le gonflement de la section transversale médiane augmente considérablement et de grandes différences sont observées en fonction des espèces de fibres végétales. Les faisceaux de fibres de palmier présentent le plus faible gonflement,  $19,3 \pm 7,1\%$  suivis par les faisceaux de fibres de sisal avec  $43,2 \pm 5,93\%$ . A l'inverse, les faisceaux de fibres de lin, de chanvre et d'ortie montrent un gonflement beaucoup plus important avec des amplitudes variant de  $49 \pm 10,4\%$  pour les faisceaux de chanvre à  $75,1 \pm 22,6\%$  pour les faisceaux d'ortie. Cette forte sensibilité à l'humidité des faisceaux de fibres

d'ortie a par ailleurs été observée dans les analyses de sorption et de désorption. Un second processus est ici impliqué dans le gonflement des faisceaux de fibres végétales. La formation d'eau libre dans les lumens et les porosités contribue au gonflement du faisceau comme relevées précédemment avec l'évolution du facteur de forme médian. Ces variations morphologiques sont induites par la pression hydrique qui s'exerce sur les parois cellulaires de fibres végétales. Ainsi le phénomène de gonflement anisotrope observé en immersion pour les faisceaux de fibres libériennes participe à l'augmentation de l'aire de section apparente mesurée au FDAS et donc au gonflement médian mesurée de la section transversale.

La Figure 5-4 retrace l'évolution du gonflement médian  $G_s$  de la section transversale en fonction de la teneur en eau à 23°C pour les différentes espèces végétales. Elle met en évidence les deux processus de gonflement des faisceaux de fibres végétales précédemment évoqués : (i) un gonflement microscopique s'opérant au niveau des parois cellulaires et dans la lamelle mitoyenne du fait de la sorption d'eau liée et (ii) un gonflement macroscopique associé à la formation d'eau libre dans les lumens et les porosités qui se traduit par une variation de la morphologie.



**Figure 5-4 : Gonflement médian de la section transversale (normalisée par rapport à l'aire de section à 50% HR) en fonction de la teneur en eau à 23°C pour les cinq espèces de fibres végétales.**

Ces différences de sensibilité aux conditions hydro/hygrothermiques en fonction des origines botaniques sont à souligner. En effet, il semblerait que les faisceaux de fibres fortement lignifiés comme le palmier et le sisal (appartenant à la famille des monocotylédones) tendent à avoir un gonflement de section transversale plus faible que les faisceaux de fibres faiblement lignifiés comme le lin, le chanvre et l'ortie (appartenant à la famille des dicotylédones). Outre la composition biochimique des parois cellulaires, la microstructure des parois cellulaires est également un paramètre

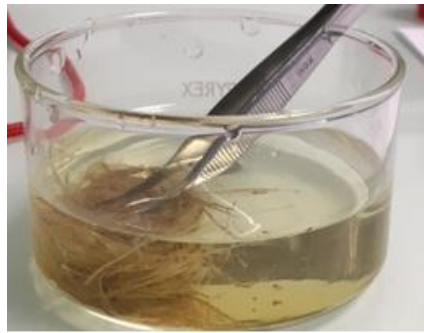


à prendre en compte et en particulier l'angle micro fibrillaire (MFA) qui peut jouer un rôle sur le gonflement transversal des parois cellulaires et donc à une échelle macroscopique sur le gonflement transversal des faisceaux de fibres végétales (cf. *CHAPITRE 1*). Selon Burgert *et al.* [116] et Abe et Yamamoto [117], les fibres végétales présentant un MFA élevé montrent un gonflement transversal plus faible que les fibres végétales à faible MFA. En effet, des forts MFA augmentent la rigidité transverse des fibres et limitent ainsi leur capacité de gonflement. Les valeurs reportées dans le Tableau 5-6 sont issues de la littérature. Les faisceaux de fibres libériennes présentent un MFA compris entre 6 et 11°, plus faible que les faisceaux de fibres de sisal et de palmier qui présentent des MFA compris entre 18 et 47°.

**Tableau 5-6 : Angle micro-fibrillaire des cinq espèces végétales [101][5][6].**

	Palmier	Sisal	Chanvre	Lin	Ortie
MFA (°)	40 - 47	18 - 22	6 - 11	6 - 10	7,5

Les faisceaux de fibres de palmier présentent à la fois le plus faible gonflement de section ainsi que l'angle micro-fibrillaire le plus élevé. Avec des MFA plus faibles compris entre 6 et 18°, les faisceaux de fibres de sisal, de chanvre et de lin montrent un gonflement de section intermédiaire compris entre  $43,2 \pm 5,9$  et  $57,2 \pm 19,9\%$ . Malgré un MFA similaire aux fibres de lin et de chanvre, ce sont les faisceaux de fibres d'ortie qui présentent un gonflement transversal le plus important ( $75,1 \pm 22,6\%$ ). L'ensemble des résultats de sorption et de gonflement montrent un comportement particulier des faisceaux de fibres d'ortie qui ne peut pas être expliqué de façon simple par des paramètres microstructuraux (MFA) ou la composition biochimique. Les essais en immersion pour les faisceaux de fibres d'ortie ont montré une coloration de l'eau associée à un relargage potentiel d'extractibles au cours des essais (Figure 5-5). Des évolutions de structure et de composition biochimique pourraient être à l'origine du comportement particulier des fibres d'ortie en sorption et en gonflement. Pour cela des essais cycliques de sorption/désorption avec suivi gravimétrique, dimensionnel et de la composition pourrait permettre de mieux comprendre les mécanismes en jeu.



**Figure 5-5 : Coloration de l'eau lors de l'immersion des faisceaux de fibres d'ortie**

### **II.3. Efficacité du gonflement en fonction de la reprise d'eau**

Les deux processus de gonflement précédemment identifiés dépendent fortement des conditions hygro/hydrothermiques considérées. Si pour le bois, le point de saturation en eau apparaît entre 25 et 30% [116], celui-ci est plus difficilement identifiable pour les fibres végétales. On parlera davantage d'un continuum de processus de gonflement pour les faisceaux de fibres végétales comme le montre la Figure 5-4.

#### **II.3.1. Gonflement en conditions hygrothermiques contrôlées**

La Figure 5-6 montre l'évolution du gonflement médian de la section transversale ( $G_s$ ) en fonction de la reprise en eau calculée entre 20 et 73% HR à 23°C, c.-à-d. correspondant au gonflement dans les conditions hygrothermiques contrôlées. Pour chacune des espèces végétales, une droite de régression linéaire entre le gonflement médian transverse et la teneur en eau a été tracée à partir de l'équation 29.

$$\text{Gonflement}_s = k \times \text{teneur en eau} \quad (\text{Eq.29})$$

avec  $k$  un coefficient traduisant la capacité des molécules d'eau à faire gonfler les faisceaux de fibres végétales en fonction de la teneur en eau à l'équilibre des cinq espèces végétales.

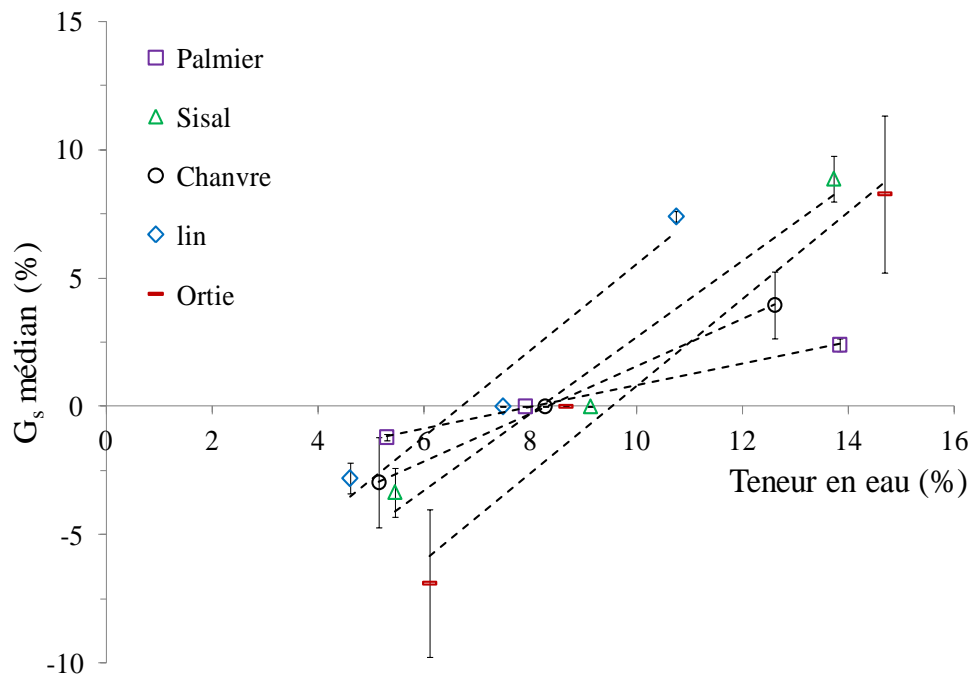


Figure 5-6 : Evolution du gonflement transverse en fonction de la teneur en eau à l'équilibre entre 20 et 73% HR et à 23°C des cinq espèces de fibres végétales.

Les résultats ont été reportés dans le Tableau 5-7.. Selon le type de fibres végétales, le coefficient  $k$  varie de 0,42 pour les faisceaux de fibres de palmier à 1,70 pour les faisceaux de fibres d'ortie avec des coefficients de régression  $R^2$  approximativement de 0,99 quelle que soit l'espèces végétales considérés.

Avec un coefficient  $k$  de 0,42, le gonflement des faisceaux de fibres de palmier est faible par rapport à la quantité d'eau prise. Cela est aussi associé à une plus faible reprise en eau :  $48,76 \pm 2,03\%$ . De même, en plus de présenter la reprise en eau la plus importante ( $112,23 \pm 1,16\%$ ), les faisceaux de fibres d'ortie sont également ceux qui présente un gonflement des parois cellulaires et de la lamelle mitoyenne le plus important avec un coefficient  $k$  de 1,70. En revanche, pour les autres espèces végétales, le gonflement est relativement important rapporté à la quantité d'eau absorbée, notamment pour les faisceaux de sisal et de lin avec des coefficients  $k$  de 1,49 et 1,67 respectivement, traduisant une forte efficacité des molécules d'eau à faire gonfler.

Tableau 5-7 : Analyse de l'efficacité du gonflement transverse  $k$  à 23°C des cinq espèces végétales ( $R^2$  : coefficient de régression).

	Palmier	Sisal	Chanvre	Lin	Ortie
$k$	0,42	1,49	0,92	1,67	1,70
$R^2$	0,99	0,98	1	0,99	0,99

Pour finir, le Tableau 5-8, propose une corrélation (Pearson,  $r$ ) entre le coefficient  $k$  traduisant la capacité des molécules d'eau à faire gonfler et les caractéristiques structurales des parois cellulaires des fibres végétales telles que leur composition biochimique et l'angle micro-fibrillaire (MFA). Les résultats montrent notamment une forte corrélation du coefficient  $k$  avec la concentration massique en lignine et l'angle micro-fibrillaire de -0,76 et -0,77 respectivement. Ces résultats montrent que les plus fortes concentrations en lignine et les hauts MFA (ex : faisceaux de fibres de palmier) tendent à limiter la capacité de rétention d'eau, et à réduire le gonflement transverse.

D'autres corrélations intégrant des descripteurs plus détaillés de la composition/structure des parois cellulaires (angle microfibrillaire par DRX) et des lamelles mitoyennes de chaque type de fibres végétales permettraient de mieux comprendre la contribution et le rôle de ces différents paramètres sur le phénomène de gonflement.

**Tableau 5-8 : Corrélation (coefficient de Pearson,  $r$ ) le coefficient  $k$  (traduisant la capacité à faire gonfler) Et les compositions biochimiques et MFA des différentes espèces végétales.**

	k	Cellulose (%)	Hémicelluloses (%)	Lignine (%)	MFA (°)
Palmier	0,42	45,1	27,7	16,2	43,5
Sisal	1,49	60,1	23,3	9,3	20
Chanvre	0,92	68,8	9,8	4,7	8,5
Lin	1,67	64,9	9,9	3,7	8
Ortie	1,70	51,7	9,9	4,6	7,5
	$r$ (Pearson)	0,36	-0,58	-0,76	-0,77

### II.3.2. Gonflement en conditions hydrothermiques

En condition d'immersion, la formation d'eau libre (par condensation capillaire) dans les lumens et les porosités se traduit par une variation de la morphologie et donc par un gonflement des fibres végétales. L'évolution du facteur de forme en est un bon exemple. Le Tableau 5-9 propose une corrélation (Pearson,  $r$ ) entre le gonflement  $G_s$  (pour des teneurs en eau supérieures à 40%) et la variation du facteur de forme (normalisée par rapport au facteur de forme à 50% HR). Cette analyse met en évidence une très forte corrélation de 0,92 entre ces deux paramètres. Ainsi, plus la variation du facteur de forme sera élevée et plus le gonflement de la section transversale sera importante. Dans le cas des fibres libériennes (de lin, de chanvre et d'ortie) le gonflement anisotrope déforme les faisceaux de fibres et participe au gonflement transverse.

**Corrélation (coefficient de Pearson,  $r$ ) entre le gonflement de la section  $G_s$  et la variation du facteur de forme (normalisée à 50% HR)**

	Gonflement (%)	Variation du facteur de forme (%)
Palmier	19,3	2,5
Sisal	43,2	3,1
Chanvre	49,0	13,3
Lin	57,2	20,3
Ortie	75,1	29,3
	$r$ (Pearson)	0,92

## **PARTIE 2 CARACTERISATION DU COMPORTEMENT MECANIQUE DES FIBRES VEGETALES EN HUMIDITE CONTROLEE**

Le suivi du comportement mécanique des fibres végétales en fonction des conditions hydro/hygrothermiques a été réalisé à la suite des analyses dimensionnelles au FDAS. Dans un premier temps, l'évolution du comportement mécanique en humidité a été étudiée puis l'influence de celle-ci sur les propriétés mécaniques élastiques et à rupture a été quantifiée.

### **I. Influence de l'humidité relative sur le comportement des faisceaux de fibres**

L'influence de l'humidité relative sur le comportement en traction des faisceaux de fibres végétales a été étudiée et quelques résultats sont présentés dans la Figure 5-7. Au préalable, les aires de section transversale ont été déterminées pour chaque HR et en immersion sur la base de la méthodologie développée dans le *CHAPITRE 3* à partir d'un modèle elliptique filtré. Par ailleurs, les déformations mesurées ont été corrigées en prenant en compte la compliance  $C_s$ . Pour rappel, les mesures des dimensions transversales par balayage laser ont été réalisées après avoir conditionné les faisceaux de fibres aux HR respectives de 20, 50, 73% HR pendant 13 heures. Concernant les essais en immersion, l'aire de la section transversale a été déterminée après stabilisation du gonflement transverse en fin d'essai.

D'un point de vue général, l'augmentation de l'humidité relative de 20% HR jusqu'à l'immersion tend à diminuer fortement la rigidité et le seuil de plasticité. Le comportement élasto-plastique des fibres est donc significativement impacté par leur teneur en eau. Cependant, on constate que les comportements mécaniques pour des HR de 20 et 50% sont assez proches quelle que soit l'espèce considérée, exception faite des faisceaux d'ortie pour lesquelles la dispersion est importante. Des changements dans le comportement non-linéaire en traction des fibres libériennes sont également constatés, comme pour les faisceaux de lin (Figure 5-7(a)), de chanvre (Figure 5-7(b)) ou d'ortie (Figure 5-7(c)) qui semblent passer d'un comportement majoritairement de type III (non-linéaire à 3 zones) à 20% HR à un comportement de type II (linéaire à 2 zones) en immersion (cf. *CHAPITRE 1*).

Le comportement à rupture, déformation à la rupture et résistance, sont également fortement modifiées par le changement d'HR. On distingue très nettement une perte de la résistance à la traction en immersion et cela pour toutes les espèces végétales. Pour finir, une augmentation de la déformation à la rupture avec l'augmentation de l'HR est également constatée.

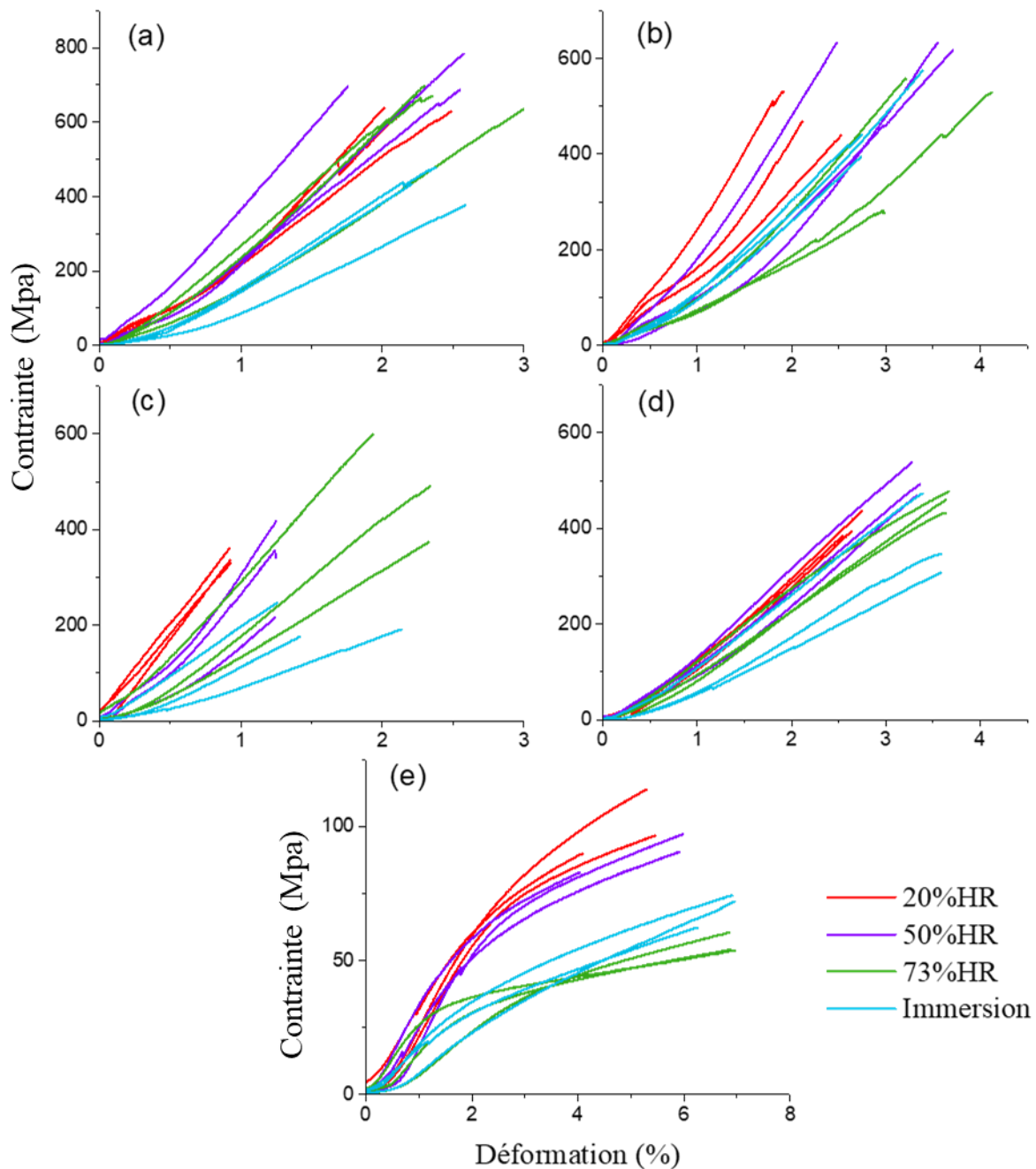


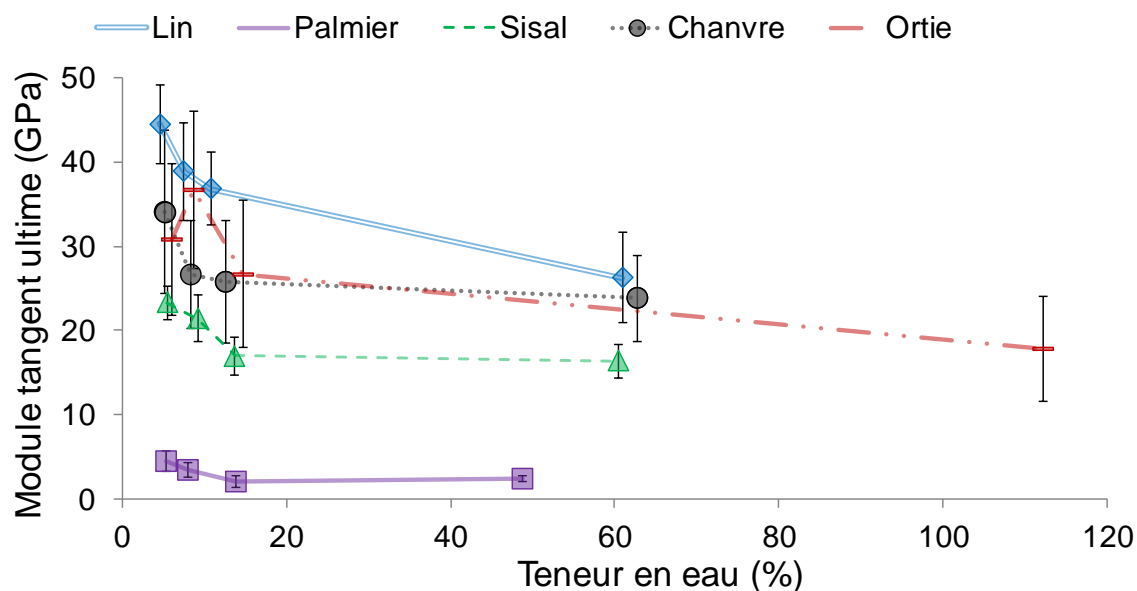
Figure 5-7 : Comportement mécanique en traction de cinq faisceaux de fibres végétales (a) lin, (b) chanvre, (c) ortie, (d) sisal et (e) palmier en fonction de l'humidité relative (20, 50 et 73% HR et immersion) et à 23°C.

## II. Influence de l'humidité relative sur des propriétés mécaniques en traction

Dans le CHAPITRE 4, il a été constaté que les faisceaux de fibres de palmier et de sisal présentaient des propriétés mécaniques en traction plus faibles que les fibres libériennes. Indépendamment de l'humidité relative testée, ce sont les faisceaux de fibres de lin qui présentent les meilleures propriétés mécaniques. Dans ce paragraphe, l'impact de l'humidité relative sur les valeurs de module tangent ultime, de résistance à la traction et de déformation à la rupture est étudié.

### II.1. Evolution du module tangent ultime

L'évolution du module tangent ultime en fonction de la teneur en eau pour les différentes espèces végétales est présentée dans la Figure 5-8. Pour plus de lisibilité des résultats, les grandeurs mécaniques déterminées sont synthétisées dans le Tableau 5-9. Le module tangent ultime diminue fortement lorsque l'humidité relative et donc la teneur en eau est augmentée et cela pour toutes les espèces de fibres végétales. Par exemple, le module tangent des faisceaux de fibres de lin diminue de 18 GPa entre 20 % HR et l'immersion. Cela représente une chute moyenne de 0,22 GPa par % HR contre 0,39 GPa par % HR sur l'intervalle 30-70% HR pour l'étude de Bruce et Davies [32]. Seuls les faisceaux de fibres d'ortie présentent un module tangent qui augmente de 6 GPa entre 20 et 50% HR pour décroître fortement à 73 % HR puis en immersion. D'une manière plus générale, la perte de rigidité des faisceaux de fibres de palmier, de sisal, de chanvre, de lin et d'ortie est respectivement de 47, 25, 30, 41 et 42% au passage de 20% HR à l'immersion.



**Figure 5-8: Evolution du module tangent ultime en fonction de la teneur en eau sorbée à 23°C pour les différentes espèces de fibres.**

Ces résultats démontrent que la sorption d'eau au sein des parois cellulaires des fibres élémentaires et de la lamelle mitoyenne qui les cimentent contribue fortement à la plastification des polysaccharides amorphes, et ce pour de faibles teneurs en eau sorbée (inférieure à 15%). Cette plastification, étudiée par de nombreux auteurs, augmente la souplesse des composés matriciels enrobant les microfibrilles de cellulose diminuant ainsi la rigidité des fibres élémentaires et des faisceaux [32,82,188]. On suppose qu'une dissolution de certains biopolymères de la lamelle mitoyenne, pour des teneurs en eau supérieures à 40%, peut également expliquer cette perte de rigidité. Pour rappel, les essais en immersion pour les faisceaux de fibres d'ortie ont montré une



coloration de l'eau associée à un relargage potentiel d'extractibles au cours des essais (Figure 5-5). Une analyse DSC de l'eau permettrait d'obtenir plus d'informations.

**Tableau 5-9 : Valeurs de module tangent ultime en fonction de l'humidité relative (20, 50 et 73% HR et immersion) à 23°C pour les différentes espèces de fibres.**

	Module tangent ultime ( $E_T$ ) (GPa)			
	20% HR	50% HR	73% HR	Immersion
Palmier	4,5 ± 1,2	3,5 ± 0,9	2,0 ± 0,7	2,4 ± 0,4
Sisal	23,3 ± 2	21,4 ± 2,7	16,9 ± 2,3	16,4 ± 1,9
Chanvre	34,0 ± 9,7	26,7 ± 6,3	25,7 ± 7,3	23,8 ± 5,1
Lin	44,5 ± 4,6	38,9 ± 5,8	36,8 ± 4,4	26,3 ± 5,4
Ortie	30,7 ± 8,9	36,7 ± 9,3	26,7 ± 8,7	17,8 ± 6,2

Placet *et al.* [50] dans une étude récente de 2012 ont observé, pour des fibres élémentaires de chanvre, une augmentation de la rigidité d'environ 0,114 GPa par % HR entre 10 et 80% HR. Selon ces auteurs, une des explications résiderait dans un changement d'orientation de l'angle micro-fibrillaire (MFA) lors de la plastification. Ce comportement observé à l'échelle des fibres élémentaires ne semble pas se retrouver à l'échelle des faisceaux. Le comportement observé pour les faisceaux de fibres serait majoritairement dû à la plastification des constituants amorphes de la lamelle moyenne

## II.2. Evolution de la résistance à la traction

L'évolution de la résistance moyenne à la traction en fonction de la teneur en eau pour les différentes espèces végétales est présentée dans la Figure 5-9. Pour plus de lisibilité des résultats, une synthèse est donnée dans le Tableau 5-10. Pour les faisceaux de fibres libériennes, c'est-à-dire de chanvre, de lin et d'ortie, une augmentation de la valeur de résistance à la rupture avec l'augmentation de la teneur en eau jusqu'à une teneur sorbée optimale comprise entre 7,5 et 14,5% (correspondant à une HR comprise entre 50 et 73% HR) a été observée. Ce sont les faisceaux de fibres d'ortie qui présentent la plus forte augmentation, 64%, comparée aux faisceaux de lin et de chanvre, respectivement de 6 et 11%. Le même comportement est observé pour les faisceaux de fibres de sisal, avec cette fois-ci une perte de résistance à la traction dès 50% HR jusqu'à l'immersion. Au-delà de cette valeur seuil d'humidité relative, une baisse de la résistance à la traction est observée. Ainsi pour les faisceaux de fibres de lin, de chanvre et d'ortie des diminutions respectives de 236, 56 et 211 MPa au passage de 73% RH à l'immersion sont mesurées.

Ce comportement a également été observé par van Voorn *et al.* [159] sur les fibres élémentaires de lin et par Placet *et al.* [50] sur les fibres élémentaires de chanvre. Pour les faisceaux de sisal, la perte de

la résistance à la traction est de 148 MPa entre 50% HR et l'immersion. A l'inverse, la résistance à la traction des faisceaux de fibres de palmier diminue de 45 MPa entre 20 et 73% HR sans diminution supplémentaire en immersion.

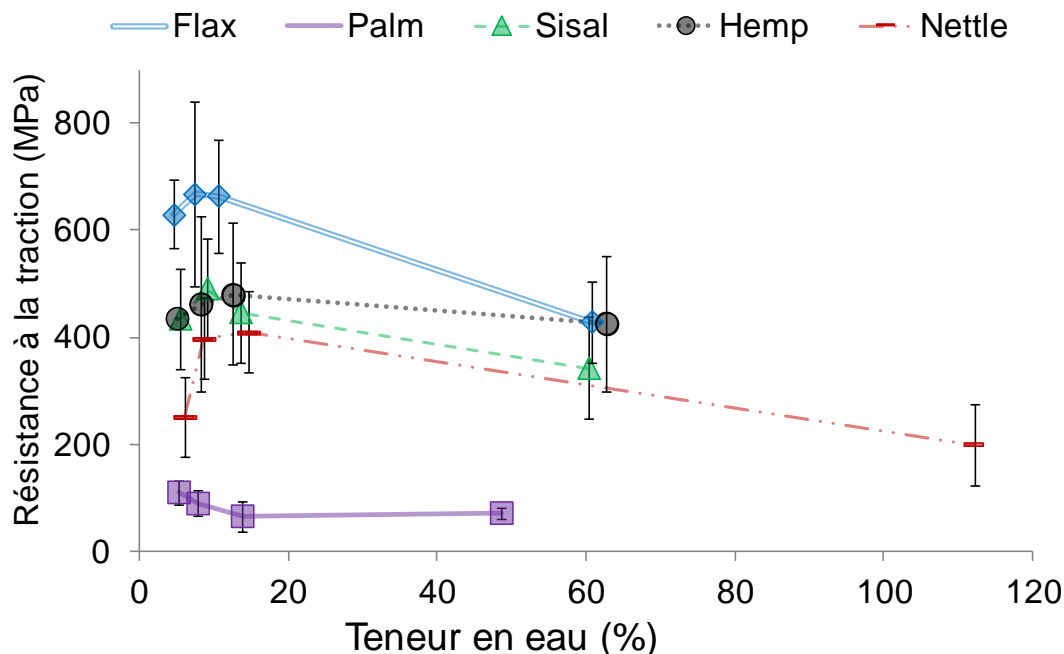


Figure 5-9 : Evolution de la résistance à la traction en fonction de la teneur en eau sorbée à 23°C pour les différentes espèces de fibres.

Tableau 5-10 : Valeurs de résistance à la traction pour différentes humidités relatives (20, 50 et 73% HR et immersion) à 23°C pour les différentes espèces de fibres.

	Résistance à la traction (MPa)			
	20% HR	50% HR	73% HR	Immersion
Palmier	109 ± 28	88 ± 29	64 ± 37	70 ± 14
Sisal	433 ± 187	490 ± 65	445 ± 109	342 ± 94
Chanvre	433 ± 69	462 ± 199	480 ± 173	424 ± 146
Lin	629 ± 91	667 ± 172	663 ± 106	427 ± 98
Ortie	250 ± 126	397 ± 214	409 ± 257	198 ± 75

Selon Placet *et al.* [50], ces évolutions particulières de la résistance à la rupture en fonction du taux d'humidité sont probablement liées au point de saturation en eau des parois cellulaires qui varie selon les espèces de fibres végétales étudiées. Cependant, comme l'indique la Figure 5-4, le point de saturation en eau (généralement 25 à 30% pour le bois) est difficilement identifiable pour les fibres végétales. Néanmoins, ces résultats indiquent que pour une certaine humidité relative entre 50 et 73%, une teneur en eau « optimale » (entre 7,5 et 14,5% selon le type de fibres) est sorbée dans les parois

cellulaires et la lamelle mitoyenne et contribue à augmenter la résistance à la rupture des fibres végétales. Au-delà de cette teneur en eau « optimale », le gonflement entraîne une décohésion au niveau des parois cellulaires et l'apparition de défauts irréversibles. L'endommagement très important des parois cellulaires conduit à une baisse de la résistance à la traction [50][158].

L'origine de la forte dispersion observée sur les valeurs de résistance à la traction des faisceaux de fibres végétales a été expliquée dans le CHAPITRE 1. La Figure 5-10 donne un exemple de représentation statistique des valeurs de résistance à la rupture mesurées pour chaque espèce végétale à 50% HR sous la forme de « box-plots ». Si, pour certains faisceaux de fibres comme le palmier, les résistances à la traction apparaissent peu dispersées (dispersion relative aux déciles DR de 80%), pour d'autres comme le chanvre et l'ortie, les résistances à la traction présentent une dispersion relative DR de 118 et 147%, respectivement.

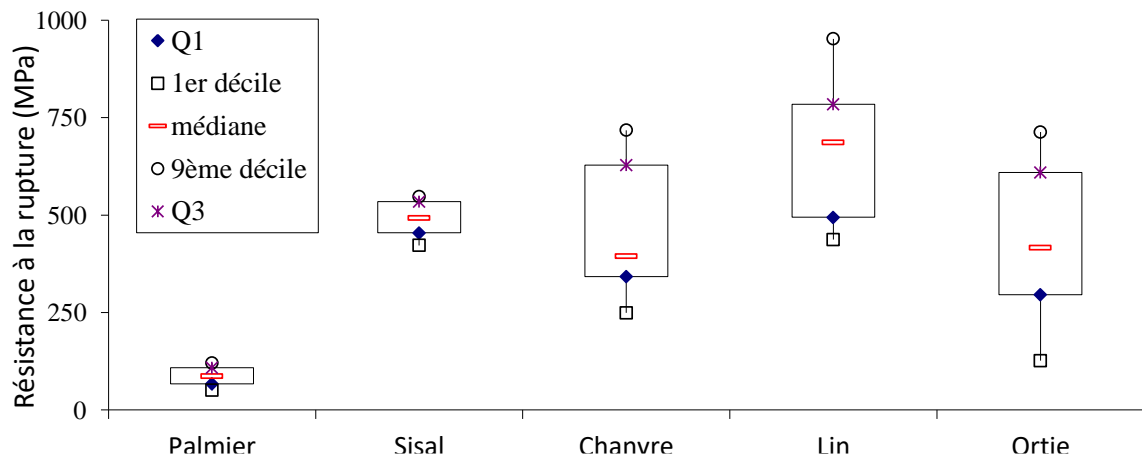


Figure 5-10 : Représentation statistique des contraintes à rupture des différentes espèces végétales pour une humidité relative de 50% HR à 23°C.

Comme explicité dans le CHAPITRE 4, la probabilité de rupture des faisceaux de fibres en fonction de l'humidité relative a été étudiée en utilisant une approche statistique de Weibull à 2 paramètres.

$$P_f = 1 - \exp\left(-\left(\frac{\sigma}{\sigma_r}\right)^m\right) \quad (\text{Eq.30})$$

avec  $P_f$  la probabilité de rupture de la fibre,  $l$  la longueur de jauge caractéristique,  $l_0$  la longueur de jauge de référence,  $\sigma_r$  le paramètre d'échelle (ou contrainte caractéristique),  $\sigma$  la contrainte ultime déterminée expérimentalement et  $m$  le paramètre de forme (ou module de Weibull).

Plusieurs auteurs ont déjà utilisé cette approche, comme Silva *et al.* [54] pour les faisceaux de fibres de sisal et plus récemment Placet *et al.* [50] pour évaluer l'influence de l'humidité relative sur le comportement des fibres élémentaires de chanvre. Pour rappel, la détermination des paramètres de Weibull comme la résistance à la traction notée «  $\sigma$  » et le module de Weibull notée  $m$ , a été faite sur

la base d'une minimisation au sens des moindres carrés et calculée pour une probabilité de rupture  $P_f$  de 50%. Les résultats de cette analyse sont présentés sur la Figure 5-11 et dans le Tableau 5-11.

Comparées aux valeurs rapportées dans la littérature pour des fibres élémentaires (par exemple : 1,46 à 1,79 sur la gamme de 10 à 80% HR pour des fibres élémentaires de chanvre [50]), les valeurs du module de Weibull noté « m » dans le Tableau 5-11 pour les faisceaux de fibres sont globalement élevées (de 1,9 à 9,3). Pour des faisceaux de fibres de sisal, Silva *et al.* [54] ont déterminé des modules de Weibull de 4,6 et 3 pour des longueurs de jauge de 10 et 40 mm, respectivement. Nos résultats sur les faisceaux de fibres de sisal reflètent une plus faible dispersion des valeurs de résistance à la traction avec des valeurs de module de Weibull pouvant atteindre jusqu'à 9,3 pour une humidité relative de 50% HR et une longueur de jauge de 30 mm. Ces valeurs élevées de module de Weibull sont caractéristiques d'une homogénéité de distribution des défauts microstructuraux pour les faisceaux de fibres testés et en particulier pour les faisceaux de fibres de sisal et de lin (Tableau 5-11). Seuls les faisceaux de fibres d'ortie présentent des valeurs de module proches de celles rapportées dans la littérature, soit environ 2.

**Tableau 5-11 : Résistance à la traction ( $\sigma$ ) et module de Weibull ( $m$ ) en fonction de l'humidité relative (20, 50 et 73% HR et immersion) à 23°C pour les différents faisceaux de fibres végétales.**

Faisceau de fibre	Paramètres de Weibull	Conditions hydro/hygrothermiques			
		20% HR	50% HR	73% HR	Immersion
Palmier	$\sigma_r$ (MPa)	111	88	55	71
	$m$	4,3	3,1	2,2	6,6
Sisal	$\sigma_r$ (MPa)	432	492	458	375
	$m$	6,5	9,3	4,5	3,6
Chanvre	$\sigma_r$ (MPa)	431	433	494	398
	$m$	3,7	2,3	3,34	2,8
Lin	$\sigma_r$ (MPa)	627	661	654	422
	$m$	8,4	3,4	5,9	4,8
Ortie	$\sigma_r$ (MPa)	239	400	354	180
	$m$	1,9	1,9	2,1	2,4

La Figure 5-11 met clairement en évidence l'effet de l'humidité relative sur la dispersion des valeurs de résistance à la traction. Ceci se traduit par un changement dans l'allure des distributions de Weibull avec en particulier une variation importante des pentes et donc de la dispersion des valeurs. Cette dépendance peut être associée à une variation de la distribution des défauts (décohésion) au sein des faisceaux suite au gonflement ou au retrait des parois cellulaires en fonction de l'humidité relative, qui

implique également une variation du volume sollicité en traction. Comme explicité précédemment, l'analyse de la probabilité de rupture par la statistique de Weibull permet de confirmer qu'il semble exister une teneur en eau « optimale » (entre 7,5 et 14,5% selon le type de fibres pour 50 à 73% RH) sorbée dans les parois cellulaires, contribuant à augmenter la résistance à la rupture des faisceaux de fibres végétales.

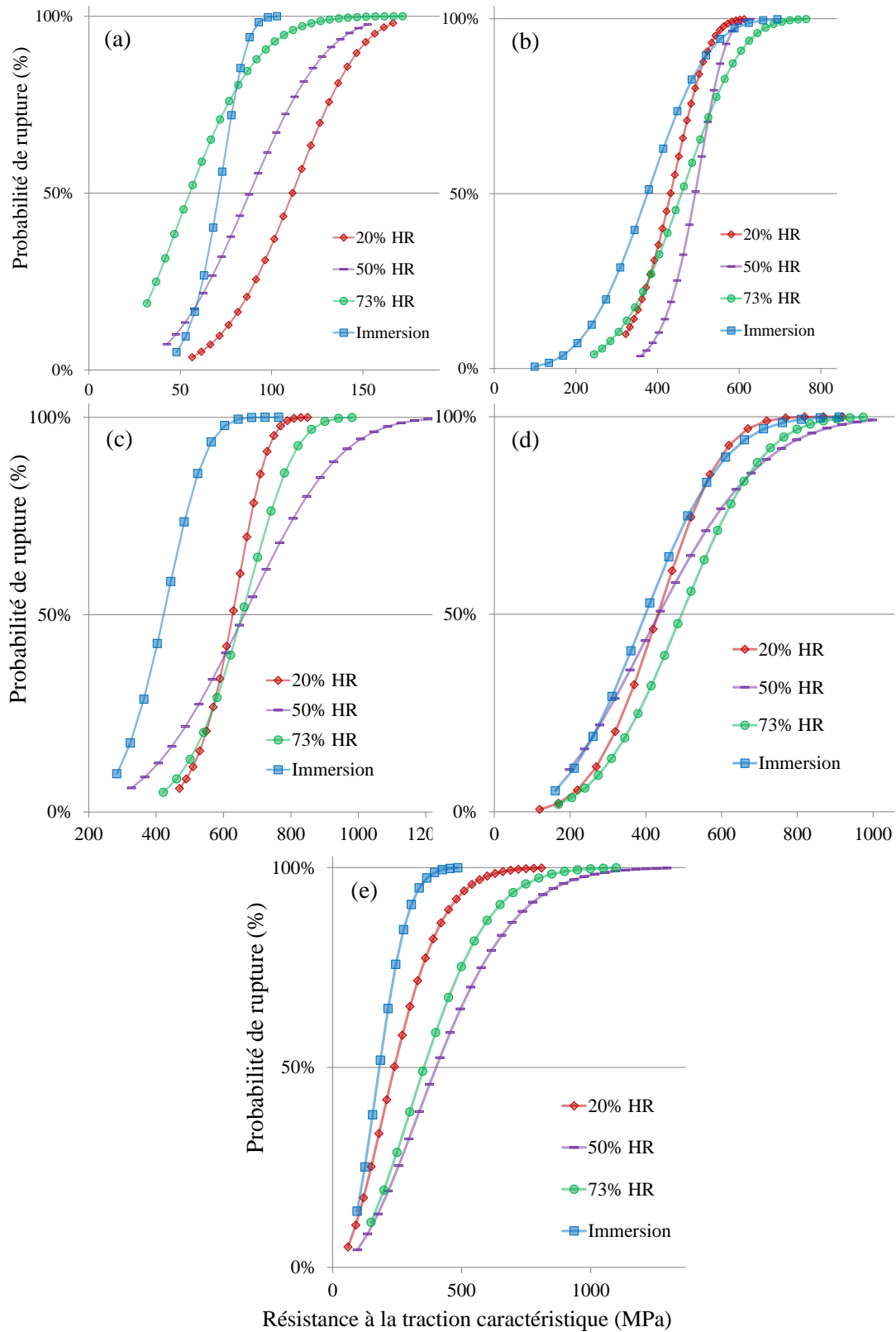


Figure 5-11 : Distribution de Weibull pour les faisceaux de fibres de (a) palmier, (b) sisal, (c) lin, (d) chanvre et (e) ortie en fonction de l'humidité relative (20, 50 et 73% HR et immersion) à 23°C.

### II.3. Evolution de la déformation à la rupture

L'évolution de la déformation à la rupture en fonction de l'humidité relative pour les différentes espèces végétales est présentée dans la Figure 5-12 et une synthèse des résultats est donnée dans le Tableau 5-12.

L'allure des courbes de comportement en traction en fonction de la teneur en eau confirme le phénomène de relaxation et de plastification du réseau de biopolymères amorphes, enrobant les microfibrilles de cellulose, et également présents dans les lamelles mitoyenne [50]. En effet, la déformation moyenne à rupture augmente lorsque l'humidité relative augmente et ce jusqu'à une valeur seuil d'humidité relative aux alentours de 73% HR. L'augmentation de la déformation est de 8, 38, 58, 36 et 90% pour les faisceaux de fibres de palmier, de sisal, de chanvre, de lin et d'ortie respectivement. Au-delà de cette valeur seuil, quelle que soit la nature du faisceau de fibres considéré, la déformation à la rupture chute. Ce type de comportement a également été observé Placet *et al.* [50] pour les fibres élémentaires de chanvre. Dans leur étude, les auteurs ont montré une augmentation de 14% de la déformation à la rupture, i.e. de  $2,3 \pm 0,8$  à  $2,7 \pm 0,7$  % au passage de 10 à 80% HR. Cette comparaison entre les fibres élémentaires de chanvre [50] et les faisceaux de fibres de chanvre de cette étude suppose que ce sont majoritairement les lamelles mitoyennes qui sont impactées par l'humidité relative et qui conditionnent le comportement.

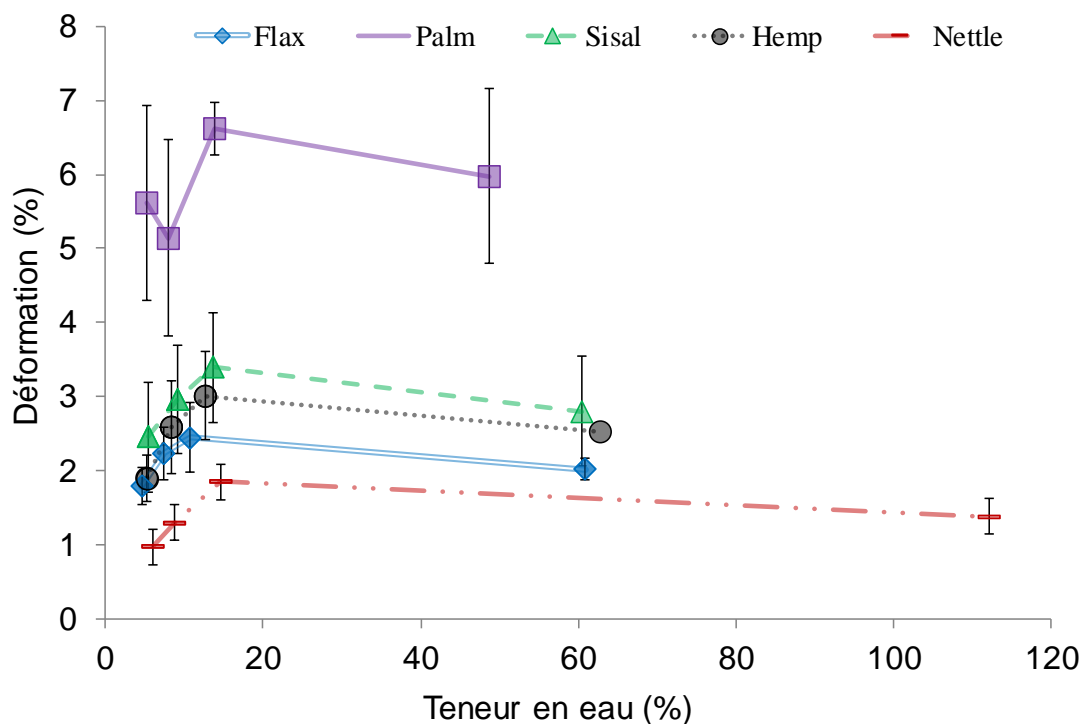


Figure 5-12 : Evolution de la déformation à la rupture en fonction de la teneur en eau sorbée à 23°C pour les différentes espèces de fibres

**Tableau 5-12 : Valeurs de déformation à la rupture pour différentes humidités relatives (20, 50 et 73% HR et immersion) à 23°C.**

	Déformation à la rupture (%)			
	20% HR	50% HR	73% HR	Immersion
Palmier	5,61 ± 1,32	5,14 ± 1,33	6,62 ± 0,35	5,98 ± 1,18
Sisal	2,45 ± 0,38	2,96 ± 0,39	3,39 ± 0,37	2,80 ± 0,74
Chanvre	1,90 ± 0,31	2,59 ± 0,63	3,01 ± 0,59	2,53 ± 0,54
Lin	1,79 ± 0,26	2,23 ± 0,35	2,44 ± 0,47	2,02 ± 0,15
Ortie	0,97 ± 0,19	1,29 ± 0,37	1,85 ± 0,39	1,38 ± 0,24

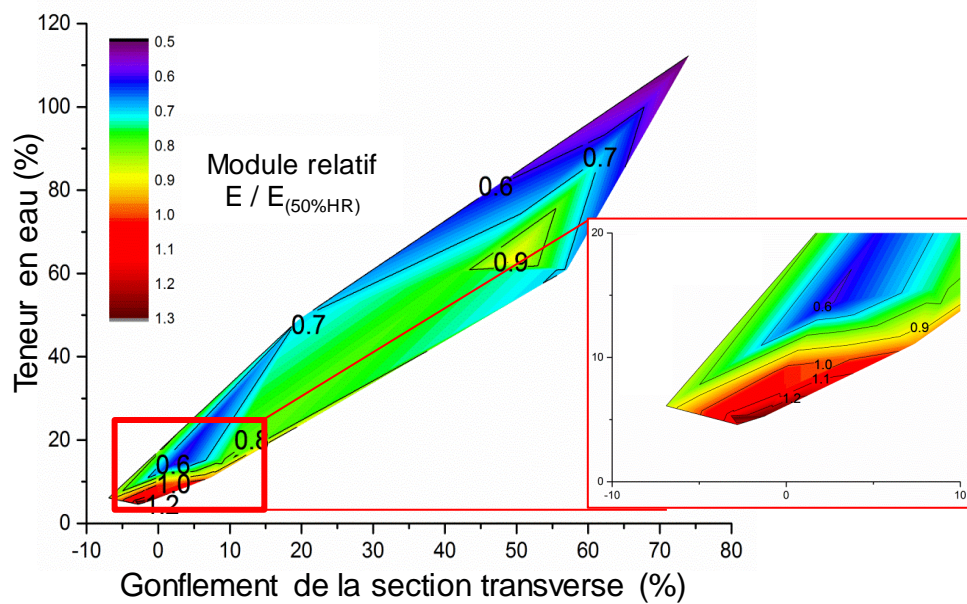


## CONCLUSION CHAPITRE 5

Les résultats de ce chapitre ont permis de quantifier l'influence de l'humidité relative sur les dimensions transversales et le comportement mécanique des faisceaux de fibres, leur origine botanique s'avérant être un facteur très influant. L'analyse des variations gravimétriques et dimensionnelles des faisceaux de fibres végétales en humidité contrôlée a montré des comportements d'adsorption et de gonflement contrastés en fonction des paramètres structuraux tels que la composition biochimique et l'angle micro-fibrillaire (MFA). Les faisceaux de fibres de palmier et de sisal, fortement lignifiés et à fort MFA, semblent être les moins impactés par les conditions hygro/hydrothermiques. Ces faisceaux à section transversale de forme quasi-circulaire présentent un gonflement isotrope avec un facteur de forme (indicateur morphométrique de la non-circularité de la section transversale) constant aux alentours de 1,20 et 1,27 respectivement, sur toute la gamme de HR étudiée. En revanche, les faisceaux de fibres libériennes de chanvre, de lin et d'ortie, faiblement lignifiés et à faible MFA, semblent être fortement sensibles aux conditions hygro/hydrothermiques. Leur facteur de forme est considérablement diminué en immersion pour atteindre environ 1,9. Les faisceaux de fibres sont ainsi moins aplatis en immersion, ce qui indique une forte anisotropie du gonflement. Ces résultats montrent que les plus fortes concentrations en lignine et les hauts MFA tendent à limiter la capacité de rétention d'eau, et à atténuer le gonflement transverse.

En ce qui concerne le comportement mécanique, le module tangent ultime diminue fortement avec l'augmentation de l'humidité relative et donc de la teneur en eau quelle que soit l'espèce végétale considérée. La Figure 5-13 reporte l'évolution du module tangent relatif normalisé à 50%HR ( $E/E_{50\%HR}$ ) en fonction de la teneur en eau et du gonflement de la section transverse pour les différents faisceaux de fibres végétales. Cette baisse de la rigidité met en évidence un fort effet de plastification des polysaccharides amorphes des parois cellulaires et de la lamelle mitoyenne qui les cimentent [32,82,188] et ce pour des teneurs en eau relativement faibles autour de 10%. Ceci est à mettre en regard avec l'étude des évolutions dimensionnelles en humidité contrôlée dans laquelle il a été montré que le gonflement des faisceaux de fibres intervient pour des teneurs en eau beaucoup plus fortes. Concernant la résistance à la traction et la déformation à la rupture pour les différentes humidités relatives testées, des évolutions particulières ont été observées. Les résultats ont mis en évidence l'existence d'une valeur seuil d'humidité relative pour laquelle la résistance à la rupture des faisceaux de fibres végétales est optimale. L'existence de cette valeur seuil variable, comprise entre 50 et 73% HR, a déjà été évoquée par certains auteurs pour des fibres élémentaires de chanvre [50] et des faisceaux de fibres de sisal [158]. Nos résultats suggèrent qu'il existe une teneur en eau « optimale » sorbée dans les parois cellulaires (entre 7,5 et 14,5% selon le type de fibres) qui contribue à augmenter

la résistance à la rupture des fibres végétales. Au-delà de cette teneur en eau «optimale», l'endommagement très important des parois cellulaires conduit à une baisse de la résistance et de la déformation à rupture en traction. On peut penser que pour cette gamme de teneur en eau dans les parois cellulaires, les transferts de charge entre la matrice amorphe et les microfibrilles de cellulose sont optimaux (meilleure répartition de la contrainte) et que l'effet des défauts microstructuraux est minimisé (répartition plus homogène, influence du volume sollicité associé au gonflement). Pour aller plus loin dans l'analyse, une quantification de la lamelle moyenne pour chaque espèce végétales (marquage des constituants) peut être envisagée.



**Figure 5-13 : Capacité de gonflement et évolution de la rigidité (normalisée à 50% HR) en fonction de la reprise en eau des cinq faisceaux de fibres végétales à 23°C.**

# CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

Le développement des matériaux composites renforcés par des fibres végétales nécessite une connaissance et une maîtrise approfondies de leurs caractéristiques morphologiques et mécaniques en conditions d'utilisation afin de conférer au matériau une stabilité de performances comparable à celle que proposent les autres fibres comme les fibres de verre ou de carbone. En effet, la question de la tenue mécanique en service de ces composites bio-sourcés reste un verrou scientifique majeur, en particulier lorsqu'ils sont soumis à l'humidité et/ou la température. C'est dans ce contexte scientifique que s'inscrit cette thèse dont l'objectif principal est de contribuer à la connaissance du comportement des fibres végétales en conditions hydro/hygrothermiques contrôlées par la mise en place de méthodologies robustes de caractérisation dimensionnelle et mécanique de ces fibres.

La méthodologie présentée dans le *CHAPITRE 3* concerne l'évaluation des caractéristiques morphologiques de fibres végétales d'origines botaniques variées. Une stratégie de caractérisation dimensionnelle a été mise en place et des indicateurs morphométriques permettant de quantifier l'écart à la circularité ont été implémentés. Deux principaux morphotypes ont ainsi été identifiés. Le premier correspond aux monocotylédones, comme les faisceaux de fibres de palmier et de sisal. Ces faisceaux présentent une forme de section transversale quasi-circulaire avec peu de variation sur la longueur. Le second morphotype correspond aux dicotylédones, comme les faisceaux de fibres de lin, de chanvre et d'ortie. Ces faisceaux de fibres libériennes présentent une forme de section nettement plus aplatie et une irrégularité significative le long de l'axe du faisceau. Sur la base de ces résultats, un modèle elliptique « filtré », développé spécifiquement pour pallier les éventuels biais de mesure des dimensions transversales d'un modèle elliptique standard, a permis d'évaluer de manière fiable l'aire de section des faisceaux de fibres étudiés.

Il apparaît dans la littérature une forte dispersion des propriétés mécaniques causée notamment par le choix de la méthode appliquée pour estimer l'aire de section, reposant sur différentes hypothèses de forme. Le *CHAPITRE 4* propose ainsi une évaluation statistique de la dispersion des propriétés mécaniques sur la base du modèle elliptique filtré précédemment développé, en comparaison aux modèles communément employés dans la littérature. Les faisceaux de fibres de forme de section quasi-circulaire présentent des dispersions de propriétés mécaniques intra- et inter-faisceaux assez homogènes, quelle que soit l'hypothèse de forme considérée ou les différents modèles appliqués. A

l'inverse, pour les faisceaux de fibres libériennes, une surestimation des aires de section, pour une hypothèse de forme circulaire a été démontrée, ainsi qu'une dispersion des valeurs d'aire plus importante. Cette surestimation des aires de section se traduit par une sous-estimation des modules tangents. Un modèle elliptique (filtré) donne une dispersion relative des valeurs de module de 40% contre 100% pour le modèle circulaire. Une analyse statistique de Weibull montre une moindre dispersion des contraintes à rupture pour un modèle elliptique filtré, justifiant ainsi l'intérêt de cette approche. Pour finir, une amélioration de la méthode d'évaluation des propriétés mécaniques en traction par la prise en compte de la compliance du système a été proposée.

L'influence de l'humidité a été étudiée dans le *CHAPITRE 5*. Des comportements d'adsorption et de gonflement contrastés en fonction des paramètres structuraux des fibres végétales ont été observés.

Ainsi, une forte teneur en lignine tend à limiter capacité de rétention d'eau, et un fort angle microfibrillaire (MFA) tend à réduire le gonflement transverse.

L'instabilité dimensionnelle a également été mise en évidence par le suivi du facteur de forme. Si les faisceaux de fibres à section plutôt circulaire montrent un gonflement isotrope, les faisceaux de fibres de lin, de chanvre et d'ortie sont moins aplatis après immersion, indiquant ainsi une anisotropie significative du gonflement. D'un point de vue mécanique maintenant, le module tangent ultime, la contrainte en traction et la déformation à la rupture se sont révélés être fortement impactés par les conditions d'humidité relative et d'immersion appliquées. La baisse de rigidité avec l'augmentation de l'humidité relative met en évidence l'effet de plastification des polysaccharides amorphes des parois cellulaires déjà mentionné dans la littérature. Des évolutions particulières de la résistance à la rupture et de la déformation ont également été constatées. Les résultats ont mis en évidence l'existence d'une valeur seuil d'humidité relative, comprise entre 50 et 73%HR pour laquelle la résistance à la rupture et la déformation des faisceaux de fibres végétales sont optimales avant endommagement des parois cellulaires pour une humidité supérieure.

Pour conclure, nos résultats démontrent que l'état d'hydratation, de gonflement et donc de plastification des parois cellulaires des faisceaux de fibres végétales joue un rôle très important sur leur comportement mécanique en traction (module, résistance et déformation). L'origine botanique, la microstructure et la composition biochimique des fibres végétales sont fortement impliquées dans ces mécanismes. Ces résultats ouvrent ainsi des perspectives intéressantes pour la modélisation prédictive du comportement mécanique « en service » des biocomposites et peuvent également être

associés à d'autres recherches actuelles, telles que celles portant sur les biocomposites hygromorphes pour la réalisation d'actionneurs en fibres naturelles bio-inspirés.



## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] Vengatesan MR, Varghese AM, Mittal V. Thermal properties of thermoset polymers. *Thermosets*, Chapter 3, Elsevier; 2018, p. 69–114. doi:10.1016/B978-0-08-101021-1.00003-4.
- [2] Bourgeois M. Fibres agrosourcées. *Tech l'ingénieur* 2011;1:1–11.
- [3] Gornet L. Généralités sur les matériaux composites. *Eng Sch* 2008.
- [4] Développement FR, ADEME. Panorama des marchés fibres végétales techniques matériaux. *Agrobiobase* 2016:1–32.
- [5] Baley C. Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites. *Tech l'ingénieur* 2013;2:1–17. doi:am5130.
- [6] Müssig J. Industrial application of natural fibres: Structure, properties, and technical applications 2010:538.
- [7] Shah DU, Schubel PJ, Clifford MJ. Can flax replace E-glass in structural composites? A small wind turbine blade case study. *Compos Part B Eng* 2013;52:172–81. doi:10.1016/j.compositesb.2013.04.027.
- [8] Karus M, Kaup M. Natural Fibres in the European Automotive Industry. *J Ind Hemp* 2002;7:119–31. doi:10.1300/J237v07n01\_10.
- [9] Koronis G, Silva A, Fontul M. Green composites: A review of adequate materials for automotive applications. *Compos Part B Eng* 2013;44:120–7. doi:10.1016/j.compositesb.2012.07.004.
- [10] Alves C, Ferrão PMC, Silva AJ, Reis LG, Freitas M, Rodrigues LB, et al. Ecodesign of automotive components making use of natural jute fiber composites. *J Clean Prod* 2010;18:313–27. doi:10.1016/j.jclepro.2009.10.022.
- [11] Nickel J, Riedel U. Activities in biocomposites. *Mater Today* 2003;6:44–8. doi:10.1016/S1369-7021(03)00430-9.
- [12] Bledzki AK, Gassan J. Composites reinforced with cellulose based fibres. *Prog Polym Sci* 1999;24:221–74. doi:10.1016/S0079-6700(98)00018-5.
- [13] Gurunathan T, Mohanty S, Nayak SK. A review of the recent developments in biocomposites based on natural fibres and their application perspectives. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2015;77:1–25. doi:10.1016/j.compositesa.2015.06.007.
- [14] Faruk O, Bledzki AK, Fink H-P, Sain M. Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010. *Prog Polym Sci* 2012;37:1552–96. doi:10.1016/j.progpolymsci.2012.04.003.
- [15] Maya Jacob J, Sabu T. Biofibres and biocomposites. *Carbohydr Polym* 2008;71:343–64. doi:10.1016/j.carbpol.2007.05.040.
- [16] Shah DU. Natural fibre composites: Comprehensive Ashby-type materials selection charts. *Mater Des* 2014;62:21–31. doi:10.1016/j.matdes.2014.05.002.
- [17] Kiruthika A V. A review on physico-mechanical properties of bast fibre reinforced polymer composites. *J Build Eng* 2017;9:91–9. doi:10.1016/j.jobe.2016.12.003.
- [18] Lau K tak, Hung P yan, Zhu MH, Hui D. Properties of natural fibre composites for structural engineering applications. *Compos Part B Eng* 2018;136:222–33. doi:10.1016/j.compositesb.2017.10.038.
- [19] Llewellyn-Jones TM, Drinkwater BW, Trask RS. 3D printed components with ultrasonically arranged microscale structure. *Smart Mater Struct* 2016;25:02LT01. doi:10.1088/0964-1726/25/2/02LT01.

- [20] Faruk O, Bledzki AK, Fink HP, Sain M. Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000-2010. *Prog Polym Sci* 2012;37:1552–96. doi:10.1016/j.progpolymsci.2012.04.003.
- [21] Bourmaud A, Gibaud M, Baley C. Impact of the seeding rate on flax stem stability and the mechanical properties of elementary fibres. *Ind Crops Prod* 2016;80:17–25. doi:10.1016/j.indcrop.2015.10.053.
- [22] Charlet K, Baley C, Morvan C, Jernot JP, Gomina M, Bréard J. Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2007;38:1912–21. doi:10.1016/j.compositesa.2007.03.006.
- [23] Alix S, Lebrun L, Marais S, Philippe E, Bourmaud A, Baley C, et al. Pectinase treatments on technical fibres of flax: Effects on water sorption and mechanical properties. *Carbohydr Polym* 2012;87:177–85. doi:10.1016/j.carbpol.2011.07.035.
- [24] FRD, ADEME. Evaluation de la disponibilité et de l'accessibilité de fibres végétales à usages matériaux en France 2011.
- [25] Bourmaud A, Beaugrand J, Shah DU, Placet V, Baley C. Towards the design of high-performance plant fibre composites: How can we best define the diversity and specificities of plant cell walls? *Prog Mater Sci* 2018;97:347–408. doi:10.1016/j.pmatsci.2018.05.005.
- [26] GODA K, CAO Y. Research and Development of Fully Green Composites Reinforced with Natural Fibers. *J Solid Mech Mater Eng* 2007;1:1073–84. doi:10.1299/jmmp.1.1073.
- [27] Azwa ZN, Yousif BF, Manalo AC, Karunasena W. A review on the degradability of polymeric composites based on natural fibres. *Mater Des* 2013;47:424–42. doi:10.1016/j.matdes.2012.11.025.
- [28] Ren D, Yu Z, Li W, Wang H, Yu Y. The effect of ages on the tensile mechanical properties of elementary fibers extracted from two sympodial bamboo species. *Ind Crops Prod* 2014;62:94–9. doi:10.1016/j.indcrop.2014.08.014.
- [29] Morvan C, Andème-Onzighi C, Girault R, Himmelsbach DS, Driouch A, Akin DE. Building flax fibres: More than one brick in the walls. *Plant Physiol Biochem* 2003;41:935–44. doi:10.1016/j.plaphy.2003.07.001.
- [30] Sakurada I, Nukushina Y, Ito T. Experimental determination of the elastic modulus of crystalline regions in oriented polymers. *J Polym Sci* 1962;57:651–60. doi:10.1002/pol.1962.1205716551.
- [31] Fink H-P, Walenta E, Kunze J. Structure of natural cellulosic fibres. Part II. The supermolecular structure of bast fibres and their changes by mercerization as revealed by X-ray diffraction and <sup>13</sup>C-NMR-spectroscopy. *Papier* 1999;53(9):534–42.
- [32] Bruce DM, Davies GC. Effect of Environmental Relative Humidity and Damag on Tensile Properties of Flax and Nettle Fibres. *Text Res J* 1998;68:623–9.
- [33] Placet V, Rivaudey FT, Isse OC, Etel VGU, Oubakar LB. Influence du diamètre sur le module d'Young apparent des fibres de chanvre . Effet géométrique ou microstructural ? *Cellul Chem Technol* 2011:1–6.
- [34] Cousins WJ. Young's modulus of hemicellulose as related to moisture content. *Wood Sci Technol* 1978;12:161–7. doi:10.1007/BF00372862.
- [35] Hodgson K, Berg J. Dynamic Wettability Properties of Single Wood Pulp Fibers and Their Relationship to Absorbency. *Wood Fiber Sci* 1988;20:3–17.
- [36] Roland JC, Mosiniak M, Roland D. Dynamique du positionnement de la cellulose dans les parois des fibres textiles du lin (*Linum usitatissimum*). *Acta Bot Gall* 1995;142:463–84. doi:10.1080/12538078.1995.10515271.
- [37] Bytebier K. Etude du comportement mécanique de la paroi cellulaire du bois par Microscopie à Force Atomique par. Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, 2009.



- [38] Charlet K, Jernot JP, Eve S, Gomina M, Bréard J. Multi-scale morphological characterisation of flax: From the stem to the fibrils. *Carbohydr Polym* 2010;82:54–61. doi:10.1016/j.carbpol.2010.04.022.
- [39] Lefeuvre A, Duigou A Le, Bourmaud A, Kervoelen A, Morvan C, Baley C. Analysis of the role of the main constitutive polysaccharides in the flax fibre mechanical behaviour. *Ind Crops Prod* 2015;76:1039–48. doi:10.1016/j.indcrop.2015.07.062.
- [40] Lefeuvre A, Bourmaud A, Morvan C, Baley C. Elementary flax fibre tensile properties: Correlation between stress–strain behaviour and fibre composition. *Ind Crops Prod* 2014;52:762–9. doi:10.1016/j.indcrop.2013.11.043.
- [41] Yan L, Chouw N, Jayaraman K. Flax fibre and its composites – A review. *Compos Part B Eng* 2014;56:296–317. doi:10.1016/j.compositesb.2013.08.014.
- [42] Bourmaud A, Morvan C, Bouali A, Placet V, Perré P, Baley C. Relationships between micro-fibrillar angle, mechanical properties and biochemical composition of flax fibers. *Ind Crops Prod* 2013;44:343–51. doi:10.1016/j.indcrop.2012.11.031.
- [43] Beaugrand J, Guessasma S, Maignet JE. Damage mechanisms in defected natural fibers. *Sci Rep* 2017;7:14041. doi:10.1038/s41598-017-14514-6.
- [44] Baley C, Le Duigou A, Bourmaud A, Davies P. Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2012;43:1226–33. doi:10.1016/j.compositesa.2012.03.005.
- [45] Bourmaud A, Gibaud M, Lefeuvre A, Morvan C, Baley C. Influence of the morphology characters of the stem on the lodging resistance of Marylin flax. *Ind Crops Prod* 2015;66:27–37. doi:10.1016/j.indcrop.2014.11.047.
- [46] Braam J. In touch: Plant responses to mechanical stimuli. *New Phytol* 2005;165:373–89. doi:10.1111/j.1469-8137.2004.01263.x.
- [47] Braam J, Sistrunk ML, Polisensky DH, Xu W, Purugganan MM, Antosiewicz DM, et al. Plant responses to environmental stress: regulation and functions of the Arabidopsis TCH genes. *Planta* 1997;203 Suppl:S35–41. doi:10.1007/pl00008113.
- [48] Gourier C, Le Duigou A, Bourmaud A, Baley C. Mechanical analysis of elementary flax fibre tensile properties after different thermal cycles. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2014;64:159–66. doi:10.1016/j.compositesa.2014.05.006.
- [49] Mwaikambo LY, Ansell MP. Mechanical properties of alkali treated plant fibres and their potential as reinforcement materials. I. hemp fibres. *J Mater Sci* 2006;41:2483–96. doi:10.1007/s10853-006-5098-x.
- [50] Placet V, Cisse O, Boubakar ML. Influence of environmental relative humidity on the tensile and rotational behaviour of hemp fibres. *J Mater Sci* 2012;47:3435–46. doi:10.1007/s10853-011-6191-3.
- [51] Placet V. Characterization of the thermo-mechanical behaviour of Hemp fibres intended for the manufacturing of high performance composites. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2009;40:1111–8. doi:10.1016/j.compositesa.2009.04.031.
- [52] Placet V, Trivaudey F, Cisse O, Gucheret-Retel V, Boubakar ML. Diameter dependence of the apparent tensile modulus of hemp fibres: A morphological, structural or ultrastructural effect? *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2012;43:275–87. doi:10.1016/j.compositesa.2011.10.019.
- [53] Thomason JL, Carruthers J, Kelly J, Johnson G. Fibre cross-section determination and variability in sisal and flax and its effects on fibre performance characterisation. *Compos Sci Technol* 2011;71:1008–15. doi:10.1016/j.compscitech.2011.03.007.
- [54] Silva F de A, Chawla N, Filho RD de T. Tensile behavior of high performance natural (sisal) fibers. *Compos Sci Technol* 2008;68:3438–43. doi:10.1016/j.compscitech.2008.10.001.

- [55] Martinschitz KJ, Boesecke P, Garvey CJ, Gindl W, Keckes J. Changes in microfibril angle in cyclically deformed dry coir fibers studied by in-situ synchrotron X-ray diffraction. *J Mater Sci* 2008;43:350–6. doi:10.1007/s10853-006-1237-7.
- [56] Berthereau A, Dallies E. Fibres de verre de renforcement. *Tech l'ingénieur* 2008;1:1–19.
- [57] Haag K, Padovani J, Fita S, Trouvé JP, Pineau C, Hawkins S, et al. Influence of flax fibre variety and year-to-year variability on composite properties. *Ind Crops Prod* 2017;98:1–9. doi:10.1016/j.indcrop.2016.12.028.
- [58] Duval A, Bourmaud A, Augier L, Baley C. Influence of the sampling area of the stem on the mechanical properties of hemp fibers. *Mater Lett* 2011;65:797–800. doi:10.1016/j.matlet.2010.11.053.
- [59] Baley C. Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Compos - Part A Appl Sci Manuf* 2002;33:939–48. doi:10.1016/S1359-835X(02)00040-4.
- [60] Bos HL, Donald AM. In situ ESEM study of the deformation of elementary flax fibres. *J Mater Sci* 1999;34:3029–34. doi:10.1023/A:1004650126890.
- [61] Thygesen LG, Eder M, Burgert I. Dislocations in single hemp fibres-investigations into the relationship of structural distortions and tensile properties at the cell wall level. *J Mater Sci* 2007;42:558–64. doi:10.1007/s10853-006-1113-5.
- [62] Nilsson T, Gustafsson PJ. Influence of dislocations and plasticity on the tensile behaviour of flax and hemp fibres. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2007;38:1722–8. doi:10.1016/j.compositesa.2007.01.018.
- [63] Mazian B, Bergeret A, Benezet JC, Malhautier L. Influence of field retting duration on the biochemical, microstructural, thermal and mechanical properties of hemp fibres harvested at the beginning of flowering. *Ind Crops Prod* 2018;116:170–81. doi:10.1016/j.indcrop.2018.02.062.
- [64] Liu M, Fernando D, Daniel G, Madsen B, Meyer AS, Ale MT, et al. Effect of harvest time and field retting duration on the chemical composition, morphology and mechanical properties of hemp fibers. *Ind Crops Prod* 2015;69:29–39. doi:10.1016/j.indcrop.2015.02.010.
- [65] Placet V, Day A, Beaugrand J. The influence of unintended field retting on the physicochemical and mechanical properties of industrial hemp bast fibres. *J Mater Sci* 2017;52:5759–77. doi:10.1007/s10853-017-0811-5.
- [66] Meijer WJM, Vertregt N, Rutgers B, van de Waart M. The pectin content as a measure of the retting and rettability of flax. *Ind Crops Prod* 1995;4:273–84. doi:10.1016/0926-6690(95)00041-0.
- [67] Keller A, Leupin M, Mediavilla V, Wintermantel E. Influence of the growth stage of industrial hemp on chemical and physical properties of the fibres. *Ind Crops Prod* 2001;13:35–48. doi:10.1016/S0926-6690(00)00051-0.
- [68] Hernandez-Estrada A, Gusovius HJ, Müssig J, Hughes M. Assessing the susceptibility of hemp fibre to the formation of dislocations during processing. *Ind Crops Prod* 2016;85:382–8. doi:10.1016/j.indcrop.2016.01.006.
- [69] Hänninen T, Thygesen A, Mehmood S, Madsen B, Hughes M. Mechanical processing of bast fibres: The occurrence of damage and its effect on fibre structure. *Ind Crops Prod* 2012;39:7–11. doi:10.1016/j.indcrop.2012.01.025.
- [70] Haag K, Müssig J. Scatter in tensile properties of flax fibre bundles: influence of determination and calculation of the cross-sectional area. *J Mater Sci* 2016;51:7907–17. doi:10.1007/s10853-016-0052-z.
- [71] Müssig J, Haag K. The use of flax fibres as reinforcements in composites. *Biofiber Reinf. Compos. Mater.*, Elsevier; 2015, p. 35–85. doi:10.1533/9781782421276.1.35.
- [72] Müssig J, Fischer H, Graupner N, Drieling A. Testing methods for measuring physical and mechanical fibre

- properties (plant and animal fibres). *Ind. Appl. Nat. Fibres*, Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd; 2010, p. 267–309. doi:10.1002/9780470660324.ch13.
- [73] Munawar SS, Umemura K, Kawai S. Characterization of the morphological, physical, and mechanical properties of seven nonwood plant fiber bundles. *J Wood Sci* 2007;53:108–13. doi:10.1007/s10086-006-0836-x.
- [74] Müssig J, Hugues M. Flax and hemp fibres: a natural solution for the composite industry. 2012.
- [75] Bezazi A, Belaadi A, Bourchak M, Scarpa F, Boba K. Novel extraction techniques, chemical and mechanical characterisation of *Agave americana* L. natural fibres. *Compos Part B Eng* 2014;66:194–203. doi:10.1016/j.compositesb.2014.05.014.
- [76] Virk AS, Hall W, Summerscales J. Multiple Data Set (MDS) weak-link scaling analysis of jute fibres. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2009;40:1764–71. doi:10.1016/j.compositesa.2009.08.022.
- [77] Beakou A, Charlet K. Mechanical properties of interfaces within a flax bundle - Part II: Numerical analysis. *Int J Adhes Adhes* 2013;43:54–9. doi:10.1016/j.ijadhadh.2013.01.013.
- [78] Romhány G, Karger-Kocsis J, Czigány T. Tensile fracture and failure behavior of technical flax fibers. *J Appl Polym Sci* 2003;90:3638–45. doi:10.1002/app.13110.
- [79] Mukherjee PS, Satyanarayana KG. Structure and properties of some vegetable fibres - Part 1 Sisal fibre. *J Mater Sci* 1984;19:3925–34. doi:10.1007/BF00980755.
- [80] Stamboulis A, Baillie CA, Garkhail SK, Van Melick HGH, Peijs T. Environmental durability of flax fibres and their composites based on polypropylene matrix. *Appl Compos Mater* 2000;7:273–94. doi:10.1023/A:1026581922221.
- [81] Guicheret-Retel V, Cisse O, Placet V, Beaugrand J, Pernes M, Boubakar ML. Creep behaviour of single hemp fibres. Part II: Influence of loading level, moisture content and moisture variation. *J Mater Sci* 2015;50:2061–72. doi:10.1007/s10853-014-8768-0.
- [82] Pejic BM, Kostic MM, Skundric PD, Praskalo JZ. The effects of hemicelluloses and lignin removal on water uptake behavior of hemp fibers. *Bioresour Technol* 2008;99:7152–9. doi:10.1016/j.biortech.2007.12.073.
- [83] Turek DE. On the tensile testing of high modulus polymers and the compliance correction. *Polym Eng Sci* 1993;33:328–33. doi:10.1002/pen.760330604.
- [84] Poilâne C, Vivet A, Momayez L, Doudou B Ben, Ayachi M, Chen J. Traction de fibre unitaire et mesure des déformations en champ complet. Application à la fibre de lin. *JNC 16*, Toulouse, Fr 2009:1–7. doi:10.13140/2.1.1993.6324.
- [85] AFNOR. Determination of tensile properties of elementary flax fibres. XPT 25-501-22015. 2015.
- [86] Charlet K, Eve S, Jernot JP, Gomina M, Breard J. Tensile deformation of a flax fiber. *Procedia Eng* 2009;1:233–6. doi:10.1016/j.proeng.2009.06.055.
- [87] Amiri A, Ulven CA, Huo S. Effect of chemical treatment of flax fiber and resin manipulation on service life of their Composites using time-temperature superposition. *Polymers (Basel)* 2015;7:1965–78. doi:10.3390/polym7101493.
- [88] Defoirdt N, Biswas S, Vriese L De, Tran LQN, Acker J Van, Ahsan Q, et al. Assessment of the tensile properties of coir, bamboo and jute fibre. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2010;41:588–95. doi:10.1016/j.compositesa.2010.01.005.
- [89] Bourmaud A, Baley C. Rigidity analysis of polypropylene/vegetal fibre composites after recycling. *Polym Degrad Stab* 2009;94:297–305. doi:10.1016/j.polymdegradstab.2008.12.010.

- [90] Huang J, Liu W, Zhou F, Peng Y, Wang N. Mechanical properties of maize fibre bundles and their contribution to lodging resistance. *Biosyst Eng* 2016;151:298–307. doi:10.1016/j.biosystemseng.2016.09.016.
- [91] De Rosa IM, Kenny JM, Puglia D, Santulli C, Sarasini F. Morphological, thermal and mechanical characterization of okra (*Abelmoschus esculentus*) fibres as potential reinforcement in polymer composites. *Compos Sci Technol* 2010;70:116–22. doi:10.1016/j.compscitech.2009.09.013.
- [92] Thuault A, Eve S, Bazin J, Charlet K, Destaing F, Gomina M, et al. Morphologie, biocomposition et comportement mécanique des fibres de lin. *Matériaux Tech* 2011;99:275–80. doi:10.1051/mattech/2011011.
- [93] Lefeuvre A, Bourmaud A, Morvan C, Baley C. Tensile properties of elementary fibres of flax and glass: Analysis of reproducibility and scattering. *Mater Lett* 2014;130:289–91. doi:10.1016/j.matlet.2014.05.115.
- [94] Romão C, Vieira P, Peito F, Marques AT, Esteves JL. Single filament mechanical characterisation of hemp fibres for reinforcing composite materials. *Mol Cryst Liq Cryst* 2004;418. doi:10.1080/15421400490479172.
- [95] Mwaikambo LY, Ansell MP. The effect of chemical treatment on the properties of hemp, sisal, jute and kapok for composite reinforcement. *Die Angew Makromol Chemie* 1999;272:108–16. doi:10.1002/(SICI)1522-9505(19991201)272:1<108::AID-APMC108>3.0.CO;2-9.
- [96] Belaadi A, Bezazi A, Bourchak M, Scarpa F. Tensile static and fatigue behaviour of sisal fibres. *Mater Des* 2013;46:76–83. doi:10.1016/j.matdes.2012.09.048.
- [97] Ilczyszyn F, Cherouat A, Montay G. Effect of hemp fibre morphology on the mechanical properties of vegetal fibre composite material. *Adv Mater Res* 2014;875–877:485–9. doi:10.4028/www.scientific.net/AMR.875-877.485.
- [98] Müssig J, Schmid HG. Quality control of fibers along the value added chain by using scanning technique - from fibers to the final product. *Microsc Microanal* 2004;10:1332–3. doi:10.1017/S1431927604884320.
- [99] Bourmaud A, Dhakal H, Habrant A, Padovani J, Siniscalco D, Ramage MH, et al. Exploring the potential of waste leaf sheath date palm fibres for composite reinforcement through a structural and mechanical analysis. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2017;103:292–303. doi:10.1016/j.compositesa.2017.10.017.
- [100] Garat W, Corn S, Le Moigne N, Beaugrand J, Bergeret A. Analysis of the morphometric variations in natural fibres by automated laser scanning: Towards an efficient and reliable assessment of the cross-sectional area. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2018;108:114–23. doi:10.1016/j.compositesa.2018.02.018.
- [101] Bodros E, Baley C. Study of the tensile properties of stinging nettle fibres (*Urtica dioica*). *Mater Lett* 2008;62:2143–5. doi:10.1016/j.matlet.2007.11.034.
- [102] Navarro CIT, Paciornik S, D’Almeida JRM. Microstructural Characterization of Natural Fibers: *Etilingera elatior*, *Costus comosus*, and *Heliconia bihai*. *Conf Pap Mater Sci* 2013;2013:1–7. doi:10.1155/2013/878014.
- [103] Virk AS. Numerical models for natural fibre composites with stochastic properties. University of Plymouth, 2010.
- [104] Nitta Y, Goda K, Noda J, Lee W II. Cross-sectional area evaluation and tensile properties of alkali-treated kenaf fibres. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2013;49:132–8. doi:10.1016/j.compositesa.2013.02.003.
- [105] Hu W, Ton-That M-T, Perrin-Sarazin F, Denault J. An improved method for single fiber tensile test of natural fibers. *Polym Eng Sci* 2010;50:819–25. doi:10.1002/pen.21593.
- [106] Placet V. Influence de traitements hygrothermiques sur les propriétés mécaniques de composites à fibres

- végétales Effect of hygrothermal treatment on the mechanical properties of natural fibres composites. JNC 16, Toulouse, Fr 2009:1–10.
- [107] Hill CAS, Norton A, Newman G. The water vapor sorption behavior of natural fibers. J Appl Polym Sci 2009;112:1524–37. doi:10.1002/app.29725.
- [108] ISO. Determination of water retention value (WRV): ISO 23714. 2014.
- [109] Lu Y, Pignatello JJ. Demonstration of the “conditioning effect” in soil organic matter in support of a pore deformation mechanism for sorption hysteresis. Environ Sci Technol 2002;36:4553–61. doi:10.1021/es020554x.
- [110] Salmén L, Larsson PA. On the origin of sorption hysteresis in cellulosic materials. Carbohydr Polym 2018;182:15–20. doi:10.1016/j.carbpol.2017.11.005.
- [111] Karmaker AC, Hoffmann A, Hinrichsen G. Influence of water uptake on the mechanical properties of jute fiber-reinforced polypropylene. J Appl Polym Sci 1994;54:1803–7. doi:10.1002/app.1994.070541203.
- [112] Céline A, Fréour S, Jacquemin F, Casari P. Characterization and modeling of the moisture diffusion behavior of natural fibers. J Appl Polym Sci 2013;130:297–306. doi:10.1002/app.39148.
- [113] Cousins WJ. Elastic modulus of lignin as related to moisture content. Wood Sci Technol 1976;10:9–17. doi:10.1007/BF00376380.
- [114] Methacanon P, Weerawatsophon U, Sumransin N, Prahsarn C, Bergado DT. Properties and potential application of the selected natural fibers as limited life geotextiles. Carbohydr Polym 2010;82:1090–6. doi:10.1016/j.carbpol.2010.06.036.
- [115] Sukumaran K, Satyanarayana KG, Pillai SGK, Ravikumar KK. Structure, physical and mechanical properties of plant fibres of Kerala. vol. 13. Meshap Science Publishers; 2001.
- [116] Burgert I, Eder M, Gierlinger N, Fratzl P. Tensile and compressive stresses in tracheids are induced by swelling based on geometrical constraints of the wood cell. Planta 2007;226:981–7. doi:10.1007/s00425-007-0544-9.
- [117] Abe K, Yamamoto H. Behavior of the cellulose microfibril in shrinking woods. J Wood Sci 2006;52:15–9. doi:10.1007/s10086-005-0715-x.
- [118] Sauder C, Lamon J, Pailler R. The tensile behavior of carbon fibers at high temperatures up to 2400 °C. Carbon N Y 2004;42:715–25. doi:10.1016/j.carbon.2003.11.020.
- [119] Bourmaud A, Morvan C. Apport de la nanoindentation pour la caractérisation mécanique de fibres végétales. Nanoindentation contribution to mechanical characterization of vegetal fibers. JNC 16, Toulouse, Fr 2009:1–8.
- [120] AFNOR. Plastiques-Atmosphères normales de conditionnement et d’essai. NF EN ISO 291. 2008.
- [121] Réquillé S, Goudenhooft C, Bourmaud A, Le Duigou A, Baley C. Exploring the link between flexural behaviour of hemp and flax stems and fibre stiffness. Ind Crops Prod 2018;113:179–86. doi:10.1016/j.indcrop.2018.01.035.
- [122] Dai D, Fan M. Investigation of the dislocation of natural fibres by Fourier-transform infrared spectroscopy. Vib Spectrosc 2011;55:300–6. doi:10.1016/j.vibspec.2010.12.009.
- [123] Yu Y, Jiang Z, Fei B, Wang G, Wang H. An improved microtensile technique for mechanical characterization of short plant fibers: A case study on bamboo fibers. J Mater Sci 2011;46:739–46. doi:10.1007/s10853-010-4806-8.
- [124] Cisse O, Placet V, Guicheret-Retel V, Trivaudey F, Boubakar ML. Creep behaviour of single hemp fibres. Part I: viscoelastic properties and their scattering under constant climate. J Mater Sci 2015;50:1996–

2006. doi:10.1007/s10853-014-8767-1.
- [125] Boubakar ML, Vang L, Trivaudey F, Perreux D. A meso-macro finite element modelling of laminate structures Part II: Time-dependent behaviour. *Compos Struct* 2003;60:275–305. doi:10.1016/S0263-8223(03)00012-6.
- [126] Perrin D, Alteirac M, Corn S, Shanahan MER. A novel method for the measurement of elastic moduli of fibres. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2007;38:71–9. doi:10.1016/j.compositesa.2006.01.013.
- [127] Gibson RF. Modal vibration response measurements for characterization of composite materials and structures. *Compos Sci Technol* 2000;60:2769–80. doi:10.1016/S0266-3538(00)00092-0.
- [128] Corn S, Dupuy JS, Lenny P, Daridon L. Vibration analysis techniques for detecting filler-matrix decohesion in composites. *Rev Des Compos Des Mater Av* 2012;22:77–90. doi:10.3166/RCMA.22.77-90.
- [129] Gindl W, Reifferscheid M, Adusumalli RB, Weber H, Röder T, Sixta H, et al. Anisotropy of the modulus of elasticity in regenerated cellulose fibres related to molecular orientation. *Polymer (Guildf)* 2008;49:792–9. doi:10.1016/j.polymer.2007.12.016.
- [130] Keryvin V, Lan M, Bourmaud A, Parenteau T, Charleux L, Baley C. Analysis of flax fibres viscoelastic behaviour at micro and nano scales. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2015;68:219–25. doi:10.1016/j.compositesa.2014.10.006.
- [131] Yu Y, Fei B, Zhang B, Yu X. Cell-wall mechanical properties of bamboo investigated by in-situ imaging nanoindentation. *Wood Fiber Sci* 2007;39(4):527–35.
- [132] Bourmaud A, Goudenhoft C, Siniscalco D, Duigou A Le, Arnould O, Baley C, et al. Caractérisation mécanique de parois végétales de fibres de lin par la technologie Peak-Force Quantitative Nano Mechanics. JNC 2017, Paris 2017.
- [133] Capron M, Siniscalco D, Ramonda M, Cuberes T, Arinero R, Duigou ALE, et al. Caractérisation mécanique de la paroi cellulaire des fibres végétales par Microscopie à Force Atomique. 23ème Congrès Français de Mécanique, Lille 2017.
- [134] Placet V, Cissé O, Lamine Boubakar M. Nonlinear tensile behaviour of elementary hemp fibres. Part I: Investigation of the possible origins using repeated progressive loading with in situ microscopic observations. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2014;56:319–27. doi:10.1016/j.compositesa.2012.11.019.
- [135] Cisse O. Caractérisation du comportement hygro-mécanique des fibres libériennes élémentaires issues du chanvre. Université de Franche-Comté, 2014. doi:...
- [136] Wang W, Sain M, Cooper PA. Hygrothermal weathering of rice hull/HDPE composites under extreme climatic conditions. *Polym Degrad Stab* 2005;90:540–5. doi:10.1016/j.polymdegradstab.2005.03.014.
- [137] Lefeuvre A, Bourmaud A, Lebrun L, Morvan C, Baley C. A study of the yearly reproducibility of flax fiber tensile properties. *Ind Crops Prod* 2013;50:400–7. doi:10.1016/j.indcrop.2013.07.035.
- [138] Burgert I. Exploring the micromechanical design of plant cell walls. *Am J Bot* 2006;93:1391–401. doi:10.3732/ajb.93.10.1391.
- [139] Placet V, Bouali A, Garcin C, Cote J, Perre P. Suivi par DRX des réarrangements microstructuraux induits par sollicitations mécaniques dans les fibres végétales tirées du chanvre. 20ème Congrès Français de Mécanique 2011:1–6.
- [140] Weibull W, Sweden S. A statistical distribution function of wide applicability. *J Appl Mech* 1951:293–7.
- [141] Andersons J, Joffe R, Hojo M, Ochiai S. Glass fibre strength distribution determined by common experimental methods. *Compos Sci Technol* 2002;62:131–45. doi:10.1016/S0266-3538(01)00182-8.
- [142] Pickering KL, Murray TL. Weak link scaling analysis of high-strength carbon fibre. *Compos Part A Appl Sci*

- Manuf 1999;30:1017–21. doi:10.1016/S1359-835X(99)00003-2.
- [143] Claudio Pardini L, Guilherme Borzani Manhani L. Influence of the testing gage length on the strength, young's modulus and weibull modulus of carbon fibres and glass fibres. *Mater Res* 2002;5:411–20. doi:10.1590/S1516-14392002000400004.
- [144] ANDERSONS J, SPARNINS E, JOFFE R, WALLSTROM L. Strength distribution of elementary flax fibres. *Compos Sci Technol* 2005;65:693–702. doi:10.1016/j.compscitech.2004.10.001.
- [145] Xia ZP, Yu JY, Cheng LD, Liu LF, Wang WM. Study on the breaking strength of jute fibres using modified Weibull distribution. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2009;40:54–9. doi:10.1016/j.compositesa.2008.10.001.
- [146] Fiore V, Scalici T, Valenza A. Characterization of a new natural fiber from *Arundo donax* L. as potential reinforcement of polymer composites. *Carbohydr Polym* 2014;106:77–83. doi:10.1016/j.carbpol.2014.02.016.
- [147] Kompella MK, Lambros J. Micromechanical characterization of cellulose fibers. *Polym Test* 2002;21:523–30. doi:10.1016/S0142-9418(01)00119-2.
- [148] Summerscales J, Virk A, Hall W. A review of bast fibres and their composites: Part 3 - Modelling. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2013;44:132–9. doi:10.1016/j.compositesa.2012.08.018.
- [149] Pizzi A, Belgacem MN, Pizzi A (Antonio). *Lignocellulosic fibers and wood handbook : renewable materials for today's environment*. John Wiley & Sons; 2016.
- [150] Sticklen MB. Plant genetic engineering for biofuel production: Towards affordable cellulosic ethanol. *Nat Rev Genet* 2008;9:433–43. doi:10.1038/nrg2336.
- [151] Vanholme R, Demedts B, Morreel K, Ralph J, Boerjan W. Lignin Biosynthesis and Structure. *Plant Physiol* 2010;153:895–905. doi:10.1104/pp.110.155119.
- [152] Boerjan W, Ralph J, Baucher M. Lignin biosynthesis. *Annu Rev Plant Biol* 2003;54:519–46. doi:10.1146/annurev.arplant.54.031902.134938.
- [153] Durán M, Moya M, Umaña E, Jiménez G. Plastification of cellulosic wastes. *Recent Adv Environ Compat Polym* 2001:67–72. doi:10.1533/9781845693749.2.67.
- [154] Dhakal HN, Zhang ZY, Richardson MOW. Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites. *Compos Sci Technol* 2007;67:1674–83. doi:10.1016/j.compscitech.2006.06.019.
- [155] Verdu J. Action de l'eau sur les plastiques. *Tech L'Ingénieur* 2000;AM:1–8.
- [156] Baley C, Morvan C, Grohens Y. Influence of the absorbed water on the tensile strength of flax fibers. *Macromol. Symp.*, vol. 222, Wiley-Blackwell; 2005, p. 195–201. doi:10.1002/masy.200550425.
- [157] Stamboulis A, Baillie CA, Peijs T. Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2001;32:1105–15. doi:10.1016/S1359-835X(01)00032-X.
- [158] Thuault A, Eve S, Blond D, Bréard J, Gomina M. Effects of the hygrothermal environment on the mechanical properties of flax fibres. *J Compos Mater* 2014;48:1699–707. doi:10.1177/0021998313490217.
- [159] Van Voorn B, Smit HHG, Sinke RJ, De Klerk B. Natural fibre reinforced sheet moulding compound. *Compos - Part A Appl Sci Manuf* 2001;32:1271–9. doi:10.1016/S1359-835X(01)00085-9.
- [160] Symington MC, Banks WM, West OD, Pethrick RA. Tensile testing of cellulose based natural fibers for structural composite applications. *J. Compos. Mater.*, vol. 43, 2009, p. 1083–108.

- doi:10.1177/0021998308097740.
- [161] Ferreira SR, Silva F de A, Lima PRL, Toledo Filho RD. Effect of hornification on the structure, tensile behavior and fiber matrix bond of sisal, jute and curauá fiber cement based composite systems. *Constr Build Mater* 2017;139:551–61. doi:10.1016/j.conbuildmat.2016.10.004.
- [162] TAPPI. Acid-insoluble lignin in wood and pulp: T 222 om-02. 2006.
- [163] Beaugrand J, Nottez M, Konnerth J, Bourmaud A. Multi-scale analysis of the structure and mechanical performance of woody hemp core and the dependence on the sampling location. *Ind Crops Prod* 2014;60:193–204. doi:10.1016/j.indcrop.2014.06.019.
- [164] Mokhothu TH, John MJ. Review on hygroscopic aging of cellulose fibres and their biocomposites. *Carbohydr Polym* 2015;131:337–54. doi:10.1016/j.carbpol.2015.06.027.
- [165] Joshi S V, Drzal LT, Mohanty AK, Arora S. Are natural fiber composites environmentally superior to glass fiber reinforced composites? *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 35, 2004, p. 371–6. doi:10.1016/j.compositesa.2003.09.016.
- [166] Mohanty A, Misra M, Drzal L. *Natural fiber biopolymers and Biocomposites*. Taylor & Francis; 2005.
- [167] Wambua P, Ivens J, Verpoest I. Natural fibres: can they replace glass in fibre reinforced plastics? *Compos Sci Technol* 2003;63:1259–64. doi:10.1016/S0266-3538(03)00096-4.
- [168] Mohanty AK, Misra M, Drzal LT. Sustainable bio-Composites from renewable resources: opportunities and challenges in the green materials world. *J Polym Environ* 2002;10:19–26.
- [169] Hidalgo-Reyes M, Caballero-Caballero M, Hernández-Gómez LH, Urriolagoitia-Calderón G. Chemical and morphological characterization of *Agave angustifolia* bagasse fibers. *Bot Sci* 2015;93:807–17. doi:10.17129/botsci.250.
- [170] Lanzilao G, Goswami P, Blackburn RS. Study of the morphological characteristics and physical properties of Himalayan giant nettle (*Girardinia diversifolia* L.) fibre in comparison with European nettle (*Urtica dioica* L.) fibre. *Mater Lett* 2016;181:200–3. doi:10.1016/j.matlet.2016.06.044.
- [171] Shah DU, Nag RK, Clifford MJ. Why do we observe significant differences between measured and ‘back-calculated’ properties of natural fibres? *Cellulose* 2016;23:1481–90. doi:10.1007/s10570-016-0926-x.
- [172] Ilczyszyn F, Cherouat A, Montay G. Effect of Hemp Fibre Morphology on the Mechanical Properties of Vegetal Fibre Composite Material. *Adv Mater Res* 2014;875–877:485–9. doi:10.4028/www.scientific.net/AMR.875-877.485.
- [173] Grishanov SA, Harwood RJ, Booth I. A method of estimating the single flax fibre fineness using data from the LaserScan system. *Ind Crops Prod* 2006;23:273–87. doi:10.1016/j.indcrop.2005.08.003.
- [174] Alves Fidelis ME, Pereira TVC, Gomes O da FM, de Andrade Silva F, Toledo Filho RD. The effect of fiber morphology on the tensile strength of natural fibers. *J Mater Res Technol* 2013;2:149–57. doi:10.1016/j.jmrt.2013.02.003.
- [175] d’Almeida J, Mauricio M, Paciornik S. Evaluation of the cross-section of lignocellulosic fibers using digital microscopy and image analysis. *J Compos Mater* 2012;46:3057–65. doi:10.1177/0021998311435532.
- [176] Thomason JL, Carruthers J. Natural fibre cross sectional area, its variability and effects on the determination of fibre properties. *J. Biobased Mater. Bioenergy*, vol. 6, 2012, p. 424–30. doi:10.1166/jbmb.2012.1231.
- [177] Costa LL da, Loiola RL, Monteiro SN. Diameter dependence of tensile strength by Weibull analysis: Part I bamboo fiber. *Matéria (Rio Janeiro)* 2010;15:110–6. doi:10.1590/S1517-70762010000200004.
- [178] Bevitori AB, Silva ILA Da, Lopes FPD, Monteiro SN. Diameter dependence of tensile strength by Weibull



- analysis: Part II jute fiber. *Matéria* (Rio Janeiro) 2010;15:117–23. doi:10.1590/S1517-70762010000200005.
- [179] Inacio WP, Lopes FPD, Monteiro SN. Diameter dependence of tensile strength by Weibull analysis: Part III sisal fiber. *Matéria* (Rio Janeiro) 2010;15:124–30. doi:10.1590/S1517-70762010000200006.
- [180] Wang HH, Drummond JG, Reath SM, Hunt K, Watson PA. An improved fibril angle measurement method for wood fibres. *Wood Sci Technol* 2001;34:493–503. doi:10.1007/s002260000068.
- [181] Virk AS, Hall W, Summerscales J. Physical characterization of jute technical fibers: Fiber dimensions. *J Nat Fibers* 2010;7:216–28. doi:10.1080/15440478.2010.504389.
- [182] Mooney C, Stolle-Smits T, Schols H, De Jong E. Analysis of retted and non retted flax fibres by chemical and enzymatic means. *J. Biotechnol.*, vol. 89, 2001, p. 205–16. doi:10.1016/S0168-1656(01)00299-1.
- [183] Jauneau A, Morvan C, Lefebvre F, Demarty M, Ripoll C, Thellier M. Differential extractability of calcium and pectic substances in different wall regions of epicotyl cells in young flax plants. *J Histochem Cytochem* 1992;40:1183–9. doi:10.1177/40.8.1377735.
- [184] Eichhorn SJ, Baillie CA, Zafeiropoulos N, Mwaikambo LY, Ansell MP, Dufresne A, et al. Current international research into cellulosic fibres and composites. *J Mater Sci* 2001;36:2107–31. doi:10.1023/A:1017512029696.
- [185] Charlet K, Gaillard-Martinie B, Beakou A. Comportement mécanique et modélisation numérique de la lamelle mitoyenne de lin. *JNC 17, Poitiers-Futuroscope, Fr* 2011:1–7.
- [186] Amroune S, Bezazi A, Belaadi A, Zhu C, Scarpa F, Rahatekar S, et al. Tensile mechanical properties and surface chemical sensitivity of technical fibres from date palm fruit branches (*Phoenix dactylifera* L.). *Compos Part A Appl Sci Manuf* 2015;71:98–106. doi:10.1016/j.compositesa.2014.12.011.
- [187] Lovikka VA, Rautkari L, Maloney TC. Changes in the hygroscopic behavior of cellulose due to variations in relative humidity. *Cellulose* 2018;25:87–104. doi:10.1007/s10570-017-1570-9.
- [188] Jin S, X.L.Gong. Influence du vieillissement en humidité relative sur les propriétés mécaniques des fibres de chanvre Abstract : 20ème Congrès Français de Mécanique 2011:1–6.

## LISTE DES FIGURES

FIGURE 0-1: DEGRE DE CONNAISSANCE DES FIBRES UTILISEES EN FRANCE*.....	2
FIGURE 1-1: CLASSIFICATION DES MATRICES COMMUNEMENT EMPLOYEES DANS LES COMPOSITES. ....	7
FIGURE 1-2: CLASSIFICATION DES RENFORTS EMPLOYES DANS LES COMPOSITES. ....	8
FIGURE 1-3: PROPORTION DES BIOCOMPOSITES SUR LA PRODUCTION EUROPEEN EN 2010 [7]. ....	9
FIGURE 1-4: VOLUME DE PRODUCTION DES FIBRES VEGETALES TECHNIQUES PAR RAPPORT A LA PRODUCTION DE FIBRES DE VERRE ET DE CARBONE EN FRANCE EN 2016 [4]. ....	10
FIGURE 1-5: APERÇU DES VARIETES DE FIBRES D'ORIGINE NATURELLE [6]. ....	12
FIGURE 1-6: CLASSIFICATION DES FIBRES D'ORIGINE VEGETALE [16].....	13
FIGURE 1-7: MICROSTRUCTURE D'UNE TIGE DE LIN A LA MICROFIBRILLE [22].....	15
FIGURE 1-8 : ARRANGEMENT DES FIBRES DANS (A) LES MONOCOTYLEDONES ET (B) LES DICOTYLEDONES [6]. ....	16
FIGURE 1-9: REPRESENTATION SCHEMATIQUE (SUR SOLIDWORKS©) DES PAROIS CELLULAIRES DE DIFFERENTES ESPECES VEGETALES [25]. ....	17
FIGURE 1-10 : COMPARAISON ENTRE LA RESISTANCE A LA TRACTION ET LA RIGIDITE (A) ABSOLUES ET (B) SPECIFIQUES POUR DIFFERENTES FAMILLES DE FIBRES VEGETALES EN COMPARAISON AUX FIBRES DE VERRE [16]. ....	18
FIGURE 1-11 : EXEMPLE DE DEFANTS : (A) DISLOCATIONS, (B) NOEUDS ET (C) FISSURES [25,61,62].....	20
FIGURE 1-12: PROPAGATION DES DEFANTS LE LONG D'UN FAISCEAU DE CHANVRE [43]. ....	21
FIGURE 1-13: SCHEMAS DES DIFFERENTES LONGUEURS DE JAUGE POUR (A) DES FIBRES ELEMENTAIRES ET (B) DES FAISCEAUX DE FIBRES [71]. ....	22
FIGURE 1-14 : EXEMPLE D'UNE COURBE CONTRAINTE/DEFORMATION D'UNE FIBRE ELEMENTAIRE DE LIN OBTENUE A PARTIR D'UNE MESURE DE DEFORMATION LOCALE ET GLOBALE [84]. ....	24
FIGURE 1-15 : EVOLUTION DU MODULE DE YOUNG EN FONCTION DU DIAMETRE DE LA FIBRE [86]. ....	24
FIGURE 1-16 : REPRESENTATION DE LA DISPERSION DES PROPRIETES MECANIQUES EN TRACTION DES FIBRES D'ORIGINE VEGETALE [70]. ....	25
FIGURE 1-17 : (A) IMAGE AU MEB EN COUPE TRANSVERSALE D'UNE FIBRE DE LIN [87] ET (B) REPRESENTATION SCHEMATIQUE DE LA SECTION APPARENTE ET RESISTIVE. ....	27
FIGURE 1-18 : MONTAGE TYPE D'UN FAISCEAU OU D'UNE FIBRE ELEMENTAIRE SUR UN TALON-SUPPORT EN CARTON (NORME NF T25-501) [85]. ....	27
FIGURE 1-19 : IMAGE AU MICROSCOPE OPTIQUE POLARISEE D'UNE FIBRE DE CHANVRE [52]. ....	29
FIGURE 1-20 : SECTION TRANSVERSALE D'UN FAISCEAU DE FIBRES DE SISAL AU MEB [73]. ....	31
FIGURE 1-21 : EVOLUTION DE LA RESISTANCE A LA TRACTION EN FONCTION DE LA METHODE APPLIQUEE ET DE L'HYPOTHESE DE FORME DE SECTION [97]. ....	32
FIGURE 1-22 : (A) IMAGE MEB D'UN FAISCEAU DE FIBRES DE COSTUS COMOSUS (FAMILLE DES COSTACEES, MONOCOTYLEDONES) ET (B) REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES DIAMETRES DE FERET ( $F_{MAX}$ ) ET ( $F_{MIN}$ ) [102]. ....	33
FIGURE 1-23 : VARIATION DU DIAMETRE APPARENT LE LONG D'UNE FIBRE ELEMENTAIRE DE LIN MESURE PAR MICROSCOPIE OPTIQUE [38]. ....	34

FIGURE 1-24 : FAISCEAUX DE FIBRES DE JUTE : (A) IMAGE MEB D'UNE SECTION (B) BOX-PLOTS DES ERREURS DE MESURE DES AIRES DE SECTION EN FONCTION DES HYPOTHESES DE FORME DE SECTION [103].	35
FIGURE 1-25 : (A) IMAGE MEB D'UNE SECTION D'UN FAISCEAU DE FIBRE DE SISAL ET (B) GRAPHIQUE DE CORRELATION ENTRE L'AIRES REELLE ET L'AIRES ESTIMEE A PARTIR D'UNE HYPOTHESE DE FORME CIRCULAIRE [53].	36
FIGURE 1-26 : VARIATION DE LA SECTION TRANSVERSALE D'UN FAISCEAU DE (A) SISAL ET (B) DE LIN MESUREE PAR METHODE DE POLISSAGE [53].	36
FIGURE 1-27 : (A) EFFET DE LA METHODE APPLIQUEE POUR MESURER LES DIMENSIONS TRANSVERSALES ET (B) INFLUENCE DE L'HYPOTHESE DE FORME DE SECTION SUR LE CALCUL DE LA RESISTANCE A LA TRACTION [70].	38
FIGURE 1-28 : MECANISME DE GONFLEMENT DE LA PAROI CELLULAIRE DU BOIS (SOURCE: WWW.WORKSHOPCOMPANION.COM 05/10/2018).	39
FIGURE 1-29 : ANALYSE DVS DU COMPORTEMENT EN SORPTION ET DESORPTION DE CINQ ESPECES VEGETALES [99].	40
FIGURE 1-30 : FAISCEAUX DE FIBRE DE JUTE (A) SECS ET (B) APRES 2 SEMAINES EN IMMERSION DANS L'EAU [111].	41
FIGURE 1-31 : REPRISE EN EAU DES FIBRES UNITAIRES DE ROSEAU, DE JACINTHE D'EAU, DE KENAF (OU ROSELLE) ET DE SISAL LORS D'UN VIEILLISSEMENT A 23°C ET 97%HR [114].	42
FIGURE 1-32 : EVOLUTION DE L'ABSORPTION ET DE LA CAPACITE DE RETENTION D'EAU POUR DES FIBRES DE CHANVRE NON TRAITÉES ET TRAITÉES [82].	43
FIGURE 1-33 : (A) CINÉTIQUE DE DIFFUSION EN IMMERSION D'UN FAISCEAU DE FIBRES DE LIN ET (B) CINÉTIQUE DE DIFFUSION EN PHASE VAPEUR A 80% HR [112].	44
FIGURE 1-34 : FIBRE ELEMENTAIRE DE CHANVRE : (A) MONTAGE SUR BANC DE TRACTION ET (B) COURBE TYPIQUE FORCE/DEPLACEMENT [51].	47
FIGURE 1-35 : FIBRE DE BOIS DE CHATAIGNIER : (A) IMAGE AFM EN TOPOGRAPHIE (NM) ET (B) CARTOGRAPHIE DU MODULE LONGITUDINAL (GPA) [133].	49
FIGURE 1-36 : (A) EXEMPLES DES TROIS TYPES DE COMPORTEMENT DES COURBES CONTRAINTE/DEFORMATION [58] ET (B) COURBE DE COMPORTEMENT D'UNE FIBRE ELEMENTAIRE DE CHANVRE [134].	49
FIGURE 1-37 : EVOLUTION DU MFA ET DE LA CONTRAINTE A RUPTURE POUR UNE FIBRE ELEMENTAIRE DE CHANVRE (21°C ET 25%HR) [139].	50
FIGURE 1-38 : COURBE CONTRAINTE/DEFORMATION RESULTANTE D'UN ESSAI CYCLE CHARGE/DECHARGE REALISE SUR UNE FIBRE ELEMENTAIRE DE CHANVRE [134].	51
FIGURE 1-39 : SCHEMA DU SCENARIO DE COMPORTEMENT NON-LINEAIRE DES FIBRES ELEMENTAIRES DE CHANVRE [134].	51
FIGURE 1-40 : FIBRE DE LIN : (A) EXEMPLE DE COURBE DE CONTRAINTE/DEFORMATION ET (B) VARIATION DU MODULE TANGENT EN FONCTION DE LA DEFORMATION [40,85].	52
FIGURE 1-41 : (A) DISTRIBUTION DE WEIBULL ET (B) CONTRAINTE ULTIME POUR DIFFERENTES PROBABILITES DE RUPTURE (P=20, 40, 63 ET 80%) ISSUES DE L'ETUDE DU COMPORTEMENT MECANIQUE A RUPTURE DES FIBRES ELEMENTAIRES DE CHANVRE EN FONCTION DE L'HUMIDITE RELATIVE [50].	54
FIGURE 1-42 : PROBABILITE DE RUPTURE DE FAISCEAUX DE LIN POUR UNE LONGUEUR DE JAUGE DE (A) 20MM ET (B) 80MM [78].	55
FIGURE 1-43 : SCHEMATISATION (A) DE LA PAROI PRIMAIRE, (B) DE LA PAROI SECONDAIRE ET (C) DE LA MICROSTRUCTURE D'UNE FIBRE ELEMENTAIRE EN FONCTION DES BIOPOLYMERES [150].	56
FIGURE 1-44 : EFFET DE PLASTIFICATION D'UN POLYMERE PAR L'EAU [155].	57

FIGURE 1-45 : IMAGE SEM DE LA SURFACE D'UNE FIBRE DE LIN APRES VIEILLISSEMENT A 20°C ET 100% HR PENDANT (A) 1 JOUR, (B) 7 JOURS ET (C) 4 SEMAINES [158].	58
FIGURE 1-46 : EVOLUTION (A) DE L'HR, (B) DU FACTEUR D'AMORTISSEMENT, (C) DU MODULE DE CONSERVATION E' ET (D) DE LA DEFORMATION EN FONCTION DU TEMPS DE SORPTION/DESORPTION SOUS CHARGEMENT CYCLIQUE [50].	59
FIGURE 1-47: FACIES DE RUPTURE (ESSAI DE TRACTION QUASI STATIQUE) DES FIBRES ELEMENTAIRES DE CHANVRE POUR DIFFERENTES HUMIDITES [50].	60
FIGURE 1-48 : IMAGE MEB D'UN FAISCEAU DE FIBRES DE SISAL EN FONCTION DU NOMBRE DE CYCLE DE MOUILLAGE/SECHAGE: (A) 0, (B) 5 ET (C) 10 CYCLES [161].	61
FIGURE 2-1 : FAISCEAUX DE FIBRES DE PALMIER (OU PHOENIX DACTYLIFERA).	67
FIGURE 2-2 : FAISCEAUX DE FIBRES DE SISAL (OU AGAVE SISALANA).	68
FIGURE 2-3 : FIBRES TECHNIQUES DE LIN (OU LINUM USITATISSIMUM).	68
FIGURE 2-4 : FIBRES TECHNIQUES DE CHANVRE (OU CANABIS SATIVA).	69
FIGURE 2-5 : FIBRES TECHNIQUES D'ORTIE (OU URTICA DIOICA).	69
FIGURE 2-6 : MONTAGE D'UNE FIBRE VEGETALE SUR LES SUPPORTS PLASTIQUE.	71
FIGURE 2-7 : PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DU FDAS-770 (DIASTRON LTD., HAMPSHIRE, ROYAUME-UNI).	73
FIGURE 2-8 : EVOLUTION DES DIAMETRES APPARENTS MAXIMUM, MINIMUM ET MOYEN LE LONG DU PROFIL DE LA FIBRE TECHNIQUE MESURES AU FDAS.	73
FIGURE 2-9 : (A) 3 FAISCEAUX DE FIBRES INCLUS VERTICALEMENT DANS UN TAMPON DE RESINE EPOXYDE ET (B) TRACE MANUEL DU CONTOUR D'UNE SECTION TRANSVERSE.	74
FIGURE 2-10 : MACHINE DE POLISSAGE GEOPOL (PRESI, EYBENS, FRANCE).	74
FIGURE 2-11 : BANC DE MICRO-TRACTION LEX-810 (DIASTRON LTD., HAMPSHIRE, ROYAUME-UNI).	76
FIGURE 2-12 : COURBE CONTRAINTE/DEFORMATION OBTENUE LORS D'UN ESSAI DE TRACTION SUR FIBRE ELEMENTAIRE ET EVOLUTION DU MODULE TANGENT ASSOCIE [39].	78
FIGURE 2-13 : PHOTO DU MONTAGE DES ESSAIS EN CAMERA RAPIDE PHANTOM.	78
FIGURE 2-14 : (A) TAMIS EN IMPRESSION 3D, (B) TAMIS POSITIONNE DANS LE TUBE A CENTRIFUGER ET (C) TUBES A CENTRIFUGER PLACES DANS LA CENTRIFUGEUSE.	80
FIGURE 2-15 : ENCEINTE ETANCHE REGULEE EN HUMIDITE ET EN TEMPERATURE (ELECTRO-TECH SYSTEMS INC, PENNSYLVANIA, USA).	81
FIGURE 2-16 : CELLULE D'IMMERSION DSM-770 (DIASTRON LTD., HAMPSHIRE, ROYAUME-UNI).	81
FIGURE 2-17 : EVOLUTION DU DIAMETRE APPARENT TRANSVERSE EN IMMERSION A 23°C.	82
FIGURE 3-1: TYPICAL CROSS-SECTIONS OF (A) SISAL AGAVE SISALANA, (B) PALM PHOENIX DACTYLIFERA, (C) FLAX LINUM USITATISSIMUM, (D) NETTLE URTICA DIOICA, AND (E) HEMP CANABIS SATIVA DRAWN FROM OPTICAL MICROSCOPY OBSERVATIONS.	91
FIGURE 3-2: (A) FDAS DEVICE PRINCIPLE AND (B) MINIMUM, MAXIMUM AND AVERAGE DIAMETERS ALONG A PALM FIBRE BUNDLE AS MEASURED WITH THE FDAS DEVICE.	92
FIGURE 3-3: (A) SCHEME OF AN EMBEDDED FIBRE BUNDLE IN AN EPOXY RESIN-PAD; MANUAL OUTLINE OF THE FIBRE BUNDLE PERIMETER WITH THE IMAGE PROCESSING SOFTWARE (ARCHIMEDE®, MICROVISION INSTRUMENTS, FRANCE) FOR (B) SISAL AND (C) NETTLE.	93

FIGURE 3-4: (A) LENGTHWISE MORPHOMETRIC VARIATIONS FOR PALM AND SISAL FIBRE BUNDLES FROM THE FDAS, AND TYPICAL CROSS-SECTION OF (B) PALM AND (C) SISAL FIBRE BUNDLES EMBEDDED IN EPOXY RESIN-PAD AS OBSERVED BY OPTICAL MICROSCOPY. ....	94
FIGURE 3-5: LENGTHWISE MORPHOMETRIC VARIATIONS (MINIMUM, MAXIMUM AND AVERAGE DIAMETERS) FOR (A) HEMP, (B) FLAX AND (C) NETTLE FIBRE BUNDLES, AND TYPICAL CROSS-SECTION OF (D) HEMP, (E) FLAX AND (F) NETTLE FIBRE BUNDLES EMBEDDED IN EPOXY RESIN-PAD AS OBSERVED BY OPTICAL MICROSCOPY. ....	95
FIGURE 3-6: CORRELATION BETWEEN $CSA_{OM}$ MEASURED BY OPTICAL MICROSCOPY AND CORRESPONDING APPARENT MEDIAN DIAMETERS ( <b><i>Dmedian</i></b> ) MEASURED BY FDAS FOR SISAL, PALM, HEMP, NETTLE AND FLAX FIBRE BUNDLES. (FULL LINE CORRESPONDS TO THE CURVE OBTAINED FOR A PERFECT CIRCULAR SHAPE). ....	96
FIGURE 3-7: BOXPLOTS OF FIBRE BUNDLES SHAPE FACTORS A FOR THE DIFFERENT PLANT SPECIES (PALM, SISAL, HEMP, FLAX, AND NETTLE). ....	98
FIGURE 3-8: (A) OPTICAL MICROGRAPH OF A FLAX FIBRE BUNDLE WITH A DETACHED ELEMENTARY FIBRE, (B) CORRESPONDING OCCURRENCE FREQUENCY OF DIAMETERS (INTERVAL UNIT: 1 $\mu$ M) FOR ONE CROSS-SECTION SCAN. ....	100
FIGURE 3-9: RADAR OF THE APPARENT DIAMETERS FROM FDAS AND CORRESPONDING MODELLED CROSS-SECTIONS FOR ONE PALM (A) AND SISAL (B) FIBRE BUNDLE CROSS-SECTION. ....	100
FIGURE 3-10: CORRELATION BETWEEN <b><i>CSAFDAS</i></b> AND <b><i>CSAOM</i></b> FOR CIRCULAR, ELLIPTIC AND FILTERED ELLIPTIC MODELS FOR (A) PALM AND (B) SISAL FIBRE BUNDLES. ....	101
FIGURE 3-11: RADAR OF THE APPARENT DIAMETERS FROM FDAS AND CORRESPONDING MODELLED CROSS-SECTIONS FOR ONE FLAX FIBRE BUNDLE CROSS-SECTION, (A) WITH FIBRE BUNDLE SPLICING, AND (B) WITHOUT FIBRE BUNDLE SPLICING. ....	102
FIGURE 3-12: CORRELATION BETWEEN <b><i>CSAFDAS</i></b> AND <b><i>CSAOM</i></b> FOR CIRCULAR, ELLIPTIC AND FILTERED ELLIPTIC MODELS FOR (A) HEMP, (B) FLAX AND (C) NETTLE FIBRE BUNDLES. ....	103
FIGURE 4-1 : EXEMPLE DE COURBE DE FORCE/DEPLACEMENT DES FAISCEAUX DE FIBRES (A) DE PALMIER, (B) DE SISAL, (C) DE LIN, (D) DE CHANVRE ET (E) D'ORTIE A 50% HR ET 23°C. ....	110
FIGURE 4-2: MECANISMES DE RUPTURE DES FAISCEAUX DE FIBRES (A) DE PALMIER ET (B) DE SISAL OBSERVES AU COURS DES ESSAIS DE MICRO-TRACTION FILMES EN CAMERA RAPIDE A 30000 IM/S. ....	111
FIGURE 4-3: MECANISMES DE RUPTURE DES FAISCEAUX DE FIBRES (A) DE LIN, (B) DE CHANVRE ET (C) D'ORTIE OBSERVES AU COURS DES ESSAIS DE MICRO-TRACTION FILMES EN CAMERA RAPIDE A 30000 IM/S. ....	112
FIGURE 4-4: COURBE FORCE/DEPLACEMENT EN TRACTION D'UNE PAIRE DE FIBRES ELEMENTAIRES DE LIN [185]. ....	113
FIGURE 4-5 : SECTION TRANSVERSALE DES FAISCEAUX DE FIBRES (A) DE PALMIER ET (B) DE LIN [100]. ....	114
FIGURE 4-6: REPRESENTATION DES DEUX TECHNIQUES DE MESURE DES DIMENSIONS TRANSVERSALES APPARENTES AU FDAS SANS ROTATION DU FAISCEAU DE FIBRES. ....	115
FIGURE 4-7: REPRESENTATION DE LA TECHNIQUE DE MESURE DES DIMENSIONS TRANSVERSALES APPARENTES POUR CHAQUE ROTATION DE 360° AU FDAS. ....	115
FIGURE 4-8: REPRESENTATION STATISTIQUE DES AIRES DE SECTION DES 20 FAISCEAUX DE FIBRES DE LIN POUR (A) LE MODELE C ET (B) LE MODELE D, A 50%HR ET 23°C. ....	118
FIGURE 4-9: REPRESENTATION STATISTIQUE DES AIRES DE SECTION EN FONCTION DES DIFFERENTS MODELES DE CALCUL DE L'AIRES DE LA SECTION POUR (A) LES 20 FAISCEAUX DE PALMIER ET (B) LES 20 FAISCEAUX DE LIN A 50% HR ET 23°C. ....	119

FIGURE 4-10 : REPRESENTATION STATISTIQUE DES VALEURS DE MODULE TANGENT ULTIME EN FONCTION DES DIFFERENTS MODELES DE CALCUL DE L'AIRE DE LA SECTION POUR (A) LES FAISCEAUX DE PALMIER ET (B) LES FAISCEAUX DE LIN A 50% HR ET 23°C.....	120
FIGURE 4-11 : DISTRIBUTION DE WEIBULL POUR LES FAISCEAUX DE FIBRES DE (A) PALMIER ET (B) LIN EN FONCTION DIFFERENTS MODELES DE CALCUL DE L'AIRE DE LA SECTION A 23°C ET 50% HR.....	123
FIGURE 4-12: MODELISATION DE LA COMPLIANCE DE L'ENSEMBLE - SYSTEME DE MICRO-TRACTION + FAISCEAUX DE FIBRES VEGETALES - PAR 2 RESSORTS EN SERIE DE RAIDEUR $K_{SYSTEME}$ ET $K_{FAISCEAU}$ .....	124
FIGURE 4-13: FAISCEAUX DE SISAL : (A) 1 <sup>ERE</sup> IMAGE, (B) 723 <sup>EME</sup> IMAGE ET (C) 724 <sup>EME</sup> ET DERNIERE IMAGE CORRESPONDANT A LA RUPTURE DU FAISCEAU. A ET B : POINTS SUIVIS PAR CORRELATION (MORS MOBILE A DROITE DE L'IMAGE) .....	125
FIGURE 4-14 : EVOLUTION DU RATIO DU MODULE APPARENT (E') SUR LE MODULE APPARENT CORRIGE (E), PAR LA PRISE EN COMPTE DE LA COMPLIANCE DU SYSTEME EN FONCTION DE L'AIRE DE SECTION APPARENTE POUR LES DIFFERENTES FIBRES VEGETALES.	127
FIGURE 4-15: EVOLUTION DU MODULE APPARENT CORRIGE (E) EN FONCTION DE L'AIRE DE SECTION APPARENTE POUR LES DIFFERENTES FIBRES VEGETALES.....	128
FIGURE 5-1 : ISOTHERMES DE SORPTION (TRAIT PLEIN) ET DE DESORPTION (TRAIT POINTILLE) EN PHASE VAPEUR POUR LES CINQ ESPECES VEGETALES. ....	134
FIGURE 5-2 : COMPORTEMENT DE SORPTION D'EAU EN PHASE VAPEUR (DVS) ET EN IMMERSION (WRV) POUR LES CINQ ESPECES VEGETALES A 23°C.....	135
FIGURE 5-3 : EVOLUTION DU FACTEUR DE FORME MEDIAN A EN FONCTION DE LA TENEUR EN EAU A 23°C POUR LES DIFFERENTS FAISCEAUX DE FIBRES VEGETALES.....	137
FIGURE 5-4 : GONFLEMENT MEDIAN DE LA SECTION TRANSVERSALE (NORMALISEE PAR RAPPORT A L'AIRE DE SECTION A 50% HR) EN FONCTION DE LA TENEUR EN EAU A 23°C POUR LES CINQ ESPECES DE FIBRES VEGETALES. ....	140
FIGURE 5-5 : COLORATION DE L'EAU LORS DE L'IMMERSION DES FAISCEAUX DE FIBRES D'ORTIE .....	142
FIGURE 5-6 : EVOLUTION DU GONFLEMENT TRANSVERSE EN FONCTION DE LA TENEUR EN EAU A L'EQUILIBRE ENTRE 20 ET 73% HR ET A 23°C DES CINQ ESPECES DE FIBRES VEGETALES. ....	143
FIGURE 5-7 : COMPORTEMENT MECANIQUE EN TRACTION DE CINQ FAISCEAUX DE FIBRES VEGETALES (A) LIN, (B) CHANVRE, (C) ORTIE, (D) SISAL ET (E) PALMIER EN FONCTION DE L'HUMIDITE RELATIVE (20, 50 ET 73% HR ET IMMERSION) ET A 23°C. ....	147
FIGURE 5-8: EVOLUTION DU MODULE TANGENT ULTIME EN FONCTION DE LA TENEUR EN EAU SORBEE A 23°C POUR LES DIFFERENTES ESPECES DE FIBRES. ....	148
FIGURE 5-9 : EVOLUTION DE LA RESISTANCE A LA TRACTION EN FONCTION DE LA TENEUR EN EAU SORBEE A 23°C POUR LES DIFFERENTES ESPECES DE FIBRES.....	150
FIGURE 5-10 : REPRESENTATION STATISTIQUE DES CONTRAINTES A RUPTURE DES DIFFERENTES ESPECES VEGETALES POUR UNE HUMIDITE RELATIVE DE 50% HR A 23°C.....	151
FIGURE 5-11 : DISTRIBUTION DE WEIBULL POUR LES FAISCEAUX DE FIBRES DE (A) PALMIER, (B) SISAL, (C) LIN, (D) CHANVRE ET (E) ORTIE EN FONCTION DE L'HUMIDITE RELATIVE (20, 50 ET 73% HR ET IMMERSION) A 23°C. ....	154
FIGURE 5-12 : EVOLUTION DE LA DEFORMATION A LA RUPTURE EN FONCTION DE LA TENEUR EN EAU SORBEE A 23°C POUR LES DIFFERENTES ESPECES DE FIBRES.....	155
FIGURE 5-13 : CAPACITE DE GONFLEMENT ET EVOLUTION DE LA RIGIDITE (NORMALISEE A 50% HR) EN FONCTION DE LA REPRISE EN EAU DES CINQ FAISCEAUX DE FIBRES VEGETALES A 23°C.....	158

## LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 1-1 : COMPOSITIONS CHIMIQUES (% MASSIQUE) DE QUELQUES FIBRES VEGETALES .....	14
TABLEAU 1-2 : VARIABILITE DIMENSIONNELLE DE QUELQUES FIBRES D'ORIGINES VEGETALES [6] .....	17
TABLEAU 1-3 : PROPRIETES MECANIQUES (MODULE D'YOUNG ET RESISTANCE A LA TRACTION) DE QUELQUES FIBRES VEGETALES EN COMPARAISON AVEC LA FIBRE DE VERRE E.....	19
TABLEAU 1-4 : ETAT DE L'ART DES PUBLICATIONS FAISANT L'HYPOTHESE D'UNE FORME DE SECTION CIRCULAIRE. ....	30
TABLEAU 1-5 : REVUE DES METHODES DE TRACTION QUASI-STATIQUE ET DES CONDITIONS OPERATOIRES APPLIQUEES AUX FIBRES VEGETALES. ....	46
TABLEAU 2-1 : TENEUR EN LIGNINE SELON LA METHODE DE KLASON. ....	70
TABLEAU 2-2 : TENEUR EN MONOSACCHARIDE DES CINQ ESPECES VEGETALES. ....	70
TABLEAU 2-3 : SEQUENCES DE POLISSAGE DES TAMPONS DE RESINE CONTENANT LES FAISCEAUX DE FIBRES.....	75
TABLEAU 2-4 : CARACTERISTIQUES DES ESSAIS DE MICRO-TRACTION. ....	76
TABLEAU 2-5 : GRANDEURS CARACTERISTIQUES DES ESSAIS DE MICRO-TRACTION. ....	77
TABLEAU 4-1: METHODOLOGIE DE CALCUL DE L'AIRE DE SECTION APPLIQUEE AUX FAISCEAUX DE FIBRES (DONNEES ISSUES DE [100]) .....	116
TABLEAU 4-2 : DISPERSION RELATIVE MOYENNE (DR) INTRA-FAISCEAU DES AIRES DE SECTION RESISTIVE EN FONCTION DU MODELE GEOMETRIQUE DE SECTION UTILISE.....	118
TABLEAU 4-3: DISPERSION RELATIVE MOYENNE (DR) INTER-FAISCEAUX DES AIRES DE SECTION POUR LE LIN ET LE PALMIER A 50% HR ET 23°C EN FONCTION DES DIFFERENTS MODELES DE CALCUL DE L'AIRE DE LA SECTION. ....	120
TABLEAU 4-4 : DISPERSION RELATIVE (DR) DU MODULE TANGENT ULTIME EN FONCTION DES DIFFERENTS MODELES DE CALCUL DE L'AIRE DE LA SECTION A 23°C ET 50% HR POUR LES FAISCEAUX DE FIBRES DE PALMIER ET DE LIN.....	121
TABLEAU 4-5 : RESISTANCE A LA TRACTION ( $\sigma$ ) ET MODULE DE WEIBULL (M) EN FONCTION DES DIFFERENTS MODELES DE CALCUL DE L'AIRE DE LA SECTION A 23°C ET 50% HR POUR LES FAISCEAUX DE FIBRES DE PALMIER ET DE LIN.....	122
TABLEAU 4-6: PROPRIETES MECANIQUES (MODULE TANGENT ULTIME ET DEFORMATION A LA RUPTURE) DES DIFFERENTS FAISCEAUX DE FIBRES A 50% HR ET 23°C AVANT ( $E'$ ET $\epsilon'$ ) ET APRES (E ET $\epsilon$ ) PRISE EN COMPTE DE LA COMPLIANCE $C_s$ . ....	126
TABLEAU 5-1 : TABLEAU RECAPITULATIF DE L'EVOLUTION DE LA TENEUR EN EAU A L'EQUILIBRE (EN %) EN FONCTION DES HUMIDITES RELATIVES DE L'ETUDE POUR CHAQUE ESPECE VEGETALE A 23°C. ....	134
TABLEAU 5-2 : TENEUR EN LIGNINE DES CINQ ESPECES VEGETALES EVALUEE SELON LA METHODE DE KLASON.....	136
TABLEAU 5-3 : EVOLUTION DES FACTEURS DE FORME MEDIAN A DES CINQ FAISCEAUX DE FIBRES POUR DIFFERENTES CONDITIONS HYGRO/HYDROTHERMIQUES A 23°C. ....	138
TABLEAU 5-4 : SUIVI DE L'ACCROISSEMENT MEDIAN DES DIAMETRES MAXIMUM ET MINIMUM DE LA SECTION TRANSVERSALE EN IMMERSION (PAR RAPPORT A CEUX MESURES A 50% HR ET 23°C).....	138
TABLEAU 5-5 : EVOLUTION DU GONFLEMENT MEDIAN $G_s$ (EN %) DES CINQ ESPECES VEGETALES A 23°C. ....	139
TABLEAU 5-6 : ANGLE MICRO-FIBRILLAIRE DES CINQ ESPECES VEGETALES [101][5][6]. ....	141
TABLEAU 5-7 : ANALYSE DE L'EFFICACITE DU GONFLEMENT TRANSVERSE K A 23°C DES CINQ ESPECES VEGETALES ( $R^2$ : COEFFICIENT DE REGRESSION). ....	143

TABLEAU 5-8 : CORRELATION (COEFFICIENT DE PEARSON, R) LE COEFFICIENT K (TRADUISANT LA CAPACITE A FAIRE GONFLER) ET LES COMPOSITIONS BIOCHIMIQUES ET MFA DES DIFFERENTES ESPECES VEGETALES. .... 144

TABLEAU 5-9 : VALEURS DE MODULE TANGENT ULTIME EN FONCTION DE L'HUMIDITE RELATIVE (20, 50 ET 73% HR ET IMMERSION) A 23°C POUR LES DIFFERENTES ESPECES DE FIBRES. .... 149

TABLEAU 5-10 : VALEURS DE RESISTANCE A LA TRACTION POUR DIFFERENTES HUMIDITES RELATIVES (20, 50 ET 73% HR ET IMMERSION) A 23°C POUR LES DIFFERENTES ESPECES DE FIBRES..... 150

TABLEAU 5-11 : RESISTANCE A LA TRACTION ( $\sigma$ ) ET MODULE DE WEIBULL (M) EN FONCTION DE L'HUMIDITE RELATIVE (20, 50 ET 73% HR ET IMMERSION) A 23°C POUR LES DIFFERENTS FAISCEAUX DE FIBRES VEGETALES. .... 152

TABLEAU 5-12 : VALEURS DE DEFORMATION A LA RUPTURE POUR DIFFERENTES HUMIDITES RELATIVES (20, 50 ET 73% HR ET IMMERSION) A 23°C. .... 156

## LIST OF TABLES

TABLE 3-1 : FIBRE CROSS-SECTIONAL SHAPE ANALYSIS BASED ON A CIRCULAR MODEL. .... 97

TABLE 3-2: GEOMETRICAL MODELS AND DATA PROCESSING APPROACHES USED TO CALCULATE THE CSA FROM FDAS MEASUREMENTS. .... 99



## **ANNEXES**

## ANNEXE A

Sur la base de ce protocole expérimental, l'évaluation de la compliance a été réalisée en 3 étapes :

- Etape 1 : Estimation du temps global d'essai à partir des essais de micro-traction
- Etape 2 : Suivi de la déformation locale des faisceaux de fibres par analyse d'image
- Etape 3 : Détermination de la compliance  $C_s$  associée au système de micro-traction

### Etape 1 : Estimation du temps global de l'essai de micro-traction

Les essais de micro-traction réalisés sur deux faisceaux de sisal de longueur 4 mm ont permis de tracer les courbes force/temps, comme le montre la Figure A-1. L'analyse de ces courbes a ensuite permis de déterminer le temps global de chaque essai. On remarque la présence d'une zone linéaire, où la force est nulle, en début d'essai. Elle correspond à la mise sous tension des faisceaux de fibres. Il apparaît que les essais débutent au bout de 20 ou 51 s selon le faisceau de sisal considéré. Le temps correspondant à la rupture a également été déduit et s'échelonne de 37,1 à 68,3 s pour les deux échantillons testés. Le temps global, de la mise sous tension jusqu'à la rupture, pour les deux échantillons testés est donc respectivement de 17,3 et 17,1 s.

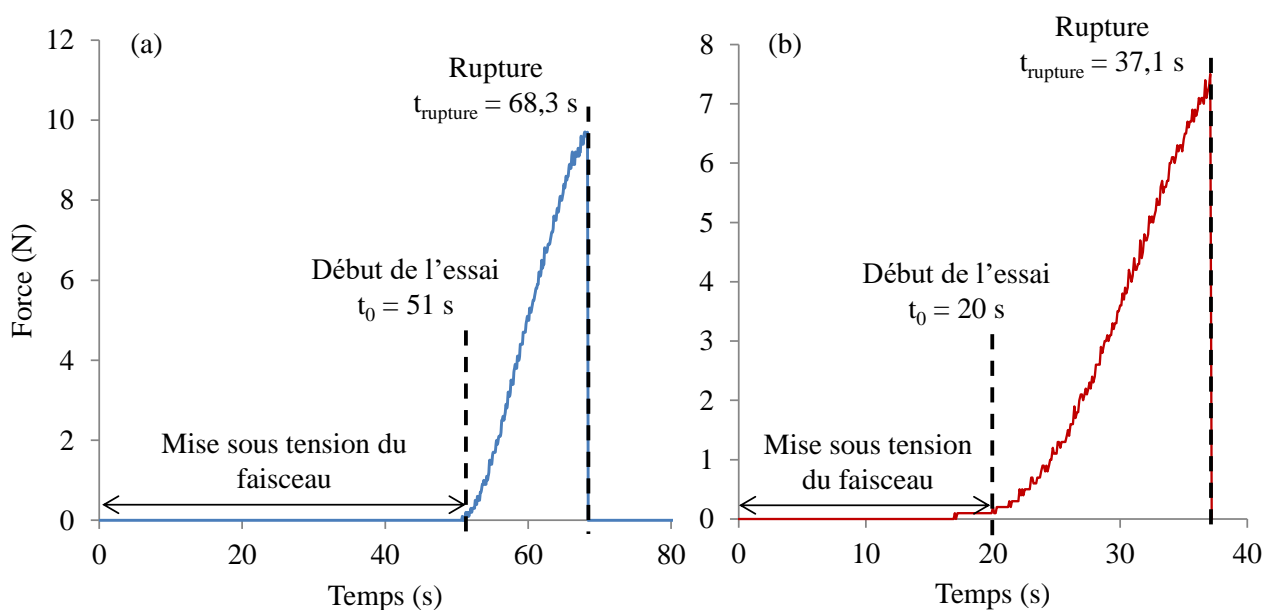


Figure A-1: Courbe force/temps des 2 faisceaux de sisal (a) faisceau n°1 et (b) faisceau n°2.

### Etape 2 : Suivi de la déformation locale

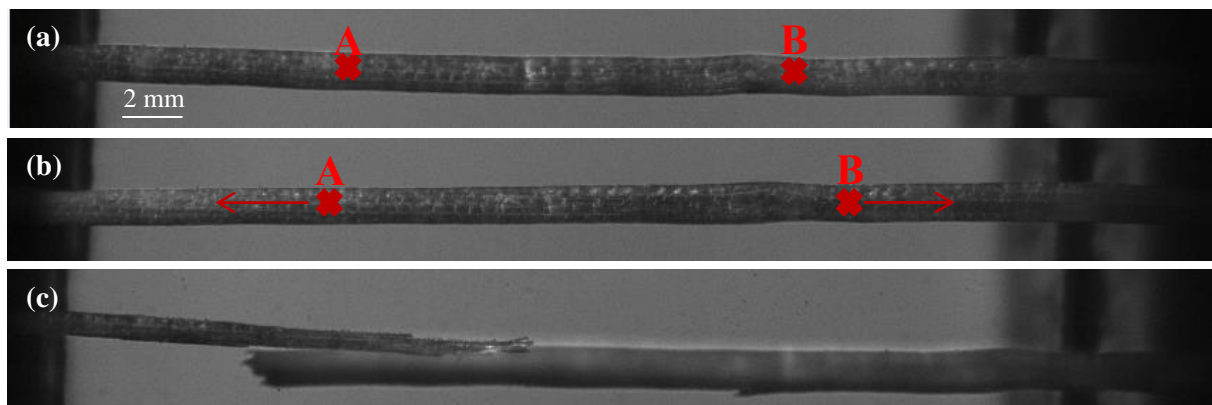
Comme le montre le Tableau A-1, les deux essais filmés en caméra rapide, sont constitués d'un nombre important d'images, respectivement 72400 et 73800 images pour les faisceaux n°1 et n°2. Pour faciliter le calcul du champ de déformation local par le logiciel CinEMA®, le nombre total d'images, et par

conséquent le taux d'échantillonnage (nombre d'images acquises par seconde) correspondant, ont été réduits et divisés par 100. Chacun des deux essais est donc constitué de 724 (faisceau n°1) et 738 (faisceau n°2) images et le taux d'échantillonnage de 50 fps soit 1 image toutes les 0,02 s.

**Tableau A-1: Caractéristiques des essais de micro-traction filmés en caméra rapide.**

Faisceau de sisal (échantillon)	Nombre d'images	Taux d'échantillonnage (fps ou images.seconde <sup>-1</sup> )	Résolution (pixels)
n° 1	72400	5000	1024 x 192
n° 2	73800		

La Figure A-2 montre la méthodologie de suivi de la déformation locale longitudinale pour le faisceau de sisal n°1 à titre d'exemple. Celle-ci est identique pour le faisceau n°2. Dans un premier temps, deux points notés A et B sont identifiés de façon aléatoire le long de l'axe du faisceau (Figure A-2(a)). La méthode numérique par corrélation d'images sous-entend que le déplacement local correspond au vecteur de déplacement des points A et B (Figure A-2(b)) pour toutes les images jusqu'à la rupture totale du faisceau, correspondant dans notre cas à la dernière image (Figure A-2(c)). Ce sont ces vecteurs de déplacement incrémentés sous forme de matrice qui seront utilisés en corrélation avec les essais de micro-traction afin d'être comparés à la déformation globale donnée par le dispositif FDAS.



**Figure A-2: Faisceaux de sisal : (a) 1<sup>ère</sup> image, (b) 723<sup>ème</sup> image et (c) 724<sup>ème</sup> et dernière image correspondant à la rupture du faisceau. A et B : points suivis par corrélation**

Après avoir suivi la déformation locale par corrélation d'images, le second objectif a été de recalibrer le temps par rapport au temps réel de l'essai de micro-traction. Connaissant l'instant où se produit la rupture (Figure A-1) et sachant que la dernière image lui correspond, il est possible de remonter au temps initial correspondant à la première image à partir de l'équation 1. Les temps initiaux sont de 53,82 et 22,34 s pour les faisceaux de fibres de sisal n°1 et n°2 respectivement.

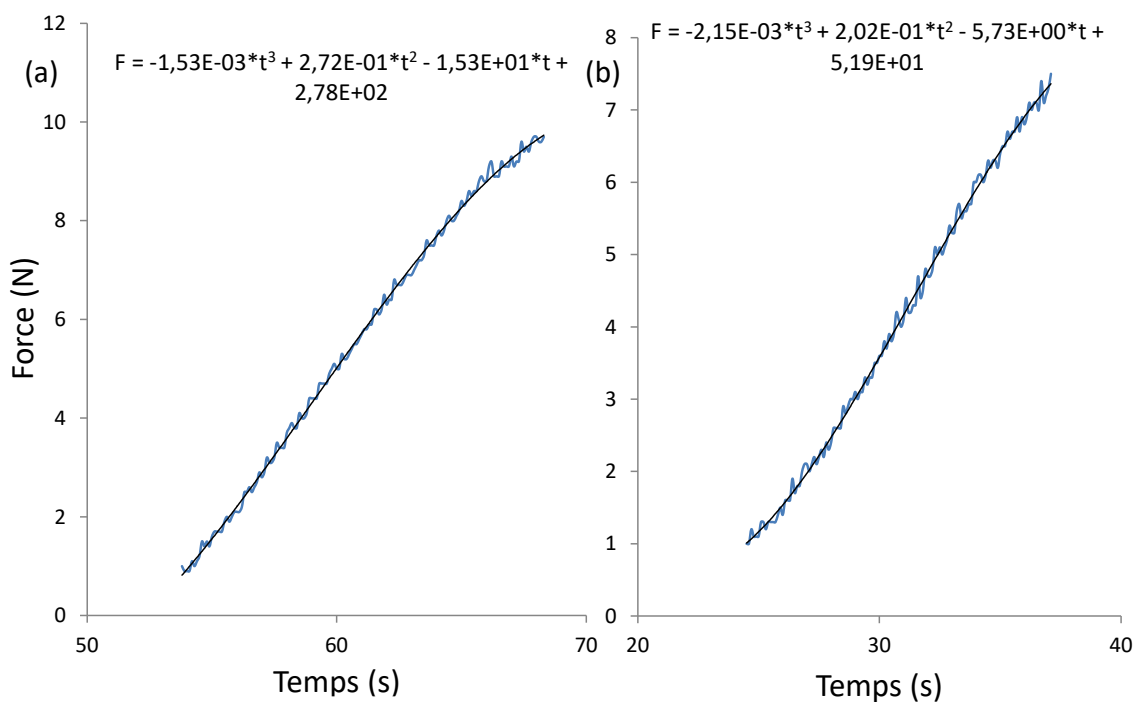
$$t_{\text{initial}} = t_{\text{rupture}} - (n * 0,02) \quad (\text{Eq.1})$$

avec,  $t_{\text{initial}}$  le temps de la première image (en s) et  $t_{\text{rupture}}$  le temps de la dernière image au moment de la rupture (en s) et  $n$  le nombre d'images.

A la suite de la corrélation entre le temps d'acquisition des images et le temps réel de l'essai de micro-traction, la dernière étape a consisté à associer la force brute donnée par le dispositif LEX par rapport au temps défini en corrélation d'images. Cette étape permettra la superposition des courbes force/déplacement locale et globale. Pour cela, la Figure A-3, qui retrace la courbe force/temps pour les deux faisceaux de fibres de sisal testés, donne la fonction polynomiale  $F=f(t)$  correspondante, incrémentée en fonction du temps à partir de l'équation 2.

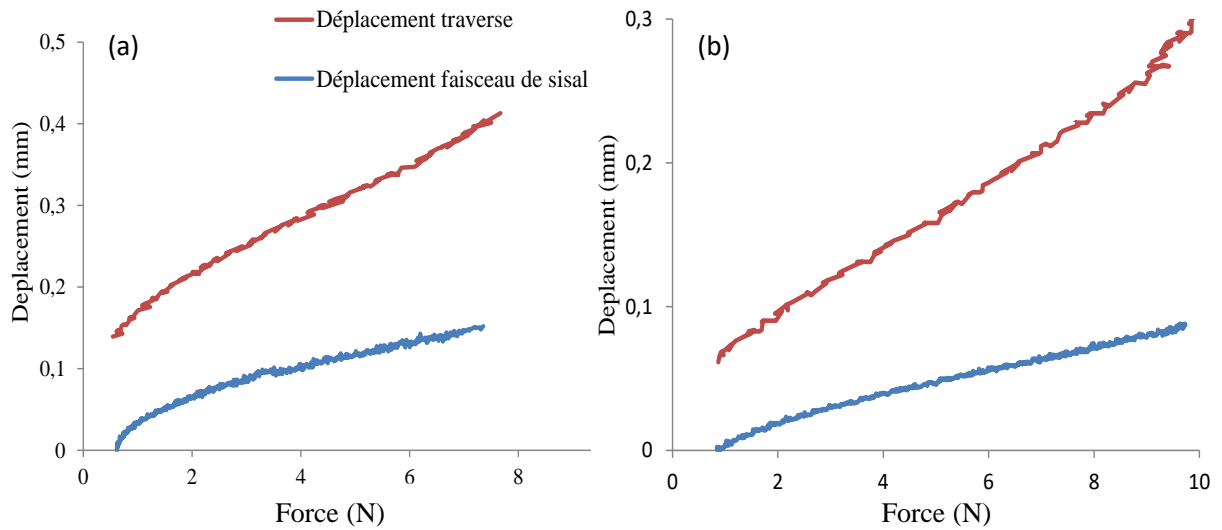
$$t_n = t_{\text{initial}} + (n * 0,02) \quad (\text{Eq. 2})$$

avec,  $t_n$  le temps d'acquisition des images (en s),  $t_{\text{initial}}$  le temps de la première image (en s) et  $n$  le nombre d'images.



**Figure A-3: Courbes force/temps en fonction du temps d'acquisition des images pour l'échantillon de sisal n°1 et (b) n°2.**

A la suite de cette étape, le temps associé à la corrélation d'image et le temps associé à l'essai de micro-traction sont identiques et dépendent tous deux de la force. Dès lors, il devient possible de superposer les courbes de force/déplacement locale et globale comme le montre la Figure A-4. Pour les deux échantillons testés, le déplacement de la traverse (en rouge) correspondant au déplacement global et le déplacement du faisceau (en bleu) correspondant au déplacement local sont donnés. Pour les deux échantillons de sisal testés, le déplacement global est nettement plus important que celui du faisceau de fibres de sisal avec une surestimation des déformations en moyenne de 60%.



**Figure A-4 : Evolution, en fonction de la force de traction, du déplacement de la traverse et du faisceau de fibres de sisal pour l'échantillon (a) n°1 et (b) n°2.**

### **Etape 3 : Détermination de la compliance $C_s$**

Pour déterminer la valeur de compliance  $C_s$ , la fonction polynomiale, correspondant au déplacement local (en bleu), a été déduite de celle du déplacement global (en rouge) afin de déterminer le déplacement induit par la chaîne de micro-traction (en vert) comme indiqué dans la Figure A-5.

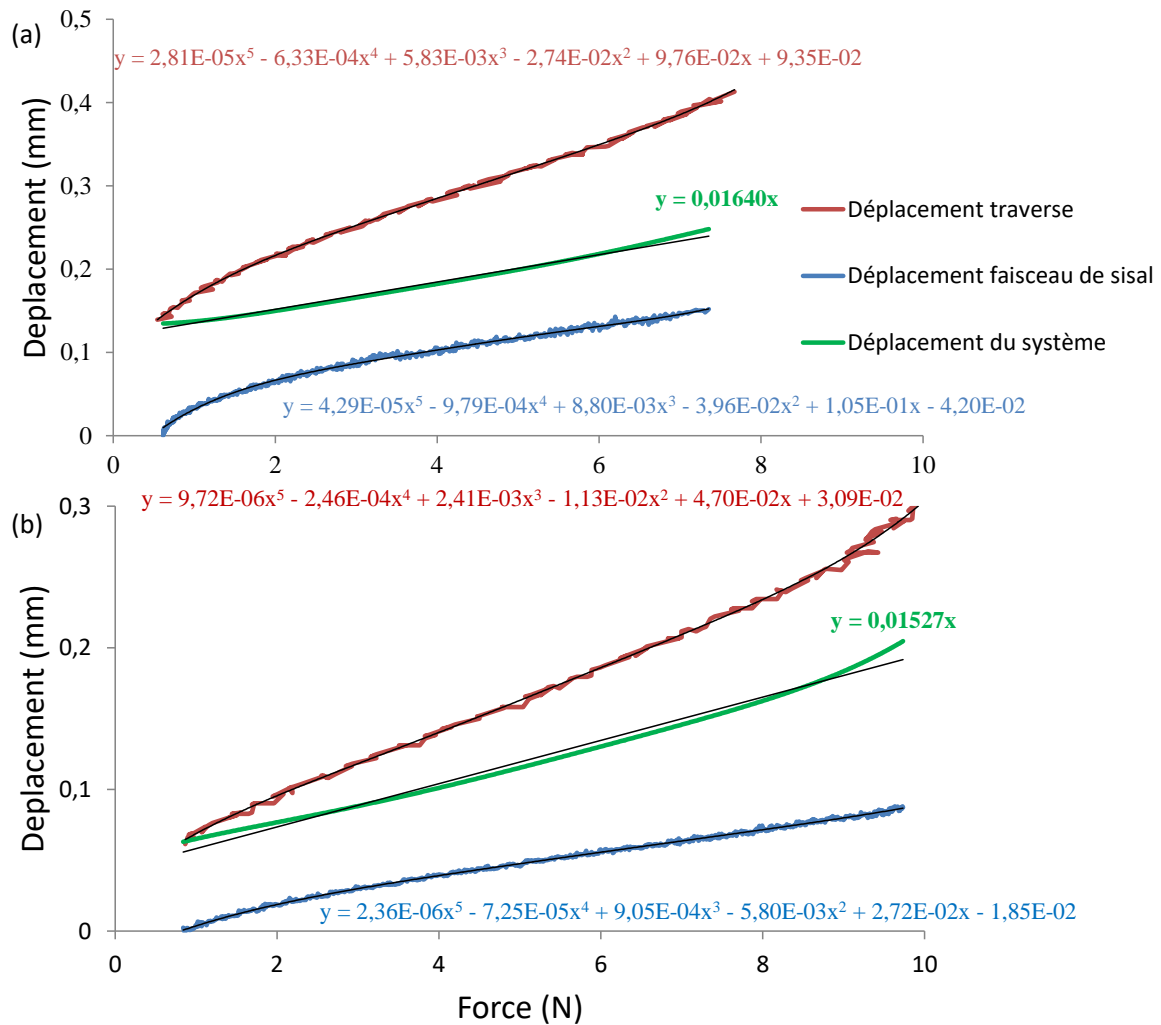


Figure A-5: Détermination de la compliance du système pour les faisceaux (a) n°1 et (b) n°2.

Tous les essais de traction effectués au cours de la thèse, quelle que soit l'espèce végétale considérée, se situent dans la même gamme de force que les deux faisceaux de sisal testés, respectivement entre 1 et 10 N. Par conséquent l'hypothèse d'une compliance constante s'est avérée satisfaisante dans notre cas. Elle a été déterminée sur la base d'une droite de régression linéaire correspondant au déplacement de la chaîne de micro-traction représenté en vert sur la Figure A-5.

Quel que soit le type d'échantillon testé, la valeur de la compliance  $C_s$  est propre au dispositif utilisé pour une gamme de force définie et devrait donc être identique. Or, dans notre cas, on observe un écart sur la mesure de compliance entre nos deux échantillons de faisceaux de sisal, avec des valeurs de 0,0164 (faisceau n°1) et 0,0153 (faisceau n°2) mm/N.

Afin de corriger les valeurs expérimentales de module et de déformation à la rupture, nous avons fait le choix d'utiliser une valeur de compliance moyenne de 0,01585 mm/N.



## RÉSUMÉ

Actuellement l'industrie montre un intérêt croissant pour le développement de matériaux composites intégrant des constituants issus de la biomasse. Dans ce contexte, différentes fibres lignocellulosiques sont envisageables en tant qu'alternative aux fibres de verre pour le renforcement des matrices thermoplastiques ou thermoset. En effet, les fibres végétales présentent des caractéristiques physiques intéressantes, telles qu'une faible densité et de bonnes propriétés mécaniques spécifiques, associées à un impact environnemental réduit, leur permettant ainsi de répondre à des problématiques sociétales. Cependant, la forte variabilité naturelle des dimensions et des propriétés mécaniques des fibres végétales rend nécessaire le développement de méthodologies de caractérisation spécifiques permettant en particulier de quantifier leur forte sensibilité à l'humidité. La première partie de cette thèse présente la mise en place d'une stratégie de caractérisation des dimensions transversales des fibres végétales s'appuyant sur une technique de balayage laser associée à une modélisation géométrique fiable. Cette méthodologie est validée sur la base d'une étude dimensionnelle de faisceaux de fibres issus de différentes espèces végétales morphologiquement contrastées (lin, chanvre, ortie, sisal, palmier). La modélisation proposée permet de réduire de manière significative la dispersion des propriétés mécaniques des faisceaux de fibres étudiés. Dans une seconde partie, l'effet de l'humidité sur les variations dimensionnelles et le comportement mécanique des fibres végétales est quantifié. Les résultats révèlent des phénomènes de gonflement et de plastification des parois cellulaires différenciés selon la composition biochimique et la microstructure des différentes espèces végétales.

**Mots-clés :** *Fibres végétales, Stabilité dimensionnelle, Propriétés mécaniques, Conditions hydro/hygrothermiques, Mécanismes de plastification*

---

## ABSTRACT

Currently, the industry is showing a growing interest in the development of composite materials incorporating components derived from biomass. In this context, various plant species can be used as reinforcement of thermoplastic and thermoset, in substitution to glass fibres. Indeed, natural fibres have interesting physical characteristics, such as their low density and good specific mechanical properties associated with the fact that they reduce environmental impacts answering to societal problems. However, the high natural variability of their dimensions and mechanical properties make it necessary to develop specific characterization methods particularly to quantify their high humidity sensitivity. The first part of this study presents the development of characterization methodologies of natural fibres transverse dimensions based on an automated laser scanning technique associated with a reliable geometric modeling and validated on plant species with contrasted morphologies (flax, hemp, sisal, nettle, and palm). The proposed modeling makes it possible to drastically reduce the mechanical properties dispersion of the studied fibre bundles. In a second part the effect of humidity conditions on the dimensional variations and the mechanical behavior of natural fibres are quantified. The results revealed contrasted swelling and plasticization behaviour, depending on biochemical composition and microstructure of plant species.

**Keywords:** *Natural fibres, Dimensional stability, Mechanical properties, Hydro/hygrothermal conditions, Plasticization mechanisms*