



**HAL**  
open science

# Contribution à l'étude de composites unidirectionnels renforcés par des fibres de lin : relation entre la microstructure de la fibre et ses propriétés mécaniques

Karine Charlet

## ► To cite this version:

Karine Charlet. Contribution à l'étude de composites unidirectionnels renforcés par des fibres de lin : relation entre la microstructure de la fibre et ses propriétés mécaniques. Matériaux. Université de Caen / Basse-Normandie, 2008. Français. NNT : . tel-01133091

**HAL Id: tel-01133091**

**<https://hal.science/tel-01133091>**

Submitted on 18 Mar 2015

**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.



Distributed under a Creative Commons Attribution - NonCommercial - NoDerivatives 4.0 International License



**UNIVERSITE DE CAEN / BASSE-NORMANDIE**

**U.F.R. : Sciences**

**Ecole Doctorale : SIMEM**

**THESE**

présentée par

**Mlle Karine CHARLET**

soutenue le 6 mai 2008

en vue de l'obtention du

**DOCTORAT de l'UNIVERSITE de CAEN**

Spécialité : Chimie des Matériaux

(Arrêté du 07 août 2006)

**Contribution à l'étude de composites unidirectionnels  
renforcés par des fibres de lin : relation entre  
la microstructure de la fibre et ses propriétés mécaniques**

Membres du jury :

M. Eric ANDRIEU, Professeur, Université de Toulouse (*rapporteur*)

M. Alexis BEAKOU, Professeur, Université de Clermont-Ferrand (*rapporteur*)

M. Christophe BALEY, Maître de Conférence, Université de Bretagne-Sud

M. Joël BREARD, Professeur, Université du Havre

M. Moussa GOMINA, Chargé de recherche, Université de Caen

M. Ignaas VERPOEST, Professeur, Katholieke Universiteit Leuven, Belgique

M. Jean-Paul JERNOT, Chargé de recherche, Université de Caen (*directeur de thèse*)



# Remerciements

Je voudrais avant tout remercier Messieurs Eric Andrieu et Alexis Beakou pour avoir accepté de juger mes travaux, ainsi que Messieurs Christophe Baley, Joël Bréard et Ignaas Verpoest pour avoir bien voulu participer au jury de ma thèse.

Je tiens ensuite à remercier Monsieur Jean-Paul Jernot, directeur de thèse, et Monsieur Moussa Gomina, directeur d'équipe, pour m'avoir accueillie au sein de l'Equipe Structure et Comportement Thermomécanique des Matériaux du CRISMAT. Leur grande disponibilité, leur longue expérience et leurs judicieux conseils m'ont permis de réaliser cette thèse dans des conditions particulièrement favorables.

Je remercie le Réseau Matériaux Polymères Plasturgie du Grand bassin Sud-Parisien pour leur soutien financier au cours de ces trois années et l'intérêt porté par ses membres sur l'évolution de mes travaux sur un sujet si particulier.

Merci à Madame Bernadette Domengès et à Messieurs Laurent Bizet et Sébastien Guéret pour le temps qu'ils m'ont consacré, leur patience et leur savoir-faire, que ce soit pour les observations microscopiques des fibres, la rédaction d'articles ou la fabrication des composites.

Un grand merci à l'Excellent Monsieur Jeanne, pour sa bonne humeur et son génie créatif, sans qui de nombreuses manipulations n'auraient pas été possibles.

Je tiens aussi à remercier mon chirurgien, le Docteur Naguszewski, de m'avoir fourni de nouveaux yeux qui avaient été largement abîmés par les trois années de manipulation de fibres élémentaires.

Merci à mes élèves de la filière informatique, qui ont été de parfaits cobayes et envers lesquels le meilleur reflet de ma reconnaissance est leur note finale moyenne en maths.

Un grand merci également à toute l'équipe du 3<sup>ème</sup> étage du CNRT, Patricia, Davy, Eric, Hugo-mon-coloc-de-bureau, Driss, Clément, Simon, Karim, Eric, Jérôme, et ceux que j'oublie certainement, pour leur bonne humeur, leur aide et leur collaboration tout au long de ces années.

Mention spéciale à Joël dont la confiance et le soutien, tant professionnel que personnel, m'ont permis non seulement de me « positionner » dans le monde merveilleux des éocomposites mais aussi de me faire « vibrer » et de « faire corps » avec ce sujet de recherche ; idem pour Sophie, qui, avec ses éclats de rire, son amitié inébranlable, ses nombreux et pertinents conseils, et ses prises de position féministes, m'a bien aidé à relativiser et à mener à bien cette étude.

Enfin, merci à mes parents, mon frère, ma sœur, Emilie, Julie, et David, qui, bien que légèrement dubitatifs devant ce mémoire, n'ont jamais manqué de me soutenir et de m'encourager...

# Sommaire

## Chp 1 Eléments bibliographiques sur la fibre de lin

---

### I. De la tige à la fibre

#### I.1. Schéma constitutif de la tige et définition des éléments de structure

- I.1.a. La tige
- I.1.b. Le faisceau
- I.1.c. La fibre
- I.1.d. Les parois cellulaires

#### I.2. Mode de croissance d'une tige, des fibres et des microfibrilles

- I.2.a. Développement des tiges
- I.2.b. Développement des fibres
- I.2.c. Développement des microfibrilles

#### I.3. Extraction de la fibre unitaire à partir de la tige

- I.3.a. Arrachage
  - I.3.b. Rouissage
  - I.3.c. Teillage
  - I.3.d. Peignage
  - I.3.e. Traitements finaux
- 

### II. Caractérisation de la fibre de lin

#### II.1. Composition biochimique

- II.1.a. Cellulose
- II.1.b. Hémicelluloses
- II.1.c. Pectines
- II.1.d. Lignine
- II.1.e. Eau
- II.1.f. Comparaison avec d'autres fibres végétales
- II.1.g. Influence de la position des fibres dans la tige sur leur composition

#### II.2. Propriétés physiques

- II.2.a. Densité
- II.2.b. Dimensions
- II.2.c. Influence de la position des fibres dans la tige sur leur morphologie
- II.2.d. Angle microfibrillaire
- II.2.e. Défauts



- IV.2.d. Orientation de la structure lamellaire
  - IV.2.e. Observation longitudinale au niveau des trous autour du lumen
  - IV.2.f. Présence d'eau dans les parois
  - IV.2.g. Observation de macrofibrilles
  - IV.3. Hypothèses sur la structure interne des fibres
- 

## V. Synthèse : diamètre des fibres

# Chp 3

# Analyse mécanique de la fibre de lin

---

## I. Protocole des essais de traction

- I.1. Déroulement d'un essai
  - I.2. Détermination des propriétés mécaniques
  - I.3. Présentation des essais réalisés
- 

## II. Résultats des essais de traction

- II.1. Résultats préliminaires : validation du calcul du module d'élasticité
  - II.2. Influences de la variété des fibres et de leur localisation dans la tige
  - II.3. Influence des traitements de séparation des fibres de lin
  - II.4. Influence de la vitesse de déformation
- 

## III. Discussion des résultats des essais de traction

- III.1. Diamètre moyen des fibres sollicitées en traction
  - III.2. Analyse de la diminution des propriétés avec le diamètre
    - III.2.a. Diminution de la contrainte à la rupture
    - III.2.b. Diminution du module d'élasticité
    - III.2.c. Application de la méthode précédente à la contrainte à la rupture
  - III.3. Analyse de la dispersion
- 

## IV. Réorientation des fibrilles lors d'un essai de traction

- IV.1. Hypothèse de réorganisation interne
  - IV.2. Relation entre l'angle microfibrillaire et la déformation de la fibre
  - IV.3. Application de l'hypothèse à d'autres fibres végétales
- 

## V. Modes de rupture

---

## VI. Synthèse : comportement en traction d'une fibre de lin

# Chp 4 Etude de composites unidirectionnels lin/polyester

---

## I. Présentation des composites à base de fibres naturelles

### I.1. Renfort

### I.2. Composites à base de fibres végétales

I.2.a. Intérêts et débouchés

I.2.b. Problèmes liés à l'élaboration

I.2.c. Propriétés mécaniques des composites

---

## II. Composites lin / polyester étudiés

### II.1. Protocole de fabrication des composites

II.1.a. Moulage au contact

II.1.b. Compression à chaud

II.1.c. Infusion

### II.2. Evaluation microstructurale du taux volumique de fibres

---

## III. Propriétés mécaniques des composites

### III.1. Essais de traction

III.1.a. Eprouvettes de traction

III.1.b. Résultats des essais de traction sur la matrice seule

III.1.c. Résultats des essais de traction sur les composites : allure des courbes

III.1.d. Résultats des essais de traction sur les composites : propriétés mécaniques

III.1.e. Evolution des propriétés mécaniques en fonction du taux de fibres

III.1.f. Faciès de rupture

### III.2. Flambement

III.2.a. Protocole

III.2.b. Résultats

III.2.c. Endommagements relevés

## Conclusion

## Références

## Annexes

# Introduction

L'utilisation d'agroressources pour la fabrication de matériaux structuraux se pratique depuis des siècles (bois, torchis, béton...) et connaît un regain d'intérêt depuis quelques années, justifié par des considérations écologiques et surtout économiques. Tout ce qui peut être fait pour limiter les impacts de l'homme sur l'environnement et pour l'affranchir de sa dépendance vis-à-vis de la production de pétrole est actuellement fortement encouragé. C'est dans ce contexte d'écoconception que se positionnent les composites à base de fibres naturelles, dont la vocation, à terme, est de remplacer une partie des composites traditionnels à base de fibres synthétiques.

Largement disponibles en France, les fibres longues de lin ont encore pour principal débouché l'industrie textile. Leurs bonnes propriétés mécaniques et leur faible densité par rapport à celles des fibres de verre permettent de les envisager dans le secteur des composites comme renfort de matrices polymères, susceptibles de produire des matériaux plus légers et plus écologiques. Les fibres de lin sont déjà utilisées dans le domaine de l'automobile en tant que charges aléatoirement dispersées, mais une utilisation comme renfort unidirectionnel est également envisageable pour la fabrication de pièces plus structurales.

La caractérisation de ces composites commence par la compréhension du comportement du renfort et de celui de la matrice, tant en termes de propriétés morphologiques que de propriétés mécaniques, puis de leurs interactions respectives une fois sous forme de composite. Les travaux présentés ici portent principalement sur l'étude de la géométrie et de la résistance du renfort fibreux, et sur l'analyse des relations existant entre la morphologie des fibres de lin, aussi bien interne qu'externe, et quelques-unes de leurs caractéristiques mécaniques.

Ce mémoire se divise en quatre parties, dont les trois premières concernent directement la fibre de lin et la dernière les composites unidirectionnels qui en dérivent. La fibre de lin est présentée dans un premier chapitre à partir de données bibliographiques ; son mode d'extraction de la tige, sa composition biochimique, sa structure ainsi que ses propriétés mécaniques sont inventoriés afin de

la positionner par rapport aux autres fibres végétales traditionnelles (le chanvre, le coton, la ramie...). Le deuxième chapitre regroupe des analyses morphologiques réalisées sur les fibres de lin et met en avant des particularités telles que leurs fortes dispersions dimensionnelles ou leur structure multicouche. Le troisième chapitre s'attache à décrire le comportement de fibres de lin sollicitées en traction uniaxiale et à le corréler à certaines de leurs données structurales. Enfin, après la présentation de quelques données de la littérature sur les polymères renforcés par des fibres naturelles, les résultats d'essais mécaniques menés sur des composites unidirectionnels renforcés par des fibres de lin sont synthétisés et discutés en termes de performances mécaniques et de mise en œuvre.

# Chapitre 1

## Eléments bibliographiques sur la fibre de lin

Le lin est une plante de la famille des Linacées et du genre *Linum*, qui comporte plus de deux cents espèces dont la plus répandue s'appelle *Linum usitatissimum*. Cette plante est constituée d'une tige dont l'extrémité est formée de plusieurs petites fleurs bleues. Elle contient sur toute sa hauteur de longues fibres qui lui confèrent sa rigidité. Dans ce chapitre, une première partie est consacrée à la description de la plante de lin, dans laquelle sa constitution, sa croissance et le mode d'extraction des fibres sont détaillés. Ensuite, quelques caractéristiques biochimiques, physiques et mécaniques des fibres de lin sont présentées et comparées à celles de quelques fibres synthétiques et d'autres fibres végétales, afin d'évaluer les nombreux avantages de la fibre de lin qui font d'elle un renfort envisageable de matrices polymères.

---

### I. De la tige à la fibre

#### I.1. Schéma constitutif de la tige et définition des éléments de structure

##### I.1.a. La tige

A maturité, la tige de lin mesure entre 80 et 120 cm de haut et environ 2 mm de diamètre. Sa section est constituée, de la périphérie vers le centre, de l'épiderme, du cortex, du phloème (qui contient entre 20 et 40 faisceaux fibreux), du cambium, du xylème et d'une lacune (Fig. 1 - 1).

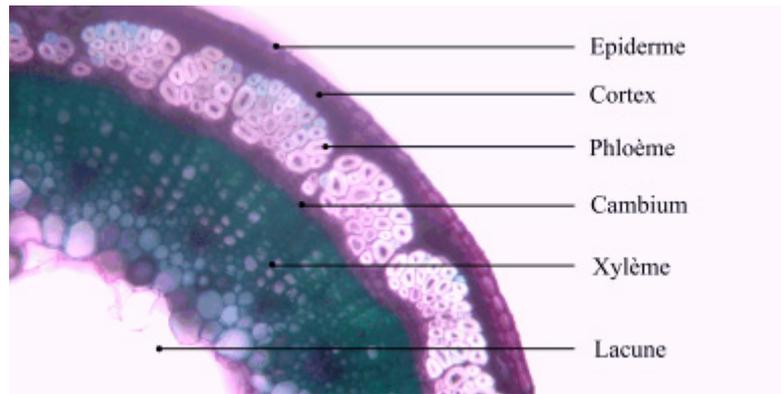


Fig. 1 - 1. Microscopie optique d'une section de tige de lin

### I.1.b. Le faisceau

Les faisceaux ont une longueur de plusieurs dizaines de centimètres et regroupent, sur une section perpendiculaire à l'axe de la tige, jusqu'à une quarantaine de fibres [1] collées entre elles par une interphase à base de polysaccharides amorphes (notamment des pectines), appelée lamelle mitoyenne [2,3] (Fig. 1 - 2a).

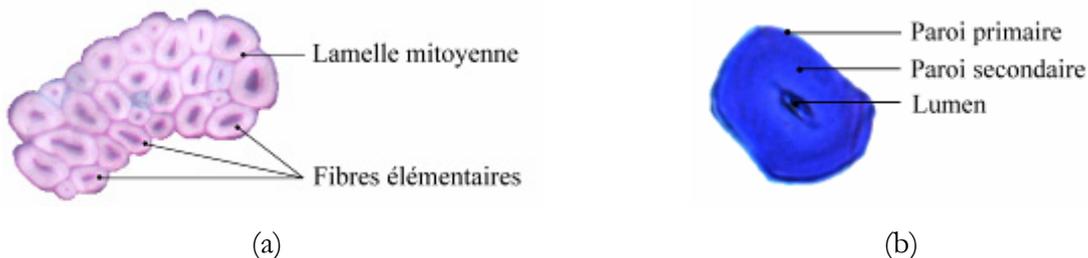


Fig. 1 - 2. Microscopies optiques d'un faisceau teinté au carminoverte (a) et d'une fibre élémentaire teintée au bleu de toluidine (b)

### I.1.c. La fibre

Une fibre de lin est un matériau multicouche composé de parois cylindriques concentriques (Fig. 1 - 2b et Fig. 1 - 3). Elle a une longueur de l'ordre du centimètre et un diamètre de quelques dizaines de microns (de 10 à 30  $\mu\text{m}$  environ). Sa section est approximativement polygonale, avec 5 à 7 cotés, ou elliptique [4-6]. Elle possède en son centre une cavité (le lumen) qui contient, pendant la phase de croissance, le cytoplasme et le noyau cellulaire, ces derniers disparaissant une fois la fibre arrivée à maturité. Le lumen contribue à la circulation de l'eau et sa taille permet de déterminer la qualité et le degré de maturité de la fibre [7-10].

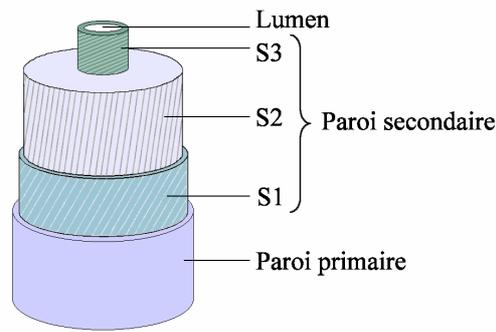


Fig. 1 - 3. Schéma d'une fibre de lin et de ses parois cellulaires

Le constituant principal d'une fibre de lin est la cellulose, qui représente entre 65 et 75 % de la masse totale. Une fibre contient entre 8 et 10% d'eau, environ 2% de pectines et entre 10 et 15 % d'hémicelluloses (cf. Tableau 1 - 2). Des lignines sont également présentes en faible quantité (environ 2 %) ainsi que des protéines et des cires [10-13].

#### I.1.d. Les parois cellulaires

La paroi externe de la fibre, également appelée paroi primaire, a une épaisseur d'environ 0,2  $\mu\text{m}$  [14]. Elle est très poreuse, élastique et continue [15]. Ses constituants principaux sont des pectines [16], mais elle contient aussi quelques microfibrilles de cellulose orientées aléatoirement [17]. La paroi interne, ou paroi secondaire, constitue la majorité du volume de la fibre, avec une épaisseur de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$ . Elle-même peut être divisée en 3 couches (appelées S1, S2 et S3 [18]) qui diffèrent par leur épaisseur et leur organisation interne, la couche S2 étant la plus épaisse [19]. De nombreux modèles ont été proposés depuis la fin des années 50, dont notamment ceux de Harada *et al.* [20], de Wardrop et Bland [21] et de Forgacs [22] (Fig. 1 - 4abc) ; chacun reprend la description faite précédemment à quelques détails près (par exemple, la présence de couches de transition entre S1, S2 et S3).

Chacune de ces couches est constituée de lamelles concentriques qui consistent en un enroulement en spirale de microfibrilles de cellulose parallèles entre elles dans une matrice de pectines, l'interphase étant assurée par des groupes d'hémicelluloses. Une lamelle a une épaisseur de la taille d'une microfibrille [23] (Fig. 1 - 4d). Dans les lamelles de la couche S2, les microfibrilles de cellulose sont orientées à environ  $10^\circ$  de l'axe de la fibre [12,24-26], alors qu'elles sont beaucoup plus obliques dans les couches S1 et S3 [27], et il n'y a pas d'orientation privilégiée des microfibrilles dans la paroi primaire [28,29]. Une hypothèse permettant d'expliquer le passage d'une couche à l'autre a été proposée par Roland [27] : à partir d'observations au microscope électronique à

transmission, il a introduit le terme d' « hélicoïdes transitoires » en ajoutant aux anciens schémas d'organisation des parois la notion de réorganisation progressive des lamelles (Fig. 1 - 5).

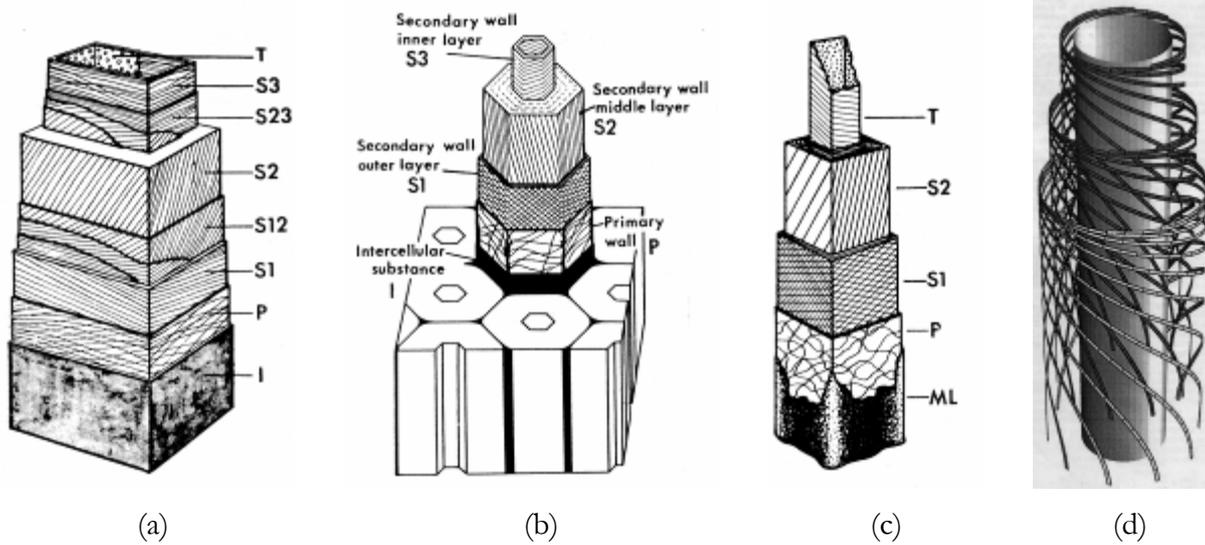


Fig. 1 - 4. Schémas d'organisation des parois cellulaires dans les fibres végétales, d'après [20] (a), [21] (b), [22] (c) et schéma de superposition concentrique des lamelles (d) [23]

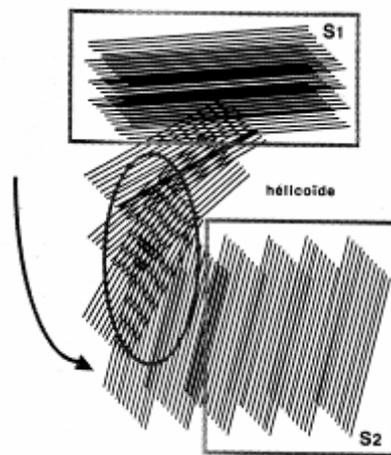


Fig. 1 - 5. Schéma des hélicoïdes transitoires à l'interface entre la paroi S1 et la paroi S2 [27]

### I.1.e. Les microfibrilles

Les microfibrilles mesurent plusieurs microns de longueur et quelques nanomètres de diamètre (Tableau 1 - 1). Elles sont regroupées en macrofibrilles de plusieurs centaines de nanomètres de large. Deux fibrilles sont espacées de 10 nm [2] à 100 nm [23]. Elles sont composées d'une vingtaine de micelles (ou fibrilles élémentaires) de 25 nm<sup>2</sup> environ [30,31], elles-mêmes composées de 50 à 100 molécules de cellulose et espacées de 1 nm [2]. Il a été estimé [32] que le

nombre de molécules de cellulose traversant une section donnée d'une fibre était de l'ordre de 1 à 2 milliards.

Taille des microfibrilles (nm)	1 - 4	3 - 4	10	10 - 15	10 - 20	10 - 30
Référence	[33]	[34,35]	[36]	[37]	[2]	[38]

Tableau 1 - 1. Dimensions des microfibrilles d'après des données de la littérature

### I.1.f. Synthèse

Le schéma suivant synthétise les descriptions précédentes et illustre la structure multicouche du lin, de la tige jusqu'à la microfibrille, en passant par le faisceau, la fibre et les parois cellulaires.

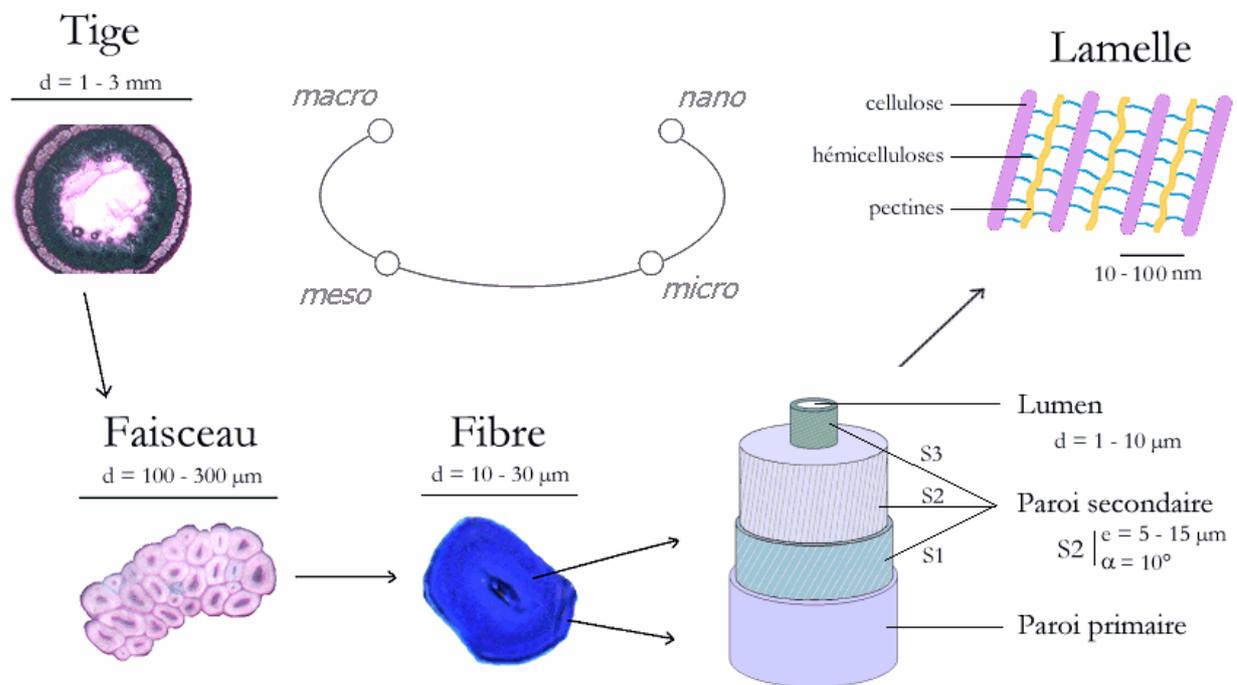


Fig. 1 - 6. Description du lin, de l'échelle macroscopique à l'échelle nanoscopique.

## I.2. Mode de croissance d'une tige, des fibres et des microfibrilles

### I.2.a. Développement des tiges

La culture du lin est relativement rapide et s'étale de mars (début du semis) à septembre (rentrée des andains). Un calendrier approximatif est donné figure 1 - 7.

mars		avril		mai		juin		juillet		août		septembre	
semis		levée		croissance		floraison		arrachage		rouissage		récolte	

Fig. 1 - 7. Calendrier de la culture du lin [39]



(a)



(b)



(c)



(d)

Fig. 1 - 8. Photographies du début de croissance de tiges de lin vers avril-mai (a, b) et de la floraison fin juin (c, d) [39]

La croissance des tiges de lin s'effectue en une centaine de jours, au cours desquels plusieurs stades phénoménologiques se succèdent : il y a tout d'abord une croissance lente de la tige, suivie d'une croissance rapide pendant une dizaine de jours déterminant l'essentiel de la longueur de la tige,

et enfin la floraison pendant laquelle les derniers centimètres apicaux de la tige se forment, en même temps que la formation et la maturation des graines.

### I.2.b. Développement des fibres

Le développement des fibres est étroitement lié à la croissance de la tige et s'effectue également en trois étapes, séparées dans l'espace et le temps. La première phase se déroule dans les 5 cm apicaux de la tige et ne dure que quelques heures. Les cellules s'allongent de 200  $\mu\text{m}$  à 2,5 cm en moyenne, grâce à leur paroi primaire élasto-visco-plastique, et leur longueur est conditionnée par le climat durant cette phase. Ainsi, les fibres du bas de la tige, les premières à apparaître et qui subissent donc les conditions climatiques souvent rudes de la fin de l'hiver, sont généralement très courtes. Il s'agit à la fois d'une croissance coordonnée avec les cellules voisines et d'une croissance interne propre à chaque cellule. Une deuxième phase s'amorce avec l'initiation de la synthèse centripète de la paroi secondaire et le ralentissement de l'élongation. Une première couche, la S1, est synthétisée ; c'est elle qui, en renforçant mécaniquement la paroi des fibres, contribue à rigidifier la tige et à déterminer une zone frontière appelée « snap point » entre la zone d'élongation et la zone de maturation de la tige [40]. La troisième phase se déroule sur plusieurs dizaines de jours et accompagne la maturation de la tige. Les fibres sont devenues des usines à fabriquer de la paroi et en particulier la couche S2 très épaisse : la taille de cette couche augmente alors que celle du lumen rétrécit. Le taux de remplissage de chaque fibre par ces différentes couches et la proportion des différents polymères matriciels dépendent donc non seulement de la variété de lin, mais aussi de son environnement et de la position de la fibre dans la tige, puisque chaque zone de la tige a une histoire météorologique particulière.

### I.2.c. Développement des microfibrilles

A l'échelle nanoscopique, les microfibrilles sont secrétées par des enzymes de synthèse appelées des rosettes (Fig. 1 - 9). De nombreuses études ont été menées ces 20 dernières années pour déterminer le procédé de fabrication de la cellulose et expliquer la forme en hélice des microfibrilles. D'après Neville [41] et Vincent [42], c'est un mécanisme d'auto-assemblage de type cristal liquide qui régit la morphogénèse d'une fibre ; les hémicelluloses seraient initialement disposées en hélice dans les parois et la cellulose viendrait se greffer à elles. D'après Emons et Mulder [23], ce mécanisme n'est pas plausible car les dépôts de parois ne sont pas simultanés mais séquentiels ; elles proposent plutôt que ce soit la géométrie de la cellule qui impose la disposition en hélice : la matrice de pectines et d'hémicelluloses serait excrétée dans les parois par exocytose alors

que la rosette serait insérée dans la membrane plasmique où elle sécrèterait la cellulose tout en bougeant dans la membrane, propulsée par les forces exercées par la polymérisation de la cellulose. Enfin, Roland [27] suggère que le mécanisme d'auto-assemblage n'interviendrait que pendant les phases transitoires et que les phases « unidirectionnelles » seraient gérées par des mécanismes de sécrétion séquentielle, en accord avec certains résultats biochimiques [43,44].

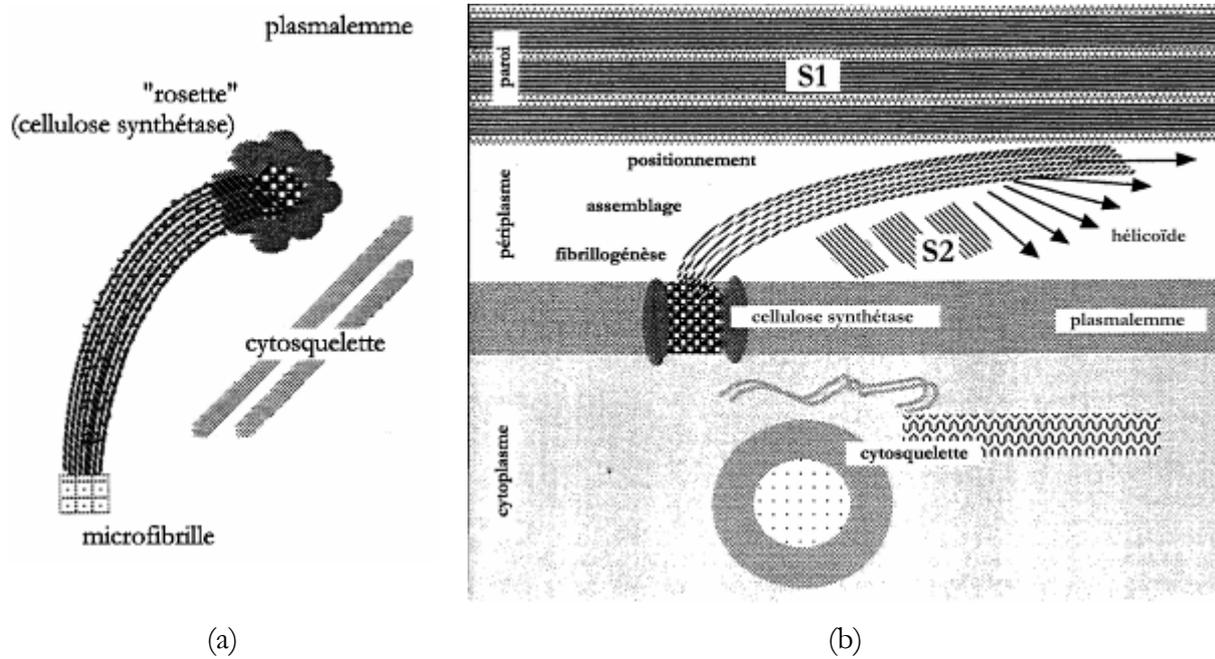


Fig. 1 - 9. Représentations schématiques de l'émergence d'une microfibrille à partir d'une rosette (a) et de la morphogénèse pariétale au moment de la transition hélicoïdale S1-S2 (b) (adaptées de [27])

### I.3. Extraction de la fibre unitaire à partir de la tige

Pour obtenir de longues fibres de lin à partir d'une tige, plusieurs étapes successives sont nécessaires : l'arrachage, le rouissage, le teillage et le peignage. Le premier objectif de ces opérations est d'éliminer les constituants autres que les faisceaux de fibres. Le second est de diviser au maximum ces faisceaux pour qu'ils contiennent un minimum de fibres unitaires ; le matériau alors considéré n'est plus le faisceau initialement présent dans la tige, mais n'est pas encore la fibre unitaire ; on l'appelle généralement « fibre technique ».

Ces opérations d'extraction, détaillées dans la suite, permettent de diminuer le nombre de fibres unitaires par fibre technique, c'est-à-dire d'améliorer leur finesse, mais entraînent généralement l'apparition d'endommagements plus ou moins sévères qui réduisent les propriétés mécaniques des fibres [45].

#### I.3.a. Arrachage

A maturité des plantes, c'est-à-dire lorsque les tiges sont défoliées sur leur tiers inférieur, vers fin juillet, elles sont arrachées du sol et étalées en andain. Les fibres, encore sous forme de faisceaux, sont alors dites « vertes » mais ne sont pas encore facilement séparables du reste de la tige. Elles contiennent encore des impuretés, notamment des particules de xylème, qui provoquent des concentrations de contraintes et les fragilisent.

#### I.3.b. Rouissage

Le rouissage est l'opération par laquelle des micro-organismes détruisent plus ou moins intégralement la lamelle mitoyenne qui relie les faisceaux fibreux entre eux, permettant ainsi la séparation des faisceaux et leur division en fibres techniques. Le rouissage commence lorsque les conditions d'humidité sont favorables, souvent dès le mois d'août. Par opposition au rouissage à l'eau, désormais interdit en France pour des raisons de pollution des eaux, le rouissage à terre consiste à étaler les tiges à même le sol au moment de leur arrachage (Fig. 1 - 10) ; les micro-organismes intervenant sont des bactéries aérobies, des champignons ou des moisissures qui agissent par action enzymatique sous les actions conjuguées de la rosée, de la pluie, du vent et du soleil et permettent l'élimination des ciments pectiques. La période de rouissage s'étale sur 5 à 8 semaines pendant lesquelles l'alternance de phases humides et chaudes permet le développement de ces micro-organismes. L'homogénéité spatiale de l'attaque microbienne est garantie par un retournement des tiges en cours de rouissage.

Actuellement, une autre méthode permettant la division des faisceaux est en plein développement : il s'agit du rouissage enzymatique, qui est en fait un rouissage biologique contrôlé mettant en présence les tiges avec une bactérie qui secrète une enzyme dont le rôle est de détruire la matrice pectique. Le rouissage ne cause qu'une perte minimale de masse des fibres (notamment de pectines). Cette opération augmente l'indice de cristallinité (car l'attaque bactérienne affecte principalement les constituants amorphes [46]) mais diminue sensiblement les propriétés mécaniques [47]. Une fois les tiges rouies de façon homogène et suffisante, les andains sont enroulés et pressés en grosses balles (Fig. 1 - 11a) stockées à l'abri de la pluie et isolées du sol.



(a)



(b)

Fig. 1 - 10. Photographies de tiges de lin en train de rouir à terre [39](a) et d'un routoir anciennement utilisé pour le rouissage à l'eau (b) [48]

### I.3.c. Teillage

L'opération suivante, le teillage, consiste à extraire de façon mécanique les morceaux de bois du xylème, appelés anas, contenus à l'intérieur des tiges. Tout d'abord, le broyage brise la paille centrale sans endommager la fibre ; ensuite, le battage sépare les anas de la filasse et permet d'éliminer les fibres courtes et les déchets de bois (qui constituent les étoupes de teillage) pour ne récupérer que les faisceaux fibreux.

### I.3.d. Peignage

Le peignage permet de dénouer et d'aligner les faisceaux, de retirer les fibres courtes restantes et de diviser les faisceaux en fibres techniques afin d'obtenir un ruban continu (Fig. 1 - 11b). Cette étape permet une meilleure imprégnation des fibres lors de la mise en œuvre des composites [49] mais accroît notablement la fréquence et la taille des défauts des fibres [50].



(a)



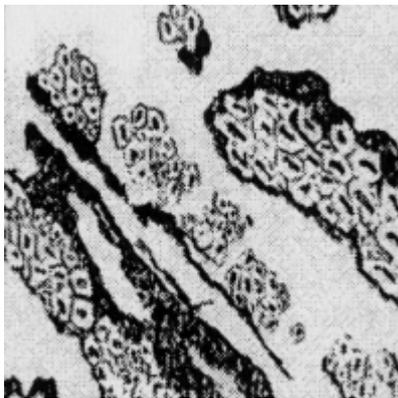
(b)

Fig. 1 - 11. Photographies de tiges de lin rouies sous forme de balle (a) et de mèches de lin prélevées en sortie de peignage (b) [39]

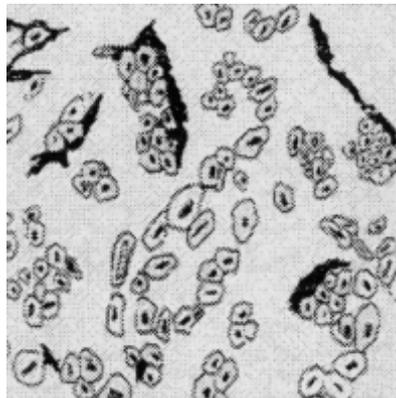
### I.3.e. Traitements finaux

Enfin, des traitements chimiques (permettant par exemple de teindre les fibres) ou enzymatiques (pour diviser encore les fibres techniques du ruban en fibres élémentaires) peuvent être appliqués à ce ruban avant qu'il ne soit envoyé à la filature.

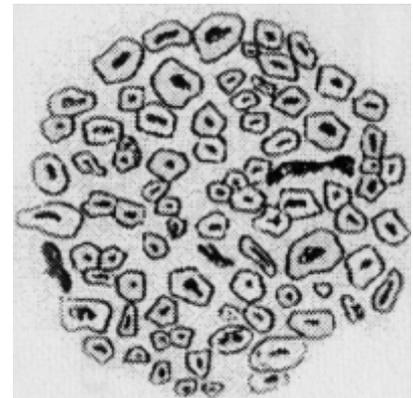
L'évolution de la morphologie des fibres techniques au cours de ces différents traitements est schématisée figure 1 - 12.



(a)



(b)



(c)

Fig. 1 - 12. Représentation schématique de la répartition spatiale des fibres après teillage (a), peignage (b) et filature (c) [51]

## II. Caractérisation de la fibre de lin

### II.1. Composition biochimique

La composition biochimique des fibres de lin, déterminée par différents auteurs, est résumée dans le tableau 1 - 2.

cellulose	hémicelluloses	pectines	lignine	eau	cires	autre	référence
64	17	2	2	10	1,5	3,5	[12]
65	16	3	2,5	8	1,5	4	[52]
67	11	-	2	-	-	20	[13]
68	10-15	2-5	3-5	10	1-2	0,5	[10]
71	10	-	3	9	2	5	[53]
71	21	-	2	-	-	6	[54]
74	14	-	3	8	-	1	[55]

Tableau 1 - 2. Fractions massiques des constituants d'une fibre de lin.

La quantité de chaque constituant d'une fibre de lin dépend notamment de la variété considérée, de la qualité du sol où a été cultivée la plante, des conditions climatiques qu'elle a subies durant sa croissance, de son niveau de maturité, de la qualité du procédé de rouissage, des conditions de mesure des propriétés (humidité, température), etc. Tous ces paramètres expliquent les grandes différences entre les valeurs relevées dans la littérature [2,56].

Une description plus détaillée de la composition biochimique d'une fibre de lin est donnée dans la review de Morvan *et al.* [57], et quelques méthodes de quantification de chaque constituant peuvent être trouvées dans [3,58,59]. Il faut noter que les fractions massiques des constituants sont mesurées à partir d'un paquet de fibres de plusieurs grammes, et non d'une fibre élémentaire de quelques microgrammes. Ceci peut aussi expliquer les larges intervalles de teneurs en polymères observés dans le tableau 1 - 2.

#### II.1.a. Cellulose

Le principal constituant de la fibre de lin, la cellulose, est une chaîne polymérique linéaire composée d'unités d'anhydroglucose (monomère de formule  $C_6H_{10}O_5$ ) liées par des liaisons

$\beta$ -1,4 glucosidiques (Fig. 1 - 13) [38] ; son degré de polymérisation est d'environ 8000 [60,61]. Son taux de cristallinité élevé (de l'ordre de 60-65% [62,63]) ainsi qu'un agencement supramoléculaire hélicoïdal très ordonné de sa structure cristalline [64] confèrent à la cellulose une rigidité importante, avec un module d'élasticité particulièrement élevé pour un polymère (estimé à 137 GPa, [65]).

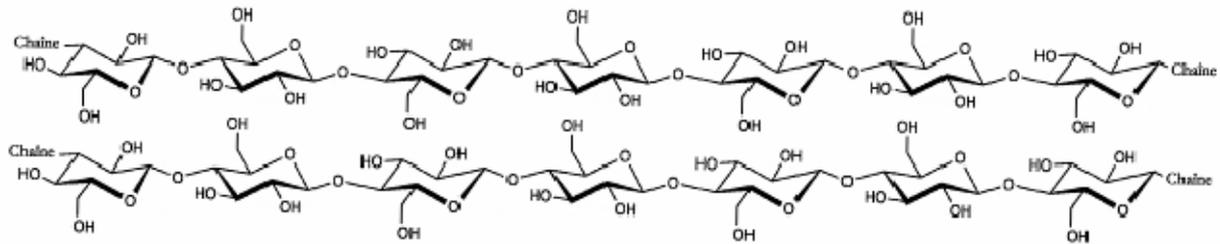


Fig. 1 - 13. Structure moléculaire de la cellulose : mise en évidence de la structure linéaire et des possibilités de liaisons hydrogène inter-chaînes

### II.1.b. Hémicelluloses

Les hémicelluloses regroupent un ensemble de polysaccharides, tels que le glucomannane, le xylane et le xyloglucane, dont le degré de polymérisation est compris entre 100 et 800 [24]. Ce sont des polymères non linéaires très hydrophiles, responsables de l'absorption d'eau [66,67]. Leur module d'élasticité varie significativement en fonction de l'humidité relative : de 8 GPa sous atmosphère sèche, il peut chuter jusqu'à 0,01 GPa quand le taux d'humidité approche la saturation [68]. Les hémicelluloses sont fortement liées aux molécules de cellulose [19] et constituent l'interphase entre le ciment pectique et les microfibrilles. Elles peuvent être extraites de la fibre grâce à des alcalis.

### II.1.c. Pectines

Les pectines présentes dans la fibre de lin sont des hétéropolysaccharides riches en acide galacturonique [12] ; ce sont principalement des rhamnogalacturonanes, des homogalacturonanes et des galactanes [19,50,57,69-74] dont les molécules peuvent être reliées entre elles par des ions calcium. Les pectines assurent la cohésion du faisceau ; elles sont présentes notamment dans les jonctions entre cellules et dans la paroi primaire [3,72,73,75]. Elles contrôlent la porosité des parois et la croissance de la plante, car le ralentissement de l'élongation de la plante correspond à une abondance de pectines acides [43,76]. Les pectines peuvent être extraites de la plante selon une méthode chimique (à l'eau bouillante ou à l'EDTA [3,77]) ou selon une méthode enzymatique (grâce par exemple à l'endopectate lyase [78] ou la pectine méthylestérase).

### II.1.d. Lignine

Par rapport aux autres fibres végétales, la lignine n'est présente qu'en faible proportion dans la fibre de lin. Elle apparaît surtout à la fin de la croissance des fibres dans la lamelle mitoyenne et est composée principalement de guaiacycle [57,79-81]. Elle forme une sorte de joint autour de la fibre, lui permettant de rester hydratée et de réduire son hydrophilie [82]. Elle joue peut-être aussi un rôle dans la cohésion du faisceau et conditionnerait l'efficacité de la séparation des éléments fibreux par rouissage [27]. Sa teneur peut être déterminée par la méthode de Klason, c'est-à-dire en pesant le résidu d'un traitement à l'acide sulfurique qui dissout la cellulose [83].

### II.1.e. Eau

L'eau représente environ 8 à 10 % de la masse d'une fibre de lin. L'eau absorbée est principalement liée aux groupes hydroxyles des pectines [19]. Elle se trouve donc à la fois à la surface de la fibre, ce qui implique que la teneur en eau soit liée au degré de rouissage de la plante, mais aussi au cœur de la fibre, dans la matrice pectique des parois.

### II.1.f. Comparaison avec d'autres fibres végétales

La fibre de lin se distingue des autres fibres végétales de par son fort taux massique de cellulose et sa faible teneur en lignine. Ces deux éléments contribuent à faire d'elle une fibre particulièrement rigide (voir § I.2.c) et facile à extraire des tiges. Le tableau 1 - 3 répertorie les fractions massiques des constituants de quelques fibres végétales. La difficulté à isoler et quantifier chacun des constituants, les différentes origines spatiales et variétales des fibres ainsi que la prise en compte ou non de la présence d'eau font que les intervalles de teneurs sont souvent larges.

fibre	cellulose	hémicelluloses	pectines	lignine	cire	eau
lin	64-74	10-20	2	2	1-2	8-10
jute	64-72	12-13	0,2	8-12	0,5	10
chanvre	67-75	16-18	0,8	3-4	0,7	10
ramie	69-76	13-17	2	0,6	0,3	8
coton	83 - 90	6	0-1	-	0,6	10
noix de coco	36-43	0,15-0,25	3-4	41-45	-	-

Tableau 1 - 3. Fractions massiques des constituants de différentes fibres végétales [12,67,84-89]

### II.1.g. Influence de la position des fibres dans la tige sur leur composition

De récentes études biochimiques menées sur des paquets de fibres provenant de deux variétés différentes (Hermès et Agatha) et dont la position originelle dans la tige était connue ont permis de montrer que des différences significatives de composition existaient entre les fibres prélevées au sommet, au milieu et au pied des tiges [90] (voir Annexe 1). La principale conclusion de ces études est que les fibres localisées au milieu des tiges possèdent des teneurs optimales à la fois en cellulose, l'élément renforçant des parois, et en polymères matriciels qui assurent la cohésion de l'ensemble ; autrement dit, ce sont ces fibres médianes qui présentent la meilleure organisation moléculaire, certainement due à de meilleures conditions climatiques lors de leur croissance que celles des fibres basales, et à un développement plus complet et abouti que les fibres apicales. Par contre, peu de différences significatives de composition ont été remarquées entre les fibres des variétés Hermès et Agatha.

## II.2. Propriétés physiques

### II.2.a. Densité

La densité des fibres végétales varie peu d'une espèce à une autre ; elle est de l'ordre de 1,5, avec des valeurs allant de 1,48 pour le chanvre et le jute, jusqu'à 1,56 pour la ramie [91-93]. D'après ces mêmes sources, la densité du lin vaut 1,54. A priori, c'est plutôt la méthode de mesure que la nature de la fibre elle-même qui entraîne des écarts dans les valeurs relevées dans la littérature. Il a été estimé que la porosité d'une fibre de lin était de l'ordre de 10%, et donc que sa densité « apparente » valait 1,38 [94].

### II.2.b. Dimensions

Les fibres de lin ont une longueur généralement comprise entre 5 et 80 mm avec une moyenne située autour de 30 mm. Leur diamètre peut atteindre plusieurs dizaines de microns, mais on considère communément que le diamètre moyen d'une fibre de lin vaut 20  $\mu\text{m}$ . Les différentes valeurs relevées dans la littérature sont présentées dans le tableau 1 - 4. Par comparaison avec d'autres fibres végétales (Tableau 1 - 5), les fibres de lin sont parmi les plus fines et les plus longues.

L (mm)	d ( $\mu\text{m}$ )	référence
4 - 77	5 - 76	[91]
30 - 80	8 - 21	[15]
9 - 70	5 - 38 (19)	[95]

Tableau 1 - 4. Données bibliographiques sur les dimensions d'une fibre de lin.

fibre	longueur (mm)		diamètre ( $\mu\text{m}$ )		L/d
	intervalle	moyenne	intervalle	moyenne	
lin	4 - 80	33	5 - 76	19	1500
jute	0,8 - 6	3	15 - 25	20	150
chanvre	5 - 55	25	10 - 51	25	1000
ramie	40 - 250	120	16 - 126	50	2400
coton	15 - 56	18	12 - 25	20	900
noix de coco	0,3 - 1	0,7	12 - 24	20	350

Tableau 1 - 5. Caractéristiques morphologiques de quelques fibres végétales (intervalles et moyennes) [67,91,95,96]

Les dimensions des fibres de lin leur confèrent un rapport longueur/diamètre élevé, de l'ordre de 1500. Ce rapport est capital lorsqu'il s'agit de fabriquer un composite unidirectionnel, car le renfort doit être le plus continu possible et la surface de contact entre la matrice et les fibres suffisante pour assurer le transfert de charge (cf. Chp 4).

### II.2.c. Influence de la position des fibres dans la tige sur leur morphologie

Il a déjà été montré que le positionnement des fibres dans la tige influait sur leurs caractéristiques morphologiques : une étude menée en 1992 par l'Institut Technique du Lin [97] indique que des écarts notables de longueur et de diamètre existent entre des fibres de la même tige prélevées dans différentes zones. Les fibres issues des 20 cm les plus bas de la tige sont les plus courtes et les plus grosses (4 dtex en moyenne), alors que celles des 20 cm apicaux sont les plus fines (1,8 dtex). Les fibres prélevées dans les 40 cm médians de la tige sont les plus longues de la tige et leur titre moyen vaut 2,3 dtex ; c'est dans cette zone qu'on trouve le plus grand nombre de fibres par section. Pour rappel, le décitex (dtex) est la masse (en g) d'un fil de 10 km de long

Ces caractéristiques morphologiques peuvent être reliées aux différents stades de croissance de la tige : les fibres de la partie basse de la tige se forment lorsque l'activité physiologique est la plus faible ; elles sont donc peu nombreuses, grossières, et contiennent peu de cellulose. D'un autre côté, la croissance des fibres du sommet est interrompue par l'arrivée à maturité de la tige, correspondant à la floraison, ce qui entraîne des longueurs et des diamètres assez faibles. L'optimum pour la qualité des fibres se situe entre ces deux zones, où les fibres sont à la fois longues, fines et pleines, car créées dans des conditions favorables à sa croissance. Cependant, les limites de cette zone peuvent varier en fonction de la variété et des conditions climatiques lors de la croissance de la tige.

### II.2.d. Angle microfibrillaire

Les fibres végétales se distinguent les unes des autres du point de vue de l'orientation des microfibrilles dans leurs parois. La fibre de lin, par exemple, possède des microfibrilles orientées majoritairement dans la paroi S2 à 10° de l'axe de la fibre (Fig. 1 - 14). Les angles microfibrillaires principaux (i.e. de la plus grosse paroi) de quelques fibres végétales sont donnés dans le tableau 1 - 6. On remarque dans ce tableau que cette désorientation est minimale pour les fibres de lin, de jute, de chanvre et de ramie. Les bonnes propriétés mécaniques de la fibre de lin peuvent s'expliquer en partie sur la base de cette organisation microfibrillaire (cf. § I.2.c).

fibre	angle microfibrillaire principal (°)	référence
lin	6 - 11	[4,15,26,96,98-102]
jute	7,5 - 8	[96,98,100]
chanvre	6 - 7,5	[96,98,100]
ramie	3 - 7,5	[96,98,100,103]
sisal	20 - 36	[96,98,100,104]
coton	1 - 45	[4,105,106]
noix de coco	40 - 45	[4,91,96,98,100]

Tableau 1 - 6 Angles microfibrillaires de quelques fibres végétales.

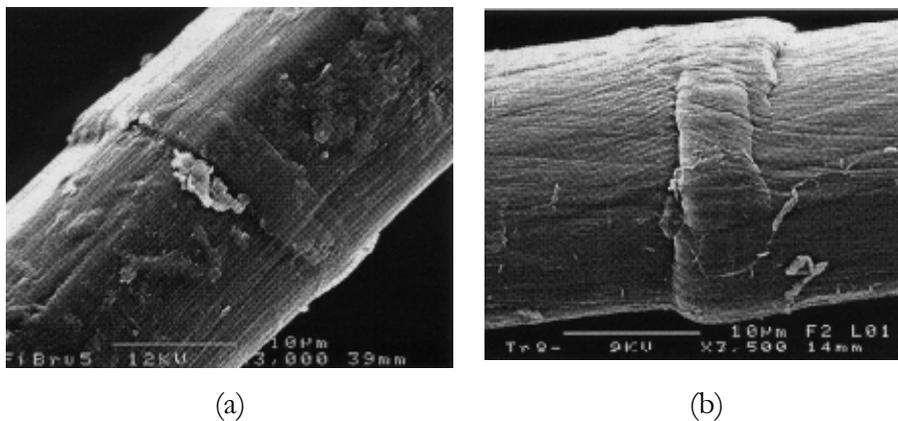


Fig. 1 - 14. Microscopie électronique d'une fibre de lin brute (a) ou traitée à l'acide formique (b) : mise en évidence de l'orientation des microfibrilles à environ 10° de l'axe de la fibre [107]

### II.2.e. Défauts

De nombreux défauts, souvent appelés genoux, nœuds, bandes ou dislocations, sont présents à la surface et dans le volume d'une fibre de lin (Fig. 1 - 14b et Fig. 1 - 15). Certains d'entre eux sont produits irréversiblement pendant la croissance de la plante, ce qui explique qu'ils apparaissent souvent à la même hauteur sur différentes fibres d'un même faisceau (Fig. 1 - 16a). Le procédé de décortication peut engendrer également des défauts, du fait du relâchement des forces de compression lors de la séparation des fibres [66,108]. Ils peuvent aussi être créés par flexion ou par compression (Fig. 1 - 16b). D'autres enfin correspondraient à des plans de glissement ou à des défauts micro-compressifs [109], ou encore à des changements d'orientation des microfibrilles [110].

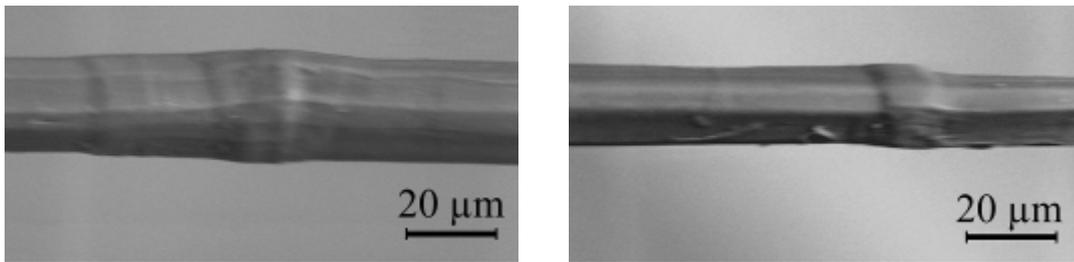


Fig. 1 - 15. Micrographies électroniques de défauts superficiels (genoux).

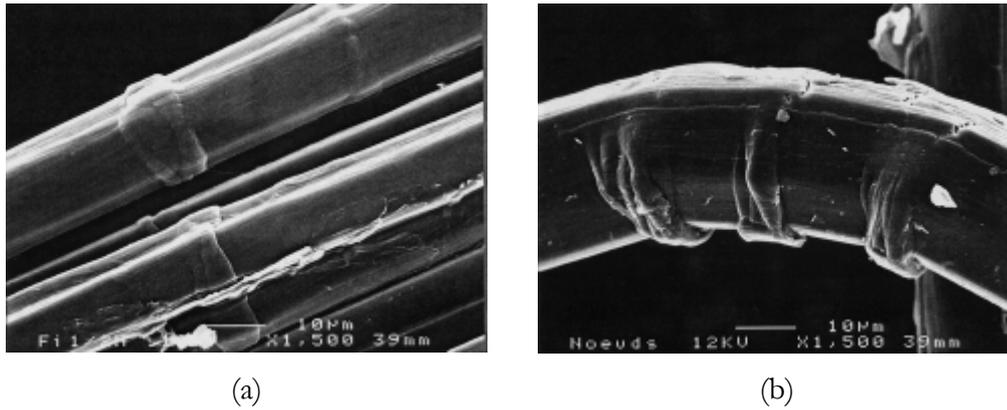


Fig. 1 - 16. Micrographies électroniques de fibres présentant des défauts dans la même zone (a) et d'une fibre sur laquelle des défauts sont créés par flexion sur la face en compression (b) [111]

Ces défauts sont répartis de manière hétérogène sur la longueur d'une fibre et sont rassemblés par groupes de 1 à 15 ; la longueur moyenne entre deux défauts est d'environ  $100 \mu\text{m} \pm 40 \mu\text{m}$ , sans aucune corrélation avec le diamètre de la fibre [111,112]. En tant que points de faiblesse de la fibre, ils jouent un rôle important dans la résistance mécanique et la localisation de la rupture.

## II.3. Propriétés mécaniques

### II.3.a. Propriétés mécaniques en traction

Comme expliqué précédemment, l'intérêt porté aux fibres de lin a pour origine leurs bonnes propriétés mécaniques, dues en partie aux nombreuses liaisons hydrogène qui s'établissent le long et entre les chaînes cellulosiques [64]. La géométrie de la fibre de lin (notamment son faible diamètre) fait que les essais mécaniques sont souvent délicats à mettre en place. La plupart des résultats mécaniques provient d'essais de traction réalisés avec une cellule de faible charge (de quelques newtons) et des mors adaptés. Les vitesses de déformation sont souvent de l'ordre du mm/min et la longueur libre de fibre vaut généralement 10 mm. De plus, il faut distinguer les essais réalisés sur des fibres unitaires (ou élémentaires) de ceux effectués sur des fibres techniques, qui sont en fait des parties de faisceaux dont la décortication n'a pas été poussée jusqu'à la fibre unitaire. Ce dernier cas est détaillé dans le chapitre 4 et seules les propriétés mécaniques des fibres élémentaires apparaissent ici.

Une courbe typique charge-déplacement d'une fibre de lin soumise à un essai de traction est donnée dans la figure suivante [2]. A partir de cette courbe on peut reporter la contrainte en fonction de la déformation, ce qui permet de calculer la contrainte à la rupture  $\sigma_r$ , la déformation à rupture  $\epsilon_r$  et le module d'élasticité E. Le tableau 1 - 7 répertorie quelques-unes de ces propriétés issues d'essais de traction et permet de constater la large gamme de valeurs obtenues.

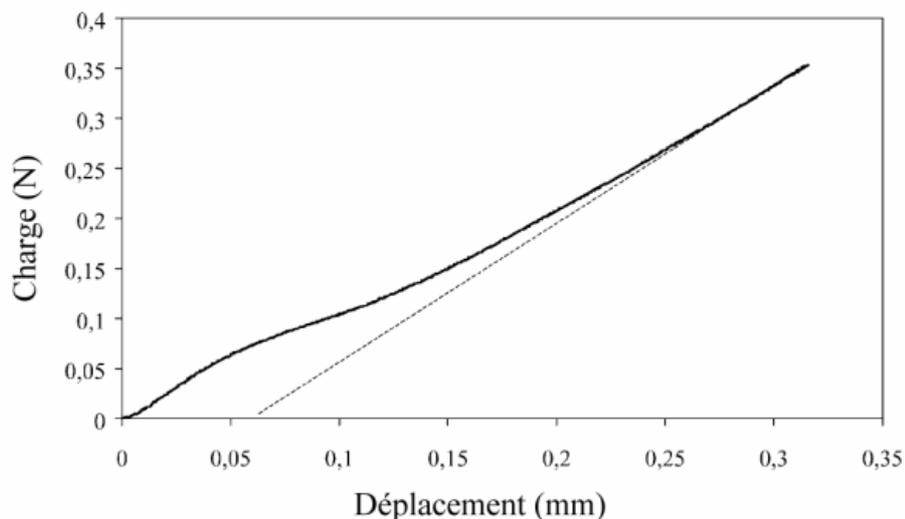


Fig. 1 - 17. Courbe typique charge-déplacement d'un essai de traction sur une fibre de lin [2]

$\sigma_r$ (MPa)	$\epsilon_r$ (%)	E (GPa)	référence
345 - 1035	2,7 – 3,2	28	[113]
600 - 2000	1 - 4	12 - 85	[2,12,66,114,115]
600 - 1100	1,5 - 2,4	45 - 100	[116]
900	1,8	50	[117]
600 - 1500	1,4	50 - 80	[118]
800 - 1500	1,2 - 1,6	60 - 80	[119,120]

Tableau 1 - 7. Propriétés mécaniques d'une fibre de lin : données bibliographiques.

### II.3.b. Propriétés mécaniques en compression

Les propriétés en compression d'une fibre de lin ont pu être estimées grâce au test de la boucle élastique [101] (Fig. 1 - 18). Ce test, développé en 1950, consiste à faire une boucle avec une fibre de lin, à tirer sur ses extrémités et à suivre l'évolution de la taille de la boucle ; dès que le rapport hauteur/largeur de la boucle n'est plus constant (environ égal à 1,34), des endommagements apparaissent en haut de la boucle (sur la zone externe en traction et sur la zone interne en compression), conduisant à la rupture de la fibre. La contrainte de rupture en compression ainsi déterminée à partir d'une dizaine d'essais vaut  $1200 \text{ MPa} \pm 370 \text{ MPa}$ , à comparer aux 600 MPa obtenus à partir du même test sur des fibres d'aramide et aux 60 MPa obtenus pour des fibres de polyéthylène haute performance [121].

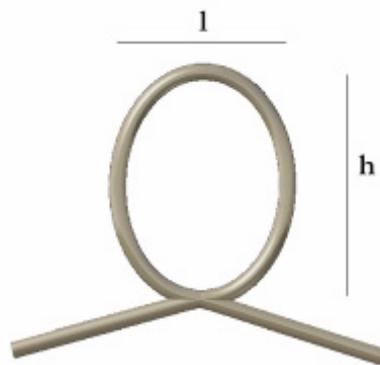


Fig. 1 - 18. Schéma du test de la boucle

### II.3.c. Propriétés mécaniques des composants de la fibre

Comme toute fibre végétale, la fibre de lin peut être assimilée à un composite dont les microfibrilles de cellulose sont les éléments renforçants et les polymères pectiques la matrice

incrustante. Schématiquement, les hémicelluloses jouent le rôle d'interphase entre les fibrilles et les pectines. A partir des modules d'élasticité et des fractions massiques moyennes de chacun des constituants (cf. Tableau 1 - 2), il est possible, par une simple loi des mélanges et parce que les masses volumiques de chaque constituant sont à peu près identiques, d'estimer le module de la fibre de lin [2] par :

$$E_{\text{fibre}} = \sum_{i \text{ constituants}} x_i E_i \quad \text{Eq. 1 - 1}$$

où  $E_i$  est le module de la phase  $i$  et  $x_i$  sa fraction massique.

	cellulose	hemicelluloses	lignine	pectines	autre (eau, ...)
$E_i$ (GPa)	137	8	4	?	0
$x_i$ (%)	69	15	4	2	12

Tableau 1 - 8. Propriétés mécaniques [65,68] et fractions massiques des constituants des parois des fibres

Le fait que le module des pectines soit inconnu n'empêche pas de calculer le module de la fibre, car leur proportion est faible. L'équation 1 - 1 conduit à un module d'élasticité pour la fibre d'environ 96 GPa, ce qui correspond à la limite supérieure de l'intervalle de module fréquemment donné pour la fibre de lin (cf. Tableau 1 - 7). Ces données confirment que le constituant principalement responsable du fort module d'élasticité de la fibre de lin est la cellulose [122].

### II.3.d. Dispersion des résultats

La forte dispersion des propriétés mécaniques des fibres de lin (cf. Tableau 1 - 7) a plusieurs explications. Tout d'abord, comme il s'agit de matériaux naturels, leur variété, leur mode de culture, le climat lors de leur croissance, etc... influencent déjà fortement leurs propriétés « intrinsèques », telles que leur composition chimique (teneur en cellulose, degré de cristallinité...) ou leur structure (angle microfibrillaire, forme des sections, taille des lumens...) qui conditionnent à leur tour leur comportement mécanique [2,6,88,112,123,124].

Ensuite, en fonction des traitements mécaniques infligés aux tiges après leur maturité (rouissage, teillage, peignage...), des défauts peuvent apparaître sur les fibres ; leur nombre, leur répartition et leurs dimensions vont alors affecter (souvent négativement) la résistance mécanique des fibres [117,124,125]. Il est d'autant plus délicat d'estimer l'impact des défauts sur les propriétés mécaniques des fibres qu'ils peuvent être dans le volume de la fibre et n'affectent pas automatiquement la paroi primaire externe [101].

Ceci explique que les propriétés mécaniques « moyennes » des fibres végétales présentent de forts écarts-types (parfois de l'ordre de 50%) et justifie les traitements statistiques appliqués aux résultats des essais mécaniques, par exemple grâce à une distribution de Weibull [126-129]

### II.3.e. Facteurs influençant les propriétés mécaniques

#### *Influence du lumen au centre de la fibre*

Certains auteurs [2,123,130] ont remarqué que le module d'Young et la contrainte à rupture d'une fibre végétale sollicitée en tension diminuaient quand le diamètre de la fibre augmentait, pour une longueur libre de fibre donnée (Fig. 1 - 19). Une hypothèse avancée pour expliquer ce phénomène est la présence du lumen, le plus souvent négligé et dont le diamètre réel est généralement ignoré ; en effet, quand le diamètre du lumen est important par rapport à celui de la fibre, la section réelle des parois de la fibre est plus faible, ce qui conduit à une sous-estimation des propriétés. Par exemple, il a été estimé que, lors d'un test de traction, quand le diamètre extérieur de la fibre augmentait de 11%, son module d'Young diminuait de 20%, son allongement à rupture augmentait de 14% et sa contrainte à rupture diminuait de 12% [131].

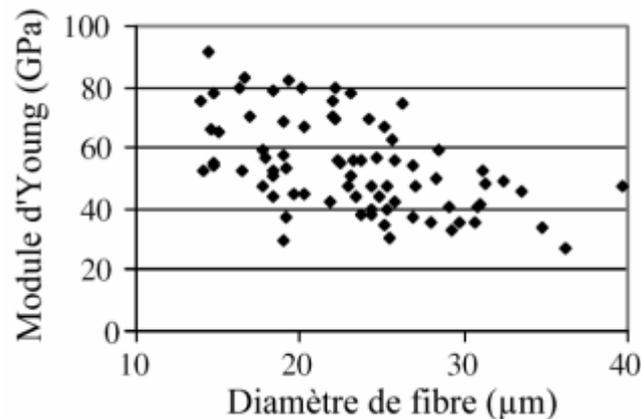


Fig. 1 - 19. Mise en évidence de la diminution du module d'Young quand le diamètre des fibres augmente [2]

#### *Influence de l'eau et de la température*

L'eau influence également les propriétés mécaniques des fibres végétales. Dès 1963, il était établi que la rigidité d'une fibre diminuait avec l'absorption d'eau [4]. Ceci a été confirmé par Davies et Bruce [66] qui ont estimé que la chute du module lors de l'augmentation de l'humidité relative

valait environ 0,4 GPa/%<sub>RH</sub>. En effet, l'eau absorbée s'infiltré dans les pores et les régions amorphes des fibres ; l'eau réduit alors la cohésion entre les microfibrilles et agit comme un plastifiant [2,19,127] en transformant la matrice pectique (initialement très fragile) en un gel presque fluide [50]. Par contre, comme l'absorption d'eau n'a que peu d'effet sur la cellulose et l'hémicellulose, la rigidité des régions cristallines n'est pas affectée par une augmentation d'humidité [4,65]. L'adsorption d'eau étant directement liée aux pectines, le degré de rouissage influencera significativement l'hydrophilie d'une fibre. La forte sensibilité de la fibre vis-à-vis de l'humidité fait qu'une absorption ou un étuvage entraînera donc toujours des problèmes de gonflement ou de redistribution des microporosités.

Cependant, un traitement de type autoclave appliqué à des fibres de lin (30 min à 160°C suivi d'une post-cuisson à 150°C pendant 2h [124]) a permis de les rendre légèrement plus hydrophobes. Cela a conduit non seulement à une meilleure séparation des fibres les unes des autres, mais aussi à une limitation de leur réabsorption en eau sous atmosphère normale, entraînant ainsi une augmentation de leur contrainte à la rupture moyenne (de 760 à 913 MPa sous une humidité relative de 66%) et une diminution de la dispersion de cette propriété (écart-types diminués d'environ 50%). L'influence de ce traitement sur les propriétés mécaniques ne doit cependant pas être sans conséquence.

Enfin, l'humidité provoque la formation de champignons à la surface de la fibre après seulement 3 jours d'exposition, ce qui dégrade la fibre et diminue ses propriétés mécaniques [124]. D'après l'étude de Baley *et al.* [19], les propriétés d'une fibre séchée sont toujours inférieures à celles d'une fibre brute ; même quand la fibre séchée a récupéré sa teneur en eau, elle ne recouvre pas ses propriétés initiales. Cela peut s'expliquer par la création d'endommagements lors du séchage et par des redistributions spatiales des composés chimiques une fois réexposés à une humidité atmosphérique.

Ces deux derniers points apparaissent contradictoires, alors qu'en fait ils indiquent qu'il existe un optimum dans la teneur en eau de la fibre, qui est celle de son état naturel (de l'ordre de 10%).

Suivant les mêmes raisonnements, l'augmentation de la température a pour effet de diminuer les propriétés mécaniques des fibres, d'une part parce que l'eau de la fibre se vaporise, ce qui réduit la cohésion de sa structure, d'autre part parce que des déformations thermiques apparaissent et créent des fissures et des endommagements irréversibles [19]. Van de Velde et Kiekens [117] ont estimé que la perte d'eau commençait à 60°C ; à 120°C, toute l'eau avait disparu et les cires superficielles se dégradaient ; la décomposition des pectines commençait vers 180°C alors que celle des hémicelluloses et de la cellulose n'avait pas lieu avant 230°C. La faible résistance à la température

des fibres de lin engendre des difficultés de mise en œuvre lorsque l'on veut réaliser des composites à matrice organique.

### *Autres facteurs*

Le mode d'extraction des fibres peut également affecter les propriétés mécaniques (§ I.3.d) : l'extraction manuelle permet de limiter l'introduction de défauts et donc d'augmenter les valeurs de contrainte à la rupture, par rapport au décorticage standard des tiges [101]. D'autres paramètres relatifs aux essais eux-mêmes, tels que la vitesse de déformation, la méthode de mesure de la section, la longueur libre de fibre testée ou encore le mode d'attache dans les mors influencent les propriétés mécaniques des fibres de lin [2,132]. C'est pourquoi les conditions opératoires des essais de traction doivent chaque fois être correctement relevées et certaines d'entre elles éventuellement fixées.

### II.3.f. Mode de déformation d'une fibre de lin

Par opposition aux fibres de verre qui ont un comportement élastique, les fibres de lin ont un comportement typiquement viscoélastique [133] même si, au-delà d'un certain seuil, elles présentent un comportement hookéen [2] (cf. Fig. 1 - 17). Depuis les années 40, des modèles permettant de décrire la déformation d'une fibre en traction ont été proposés. Bossuyt parlait déjà en 1941 d'une réorientation des microfibrilles suivant l'axe de traction suivie d'un glissement des microfibrilles les unes par rapport aux autres. Hearle [4] précise cette description (Fig. 1 - 20a) : il propose que la déformation d'une fibre commence par une augmentation de la longueur des fibrilles et des régions non-cristallines entre elles, suivie par un déroulement des microfibrilles, comme une hélice, faisant intervenir flexion et torsion des microfibrilles, en même temps qu'une réduction de volume des fibrilles, de la matrice interfibrillaire non-cristalline et des espaces vides ; cette réorganisation est supposée être proportionnelle à la déformation de la fibre. S'ensuit alors un cisaillement des régions non-cristallines pour se conformer à la nouvelle configuration de la structure fibrillaire. Une fois cette nouvelle configuration atteinte, l'enchevêtrement des chaînes de polymères, l'apparition de fissures, la délamination de la fibre, ... entraînent inévitablement la rupture de la fibre [2]. D'après Baley [2], cette réorganisation structurale, entraînant (entre autres) une modification de l'angle microfibrillaire, serait la principale responsable de l'évolution de la rigidité d'une fibre de lin.

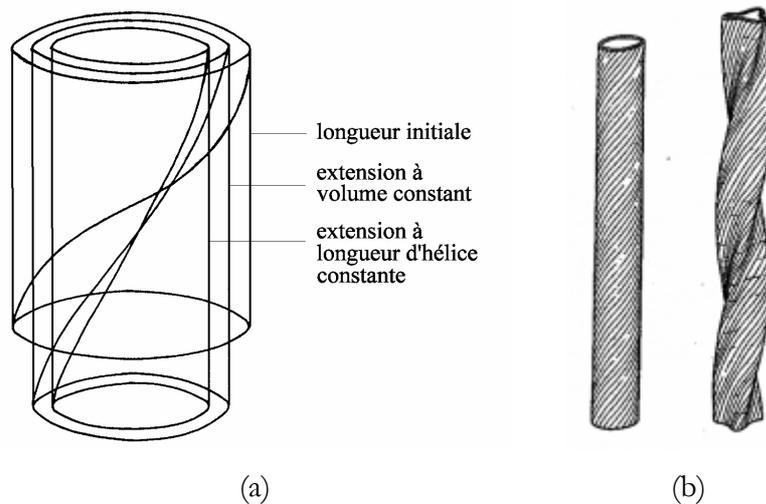


Fig. 1 - 20. Schémas de déformation d'une fibre : extension des microfibrilles (a) [4] et torsion des parois cellulaires (b) [134]

Des essais de fatigue à charge maximale constante sur des fibres de lin [112] ou de bois [135] (Fig. 1 - 21) ont confirmé l'augmentation de la rigidité à chaque cycle, et validé l'hypothèse de réorientation des microfibrilles ; en effet, la non-linéarité fréquemment observée au début d'une courbe typique de contrainte-déformation disparaît dès le deuxième cycle, indiquant une réorganisation irréversible de la structure. De plus, ces essais ont permis de constater que la déformation des fibres était élasto-visco-plastique du fait de l'hystérésis de la courbe contrainte-déformation.

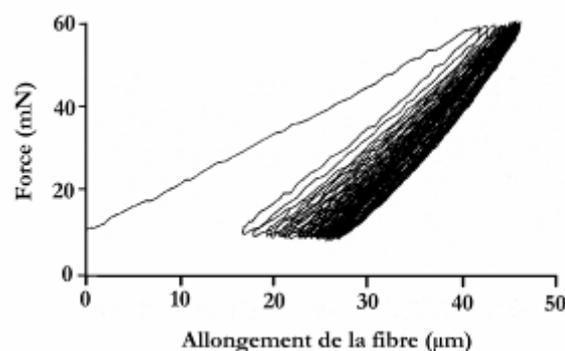


Fig. 1 - 21. Courbe force-allongement cyclique typique d'une fibre de bois [135]

Un autre phénomène pouvant expliquer la non-linéarité de la courbe de comportement a été proposé par Page *et al.* [134] : il s'agit de la torsion des parois cellulaires, qui serait provoquée par les contraintes de cisaillement induites lors d'un essai de traction (Fig. 1 - 20b). La contrainte

correspondant au point d'inflexion de la courbe dépendrait notamment des propriétés élastiques des parois, de l'angle microfibrillaire et de l'épaisseur des parois.

Enfin, Nilsson et Gustafsson [17] ont proposé que la non-linéarité de la courbe contrainte-déformation pouvait être due à des mouvements de dislocations supposées être créées par la torsion de la fibre lors de sa croissance et intervenir le long des microfibrilles. Cette déformation plastique provoquerait, au-delà d'un seuil d'écoulement de ces polysaccharides, des réorganisations locales de la fibre responsables de l'augmentation de sa rigidité en cours d'essai.

### II.3.g. Mode de rupture d'une fibre de lin

D'une manière générale, la rupture des fibres végétales en traction est contrôlée principalement par la teneur en cellulose et par l'angle microfibrillaire [136-138]. Dans le cas du lin, la matrice pecto-hémicellulosique entourant les microfibrilles doit être suffisamment faible (mécaniquement parlant) pour dévier les fissures le long des fibrilles mais aussi suffisamment résistante pour pouvoir transmettre la charge d'une fibrille à une autre : la résistance optimum de la matrice végétale est donc un compromis entre le transfert de contrainte et la déviation des fissures [50]. La rupture peut se produire soit par l'éclatement de la matrice (ce qui permet alors aux fibrilles de glisser), soit par l'initiation de fissures qui traversent les fibrilles (quand la matrice est fragile).

A partir d'essais de compression, Bos et Donald [25] ont déduit que les deux parois de la fibre de lin ne se cassaient pas de la même façon du fait de leurs différences de composition chimique et de morphologie : alors que la paroi primaire se fracturerait d'une manière fragile dans la zone en tension, la rupture de la paroi secondaire, beaucoup plus cristalline et orientée, serait plutôt de nature plastique [127] et s'initierait dans la direction latérale à partir de regroupement de fissures.

### II.3.h. Comparaison avec les propriétés mécaniques d'autres fibres

Le tableau 1 - 9 regroupe différentes valeurs de propriétés mécaniques de fibres végétales et de fibres synthétiques relevées dans la littérature. A partir de ce tableau, on constate tout d'abord que la fibre de lin se situe parmi les fibres végétales les plus résistantes (au même niveau que les fibres de chanvre et d'ortie) avec un module d'élasticité d'environ 50 GPa et une contrainte à la rupture généralement supérieure à 1000 MPa. Par contre, son allongement à la rupture est particulièrement faible, comme dans le cas des fibres de jute, de ramie et de chanvre, qui ont des angles microfibrillaires comparables à celui des fibres de lin. Il semble que les fibres présentant des microfibrilles très obliques (comme celles du coton ou de la noix de coco) soient les moins résistantes et les moins rigides, mais les plus déformables.

Par rapport aux fibres synthétiques, les fibres de lin, même si elles n'atteignent pas le niveau de rigidité ou de résistance des fibres de Kevlar, d'aramide et de graphite, peuvent tout de même être comparées en terme de propriétés mécaniques à celles des fibres de verre, surtout s'il s'agit d'estimer les propriétés spécifiques (Fig. 1 - 22).

		$\sigma_r$ (MPa)	$\epsilon_r$ (%)	E (GPa)	$\rho$ (g.cm <sup>-3</sup> )	référence
végétales	lin	400 - 2000	1,2 - 3	30 - 110	1,5	[100,117,118,131,139,142]
	lin (faisceau)	600 - 700		50 - 60	1,5	[140]
	coton	300 - 600	7 - 8	6 - 13	1,5	[100]
	sisal	600 - 700	2 - 3	28 - 38	1,3	[100,117]
	noix de coco	220	15 - 25	6	1.3	[100]
	jute	400 - 800	1,8	10 - 30	1,5	[100]
	ramie	550	2	44	1,5	[100]
	chanvre	550 - 1100	1,6 – 1,8	60 - 70	1,5	[100,117]
	ortie	370 - 2200	1,3 – 2,9	25 - 105	1,5	[66,130]
synthétiques	verre-E	2300 - 2500	3,2 – 3,5	72 - 74	2,5	[117,118,131,141]
	Kevlar 49	2900	2,3	130	1,5	[141]
	aramide	3620	2,9	124	1,4	[100]
	carbone	2500 - 3200	0,6 - 1,3	230 - 390	1,8	[141]

Tableau 1 - 9. Propriétés mécaniques et masses volumiques de quelques fibres végétales et synthétiques

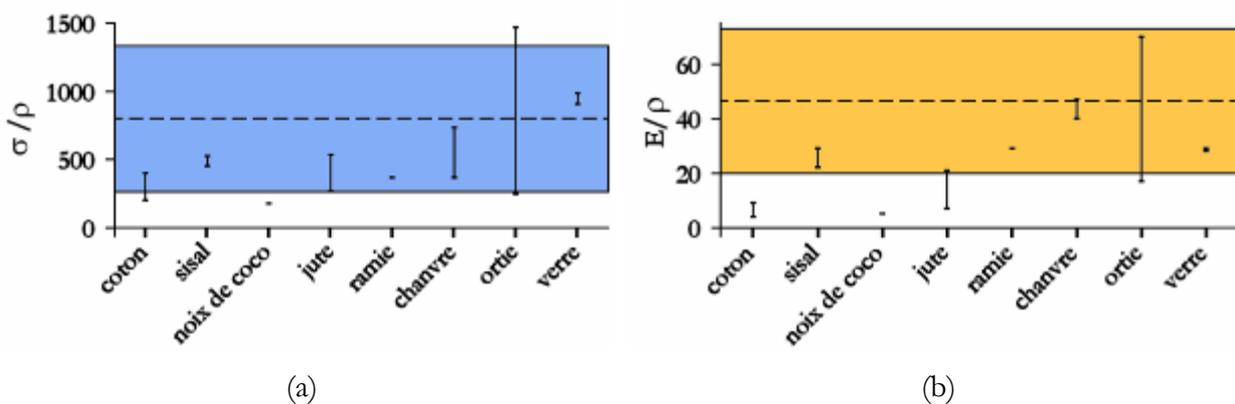


Fig. 1 - 22. Comparaison des propriétés mécaniques spécifiques de différentes fibres (la zone colorée correspond aux propriétés spécifiques des fibres de lin) :  
contrainte à la rupture spécifique (a) et module spécifique (b)

A partir des graphes de comparaison des propriétés mécaniques spécifiques, il apparaît clairement que les fibres de lin ont des caractéristiques certes très dispersées mais nettement supérieures à celles des autres fibres naturelles (excepté les fibres d'ortie qui présentent à peu près les mêmes propriétés). Il faut remarquer que le module spécifique des fibres de verre est significativement inférieur à celui des fibres de lin, ce qui justifie pleinement l'intérêt porté à ces fibres végétales.

### III. Données économiques

Pour conclure, les prix moyens et les quantités produites en 2004 de plusieurs types de fibres sont présentées dans le tableau 1 - 10. Comme les prix dépendent surtout de la qualité des fibres (longueur, finesse, résistance, traitement...), ceci explique les forts écarts qui peuvent exister pour le même genre de fibres. Il ressort de ce tableau que les fibres de lin, dont le coût est comparable à celui des autres fibres végétales, ont également un avantage économique par rapport aux fibres synthétiques.

	Prix (€/kg)	Production en 2002 (10 <sup>3</sup> T/an)	ref
graphite	50 - 100	-	[141]
Kevlar 49	50	-	[141]
carbone	30	17	[100]
verre E	1,3 - 2	2200	[100,143]
lin	0,2 - 2	750	[100,101,144]
sisal	0,3	345	[100]
jute	0,3	3200	[100]
noix de coco	0,3	636	[100]
chanvre	1,4	78	[100]

Tableau 1 - 10. Comparaison des prix et des quantités produites de différents types de fibres

En termes de production, le lin est parmi les plantes les plus cultivées au monde. En 2005, la France a fourni 136 000 T de lin teillé aux industries (notamment textiles), ce qui la place au premier rang mondial dans ce domaine ; plus de 80 000 hectares sont consacrés à la production de lin (dont 60% en Normandie) [39]. Ces chiffres sont en constante progression dans toute l'Europe, ce qui laisse penser qu'une part croissante de cette production pourrait être destinée à l'industrie des composites.

---

## Conclusion

L'intérêt porté aux fibres de lin comme renfort dans des composites unidirectionnels à matrice organique, en remplacement notamment des fibres de verre, est motivé par plusieurs raisons. La première est environnementale et géographique. En effet, la fibre de lin est un matériau naturel dont la culture est relativement neutre vis-à-vis de l'environnement (cf. Introduction). En des temps où la préservation de la nature est censée prévaloir sur d'autres considérations (économiques par exemple), le lin semble pouvoir répondre à ces aspirations écologiques tout en fournissant des matériaux industrialisables compétitifs. De plus, c'est un produit largement cultivé en France, surtout dans le Nord et le Nord-Ouest. Il est donc possible de contrôler intégralement la chaîne de production de fibres longues et de diversifier ses débouchés (essentiellement textiles) vers le domaine des matériaux composites de structure.

Autre avantage de la fibre de lin, sa densité, estimée à environ 1,5, est significativement inférieure à celle des fibres de verre qui vaut 2,54. Ajoutée à de bonnes propriétés mécaniques, cette différence conduit à des propriétés spécifiques comparables en terme de contrainte à la rupture, voire même supérieures concernant le module d'élasticité (cf. Fig. 1 - 22), ce qui pourrait se répercuter sur les propriétés mécaniques des composites qui en découlent : les mêmes caractéristiques mécaniques pourraient être obtenues avec des composites à base de fibres de verre et avec des composites à base de fibres de lin, mais ces derniers auront une masse inférieure aux premiers, ce qui serait évidemment un avantage par exemple dans le domaine des transports, qu'ils soient automobiles ou aériens.

De plus, son grand rapport longueur/diamètre, estimé à 1 500 (cf. Tableau 1 - 5) vaut à la fibre de lin d'être envisageable comme renfort de composites unidirectionnels. En effet, dans de tels composites, la longueur du renfort lui confère une certaine continuité permettant de limiter la propagation des fissures perpendiculairement à son orientation principale et sa finesse lui permet d'optimiser la surface potentielle de transfert de charge avec la matrice. Peu de fibres végétales possèdent un facteur de forme aussi important.

Quant aux propriétés mécaniques de la fibre de lin, jugées bonnes en comparaison de celles d'autres fibres végétales, elles sont attribuées à la fois à son faible angle microfibrillaire (compris entre 6° et 11°) mais aussi à sa forte teneur en cellulose (comprise entre 64% et 74% en masse). En effet, la forte orientation de la majorité des microfibrilles présentes dans les parois cellulaires conduit à une faible déformation à la rupture et une forte rigidité dans le sens longitudinal. D'autre part,

L'importante proportion de cellulose (le matériau le plus rigide entrant dans la composition des fibres végétales) est en partie responsable des bonnes valeurs du module d'élasticité.

Cependant, les problèmes de dispersion des dimensions et des propriétés mécaniques ainsi que la présence d'eau et le manque d'informations sur la composition exacte d'une fibre unitaire ne permettent pas de modéliser aisément une fibre de lin. Les deux chapitres suivants ont pour objectifs de préciser la morphologie et le comportement en traction d'une fibre en fonction de plusieurs paramètres, de quantifier l'ampleur des dispersions géométriques et mécaniques, et enfin de relier différents aspects morphologiques et mécaniques entre eux afin de caractériser au mieux la fibre de lin.

## Chapitre 2

# Analyse morphologique de la fibre de lin

Plusieurs techniques et appareils d'observation (le microscope optique, le microscope électronique à balayage (MEB) et le microscope à faisceau d'ions focalisés (FIB)), ont été utilisés pour caractériser la morphologie d'une fibre de lin, aussi bien à partir de sections (§ I, II, IV) que suivant sa longueur (§ III). La première technique consiste à réaliser des sections de fibres de lin préalablement alignées et enrobées dans une matrice époxy. Le deuxième protocole suivi est la réalisation de coupes sériées de tiges de lin, qui permet d'identifier des faisceaux originels et même les fibres. L'étude longitudinale est accomplie au MEB sur des fibres unitaires. Quant au FIB, il permet de faire des observations plus fines au niveau des parois cellulaires de la fibre. Enfin, une synthèse des résultats est présentée à la fin de ce chapitre.

---

### I. Distribution des tailles des fibres à partir de leurs sections

L'objectif est de déterminer, à partir d'un plan de coupe, les caractéristiques morphologiques d'un échantillon de fibres de lin, notamment les tailles des cellules et de leur lumen. Pour cela, un protocole de préparation et d'analyse statistique de sections de fibres a été mis au point, pour permettre d'accéder à leur périmètre et leur surface. Les différents résultats sont présentés dans la suite et discutés en fonction de l'origine des fibres.

## I.1. Protocole

Les fibres de lin étudiées proviennent toutes de la variété Hermès cultivée en 2004, sans distinction de la position des fibres dans les tiges. Ce sont des fibres matures, rouies et teillées. Quinze mèches regroupant plusieurs dizaines de faisceaux et de fibres sont nouées à une extrémité puis coupées afin d'obtenir une longueur de fibres d'environ un centimètre. Elles sont d'abord plongées dans du paraformaldéhyde dissous à chaud puis maintenues à 4°C pendant 4 heures. Les mèches sont ensuite déshydratées dans des solutions d'éthanol de concentrations croissantes (bains successifs de 5 minutes dans des solutions allant de 10 % à 90 % volumique d'éthanol) puis plongées dans l'acétone pendant 30 minutes.

Les fibres sont enrobées dans une matrice afin de les rendre manipulables, puis les échantillons sont coupés transversalement au microtome et les sections obtenues observées au microscope optique. La matrice utilisée ici est une résine époxy à faible retrait, soluble dans l'acétone. Les mèches déshydratées sont trempées pendant au moins 4 heures dans des mélanges résine/acétone de concentrations croissantes en résine (25%, 50%, 75%) puis dans la résine pure pendant au moins 12 heures et enfin dans un bain 100% résine, contenant le catalyseur, pendant au moins 4 heures. Pour empêcher la matrice de polymériser, tous ces bains sont maintenus à une température de 4°C. Une fois les mèches bien imprégnées de résine, elles sont déposées dans des moules, recouvertes de résine et portées à 60 °C pendant 24 heures. La coupe des composites ainsi préparés se fait à l'aide d'un microtome, après avoir préalablement taillé la pointe de l'échantillon en pyramide de manière à obtenir une petite section de matrice regroupant un grand nombre de fibres pour limiter l'abrasion du couteau de diamant du microtome. Les sections des échantillons, d'épaisseur 20 µm, sont ensuite déposées sur des lames, teintées au bleu de toluidine, puis observées au microscope optique en lumière transmise. Quelques exemples d'images ainsi obtenues sont présentés figure 2 - 1.

Une analyse automatique de ces images n'est pas envisageable directement. En effet, leur traitement numérique par un programme d'analyse d'image nécessiterait un contraste suffisant entre la résine et les parois cellulaires d'une part et entre les parois cellulaires et le lumen d'autre part. Or, les limites des cellules et des lumens sont mal définies (traces de coupe dans la résine, étalement important des niveaux de gris...) et certaines traces de coupe dans les cellules ont des niveaux de gris voisins de ceux des lumens.

La colonne de gauche de la figure 2 - 2 illustre quelques difficultés rencontrées : (a) les traces dans la résine ont le même niveau de gris que les parois cellulaires, (b) le contour de la cellule n'est pas net et le lumen possède deux niveaux de gris très différents, (c) le lumen a la même couleur que la trace de coupe qui traverse la fibre. Pour remédier à ces problèmes nous avons dû décalquer, pour chaque fibre de lin, le contour précis de la cellule et celui de son lumen. Ces contours ont ensuite été numérisés (Fig. 2 - 2, deuxième colonne). Enfin, les cellules ont été reconstruites automatiquement à partir de leurs contours (Fig. 2 - 2, troisième colonne).

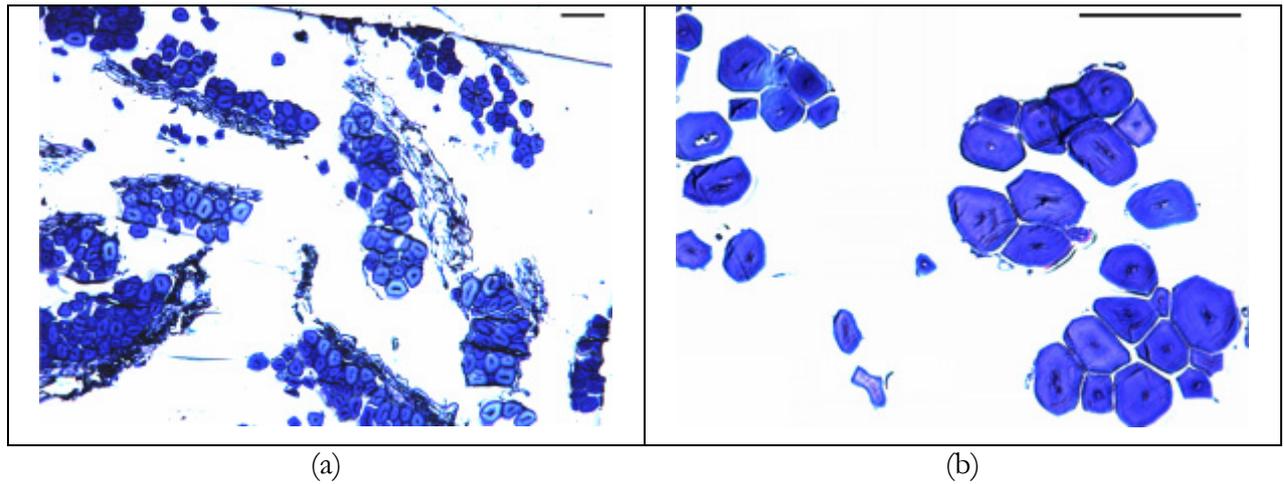


Fig. 2 - 1. Micrographies optiques de sections de fibres enrobées (x 10 (a) ou x 40 (b) ; (les barres indiquent 50 µm)

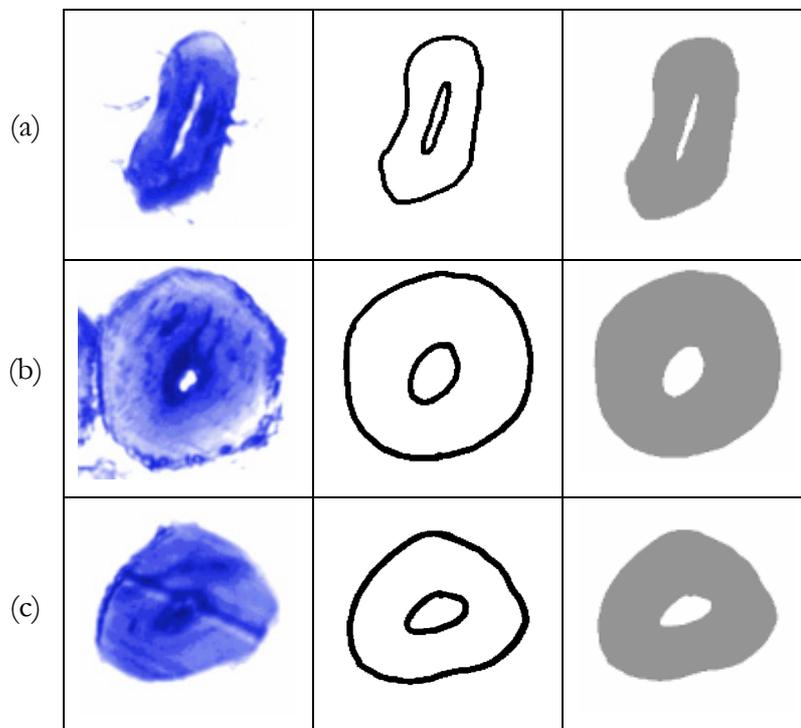


Fig. 2 - 2. Première colonne : micrographies optiques ; deuxième colonne : contours des fibres décalqués et numérisés ; troisième colonne : fibres reconstruites.

Après ce traitement, les images binaires des cellules sont désormais analysables à l'aide d'un programme informatique mis au point au laboratoire. Chaque cellule est reconstruite par dilatation géodésique [145] : en partant du premier point de la cellule accessible à partir d'un balayage de l'image, une suite de dilatations et d'intersections avec l'image initiale permet de reconstruire cette dernière. Toujours par dilatation géodésique, mais à partir des bords de l'image, on reconstruit l'ensemble {parois + lumen} afin de calculer la surface totale de la cellule et son périmètre. Enfin, une opération ensembliste « ou exclusif » entre cette image (cellule pleine) et l'image originelle (cellule avec lumen) permet d'obtenir le lumen dont on mesure également la surface et le périmètre. La différence entre la surface totale et la surface du lumen correspond à la surface des parois de la cellule.

## I.2. Résultats de l'analyse des sections

### I.2.a. Taille moyenne et distribution des diamètres de cellule et de lumen

A partir des résultats du programme d'analyse d'image, on calcule les valeurs réelles des surfaces, périmètres et diamètres équivalents des cellules et de leurs lumens. Au total, 822 fibres ont été analysées. Les valeurs moyennes obtenues pour cette population de fibres sont reportées dans le tableau 2 - 1.

	Surface ( $\mu\text{m}^2$ )	Périmètre ( $\mu\text{m}$ )	Diamètre équivalent ( $\mu\text{m}$ )
cellule	316 ( $\pm$ 182)	64 ( $\pm$ 19)	19,3 ( $\pm$ 5,5)
lumen	24 ( $\pm$ 24)	18 ( $\pm$ 9)	5,0 ( $\pm$ 2,2)
paroi	292 ( $\pm$ 165)		

Tableau 2 - 1. Dimensions moyennes des fibres de lin analysées.

Nous appelons ici « diamètre équivalent » le diamètre d'une fibre (ou d'un lumen) calculé en l'assimilant à un disque. Le diamètre équivalent moyen des cellules (19,3  $\mu\text{m}$ ) est en accord avec la littérature : de nombreux auteurs ont mesuré des diamètres moyens de fibres compris entre 10 et 30  $\mu\text{m}$  (cf. Chp 1 § I.1.c) [2,50,57,73,101].

Dans la réalité, les fibres de lin ne sont pas parfaitement circulaires mais ont plutôt une forme elliptique ou hexagonale [2,4]. A partir des données expérimentales (*i.e.* le périmètre P et la surface totale S des cellules), nous avons calculé un « facteur de forme » en utilisant la formule classique :

$$\frac{4\pi S}{P^2} \quad \text{Eq. 2 - 1}$$

Ce facteur vaut 1 pour une particule circulaire et tend vers 0 pour une particule très allongée. Le facteur de forme moyen obtenu pour les 822 fibres est 0,905 et cette valeur est presque identique à celle d'un hexagone régulier (0,907). On peut toutefois remarquer, d'après les figures précédentes, que, de manière générale, la forme des fibres est assez loin de la géométrie hexagonale. Par ailleurs, il faut noter la grande dispersion des valeurs, tant pour les surfaces que pour les périmètres ou les diamètres équivalents. Les distributions des tailles de cellule et de lumen (Fig. 2 - 3) permettent de visualiser cette forte dispersion des dimensions des fibres.

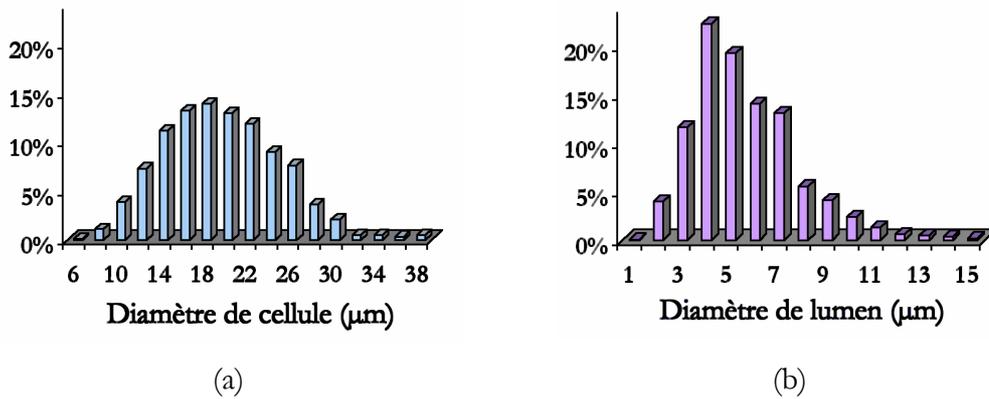


Fig. 2 - 3. Distribution des diamètres équivalents des cellules (a) et des lumens (b)

### I.2.b. Porosité

La porosité est ici définie comme le rapport entre la surface du lumen et la surface totale de la cellule ; elle ne prend donc pas en compte les micropores présents dans les parois cellulaires. D’après les résultats précédents, c’est un paramètre très dispersé qui vaut  $6,8 \% \pm 3,5 \%$  en moyenne. Cette valeur est en accord avec la littérature [94] qui indiquait que, pour une fibre de lin, le volume de pores (i.e. le lumen plus les pores présents dans les parois) valait environ 10%. La distribution des porosités (Fig. 2 - 4) indique que peu de fibres dépassent effectivement 15% de porosité.

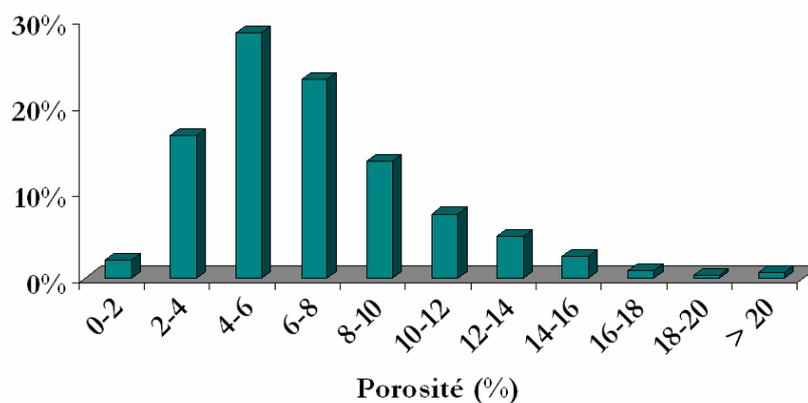


Fig. 2 - 4. Distribution des porosités des fibres étudiées

La question ici est de déterminer s’il existe une relation entre la taille du lumen et la taille de la cellule : si c’était le cas, alors la porosité pourrait être estimée uniquement à partir des dimensions extérieures de la fibre. Trois cas sont théoriquement envisageables : soit la taille du lumen est constante (et donc, indépendante de la taille de la cellule), soit la porosité est constante, soit il n’y a

aucune relation entre ces deux paramètres. Ceci est résumé dans la figure suivante, avec en plus l'hypothèse, souvent choisie pour les calculs des propriétés mécaniques, d'absence de lumen.

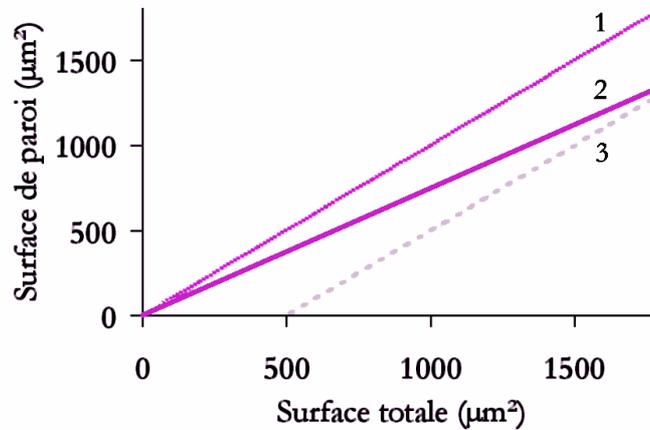


Fig. 2 - 5. Différentes possibilités de relations entre la surface de paroi et la surface totale :  
 1) absence de lumen ; 2) porosité constante ; 3) surface de lumen constante égale à  $500 \mu\text{m}^2$

Si on représente maintenant l'évolution de la surface de paroi en fonction de la surface totale d'une cellule, on obtient une droite avec un excellent coefficient de corrélation (Fig. 2 - 6). A priori, on peut donc en déduire que les deux surfaces sont proportionnelles et que la porosité qui en découle est constante et vaut environ 8% (la pente de la droite valant 0,919).

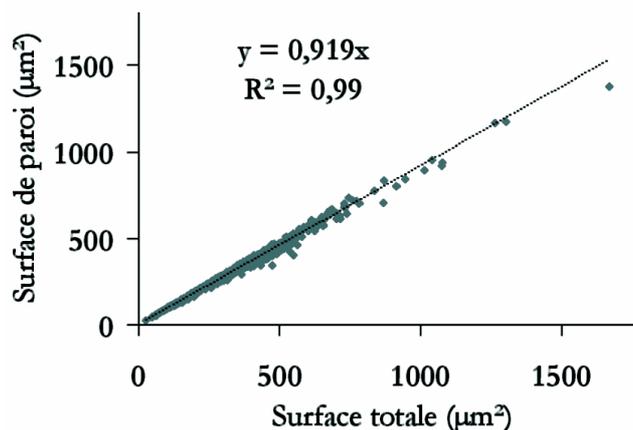


Fig. 2 - 6. Evolution de la surface de paroi en fonction de la surface totale de cellule.

Cependant, l'écart entre la porosité moyenne mesurée sur l'ensemble des cellules (6,8 %) et la porosité déduite de ce graphe (8,1 %) suffit à remettre en question l'hypothèse d'une porosité qui

n'évoluerait pas en fonction de la taille des cellules, d'autant plus que le graphe représentant la porosité en fonction de la surface de cellule est loin de corroborer cette tendance (Fig. 2 - 7).

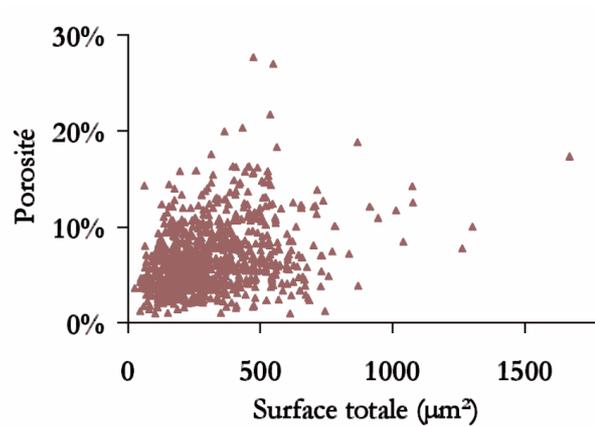


Fig. 2 - 7. Evolution de la porosité en fonction de la surface totale de cellule.

Il semblerait donc qu'il n'y ait pas de lien de proportionnalité entre la surface de lumen et la surface totale de la cellule. Pour la variété étudiée ici, c'est une relation de puissance qui représente le mieux la relation entre ces deux surfaces (Fig. 2 - 8). De manière à rendre la figure plus lisible, les surfaces de lumen ont été moyennées sur des intervalles de surface totale de cellule. Ceci ne modifie aucunement l'allure de la courbe car les intervalles sont suffisamment petits ( $50 \mu\text{m}^2$ ) ; il faut toutefois garder à l'esprit que les points correspondant à des petites surfaces représentent la majorité des cellules, contrairement aux plus grosses fibres qui ne sont qu'en faible nombre. Il apparaît bien que la porosité des cellules n'est pas indépendante de leur taille : les cellules les plus grosses ont une porosité supérieure à celle que l'on attendrait à partir d'une simple évolution linéaire de la surface de lumen.

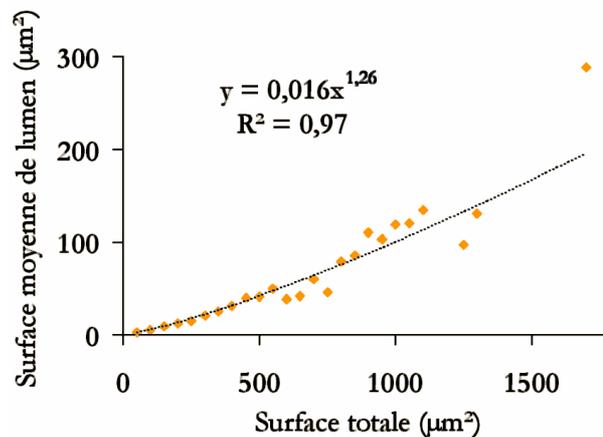


Fig. 2 - 8. Evolution de la surface de lumen en fonction de la surface totale de cellule.

### I.3. Influence de la position des fibres dans la tige et de la variété sur leur morphologie

Le même protocole a été appliqué à des fibres dont la position originelle dans la tige était connue. A partir de longues mèches orientées de fibres techniques issues du rouissage, du teillage et du peignage de tiges de la variété Hermès cultivées en 2002, des fibres ont été prélevées et traitées comme décrit précédemment, afin de déterminer les dimensions de chaque cellule et de leur lumen, ainsi que la porosité moyenne pour chaque zone de la tige. Les zones ont été préalablement définies comme suit : le sommet correspond aux 15 cm apicaux, le pied aux 15 cm basaux et le milieu à la zone centrale restante, d'une longueur d'environ 50 cm. Les fibres étudiées proviennent du milieu de chacune de ces trois zones. La figure 2 - 9 montre quelques sections de fibres, enrobées dans l'époxy, provenant du sommet, du milieu ou du pied de tiges de la variété Hermès.

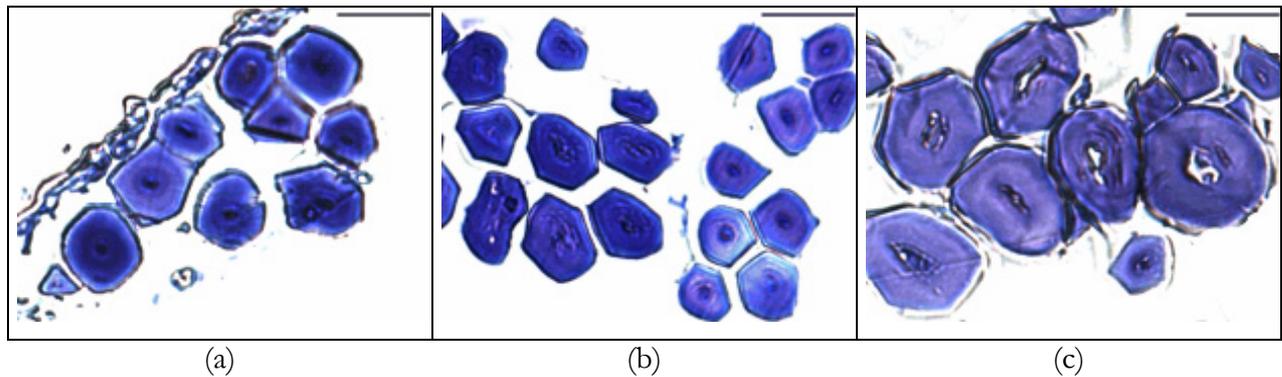


Fig. 2 - 9. Sections de fibres enrobées dans l'époxy réalisées au microtome ; les fibres sont issues soit du sommet (a), du milieu (b) ou du pied (c) de tiges de variété Hermès (la barre indique 20  $\mu\text{m}$ )

Les résultats de l'analyse morphologique sont présentés dans le tableau suivant.

	Nombre de fibres	Diamètre moyen ( $\mu\text{m}$ )	Porosité moyenne (%)
Sommet	498	$14,0 \pm 4,0$	$2,7 \pm 1,7$
Milieu	855	$12,4 \pm 3,2$	$3,4 \pm 1,9$
Pied	903	$16,5 \pm 5,1$	$4,0 \pm 2,2$

Tableau 2 - 2. Résultats de l'étude morphologique sur des fibres prélevées soit au sommet, au milieu et au pied de tiges de la variété Hermès.

A la lecture de ce tableau, il apparaît que les fibres du pied des tiges sont les plus grosses et les plus poreuses, alors que celles prélevées au milieu sont les plus fines et celles du sommet les plus pleines. Ces résultats sont en accord avec l'étude menée par l'ITF Lin [97] sur des fibres extraites manuellement des tiges, dont le poids global et la longueur de chaque cellule étaient donnés en fonction de la localisation des fibres dans la tige (cf. Chp 1 § II.2.c). La principale différence concerne le diamètre moyen des fibres du sommet des tiges : il était attendu un diamètre croissant du sommet vers le pied, ce qui n'est pas le cas ici. Une possibilité est que les fibres supposées provenir du sommet soient en fait plus près de la zone médiane que de la zone apicale.

Afin de déterminer l'influence de la variété sur les dimensions et la porosité des fibres, la même étude a été menée sur des fibres issues de tiges de la variété Agatha cultivées en 2003. Les mêmes trois zones ont été identifiées et la figure suivante montre quelques sections obtenues.

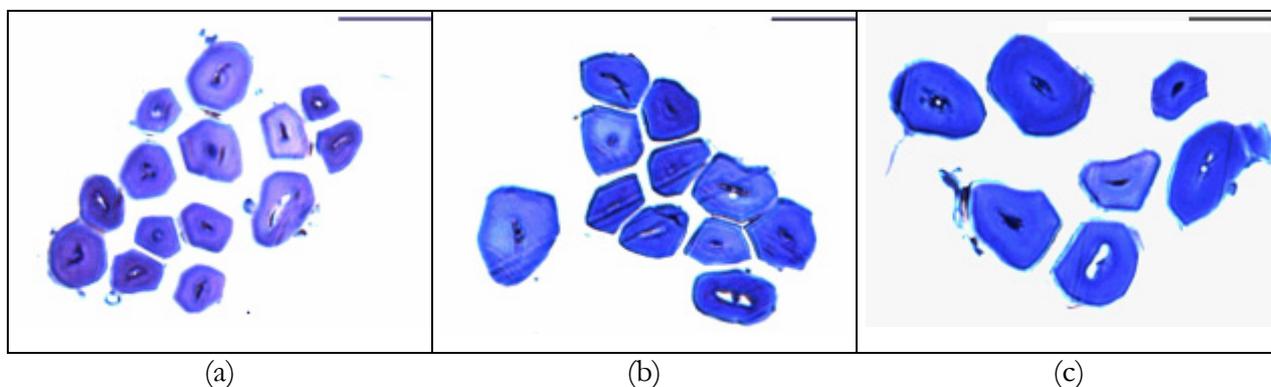


Fig. 2 - 10. Sections de fibres enrobées dans l'époxy réalisées au microtome ; les fibres sont issues soit du sommet (a), du milieu (b) ou du pied (c) de tiges de variété Agatha (la barre indique 20 µm)

Les résultats de l'analyse morphologique sont donnés dans le tableau 2 - 3 puis comparées avec ceux des fibres de la variété Hermès (Fig. 2 - 11).

	Nombre de fibres	Diamètre moyen (µm)	Porosité moyenne (%)
Sommet	813	13,7 ± 4,1	2,7 ± 1,8
Milieu	1352	13,6 ± 3,9	2,2 ± 1,8
Pied	1406	15,7 ± 3,7	2,5 ± 1,5

Tableau 2 - 3. Résultats de l'étude morphologique sur des fibres prélevées soit au sommet, au milieu et au pied de tiges de la variété Agatha.

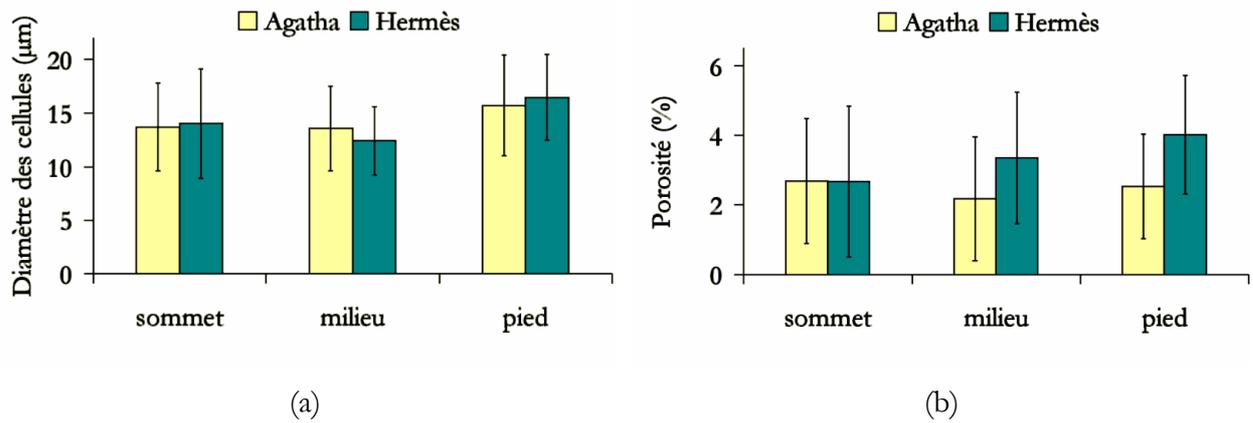


Fig. 2 - 11. Comparaison entre les diamètres (a) et les porosités (b) des fibres provenant du sommet, du milieu ou du pied de tiges de variété Hermès ou Agatha.

Concernant les diamètres des cellules, il semble que les fibres médianes et de la variété Hermès soient les plus fines, mais les différences entre sommet, milieu et pied sont estompées par les forts écart-types réduits de l'ordre de 30%. Il en est de même pour la porosité qui, bien qu'apparemment supérieure dans les fibres de la variété Hermès, vaut entre 2 et 4% quelles que soient la variété et la position des fibres dans les tiges.

Ces résultats morphologiques sont en accord avec le mode de croissance des fibres (cf. Chp 1 § I.2.b) et l'analyse biochimique réalisée sur différents groupes de fibres (cf. Annexe 1) : les fibres basales sont formées au moment où les conditions climatiques sont les plus mauvaises, leur développement est donc plus lent et principalement radial, ce qui conduit à des fibres larges et très poreuses. Par contre, les fibres du milieu et du sommet ont un développement à la fois radial et longitudinal, qui se produit à un moment d'activité physiologique intense, et présentent donc des sections plus petites et des lumens plus remplis. Comme pour la description de la composition biochimique des fibres en différents endroits de la tige (cf. Annexe 1), la principale conclusion de cette étude est que les fibres du milieu des tiges présentent une structure plus compacte que les autres. Reste alors à déterminer plus précisément la longueur et la position de cette zone médiane dans la tige.

## II. Evolution des tailles des fibres le long des tiges

Le premier objectif de l'analyse de coupes sérielles est de localiser plus précisément la zone des tiges appelée jusqu'ici « milieu », dans laquelle les fibres de lin sont à la fois les plus nombreuses et les plus fines, d'après les premières études réalisées sur des sections de fibres (§ I.3) et les données de la littérature [97]. Pour cela, des sections prélevées tous les 5 cm sur toute la longueur d'une tige ont été observées. Un autre objectif de cette analyse est d'étudier la morphologie de faisceaux natifs, c'est-à-dire l'arrangement des fibres dans ces faisceaux et leur éventuelle variation de surface. Ces résultats pourront être fournis par l'étude de coupes sérielles rapprochées. Les deux protocoles utilisés pour cette étude sont schématisés dans la figure suivante.

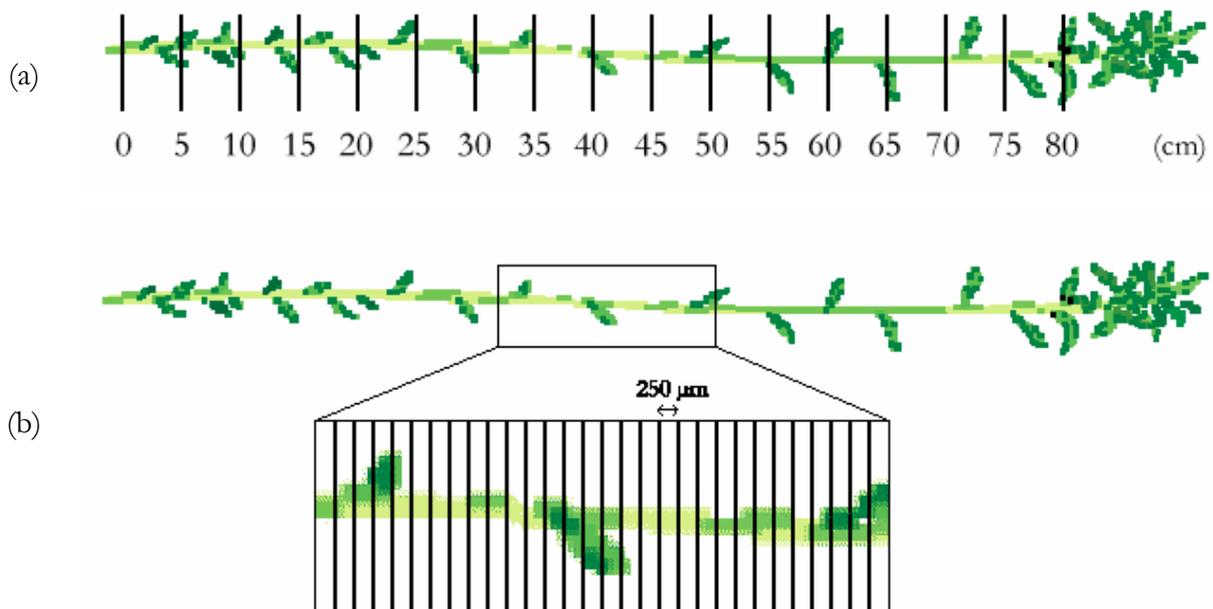


Fig. 2 - 12. Schémas des deux protocoles de coupes sérielles réalisés : coupes distantes de 5 cm (a) ou coupes successives dans une zone de la tige (b)

### II.1. Coupes sérielles

Des tiges de lin, fournies avant rouissage par l'entreprise Dehondt Technologies, ont d'abord été mesurées (hauteur et diamètre au milieu) et celles présentant des dimensions moyennes ont été

sélectionnées. Leur hauteur moyenne est estimée à  $80 \text{ cm} \pm 5 \text{ cm}$  et leur diamètre à  $40 \text{ cm}$  vaut environ  $1,6 \text{ mm} \pm 0,3 \text{ mm}$ . Les coupes sont effectuées à l'aide d'une lame de rasoir et soigneusement référencées. Elles sont déposées sur des lames transparentes, décolorées à l'eau de Javel, teintés au carminoverte (le carmin aluné marque la cellulose, c'est-à-dire les fibres, alors que le vert d'iode marque la lignine surtout présente dans le xylème) puis observées au microscope optique à transmission. Des photographies du phloème sont prises sur toute la périphérie de la tige et les sections sont ensuite reconstituées numériquement.

### II.1.a. Coupes sérielles dans les tiges

Trois tiges (deux de la variété Hermès et une de la variété Agatha) ont été étudiées par des coupes sérielles distantes de 5 cm. Des marques sont d'abord tracées sur la tige pour repérer chaque intervalle. A chaque trait, environ 8 sections sont prélevées et observées rapidement au microscope, et la plus nette est gardée. La cote 0 correspond au début de la zone aérienne de la tige, c'est-à-dire à la limite de la racine, et les coupes sont faites jusqu'au sommet ; cependant, les sections apicales (au-dessus de 70 cm) sont, la plupart du temps, inexploitable. Les sections sont ensuite traitées comme décrit ci-dessus. Après reconstruction numérique des faisceaux, leurs surfaces sont estimées par un programme d'analyse d'image et le nombre de fibres qu'ils renferment est également compté.

### II.1.b. Coupes sérielles dans les zones médiane et basale

Pour réaliser ces coupes sérielles, une tige de la variété Hermès a fourni une zone médiane de 18 cm de long et une autre a fourni une zone basale de 6 cm de long. L'épaisseur moyenne d'une section est  $250 \mu\text{m}$ . Chaque faisceau est référencé sur chaque section, ce qui permet de suivre son évolution morphologique (c'est-à-dire sa surface et le nombre de fibres qu'il contient) sur toute la longueur de la zone étudiée. Pour limiter l'étude, seuls quelques faisceaux (les plus nets consécutivement) ont été analysés.

## II.2. Résultats

### II.2.a. Exploration des tiges

Un exemple de coupes prélevées tous les 5 cm est donné dans la figure 2 - 13. Il s'agit de sections entières de tige reconstituées numériquement à partir de micrographies optiques. Il apparaît clairement une diminution du diamètre de la tige du pied vers le sommet (de 1,87 mm à la cote 0 cm jusque 1,34 mm à la cote 55 cm). Il en est de même pour les autres tiges observées, pour lesquelles le diamètre diminuait de façon quasi-linéaire.

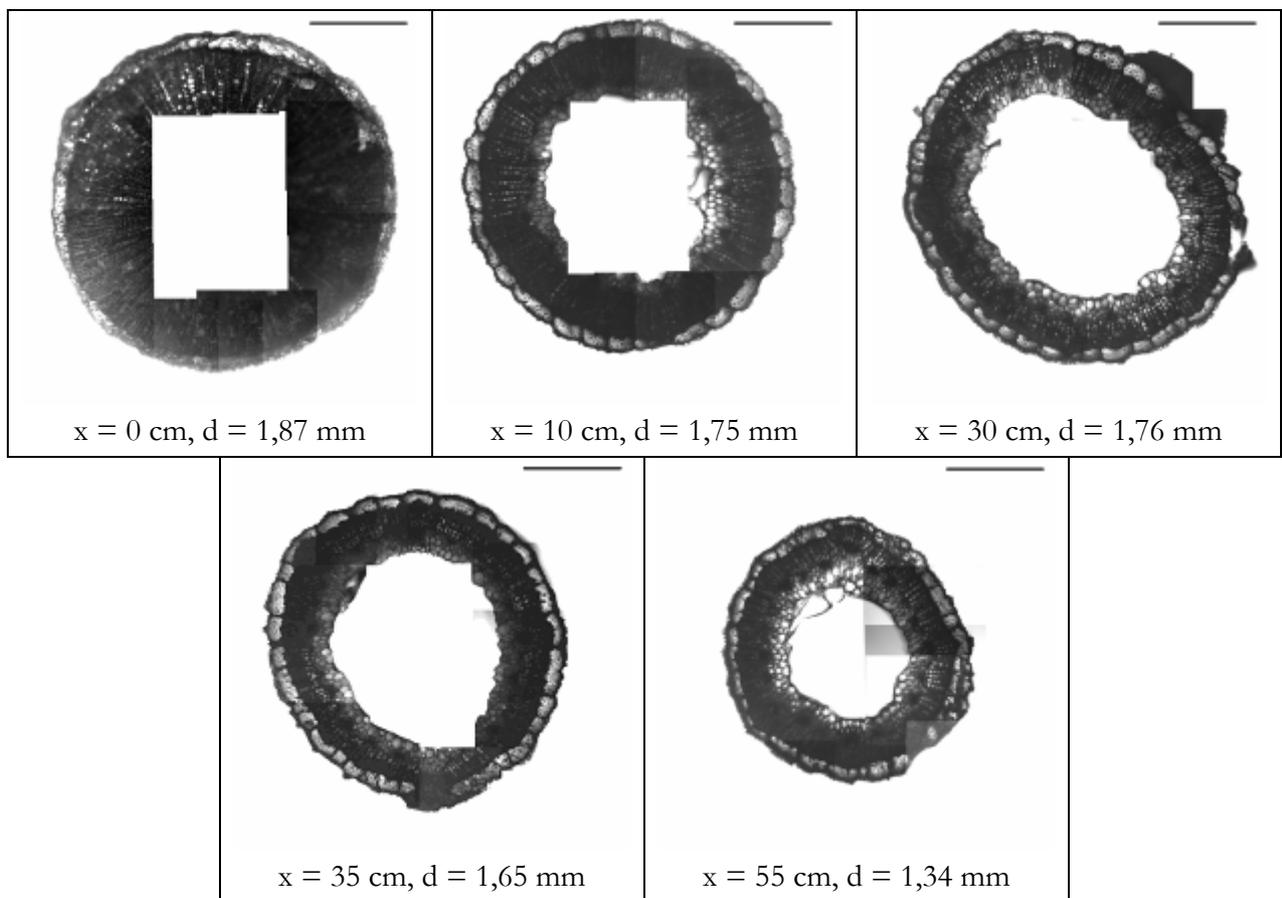


Fig. 2 - 13. Coupes de tiges de lin de la variété Agatha avec les cotes et les diamètres correspondants (la barre indique 0,5 mm)

Tout d'abord, sur l'ensemble de la tige et quelle que soit la variété, le nombre moyen de faisceaux par tige est  $29 \pm 5$  (Fig. 2 - 14a) et le nombre moyen de fibres par section est de l'ordre de  $800 \pm 150$ , en accord avec la littérature (cf. Chp 1 § I.1).

Le taux surfacique de faisceaux (i.e. le rapport entre la surface totale de faisceaux sur une section de tige et la surface entière de cette section) semble être une constante par variété sur toute la

longueur d'une tige (Fig. 2 - 14b), puisqu'il vaut environ  $13\% \pm 1\%$  pour la variété Hermès et  $10\% \pm 2\%$  pour la variété Agatha. Par conséquent, la surface moyenne des faisceaux diminue légèrement quand on se rapproche du sommet de la tige (Fig. 2 - 14c).

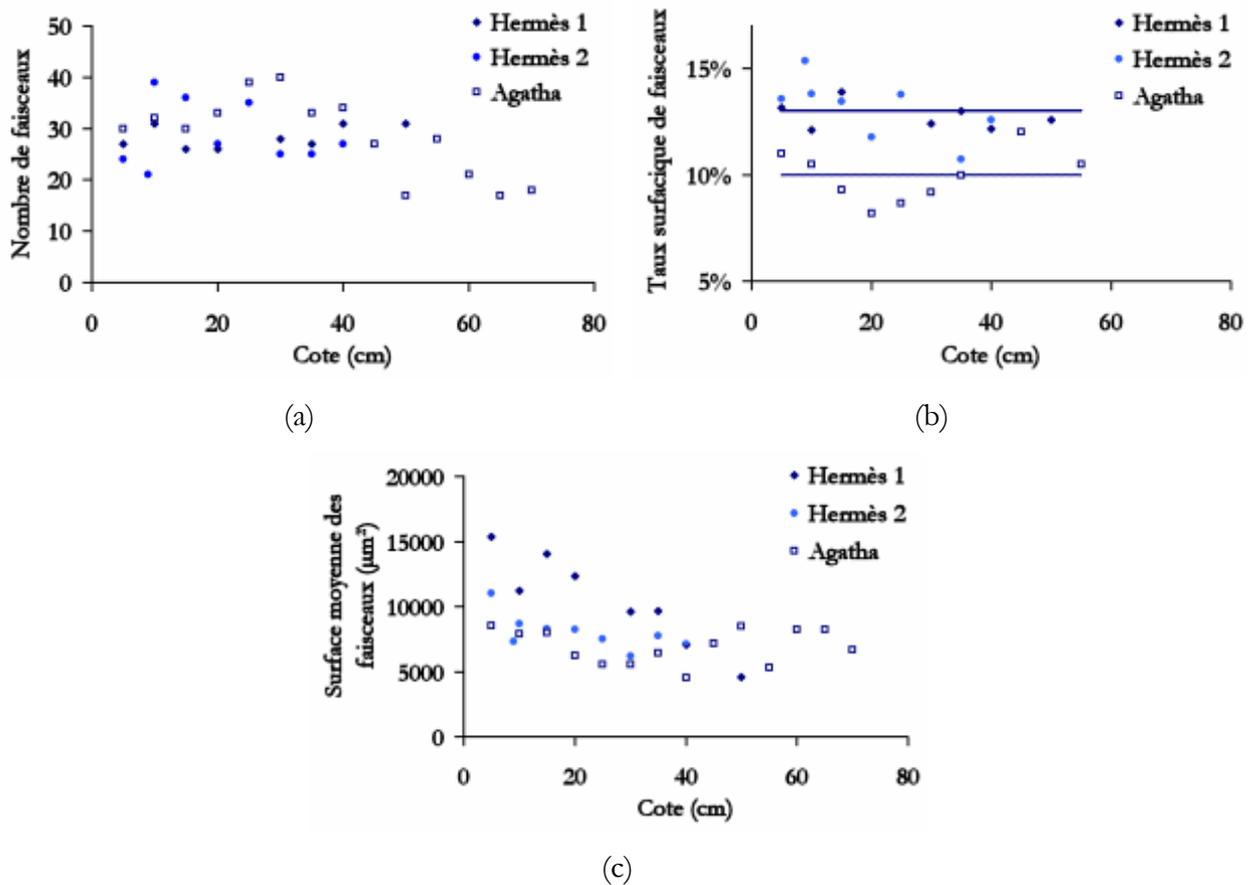


Fig. 2 - 14. Evolution du nombre de faisceaux (a), du taux surfacique de faisceaux (b) et de la surface moyenne des faisceaux (c) sur chaque section en fonction de la cote de cette section

A partir du comptage des fibres dans chaque faisceau et de l'estimation de la surface de chaque faisceau, l'évolution du diamètre équivalent des fibres a pu être tracée en fonction de la cote (Fig. 2 - 15). Il semble qu'après une zone de diminution, le diamètre moyen se stabilise dès 20 cm et reste à peu près constant, autour de  $18 \mu\text{m}$ . La zone basale dans laquelle les fibres sont les plus grosses aurait donc une longueur approximative de 20 cm. D'autre part, il apparaît un optimum dans le nombre de fibres par section (entre 900 et 1000) entre les cotes 20 et 60. Cela signifie que c'est cette zone qui correspondrait le mieux à la définition de « milieu » donnée précédemment. Il faut tout de même noter que peu de différences morphologiques existent entre la zone médiane et la zone apicale (ce qui confirme les résultats présentés dans les tableaux 2 - 2 et 2 - 3). Le schéma récapitulatif de la figure 2 - 16 précise les longueurs de chacune des zones.

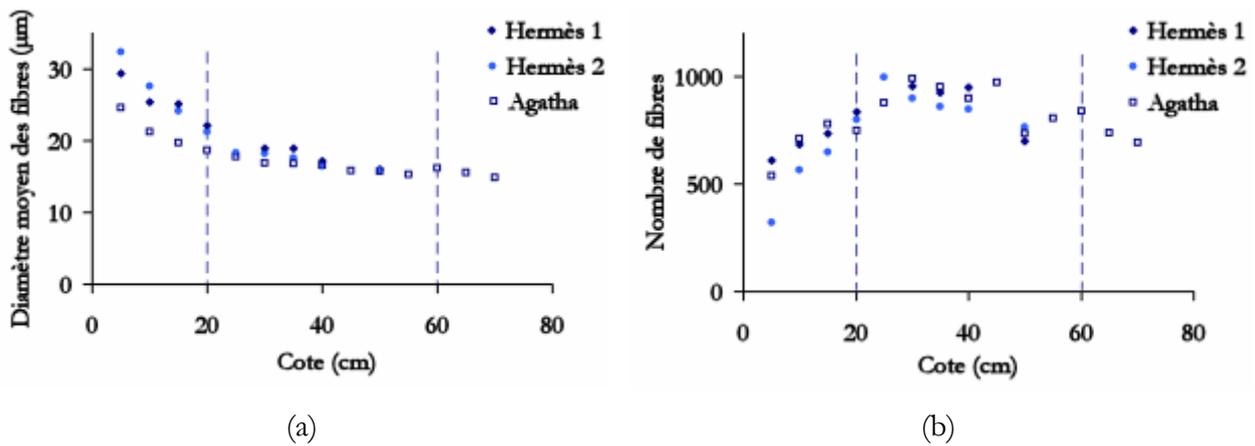


Fig. 2 - 15. Evolution du diamètre moyen des fibres sur une section (a) et du nombre de fibres par section (b) en fonction de sa cote

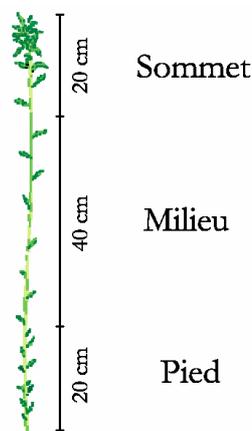


Fig. 2 - 16. Schéma d'une tige de lin et des différentes zones apicale, médiane et basale en fonction de la morphologie des faisceaux.

Une des conséquences de cette étude pourrait être la sélection, par exemple au moment du peignage, des zones des tiges permettant d'obtenir un maximum de fibres longues et fines. Au moins 15 cm pourraient être retirés du pied de la tige, et autant de son sommet, pour n'obtenir essentiellement que des fibres de la zone médiane. Les fibres issues des zones retirées pourraient être valorisées en étoupes, en même temps que les fibres courtes déjà mises de côté lors du teillage.

## II.2.b. Analyse des zones médiane et basale

Dans cette étude, ce sont cette fois des sections successives rapprochées de tiges de lin qui ont été photographiées et reconstituées. Il est nécessaire, à partir de ces sections, d'identifier chaque faisceau sur chaque coupe consécutive ; autrement dit, il faut orienter la section en utilisant, par

exemple, les protubérances extérieures engendrées par les feuilles. Une fois les faisceaux repérés, les plus nets sont analysés en terme de surface et de nombre de fibres. Cinq faisceaux ont été retenus dans la partie basale et huit dans la partie médiane. Ici encore, la cote 0 correspond à la limite terre/air de la tige lors de sa croissance.

Les 5 micrographies suivantes (Fig. 2 - 17) présentent quelques coupes sériées issues de la partie basse d'une tige ainsi que 2 micrographies d'un même faisceau (Fig. 2 - 18) prises à quelques centaines de microns d'intervalle. On voit nettement la disparition de 2 fibres d'une coupe à l'autre (indiquées par les flèches blanches), ainsi qu'une adaptation de chaque cellule à son nouveau voisinage.

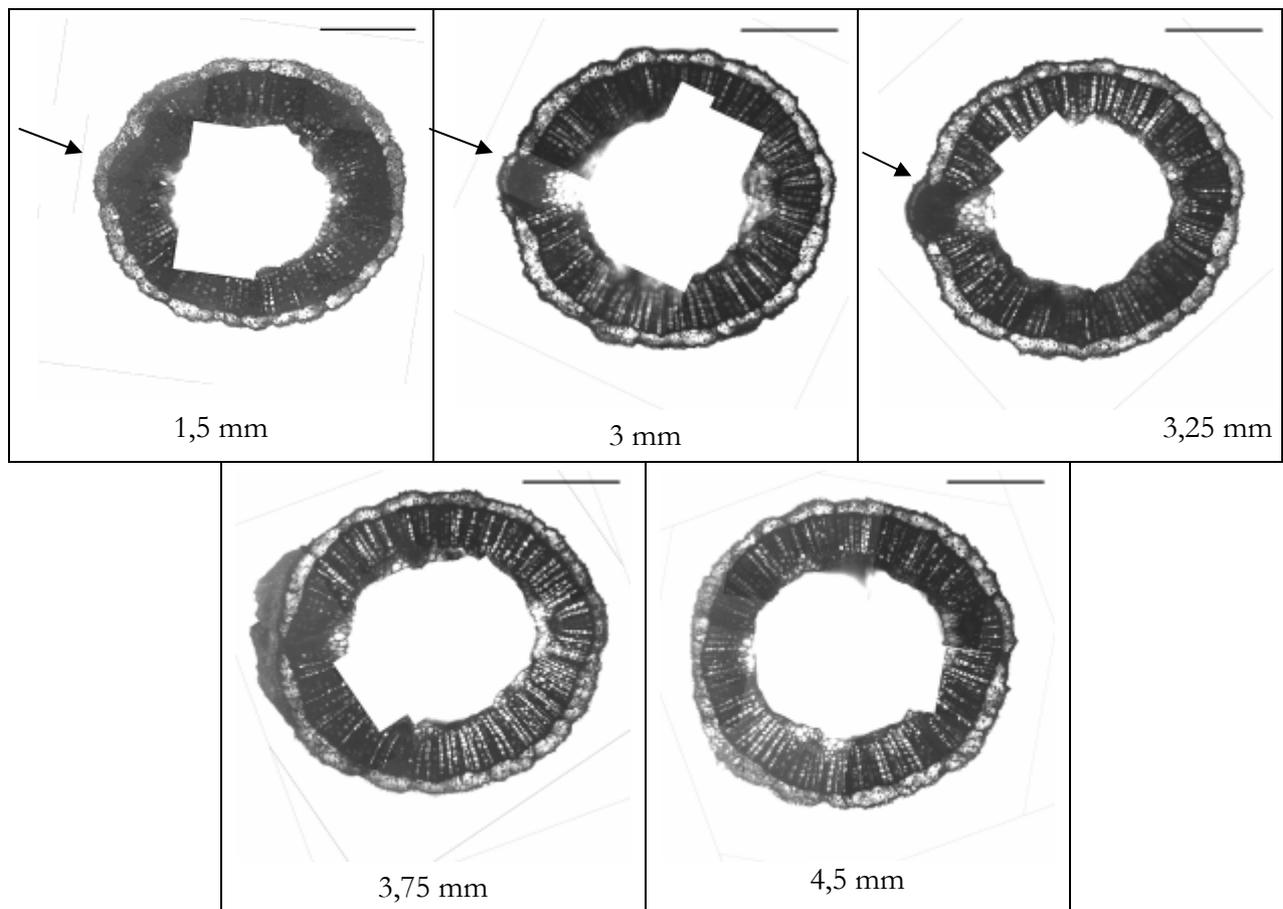


Fig. 2 - 17. Coupes sériées d'une tige dans sa partie basale : apparition et disparition d'une protubérance due à une feuille, indiquée par les flèches (la barre indique 0,5 mm)

Les cinq faisceaux sélectionnés dans le pied de la tige ont été étudiés sur une hauteur de 4,25 mm, ce qui correspond à 17 coupes consécutives de 250  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Le graphe 2 - 19 présente l'évolution des surfaces de ces cinq faisceaux et le tableau 2 - 4 donne ses caractéristiques morphologiques : surface moyenne des faisceaux, nombre moyen et diamètre équivalent moyen des fibres qu'ils contiennent.

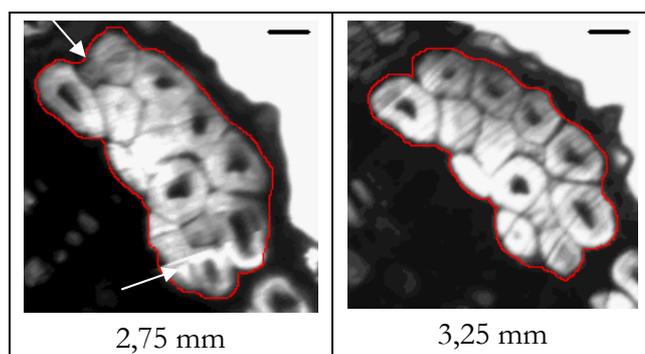


Fig. 2 - 18. Micrographies optiques d'un faisceau de la partie basale de la tige sur deux sections distantes de 500  $\mu\text{m}$  ; les flèches blanches indiquent les fibres qui disparaissent dans la section suivante (la barre représente 20  $\mu\text{m}$ )

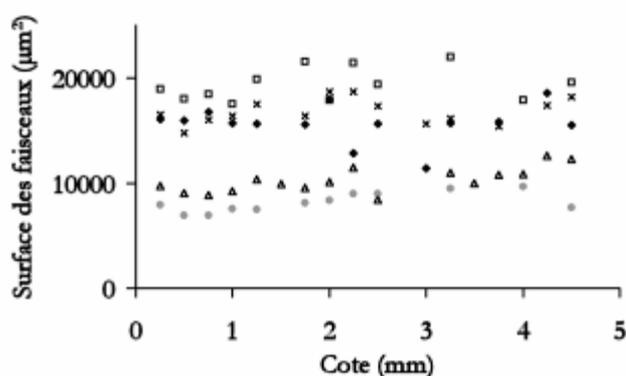


Fig. 2 - 19. Evolution de la surface des cinq faisceaux sélectionnés dans la zone basale en fonction de leur position dans la tige

faisceau	$S_{\text{mesurée}}^{\text{moyenne}}$ (faisceau) ( $\mu\text{m}^2$ )	$n_{\text{compté}}^{\text{moyen}}$ (fibres)	$d_{\text{calculé}}^{\text{équivalent}}$ (fibre) ( $\mu\text{m}$ )
1	$10\ 330 \pm 1\ 191$	$16 \pm 3$	29
2	$18\ 056 \pm 3\ 661$	$23 \pm 4$	32
3	$8\ 204 \pm 871$	$11 \pm 2$	31
4	$16\ 006 \pm 1\ 781$	$24 \pm 3$	29
5	$17\ 940 \pm 2\ 546$	$24 \pm 2$	31

Tableau 2 - 4. Résultats de l'analyse morphologique de quelques faisceaux issus de la partie basale d'une tige

Il apparaît tout d’abord que le diamètre moyen des fibres issus du pied de la tige est de l’ordre de 30  $\mu\text{m}$ , en accord avec les résultats du § II.2.a (cf. Fig. 2 - 15). D’autre part, il est intéressant de remarquer que l’écart-type réduit sur la surface de chaque faisceau n’est que de l’ordre de 14%.

La même étude a été menée sur des sections prélevées cette fois dans un tronçon de 18,5 cm de long issu de la partie médiane d’une autre tige. Les micrographies optiques suivantes (Fig. 2 - 20) présentent 5 coupes sériées reconstituées ainsi que 3 micrographies du même faisceau (Fig. 2 - 21) issues de sections différentes.

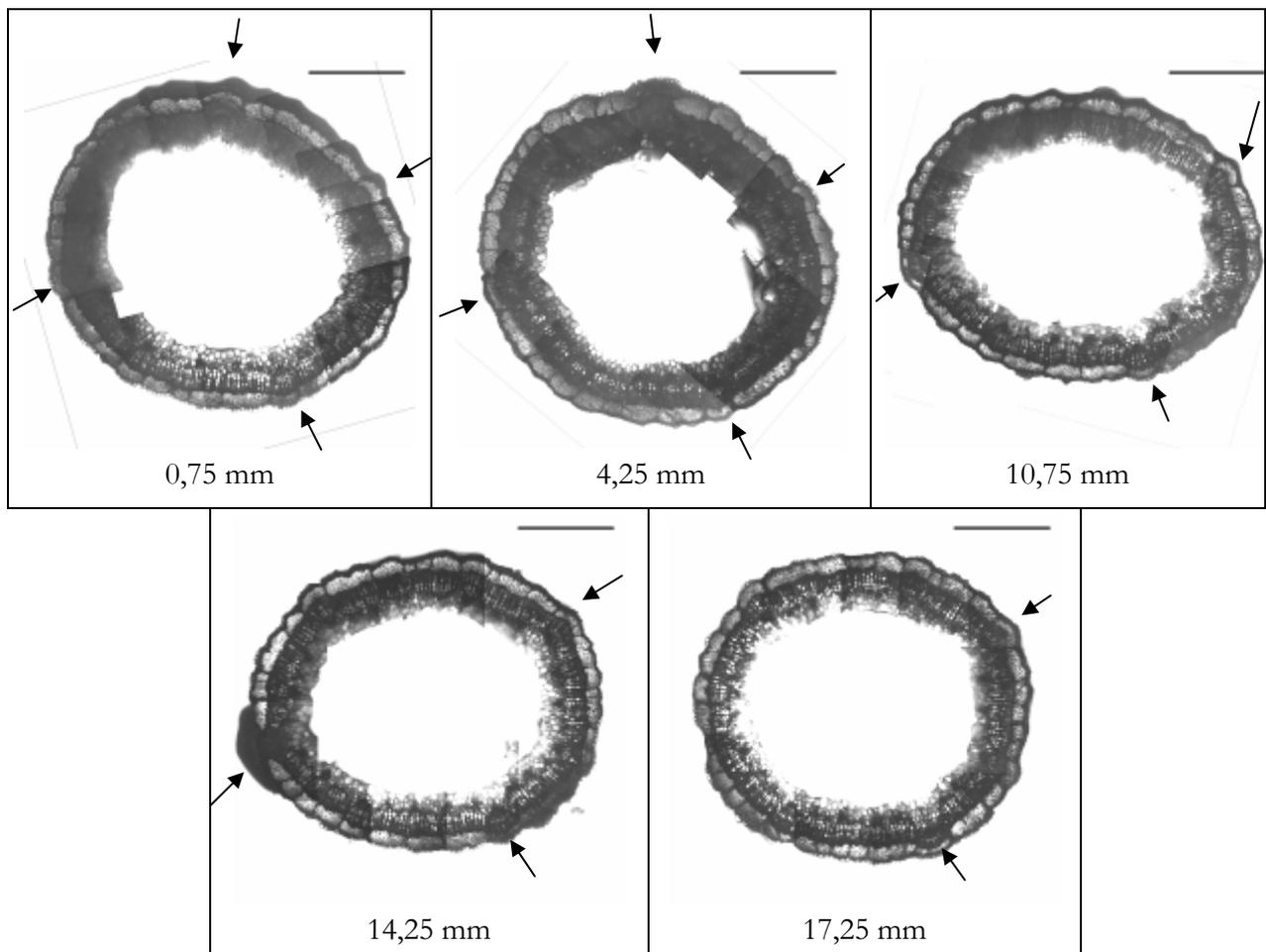


Fig. 2 - 20. Coupes sériées d’une tige dans sa partie médiane ;  
les flèches indiquent les positions des feuilles (la barre indique 0,5 mm)

L’évolution des surfaces de 8 faisceaux en fonction de leur position dans la tige est présentée dans les graphes suivants ; les valeurs moyennes des surfaces de chacun de ces faisceaux et du diamètre équivalent des fibres qu’ils contiennent sont regroupées dans le tableau 2 - 5. Le diamètre moyen des fibres (environ 19  $\mu\text{m}$ ) est en accord avec les résultats précédents.

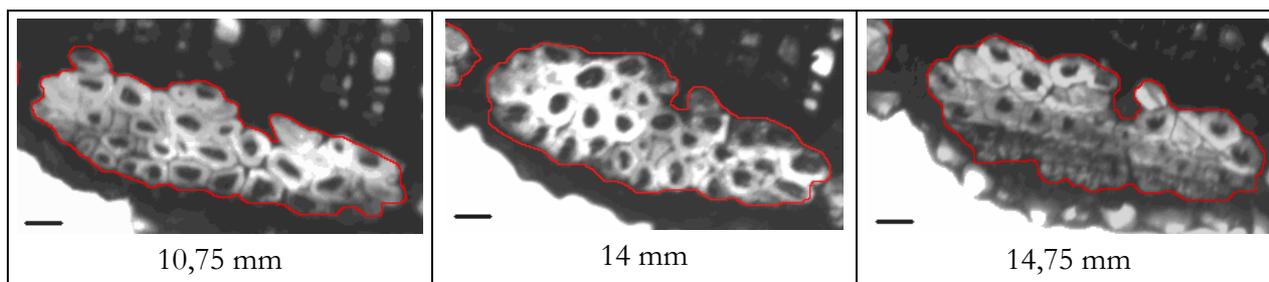


Fig. 2 - 21. Micrographies optiques d'un faisceau de la partie médiane de la tige à différentes cotes (la barre représente 20  $\mu\text{m}$ )

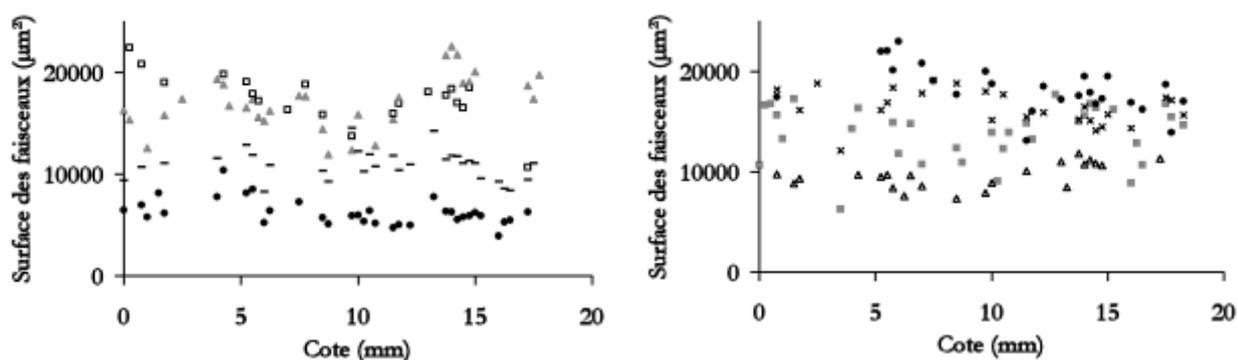


Fig. 2 - 22. Evolution de la surface des 8 faisceaux sélectionnés dans la zone médiane en fonction de leur position dans la tige (pour des raisons de lisibilité, 4 faisceaux sont représentés sur chaque graphe)

faisceau	$S_{\text{moyenne}}^{\text{mesurée}}$ (faisceau) ( $\mu\text{m}^2$ )	$n_{\text{moyen}}^{\text{compté}}$ (fibres)	$d_{\text{équivalent}}^{\text{calculé}}$ (fibre) ( $\mu\text{m}$ )
1	$17\,558 \pm 2\,506$	$62 \pm 8$	19
2	$9\,595 \pm 1\,265$	$34 \pm 3$	19
3	$13\,973 \pm 2\,761$	$44 \pm 4$	20
4	$10\,913 \pm 1\,492$	$43 \pm 4$	18
5	$6\,262 \pm 1\,285$	$28 \pm 3$	17
6	$17\,938 \pm 1\,871$	$57 \pm 4$	20
7	$18\,306 \pm 2\,347$	$53 \pm 5$	21
8	$16\,509 \pm 1\,921$	$48 \pm 3$	21

Tableau 2 - 5. Résultats de l'analyse morphologique de quelques faisceaux issus de la partie médiane d'une tige

Ici encore, l'écart-type sur la surface de chaque faisceau vaut en moyenne 14 %. Cette valeur, qui donne une indication sur la dispersion de la taille d'un faisceau suivant sa longueur, est très inférieure à l'écart-type d'environ 50 % relevé sur des sections de fibres aléatoirement sélectionnées (Tableau 2 - 1). La différence entre ces deux valeurs peut provenir du mode de variation des sections de fibres au sein d'un même faisceau. Deux hypothèses d'évolution de ces sections sont envisageables (Fig. 2 - 23) : soit les fibres ont chacune une section constante suivant leur longueur mais différente de celle des fibres voisines (variabilité dimensionnelle « inter-fibre ») et alors les variations des dimensions des faisceaux sur leur longueur ne sont dues qu'aux apparitions et disparitions des fibres ; soit les fibres ont chacune une section variable (variabilité dimensionnelle « intra-fibre ») qui est la cause principale des disparités dimensionnelles des faisceaux.

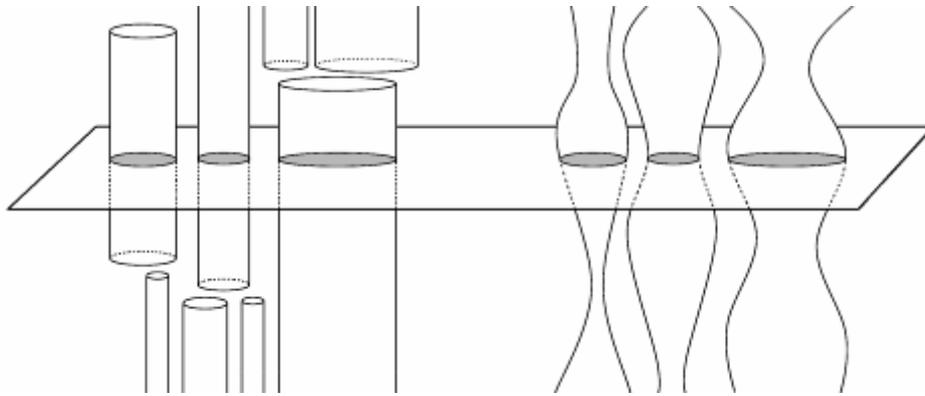


Fig. 2 - 23. Représentation schématique des deux hypothèses sur l'évolution longitudinale des diamètres des fibres

Pour valider une de ces deux hypothèses et compléter l'étude de la morphologie des fibres, des analyses dimensionnelles longitudinales de quelques fibres de lin ont été réalisées au MEB.

### III. Variation des profils de diamètre des fibres

Des fibres de lin, prélevées au milieu de tiges Hermès, ont été observées au microscope électronique à balayage. Pour cela, un MEB basse pression (Hitachi S-3000N), permettant d'observer la fibre directement sous vide partiel, a été utilisé pour suivre l'évolution du diamètre des fibres suivant leur longueur.

#### III.1. Protocole

Une vingtaine de fibres de lin a été observée en utilisant le protocole suivant : leurs extrémités sont collées sur du papier et une ouverture centrale est réalisée au cutter au plus près des extrémités de la fibre, ce qui permet d'observer les fibres sur presque toute leur longueur. Le cadre en papier est ensuite collé sur un plot et déposé sur le porte-échantillon du MEB. Une fois le vide partiel atteint (25 Pa environ), les fibres sont balayées par le faisceau d'électrons sur toute leur longueur et des micrographies sont prises à intervalles réguliers (2 mm, 1 mm ou 500  $\mu\text{m}$ ) afin d'obtenir leur profil de diamètre. Comme ce protocole ne permettait pas d'atteindre les extrémités de la fibre, un profil entier de diamètre d'une fibre a également été réalisé au microscope optique.

## III.2. Résultats

### III.2.a. Aspect polygonal

Les premières observations au MEB confirment la forme polygonale de certaines fibres de lin (Fig. 2 - 24), avec des arêtes et des faces qui proviennent certainement du contact, lors de leur croissance, avec les autres fibres issues du même faisceau.

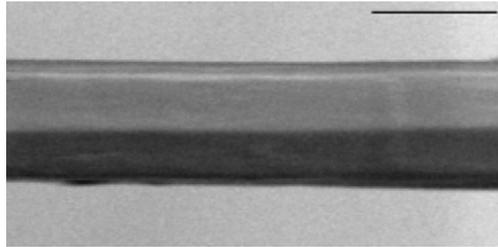


Fig. 2 - 24. Micrographie électronique d'une fibre de lin : mise en évidence de la section polygonale

### III.2.b. Evolution de la taille des fibres suivant leur longueur

Les figures suivantes (Fig. 2 - 25 à Fig. 2 - 29) montrent quelques micrographies prises le long de 5 fibres de lin (les barres indiquent  $20\ \mu\text{m}$ ). Les profils de diamètre correspondants sont donnés à la suite (Fig. 2 - 30).

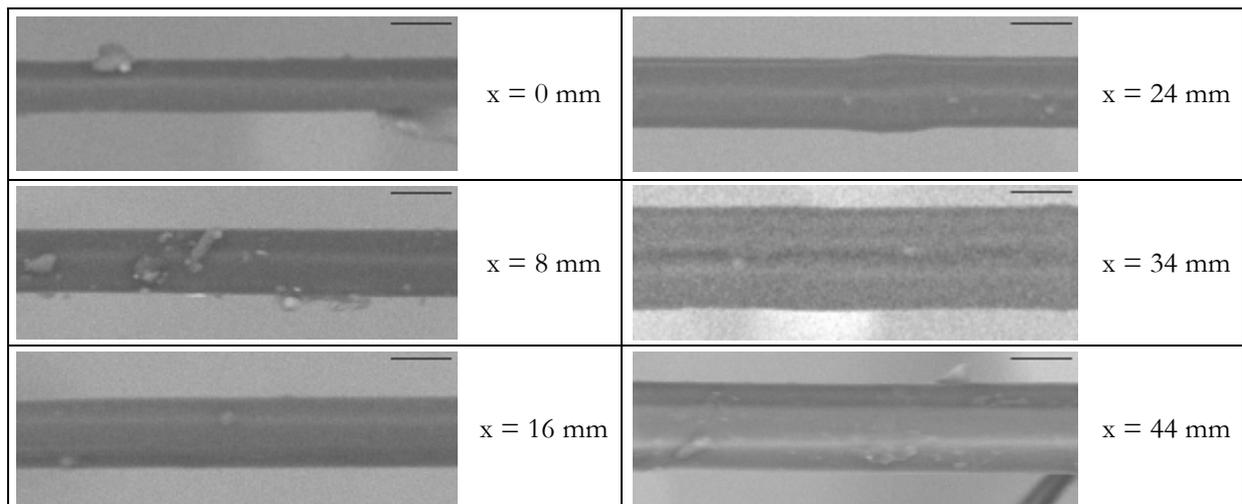


Fig. 2 - 25. Micrographies de la fibre 1 ( $L = 45,2\ \text{mm}$ ,  $d = 22,2\ \mu\text{m} \pm 4,9\ \mu\text{m}$ )

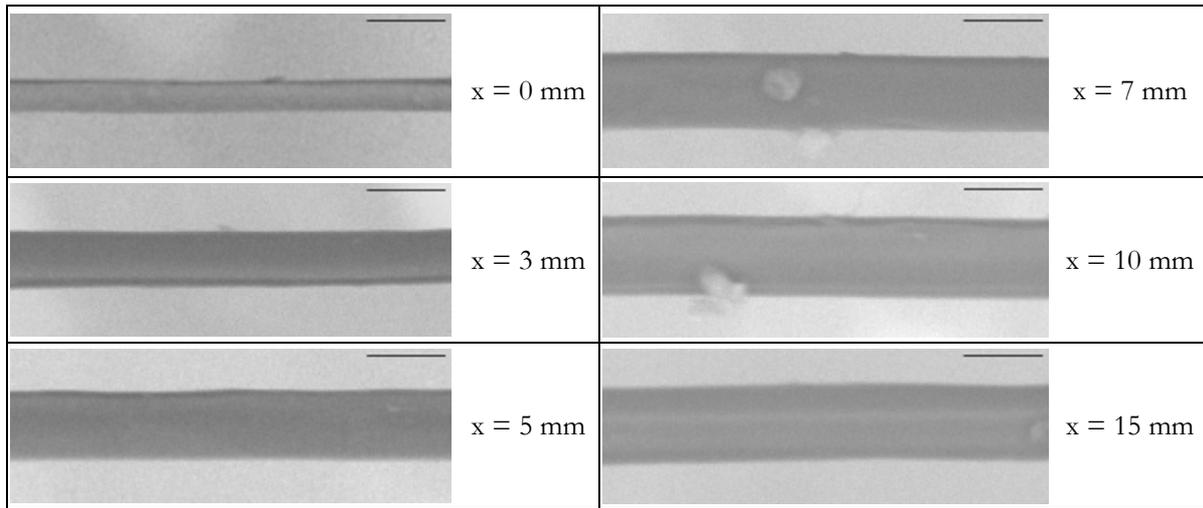


Fig. 2 - 26. Micrographies de la fibre 2 ( $L = 16,3 \text{ mm}$ ,  $d = 18,1 \mu\text{m} \pm 4,7 \mu\text{m}$ )

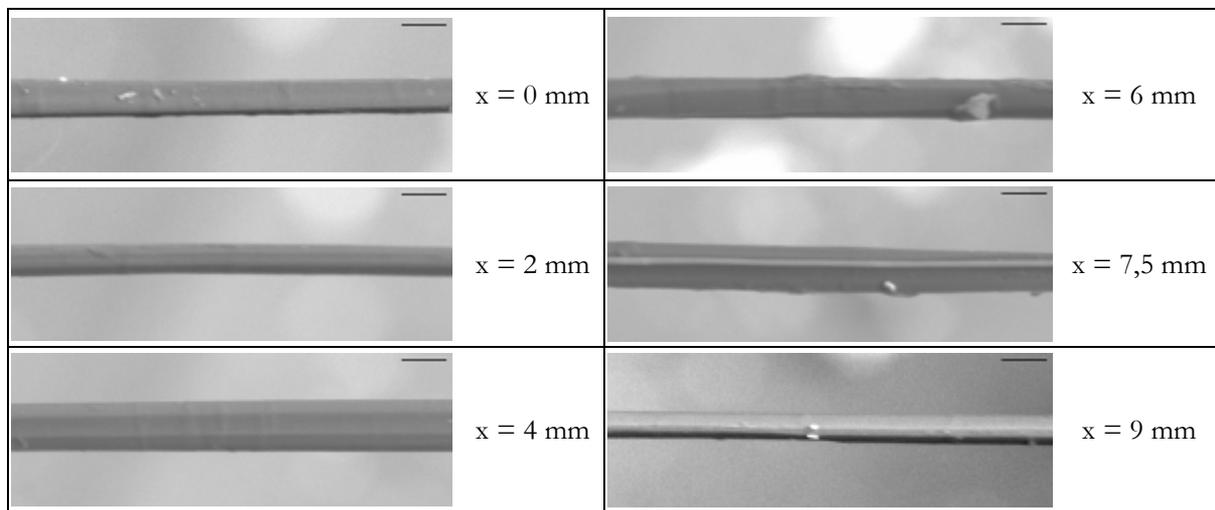


Fig. 2 - 27. Micrographies de la fibre 3 ( $L = 10,3 \text{ mm}$ ,  $d = 16,9 \mu\text{m} \pm 2,9 \mu\text{m}$ )

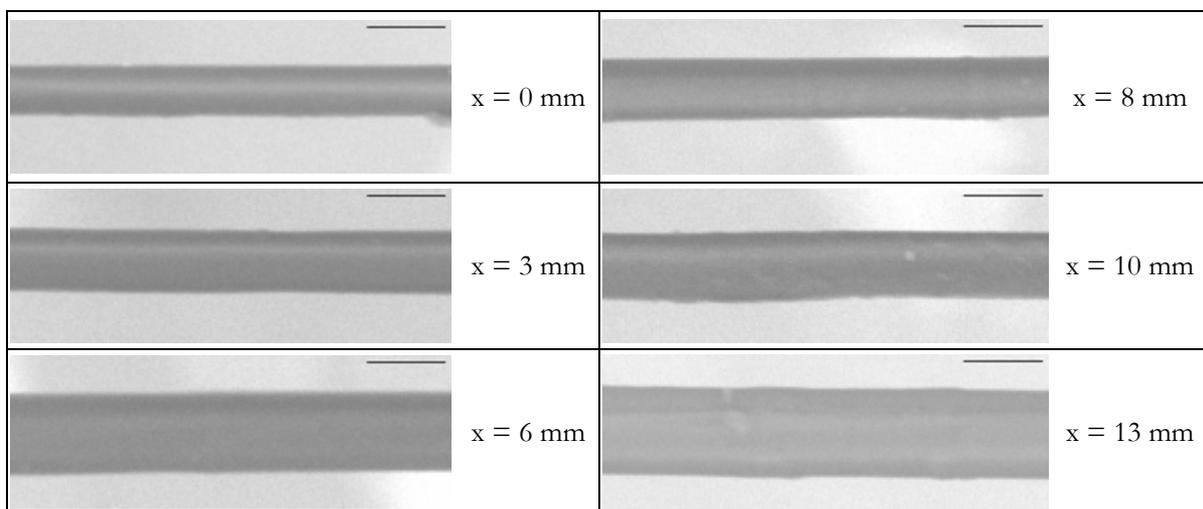


Fig. 2 - 28. Micrographies de la fibre 4 ( $L = 15,6 \text{ mm}$ ,  $d = 16,5 \mu\text{m} \pm 3,1 \mu\text{m}$ )

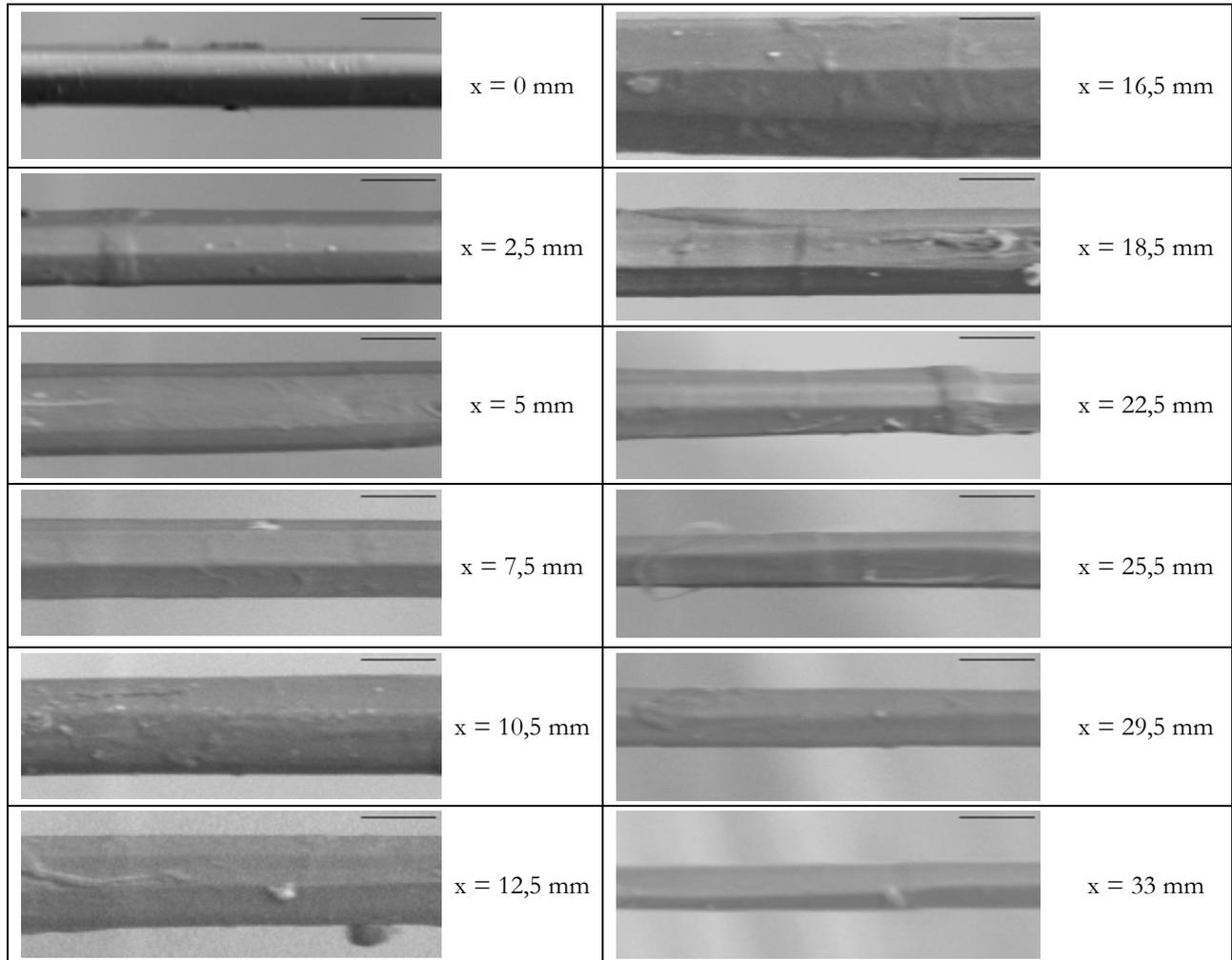


Fig. 2 - 29. Micrographies de la fibre 5 ( $L = 36,1$  mm,  $d = 19,7 \mu\text{m} \pm 4,7 \mu\text{m}$ )

Ces 5 fibres peuvent être considérées comme représentatives car leur diamètre moyen vaut  $18,7 \mu\text{m}$ . La taille moyenne de l'ensemble des 20 fibres étudiées suivant ce protocole vaut  $19,2 \mu\text{m} \pm 3,4 \mu\text{m}$ . Il apparaît clairement de fortes variations, complètement irrégulières, dans chacun des profils de diamètre (Fig. 2 - 30), et ce quel que soit l'intervalle de mesure. Le diamètre d'une fibre semble pouvoir varier du simple au double, voire au triple pour certaines (fibre n°5), sur quelques millimètres. L'écart-type moyen sur le diamètre est de l'ordre de 20 %, et celui sur les surfaces (en considérant la fibre comme un cylindre parfait) approche 40 %. Déjà en 1941, Bossuyt [15] montrait, à partir de mesures longitudinales réalisées tous les 5 mm en microscopie optique sur 3 fibres de lin, que les diamètres de ces fibres variaient de manière importante sur toute leur longueur.

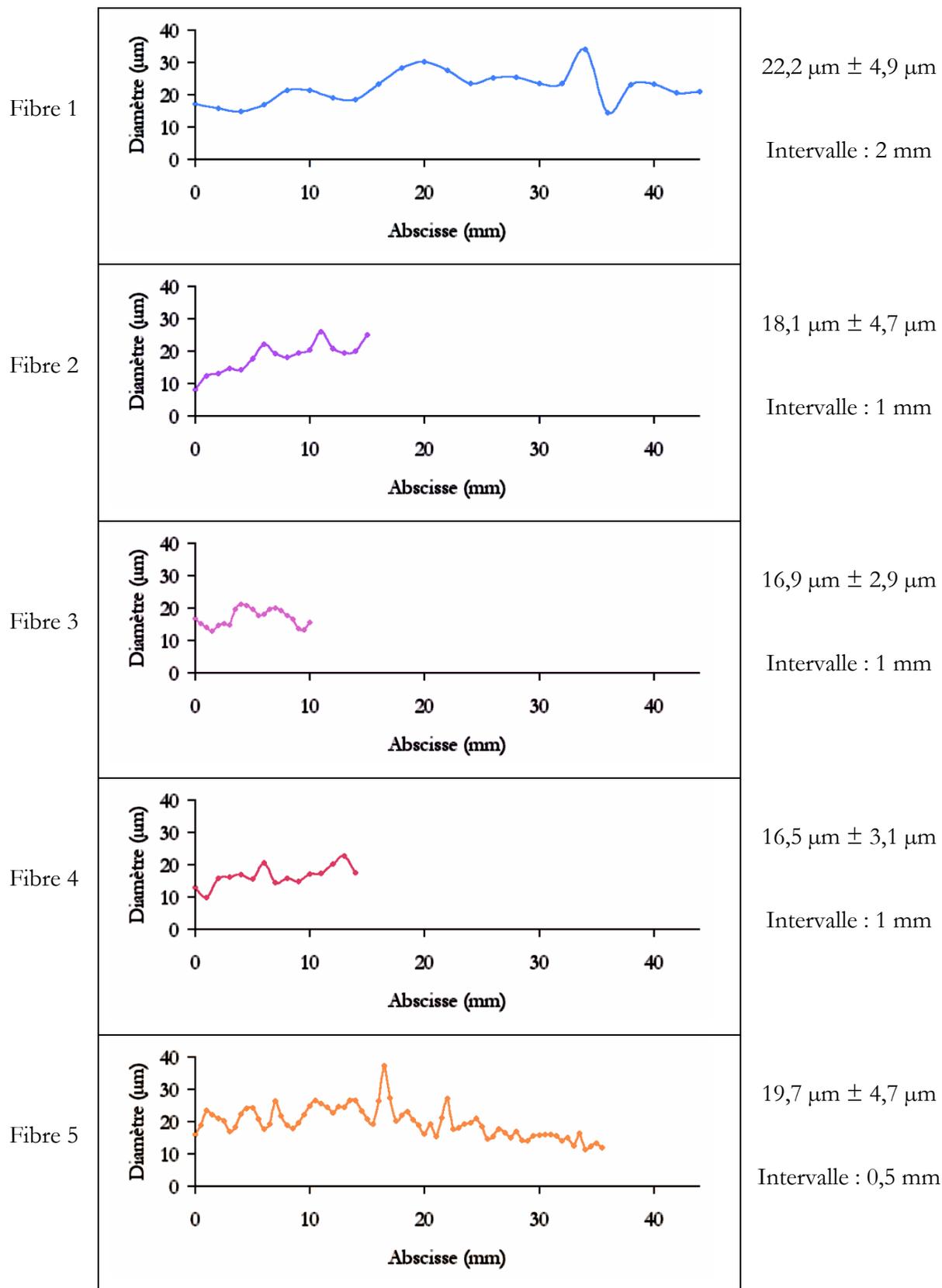


Fig. 2 - 30. Profils de diamètre des 5 fibres de lin (le diamètre moyen, l'écart-type sur le diamètre et l'intervalle de prise de mesure sont donnés dans la colonne de droite)

Il est naturel de se demander si l'origine de cette dispersion ne pourrait pas être la rotation des sections polygonales des fibres autour de leur axe. Un rapide calcul de géométrie indique que la rotation d'un hexagone entraîne une différence maximale de projection de 14%. Evidemment, la section d'une fibre n'est pas un hexagone parfait, mais peut parfois être comparée à une ellipse, ce qui entraînerait alors une plus grande différence selon la direction de projection ; cependant, pour que cette différence soit de l'ordre de grandeur des variations mesurées ici, il faudrait que les fibres soient particulièrement allongées, ce qui est rarement le cas au vu des sections de fibres présentées précédemment (cf. § I et II). Les fortes variations présentées ici sont donc bel et bien intrinsèques à la fibre de lin ; elles sont d'ailleurs peut-être reliées à des variations internes d'épaisseur de parois ou de lumen, comme le laisse penser une étude de Osborne [146], qui présente une évolution très irrégulière de la section du lumen sur la longueur de fibres de jute et de chanvre de Manille.

### III.2.c. Forme des fibres de lin

Pour estimer au bout de quelle longueur la fibre atteignait son diamètre moyen, un profil entier de fibre a été observé au microscope optique avec des intervalles de prise de micrographie de 500  $\mu\text{m}$  (Fig. 2 - 31). Son diamètre moyen mesuré sur l'ensemble des images vaut  $16,9 \mu\text{m} \pm 6,2 \mu\text{m}$  mais, quand on retire les 2 mm des extrémités, il atteint alors  $19,2 \mu\text{m} \pm 4,0 \mu\text{m}$ , ce qui correspond aux dimensions moyennes de l'ensemble des fibres observées au MEB (cf. Fig. 2 - 30).

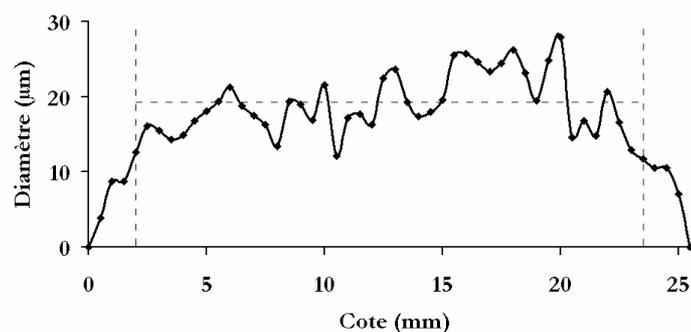


Fig. 2 - 31. Profil de diamètre d'une fibre et de ses extrémités

A partir de ces résultats, un schéma représentatif de la morphologie complète d'une fibre de dimensions moyennes peut être proposé (Fig. 2 - 32), en tenant compte du fait que les échelles des abscisses et des ordonnées ont un rapport d'environ 1000 (avec l'échelle de diamètre utilisé pour cette figure, l'axe des abscisses devrait mesurer environ 30 m).

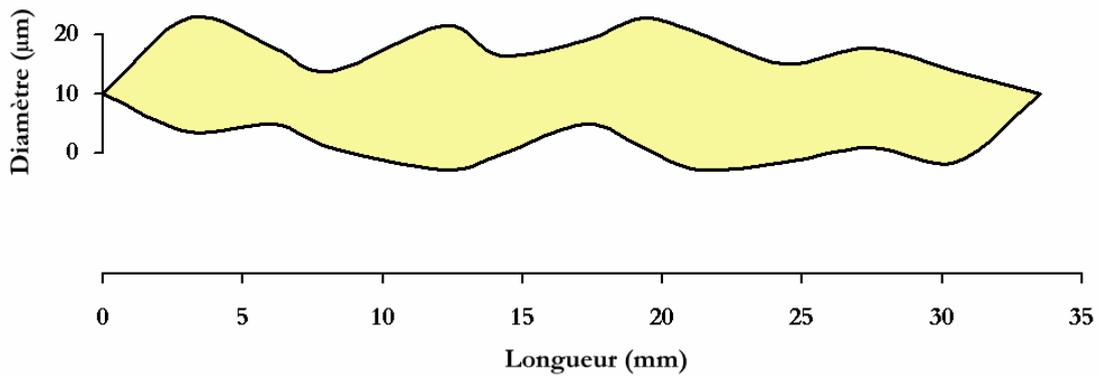


Fig. 2 - 32. Représentation schématique du profil d'une fibre de lin

La notion de « diamètre de fibre » est donc à utiliser avec prudence, du moins en gardant à l'esprit que seuls une valeur moyenne et un écart-type peuvent décrire correctement la géométrie extérieure d'une fibre de lin, et qu'il existe de fortes irrégularités dans sa morphologie. Ces irrégularités physiques, une fois la fibre enrobée dans une résine, favorisent probablement son ancrage mécanique dans la matrice, conduisant à une interface de bonne qualité.

## IV. Structure des parois : FIB

Le FIB (Focused Ion Beam), que l'on peut traduire par « microscope à faisceau d'ions focalisés », est un système qui utilise des ions gallium  $\text{Ga}^+$  pour balayer la surface d'un échantillon à la manière du faisceau d'électrons dans un MEB (Fig. 2 - 33). Les grossissements peuvent atteindre  $\times 100\,000$  et le pouvoir de résolution est de 7 nm. Les ions  $\text{Ga}^+$ , considérés comme destructifs du fait de leur nombre atomique relativement important ( $Z = 31$ ) interagissent fortement avec l'échantillon en générant des ions secondaires ainsi que 4 à 15 électrons secondaires (selon la conductivité de l'échantillon), utilisés pour former une image de la surface de l'échantillon. Le FIB (de marque FEI 200xP) peut fonctionner à bas courant pour l'imagerie ou à fort courant pour l'attaque spécifique de sites. Des gaz peuvent être ajoutés à ce faisceau d'ions gallium (iode,  $\text{XeF}_2$ ,  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , Pt) : ils interagissent alors avec le faisceau pour faire une gravure sélective ou un dépôt d'un matériau conducteur (platine) sur l'échantillon.

Le FIB ne nécessite pas de préparation particulière des fibres (telle qu'un enrobage dans une matrice précise, souvent nécessaire en microscopie électronique) pour permettre l'observation de leur section, ce qui constitue un gain de temps au niveau des manipulations.

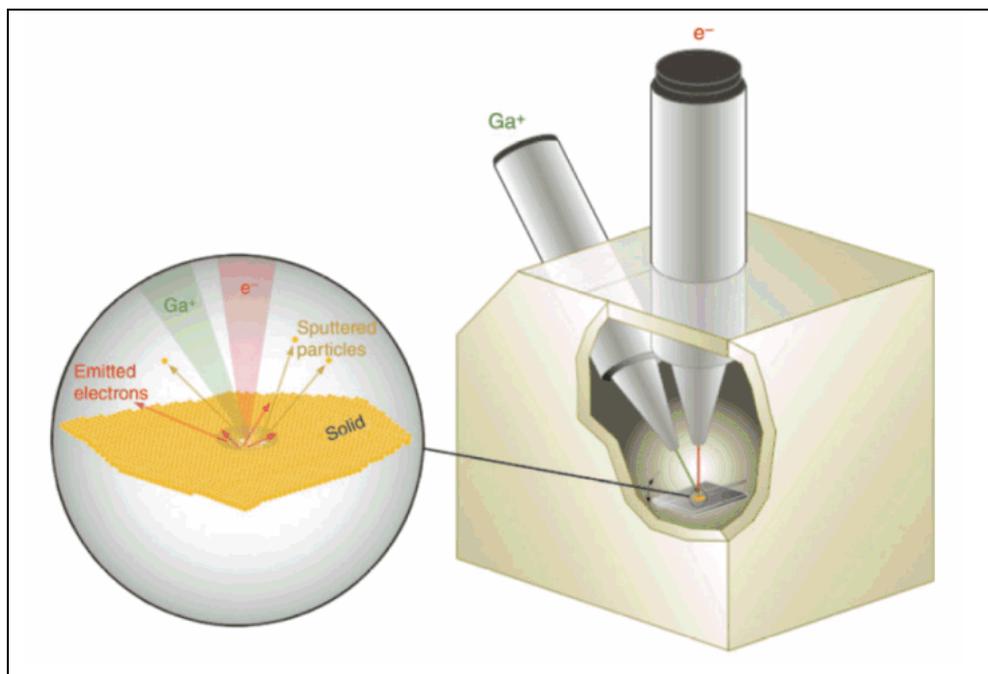


Fig. 2 - 33. Principe de fonctionnement du Focused Ion Beam [147]

Habituellement utilisé pour la modification microscopique de circuits intégrés ou l'analyse de défaillances microélectroniques, le FIB permet également de préparer des coupes minces destinées à être observées au MET. Dans notre cas, le FIB est utilisé non seulement pour préparer une section de fibre (grâce à un fort courant d'ions, voir Fig. 2 - 34) mais aussi pour mettre en évidence des différences structurales à l'intérieur de cette fibre (sous un faible courant d'ions). En effet, les microfibrilles de cellulose cristalline d'une part, et les polymères pectiques et hémicellulosiques amorphes d'autre part, présentent des résistances à la pénétration des ions gallium bien distinctes, grâce auxquelles leur organisation spatiale peut être révélée après plusieurs balayages successifs par le faisceau ionique du FIB.

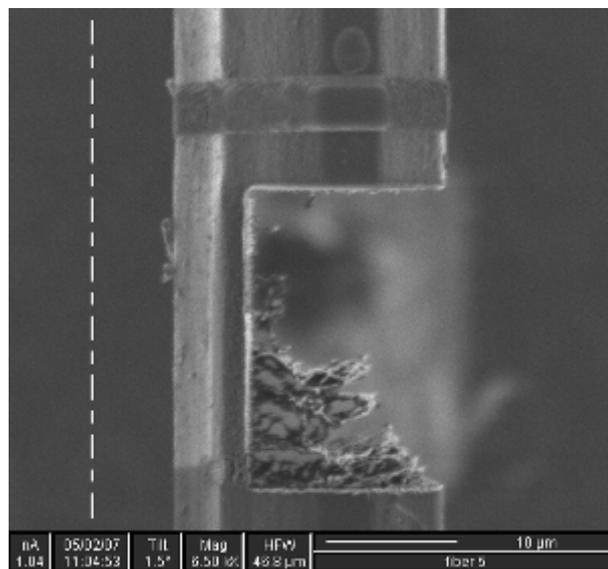


Fig. 2 - 34. Image FIB au cours de la préparation d'une section de fibre  
(l'axe de la fibre apparaît en pointillés)

#### IV.1. Protocole

Les fibres, de la variété Hermès, sont séparées manuellement du ruban peigné. Elles sont ensuite collées à leurs extrémités par de la laque argent sur un porte-échantillon métallique et protégées par une couche de quelques nanomètres d'épaisseur d'alliage Au-Pd déposé dans un évaporateur. Cela permet d'éviter à la surface de la fibre de se charger d'ions  $Ga^+$  lors de la localisation initiale de la zone d'intérêt.

Une fois le porte-échantillon et les fibres introduits dans la chambre du FIB (sous vide secondaire), une autre couche protectrice de platine ( $20 \mu m \times 20 \mu m \times 0,2 \mu m$ ) est déposée au niveau de la future zone observée, en utilisant un courant de 1 pA augmenté progressivement jusqu'à 350

pA. Ensuite, une fine bande de Pt ( $15\ \mu\text{m} \times 3\ \mu\text{m} \times 2\ \mu\text{m}$ ) est déposée sous 350 pA à l'endroit où la section sera réalisée, puis la fibre est littéralement coupée sur une partie de sa largeur par un fort courant d'ions gallium (1 nA) dont le faisceau est orienté parallèlement au plan de la section (Fig. 2 - 34). Enfin, une première image de la section est obtenue en tiltant le porte-échantillon à  $45^\circ$  et en balayant la section avec un faible courant de  $\text{Ga}^+$  (4 pA), qui permet d'obtenir une bonne résolution spatiale tout en limitant l'endommagement de l'échantillon par irradiation (Fig. 2 - 35). Les contrastes observés sont principalement dus à des contrastes de tension (et non à des contrastes topographiques comme au MEB) : alors que la section même de la fibre apparaît en gris foncé (car la fibre n'est pas très conductrice), sa surface, couverte d'alliage Au-Pd, apparaît en gris clair. On distingue relativement bien les lumens au centre des fibres.

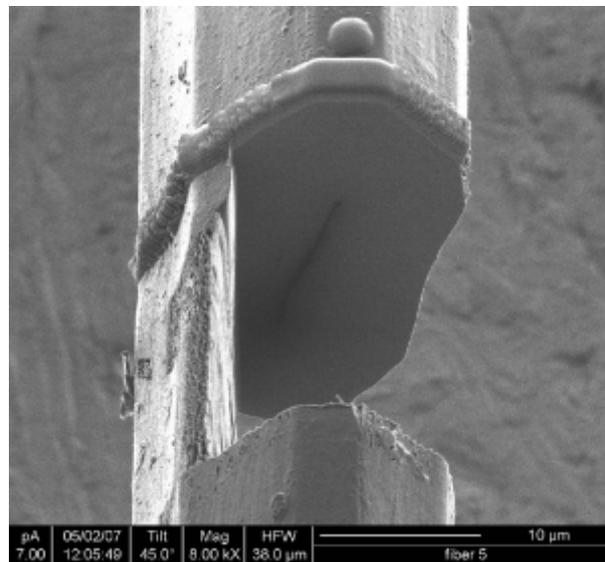


Fig. 2 - 35. Image FIB de la fibre précédente (Fig. 2 - 34) tiltée à  $45^\circ$

La surface de la section tiltée est alors balayée lentement par le faisceau d'ions et les électrons secondaires sont récupérés à intervalles réguliers pour former des images permettant de suivre l'évolution des interactions entre la fibre et les ions gallium. La dose  $D$  d'ions implantés lors de chaque balayage (en nombre d'ions/ $\mu\text{m}^2$ ) peut être calculée grâce à la formule:

$$D = \frac{It}{qA} \quad \text{Eq. 2 - 2}$$

où  $I$  est l'intensité (A),  $t$  la durée de balayage (s),  $q$  la charge de l'électron ( $1,6 \cdot 10^{-19}$  C) et  $A$  la surface balayée ( $\mu\text{m}^2$ ). Les doses reçues après quelques balayages d'ions gallium par les échantillons dont les images sont présentées dans la suite vont de  $2 \cdot 10^5$  à  $2 \cdot 10^8$  ions/ $\mu\text{m}^2$ . Pour comparaison, le nombre de groupes de cellulose (de formule  $\text{C}_6\text{H}_{10}\text{O}_5$ , de masse atomique  $M = 162$  g/mol et de densité approximative  $d = 1,5$  g/ $\text{cm}^3$ ) par unité de surface de fibre peut être calculé à partir de la relation :

$$\left(\frac{d}{M} N\right)^{\frac{2}{3}} \quad \text{Eq. 2 - 3}$$

où N est le nombre d'Avogadro ( $6,02 \cdot 10^{23}$  at/mol). L'application numérique conduit à  $3 \cdot 10^6$  groupes de cellulose par  $\mu\text{m}^2$ , ce qui est du même ordre de grandeur que la dose d'ions reçue après seulement quelques balayages d'ions gallium. En conséquence, tous les groupes cellulosiques présents au voisinage du plan de coupe de la fibre sont affectés par le faisceau d'ions  $\text{Ga}^+$  et leur interaction avec ces ions est susceptible de révéler la structure fine de la fibre de lin.

En suivant ce protocole, plusieurs images ont pu être enregistrées et analysées ; leur interprétation a permis de révéler quelques aspects originaux de la structure interne d'une fibre de lin.

## IV.2. Interprétation des images obtenues au FIB

### IV.2.a. Lamelle mitoyenne

Des balayages successifs d'ions gallium sur la zone correspondant à l'interface entre deux fibres ont été réalisés. Des trous apparaissent à partir d'une certaine dose d'ions reçus, à l'endroit de cette interface (Fig. 2 - 36) ainsi qu'autour du lumen (voir § IV.2.b). Cette interface, appelée lamelle mitoyenne, est principalement composée de pectines amorphes (cf. Chp 1 § I.1.b). Les trous apparus sont le résultat de l'interaction entre cette lamelle et le faisceau d'ions, ce qui signifie que les pectines sont particulièrement sensibles aux ions  $\text{Ga}^+$ . Ce résultat est compréhensible du fait du manque d'organisation de ces polymères amorphes à l'intérieur de cette lamelle.

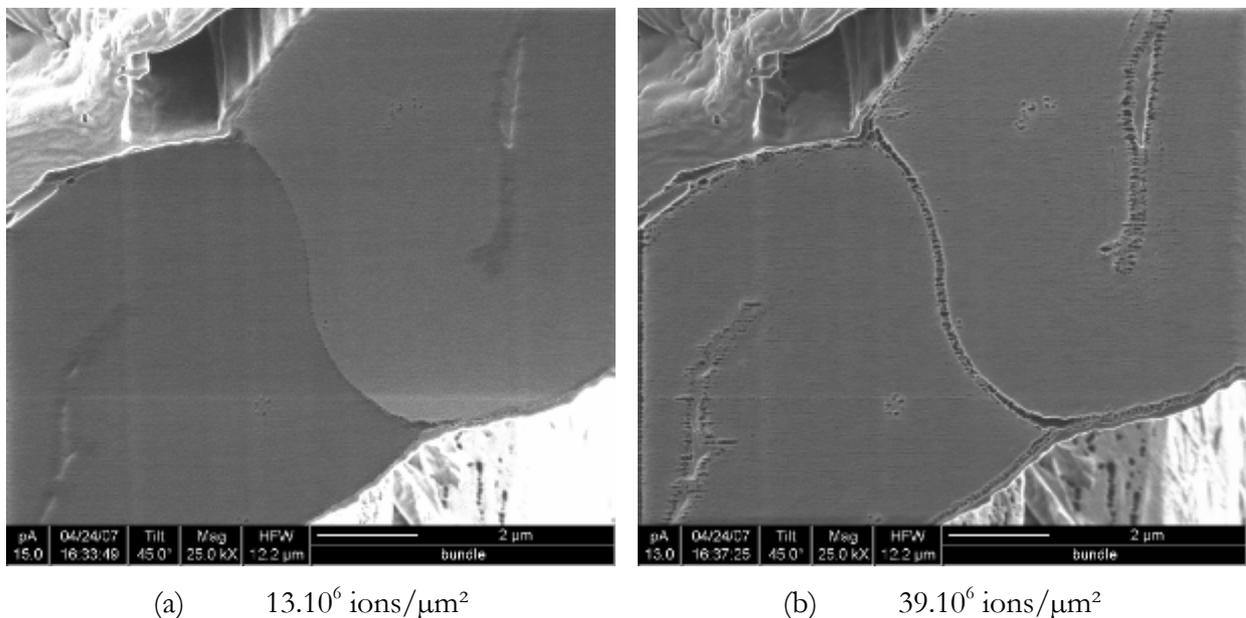


Fig. 2 - 36. Images FIB de l'interface entre deux fibres après 3 (a) ou 9 (b) balayages.

### IV.2.b. Paroi interne multi-couches

Des trous similaires à ceux apparus entre deux fibres se forment autour du lumen, à peu près pour la même dose d'ions reçue. Ils semblent délimiter 4 bandes concentriques (Fig. 2 - 37), la plus extérieure atteignant la moitié (voire les deux tiers) de l'épaisseur des parois cellulaires. Deux hypothèses (non exclusives) peuvent être avancées pour caractériser ces bandes.

Tout d'abord, ces trous apparaissent quasiment en même temps que les trous de la lamelle mitoyenne ; cette dernière étant composée principalement de pectines, il est naturel de supposer que ces lignes sombres concentriques sont elles aussi constituées de pectines. Seule une description

précise de la localisation des polymères pectiques, hémicellulosiques et cellulosiques dans les parois cellulaires permettrait de valider cette hypothèse.

Une autre explication possible à la présence de ces trous serait l'existence de chemins préférentiels favorables à la pénétration des ions gallium : si on considère que cette partie interne de la fibre est particulièrement bien organisée, c'est-à-dire que les polymères cristallins sont disposés quasiment parallèlement à l'axe de la fibre, alors les ions  $Ga^+$  du faisceau vont littéralement s'engouffrer dans les régions molles autour de ces parties cristallines, créant ainsi des sortes de tunnels. Une étude longitudinale des fibres a été entreprise (voir § IV.2.e) pour valider cette hypothèse.

Enfin, aucune relation n'a été mise en évidence entre les épaisseurs de ces quatre bandes, de l'ordre de 1  $\mu m$  chacune, et le diamètre extérieur de la fibre observée.

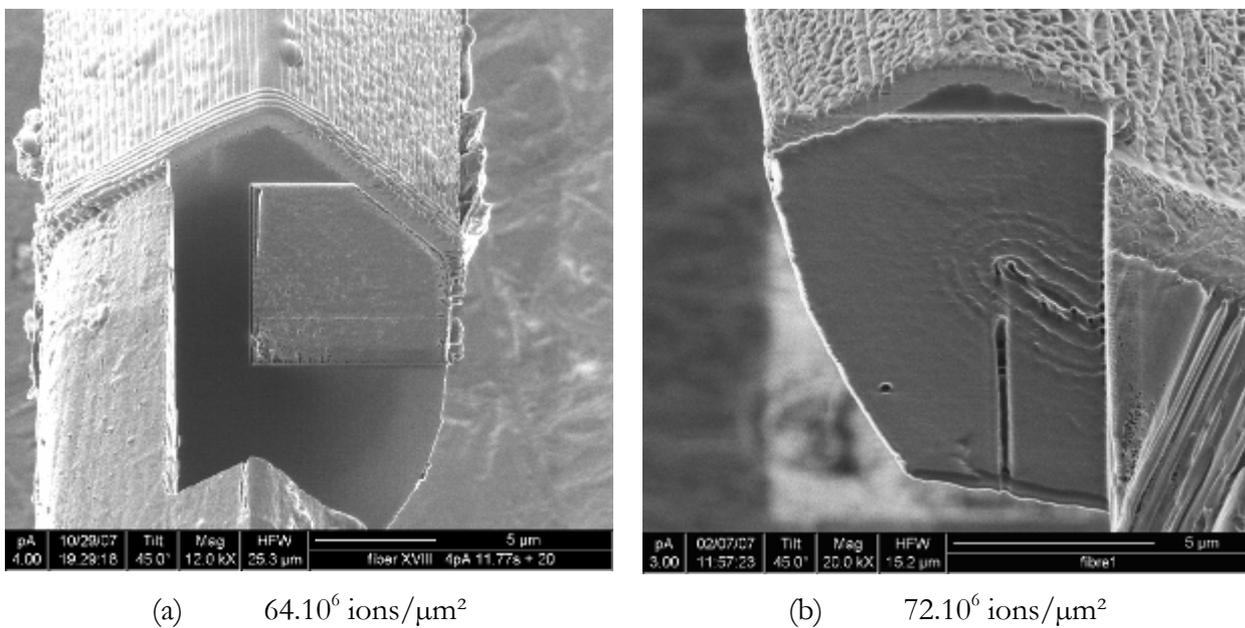


Fig. 2 - 37. Images FIB de 2 fibres après quelques balayages : mise en évidence de 4 bandes concentriques autour du lumen.

#### IV.2.c. Couche périphérique

Pour de plus fortes doses d'ions gallium, la fibre de lin présente à sa périphérie une couche apparemment insensible aux ions. Alors que la plus grande partie de la surface balayée présente des trous de plus en plus gros lorsque l'irradiation s'intensifie, cette zone reste lisse (Fig. 2 - 38). En prenant en compte le tilt de la fibre de 45°, l'épaisseur de cette couche (quasi constante sur la zone irradiée) est estimée à environ 0,6  $\mu m$ . Il n'y a donc pas lieu de l'attribuer à l'un des dépôts réalisés sur la fibre avant observation.

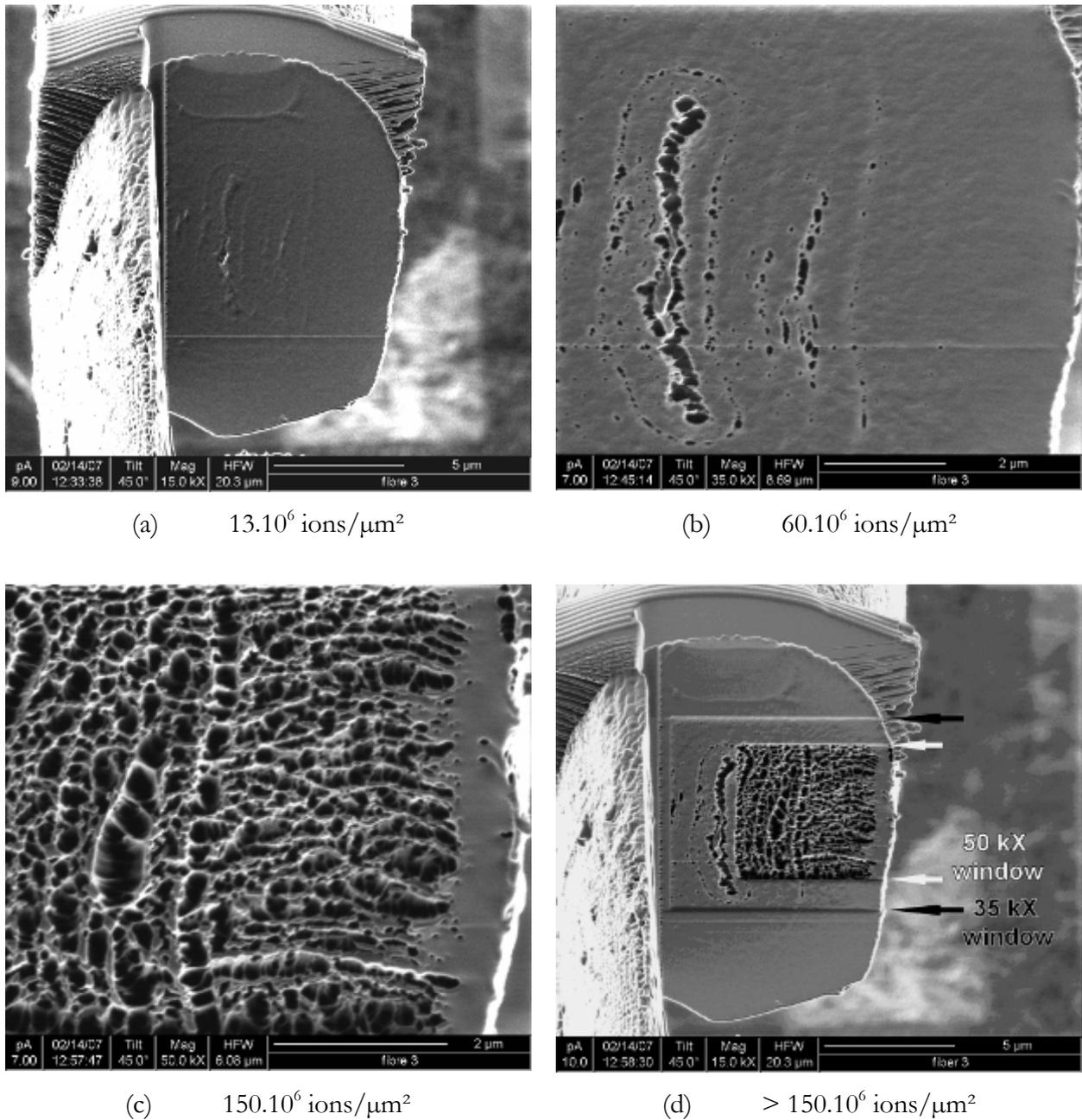


Fig. 2 - 38. Images FIB d'une même fibre après plusieurs balayages et à différents grossissements : mise en évidence d'une zone périphérique insensible aux ions gallium

#### IV.2.d. Orientation de la structure lamellaire

Des images FIB ont été faites suivant la longueur d'une fibre, c'est-à-dire que le plan de l'échantillon qui recevait le balayage du faisceau ionique était parallèle à l'axe de la fibre et passait par le lumen (Fig. 2 - 39). Il est apparu, après quelques balayages, des zones striées de part et d'autre du lumen. L'épaisseur de ces zones atteignant environ la moitié de celle de la fibre, il est concevable que ces stries soient révélatrices de la structure lamellaire de la région appelée paroi interne multicouche

mise en évidence dans le § IV.2.b (Fig. 2 - 37). Les balayages suivants réalisés sur cette section n’ont jamais fait apparaître de trou, ce qui laisse supposer que les polymères présents sont particulièrement résistants vis-à-vis des ions gallium et/ou fortement orientés suivant l’axe de la fibre. Ces remarques sont en accord avec la littérature : en effet, le principal constituant des parois, les microfibrilles de cellulose, sont à la fois très résistantes mécaniquement (du fait de leurs fortes liaisons internes) mais aussi très orientées à l’intérieur de chaque lamelle de la paroi secondaire (cf. Chp 1 § I.1.d).

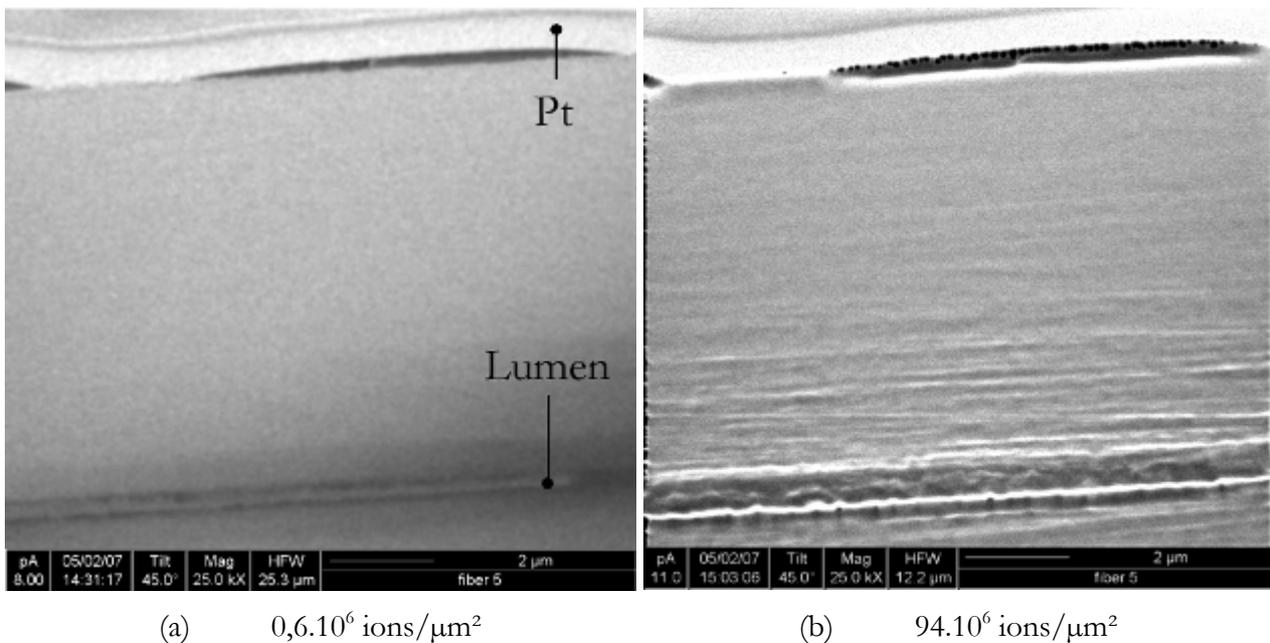


Fig. 2 - 39. Images FIB d’une fibre coupée suivant un plan parallèle à l’axe de la fibre passant par le lumen (a) : mise en évidence (après plusieurs balayages d’ions gallium) d’une orientation de la structure dans les parois les plus internes de la fibre (b).

#### IV.2.e. Observation longitudinale au niveau des trous autour du lumen

Le même type d’images qu’au paragraphe précédent a été réalisé sur des fibres dont une section perpendiculaire à leur axe avait déjà été endommagée par l’irradiation du faisceau d’ions gallium. Sur la figure 2 - 40 sont présentées les images FIB et MEB de la surface irradiée et de la surface de contrôle. Les contrastes qui apparaissent au FIB sont principalement dus aux différences de conductivités entre les constituants alors que ceux du MEB révèlent plutôt la topographie de la surface. L’utilisation des deux méthodes d’observation permet donc d’obtenir plusieurs renseignements sur la structure de la fibre et les effets de l’irradiation au gallium.

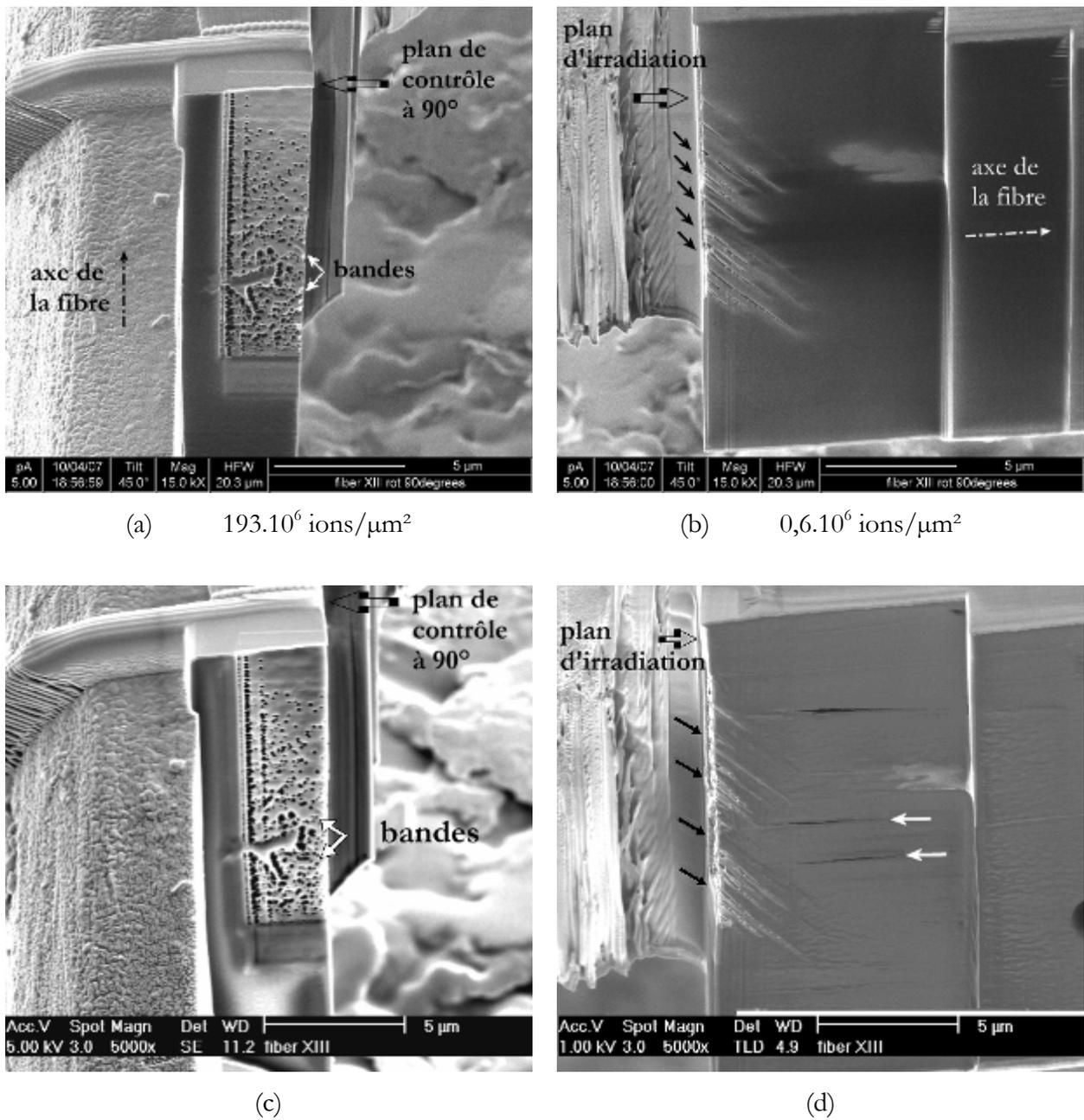


Fig. 2 - 40. Images FIB (a, b) et MEB (c, d) du plan d'irradiation initial (a, c) et du plan de contrôle à  $90^\circ$  (b, d) : mise en évidence de l'endommagement d'irradiation (flèches noires) et d'une organisation longitudinale de la structure interne (flèches blanches)

La surface irradiée, obtenue de la même façon que les fibres présentées précédemment, est le résultat de nombreux balayages successifs, d'où la forte dose d'ions gallium reçue. Les bandes autour du lumen ne sont plus très visibles mais elles ont pu être localisées précisément à partir d'images prises au cours des balayages. Sur la face de contrôle, on peut tout d'abord distinguer l'endommagement provoqué par le faisceau ionique sur le plan d'irradiation (flèches noires), jusqu'à une profondeur de 1 à 2  $\mu\text{m}$ . Ensuite, il apparaît sur cette même image des traits sombres, cette fois dans le volume de la fibre, indiqués par les flèches blanches pleines : ces traits se situent exactement

au même niveau que certains trous localisés autour du lumen (Fig. 2 - 40c). Ils pourraient donc correspondre soit à des tunnels creusés à partir du plan d'irradiation dans des zones molles ou entre des zones où la structure est très orientée, soit à des tunnels déjà présents dans la structure non-irradiée de la fibre et révélés par le balayage sur la face de contrôle. Le fait que ces traits soient visibles sur des images MEB et non sur des images FIB est révélateur d'un contraste géométrique plutôt que chimique.

Là encore (cf. § IV.2.c), d'après ces observations, une hypothèse probable est que les bandes autour du lumen soient constituées de matière molle (par exemple, de pectines) située entre les polymères plus rigides orientés parallèlement à l'axe de la fibre. Cela expliquerait la présence des tunnels sur la figure 2 - 40d au même endroit que les trous localisés autour du lumen.

#### IV.2.f. Présence d'eau dans les parois

La réalisation d'une coupe de fibre au FIB a parfois permis d'observer la présence d'eau dans les parois cellulaires. Un exemple est donné dans la figure 2 - 41.

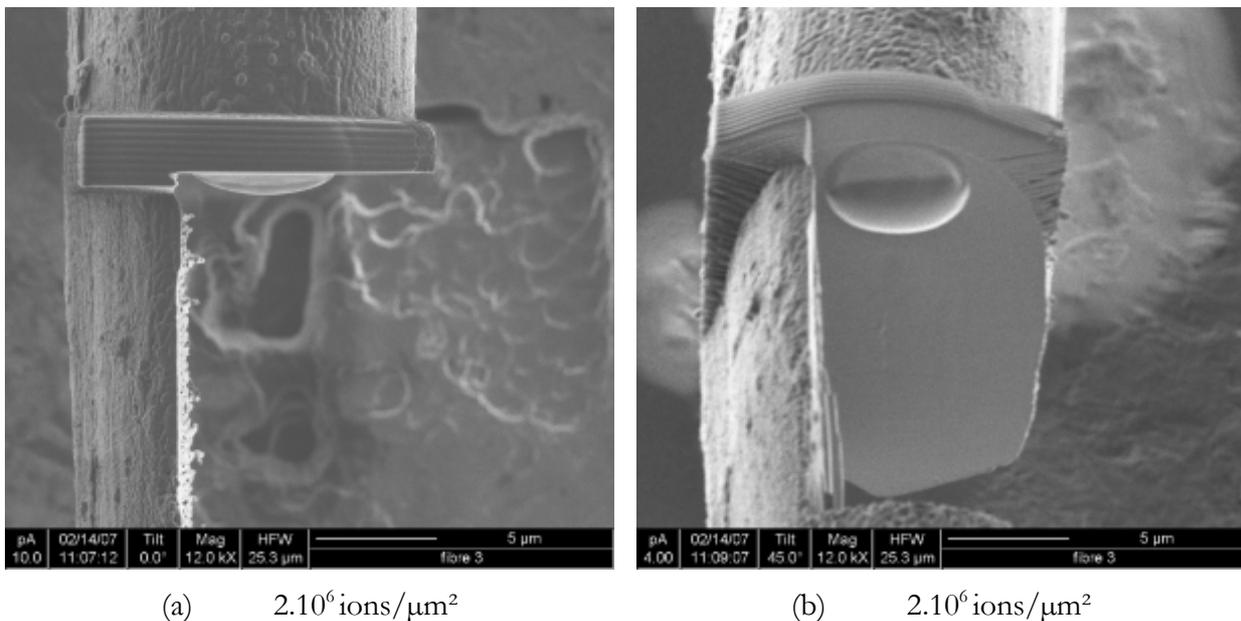


Fig. 2 - 41. Images FIB d'une fibre de lin présentant une bulle d'eau

L'origine de la présence d'eau sous la forme d'une seule grosse bulle est inconnue. Ce qui est remarquable, c'est qu'elle apparaît toujours au début de l'observation, c'est-à-dire peu de temps après avoir été mise sous vide secondaire, et toujours du même côté de la fibre (celui qui « reçoit » le faisceau ionique en premier). Quelques balayages suffisent pour la faire disparaître.

## IV.2.g. Observation de macrofibrilles

Enfin, pour clore les observations des fibres de lin faites au FIB, quelques images originales sont présentées dans la figure suivante. Il semble a priori qu'il s'agisse d'un étirement local des parois cellulaires laissant apparaître les macrofibrilles, suivi d'un « recollement » des deux zones de la fibre. Cependant, la discontinuité qui apparaît sur une des faces (indiquée par la flèche blanche) ne semble pas présenter de fissures mais ressemble plutôt à une soudure. Ces images permettent d'estimer la taille des macrofibrilles de cellulose à environ  $0,3 - 0,5 \mu\text{m}$ , ce qui est l'ordre de grandeur donné dans la littérature [2].

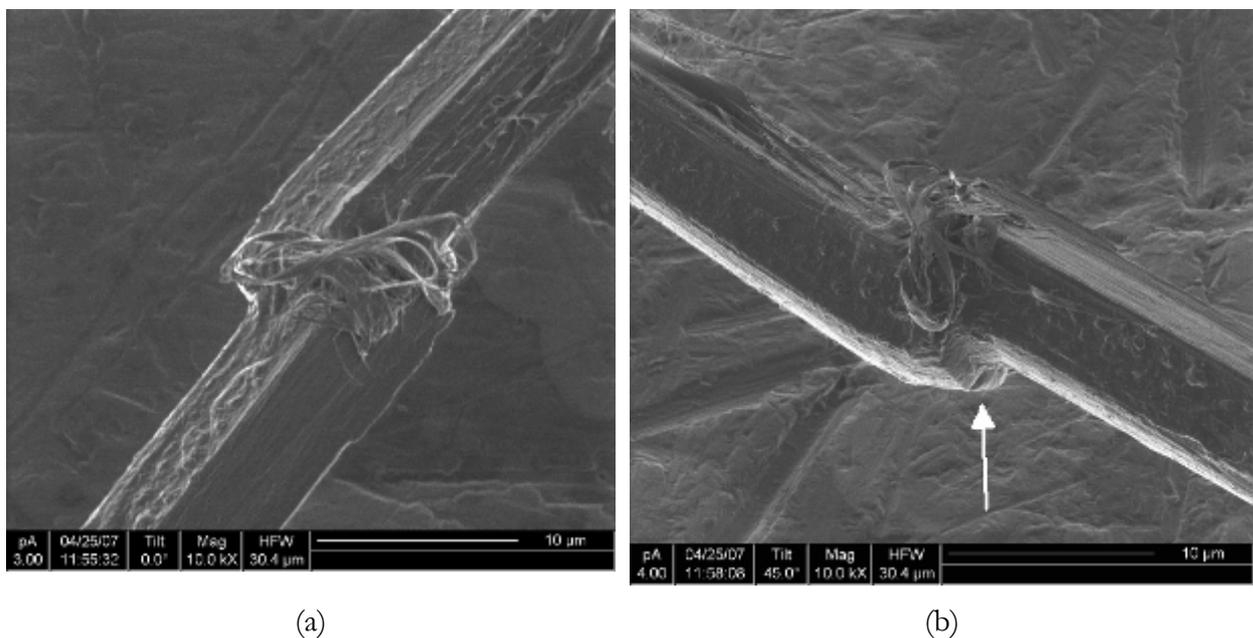


Fig. 2 - 42. Images FIB d'un « défaut » d'une fibre de lin : mise en évidence des macrofibrilles et d'une sorte de soudure (indiquée par la flèche blanche)

### IV.3. Hypothèses sur la structure interne des fibres

D'après les interprétations des images obtenues au FIB, un nouveau schéma d'organisation des parois cellulaires est envisageable (Fig. 2 - 43), même si l'attribution des noms empiriques S1, S2 et S3 (cf. Chp 1 § I.1.c) n'est pas réalisable. En effet, d'après cette étude, une fibre de lin se compose tout d'abord d'une couche extérieure d'épaisseur approximative  $0,6 \mu\text{m}$  et apparemment insensible aux ions gallium, ce qui laisse supposer qu'elle est soit mal organisée, soit très rigide ; ensuite, vers le centre, d'une couche intermédiaire plutôt uniforme et assez sensible au faisceau d'ions ; enfin, d'une couche interne de  $3 \text{ à } 4 \mu\text{m}$  d'épaisseur constituée elle-même de 4 sous-couches concentriques d'épaisseurs identiques séparées par des interfaces très sensibles vis-à-vis des ions gallium.

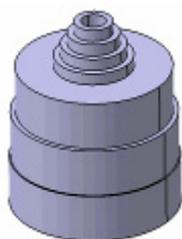


Fig. 2 - 43. Représentation schématique de l'organisation des parois cellulaires d'une fibre de lin (seules leurs épaisseurs sont représentées, et non l'orientation de leurs microfibrilles)

Concernant la première couche, il est probable qu'elle corresponde à la couche appelée S1 dans la littérature, d'une part parce que son homogénéité vis-à-vis du faisceau d'ions empêche d'y inclure la paroi primaire, d'autre part parce que cette dernière a une épaisseur d'environ  $0,2 \mu\text{m}$  [25,107] et est le plus souvent retirée en même temps que la lamelle mitoyenne lors d'une extraction manuelle de fibres unitaires [28].

Le positionnement des couches S2 et S3 est plus délicat, parce que peu d'informations sont disponibles dans la littérature sur la couche S3. L'apparition au FIB des 4 sous-couches internes conduit à formuler deux hypothèses : soit ces sous-couches correspondent à une transition progressive de la couche S2 vers la couche S3, qui ne mesurerait alors pas plus de  $1 \mu\text{m}$  d'épaisseur, soit elles appartiennent simplement à la couche S3. Le premier argument a l'avantage d'être plutôt en accord avec la théorie des hélicoïdes transitoires de Roland [27] : le changement d'orientation des microfibrilles d'une lamelle à une autre provoque localement, i.e. quand elles sont exactement parallèles à l'axe de la fibre, des « tunnels » pour les ions gallium visibles au FIB, et la régularité de l'écart entre deux sous-couches pourrait être liée à la régularité du décalage d'orientation des microfibrilles. En plus, cela confirmerait que la couche S2 est bien la plus épaisse de la fibre.

## V. Synthèse : diamètre des fibres

Les valeurs moyennes déterminées dans ce chapitre sont résumées dans le tableau 2 - 6. Elles conduisent à un diamètre moyen calculé sur ces 35 000 fibres de  $19 \mu\text{m}$ , toutes origines variétales et spatiales confondues.

méthode	variété	position	nombre de fibres	taille ( $\mu\text{m}$ )	§
Sections de fibres enrobées	Hermès	aléatoire	822	$19,3 \pm 5,5$	I.2.a
	Hermès	sommet	498	$14,0 \pm 4,0$	I.3
		milieu	855	$12,4 \pm 3,2$	
		ped	903	$16,5 \pm 5,1$	
	Agatha	sommet	813	$13,7 \pm 4,1$	
		milieu	1352	$13,6 \pm 3,9$	
		ped	1406	$15,7 \pm 3,7$	
Sections de tiges	Hermès	milieu	5696	17,5	
		ped	4925	26,0	
	Agatha	sommet	2271	15,5	
		milieu	6047	16,4	
		ped	2777	21,1	
Coupes s�riees de tiges	Hermès	milieu	3864	19,4	II.2.b
		ped	2716	30,4	
Observation longitudinale	Hermès	milieu	20	$19,2 \pm 3,4$	III.2.a

Tableau 2 - 6. R sum  des dimensions moyennes des fibres mesur es par diff rentes m thodes pr sent es dans le chapitre.

---

## Conclusion

La conclusion principale de l'étude morphologique réalisée sur les fibres de lin concerne la forte dispersion des dimensions des fibres, notamment de leur diamètre (cf. Tableau 2 - 6). D'après ce tableau, il semblerait que les fibres de la variété Agatha soient sensiblement plus fines que celles de la variété Hermès. Cette finesse peut soit provenir naturellement du matériel génétique propre à cette variété, soit être engendrée par des conditions de croissance et d'extraction particulières. Pour rappel, ces deux types de tiges n'ont pas été cultivées la même année, n'ont pas été récoltées dans le même champ, n'ont pas été rouies sous le même climat ni teillées par les mêmes machines. Ces deux sources, intrinsèque (génétique) ou extrinsèque (environnementale et technique), de différences morphologiques doivent certainement cumuler leurs effets et expliquer les disparités dimensionnelles des fibres.

Pour chaque étude, l'évolution des tailles des fibres en fonction de leur position dans la tige est relativement stable : elle est globalement croissante du sommet jusqu'au pied des tiges. Ceci est en accord avec le mode de croissance du lin (cf. Chp 1 § I.2) : les fibres basales, du fait notamment d'un manque d'intensité lumineuse, ont une morphologie assez grossière comparées aux fibres apicales qui, elles, voient leur croissance stoppée prématurément par le déclenchement de la floraison ; les fibres médianes, considérées comme intermédiaires entre les deux cas précédents, tant de par leur position que par les conditions climatiques et génétiques, présentent une porosité et une finesse optimales. De plus, d'après la littérature, la longueur des fibres est également maximale dans cette zone. L'analyse détaillée de coupes de tiges a permis de déterminer que cette zone médiane se situait entre 20 et 60 cm du sol. L'application directe de ce résultat est la possibilité d'améliorer la sélection des fibres de morphologie optimale.

A propos des différences observées dans les mesures de taille de fibres en fonction de la méthode utilisée, il apparaît que la première méthode, qui consistait à traiter chimiquement les fibres puis à les enrober dans une matrice époxy, conduit à des tailles moyennes inférieures à celles déterminées par les autres méthodes. Pourtant, le protocole ne peut pas être mis en cause car les résultats de l'étude faite sur des fibres aléatoirement sélectionnées dans les tiges reflètent exactement la moyenne de l'ensemble des analyses. Une mauvaise sélection des fibres n'est pas non plus envisageable car les moyennes relatives des tailles de fibres prélevées au sommet, au milieu et au pied sont en accord avec les différents modes de croissance de chaque zone de tige. Reste alors l'hypothèse de réactivité plus forte des parois des cellules sélectionnées vis-à-vis des traitements

infligés par ce protocole, qui peut entraîner la disparition des parois les plus extérieures, diminuer leur diamètre apparent et conduire à une sous-estimation de la taille réelle des fibres.

Enfin, il est essentiel de garder en mémoire que la taille d'une fibre peut, sur quelques millimètres seulement, varier du simple au triple (cf. § III). L'évolution de la taille du lumen serait une information intéressante à collecter, car rien ne dit que cette dimension est constante sur la longueur d'une fibre, ni qu'elle n'a aucune influence sur le profil extérieur de la fibre. Des coupes sériées de fibres réalisées au FIB permettraient de juger si les dimensions du lumen et/ou des 4 bandes qui l'entourent jouent un rôle sur les variations de diamètre d'une fibre. Quoi qu'il en soit, tous les calculs, notamment de propriétés mécaniques, qui nécessiteront l'utilisation de la taille des fibres ne seront à chaque fois que des estimations, qui devront être pondérées par la prise en compte de ces incertitudes morphologiques.



## Chapitre 3

# Analyse mécanique de la fibre de lin

Dans ce chapitre sont présentés les résultats des essais de traction menés sur des fibres de lin. Comme expliqué précédemment, la taille des fibres limite considérablement les possibilités d'essais mécaniques. Un essai de flexion 3 points serait par exemple très délicat à mettre en place, tant en ce qui concerne la configuration de l'essai que pour les mesures de la flèche et de la force. Par contre, moyennant quelques précautions, la traction uniaxiale est relativement plus facile à mettre en œuvre pour l'étude de la loi de comportement.

Après une brève description du déroulement d'un essai de traction d'une fibre unitaire et un rappel des paramètres mécaniques que l'on peut estimer à partir des courbes contrainte-déformation, les résultats des essais sont présentés et discutés en fonction de différentes caractéristiques morphologiques de la fibre de lin. Quelques particularités des propriétés mécaniques des fibres de lin, telles que la dispersion ou la variation en fonction de la taille des fibres, sont décrites et des explications sont proposées sur la base de leur morphologie. Enfin, une hypothèse de mode de déformation d'une fibre de lin est proposée, permettant de relier le comportement en traction de la fibre avec sa microstructure.

# I. Protocole des essais de traction

## I.1. Déroulement d'un essai

Préalablement à un essai de traction, la fibre est collée sur un cadre en papier et ses dimensions sont mesurées : sa longueur libre entre les bords du papier est estimée grâce à un pied à coulisse et sa section nominale, supposée circulaire, est calculée à partir de la moyenne des diamètres projetés observés en plusieurs points (environ 5) par microscopie optique. Les bords du papier sont ensuite serrés entre les mors de la machine d'essais et la sollicitation est appliquée à vitesse de déplacement de traverse constante (dans le cas d'un essai monotone à vitesse imposée). En cours d'essai, la force appliquée à l'échantillon est enregistrée de façon continue, ainsi que le déplacement de son point d'application (qui correspond ici au déplacement de la traverse mobile). Un exemple d'essai mené jusqu'à rupture de la fibre est schématisé figure 3 - 1.

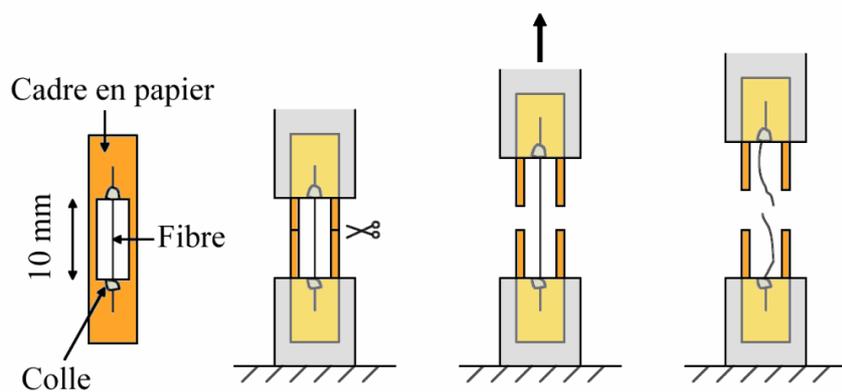


Fig. 3 - 1. Schéma de déroulement d'un essai de traction d'une fibre de lin

## I.2. Détermination des propriétés mécaniques

La contrainte et la déformation de la fibre à chaque instant de l'essai sont calculées à partir des données brutes force - déplacement, grâce aux équations suivantes :

$$\sigma = \frac{F}{S} \quad \text{Eq. 3 - 1} \quad \text{et} \quad \varepsilon = \frac{l}{l_0} \quad \text{Eq. 3 - 2}$$

avec  $\sigma$  la contrainte (en MPa),  $F$  la force (en N),  $S$  la section de l'échantillon (en mm<sup>2</sup>),  $\varepsilon$  la déformation,  $l$  la longueur de l'échantillon (en mm) et  $l_0$  la longueur initiale de l'échantillon (en mm).

Un exemple de courbe contrainte-déformation obtenue est donné dans la figure 3 - 2.

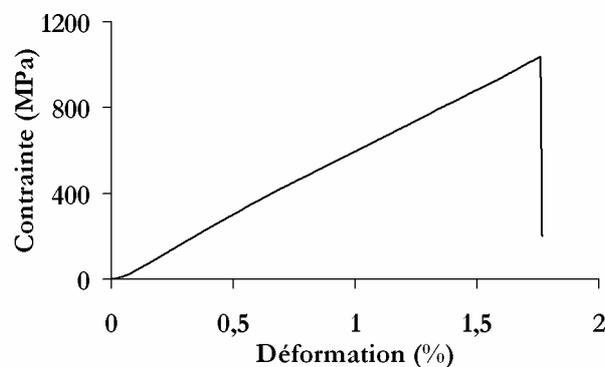


Fig. 3 - 2. Courbe contrainte-déformation d'une fibre testée à 1 mm/min.

Deux des principales propriétés déduites de ces essais sont la contrainte et la déformation à rupture de la fibre ; elles permettent d'estimer sa résistance et son allongement maximaux. D'autre part, à partir de la pente de la zone linéaire de la courbe contrainte-déformation, un module d'élasticité  $E$ , ou module d'Young (en GPa), peut être défini selon :

$$E = \frac{\sigma}{\varepsilon} \quad \text{Eq. 3 - 3}$$

Certains auteurs [132] recommandent d'estimer le module d'élasticité à partir de la pente globale de la courbe contrainte-déformation, c'est-à-dire le module sécant. Cependant, le début de la courbe est généralement assimilé à une mise en place de l'échantillon et du dispositif de traction plutôt qu'à une réponse mécanique de la fibre elle-même. Aux plus fortes déformations, la courbe de comportement est quasiment linéaire. C'est à partir de la mesure de la pente dans cette zone que sera estimé par la suite le module d'élasticité de chaque fibre.

Une autre méthode d'évaluation du module d'élasticité des fibres a été proposée par Perrin *et al.* [148]. Le principe est de placer la fibre dans la configuration d'une poutre encastree et de la

solliciter de telle sorte à la faire vibrer à fréquence croissante jusqu'à obtenir une de ses fréquences de résonance, révélée par une augmentation dans l'amplitude des oscillations. Ensuite, grâce à la théorie des ondes, la connaissance de cette fréquence, des dimensions de la fibre et de sa densité, permet d'estimer son module d'élasticité. Des essais conduits sur des fibres de verre ont validé cette technique. Cependant, après quelques essais menés sur les fibres de lin, il est apparu que leur faible densité et leur forme irrégulière rendaient leur comportement dynamique extrêmement tributaire de l'aspect aérodynamique à travers l'amortissement induit par le couplage avec l'air [147]. La mesure de leur rigidité par cette méthode n'était pas donc envisageable.

### I.3. Présentation des essais réalisés

Dans cette étude, deux machines d'essais mécaniques ont été utilisées : une MTS équipée d'une cellule de charge de 2N et une Instron (type 5566) munie d'une cellule de 10 N (Fig. 3 - 3a). Toutes deux sont des dispositifs électromécaniques et possèdent le même système de mors (serrage manuel, Fig. 3 - 3b). Les fibres claires se distinguant mieux sur un fond sombre, un cadre noir était fixé à l'arrière de la machine pour permettre un bon positionnement vertical de la fibre entre les mors. L'acquisition des données (force et déplacement) était faite à une fréquence comprise entre 10 et 100 Hz. La longueur libre des fibres était de l'ordre de 10 mm et, sauf indication contraire, les essais étaient menés à une vitesse de déplacement de traverse de 1 mm/min, afin que les résultats obtenus puissent être comparés à une grande partie des données de la littérature.

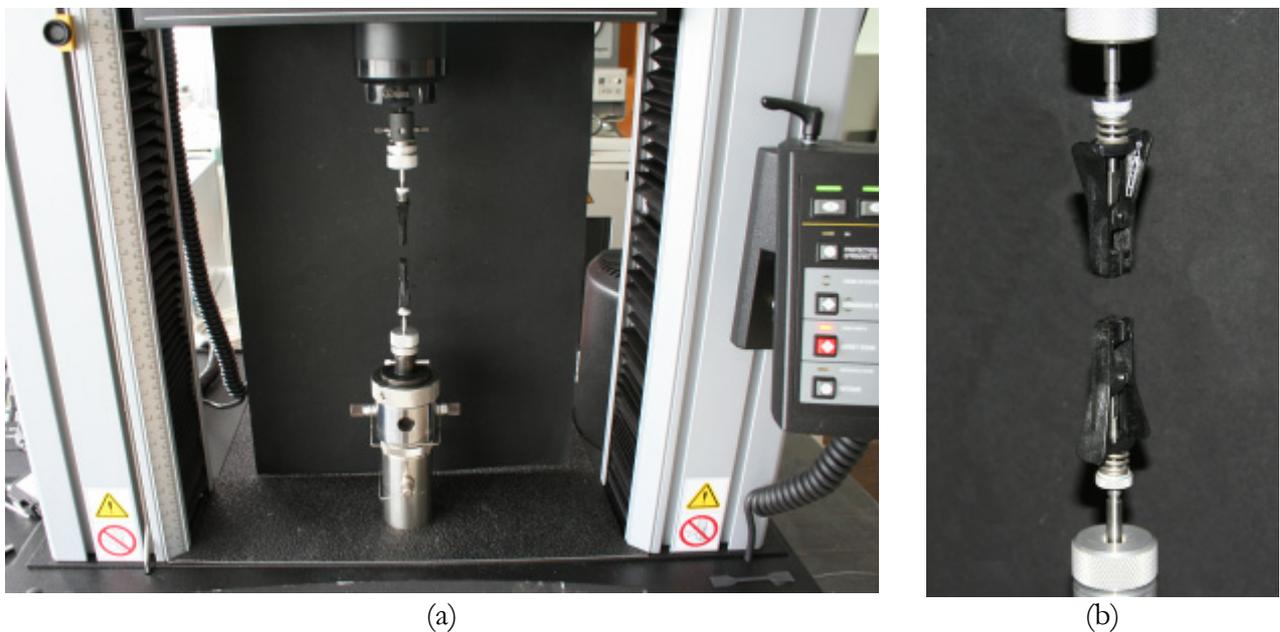


Fig. 3 - 3. Machine de traction Instron (a) équipée d'une cellule de 10 N  
et de mors à serrage manuel (b)

La mise en tension initiale de la fibre, qui, bien que collée sur le cadre en papier, n'est pas parfaitement tendue avant l'essai, conduit à un déplacement de l'échantillon pouvant atteindre quelques dixièmes de millimètres, alors que la force reste nulle ; après essai, ce palier est retiré de la courbe et sa longueur est ajoutée à la longueur initiale de la fibre (utilisée pour le calcul de la déformation).

L'influence de plusieurs paramètres relatifs soit aux essais de traction, soit aux fibres a été étudiée. Tout d'abord, des essais ont été menés sur des fibres de variété et de position dans la tige

différentes, afin de vérifier les conclusions des études biochimiques (cf. Annexe 1) et morphologiques (cf. Chp 2). L'influence de deux traitements (connus pour faciliter l'extraction des fibres unitaires des faisceaux) sur les propriétés mécaniques a été analysée. D'autre part, des fibres ont été testées à différentes vitesses de déformation afin d'évaluer leur caractère élasto-visco-plastique.

Les influences de l'hygrométrie et de la température n'ont pas été étudiés ici, mais de nombreux travaux [4,19,66] ont reporté l'importance de ces deux paramètres sur le comportement mécanique des fibres végétales (cf. Chp 1 § II.3.e). Dans les paragraphes qui suivent, la comparaison entre les données de différents tableaux doit être modérée par ce problème de teneur en eau ; par contre, les résultats d'une même expérience ont toujours été obtenus dans des conditions stables de température et d'humidité.

Rappelons enfin que le terme de diamètre, largement utilisé dans ce chapitre, correspond à un diamètre nominal, c'est-à-dire à la projection des fibres observées soit en microscopie optique soit en microscopie à balayage, en partant de l'hypothèse d'une géométrie parfaitement cylindrique. Même si cette simplification (cf. Chp 2 § III) entraîne une forte approximation des propriétés, elle est néanmoins nécessaire pour permettre une comparaison des propriétés en fonction des différents paramètres de l'étude.

## II. Résultats des essais de traction

### II.1. Résultats préliminaires : validation du calcul du module d'élasticité

Les premiers essais ont été menés sur 122 fibres de la variété Hermès prélevées aléatoirement dans un ruban peigné et préparées comme décrit précédemment. Les valeurs des propriétés mécaniques déterminées expérimentalement (Tableau 3 - 1) sont en accord avec la littérature (cf. Chp 1 § II.3.a, Tableau 1 - 7), ce qui valide la méthode d'essai. La faible déformation à rupture, de l'ordre de 2%, traduit un comportement fragile de la fibre de lin.

	d ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_r$ (MPa)	$\epsilon_r$ (%)	E (GPa)
expérimental	16,6 $\pm$ 4,1	1251 $\pm$ 692	2,3 $\pm$ 1,1	63 $\pm$ 36
bibliographie	-	600 - 2000	1 - 2,4	12 - 100

Tableau 3 - 1. Comparaison des données de la bibliographie et des résultats des essais de traction

En fonction de leur allure générale, les courbes de comportement peuvent être réparties en 3 catégories, sans lien direct avec les dimensions des fibres (Fig. 3 - 4) ; en effet, alors que certaines semblent quasiment linéaires durant tout le chargement, d'autres laissent apparaître 2 voire 3 pentes distinctes, qui peuvent conduire a posteriori à des écarts sur le module d'élasticité jusqu'à 30 GPa. Il n'est donc pas concevable de définir systématiquement le module d'élasticité comme la pente initiale de la courbe contrainte-déformation, comme il est usuel pour les matériaux « classiques ».

D'autre part, la pente de la courbe contrainte-déformation qui reflète le mieux la rigidité de la fibre est celle obtenue lors du déchargement de l'échantillon. Deux exemples sont donnés dans la figure 3 - 5. Il apparaît que la pente à la décharge est plus proche de la pente de la zone finale que de celle de la zone initiale de la courbe, ou même que de la pente globale. Cette considération permet de valider l'utilisation, pour le calcul du module d'élasticité, de la pente de la zone linéaire finale de la courbe, correspondant au comportement de la fibre juste avant sa rupture.

Par ailleurs, il peut être noté que l'hystérésis, définie par l'aire entre les branches de déchargement et de rechargement, est très faible devant l'aire totale sous la courbe de chargement. Sur la dizaine de fibres testées de cette façon jusqu'à la rupture, le rapport entre ces deux aires était d'environ 3%, ce qui tendrait à prouver le faible caractère visqueux de la fibre de lin.

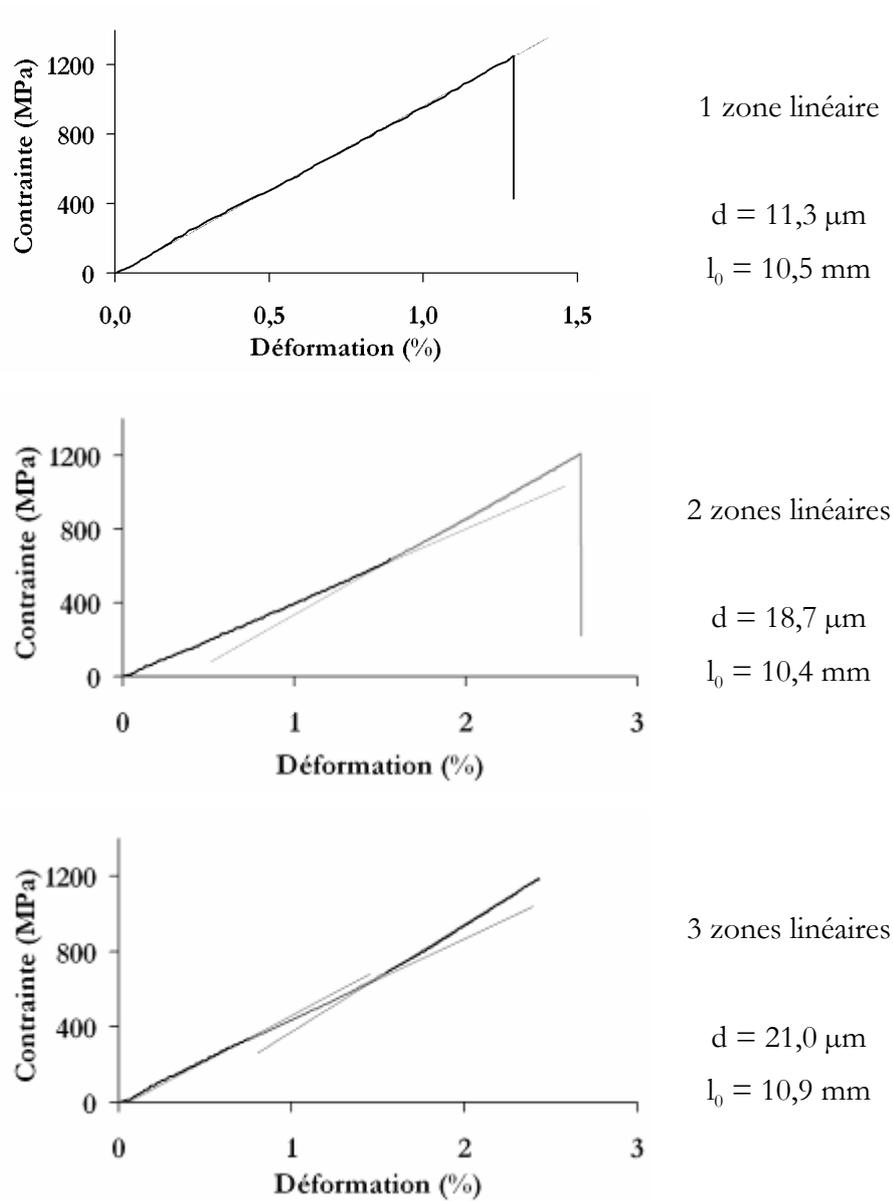


Fig. 3 - 4. Représentation des 3 allures typiques des courbes contrainte-déformation des fibres de lin

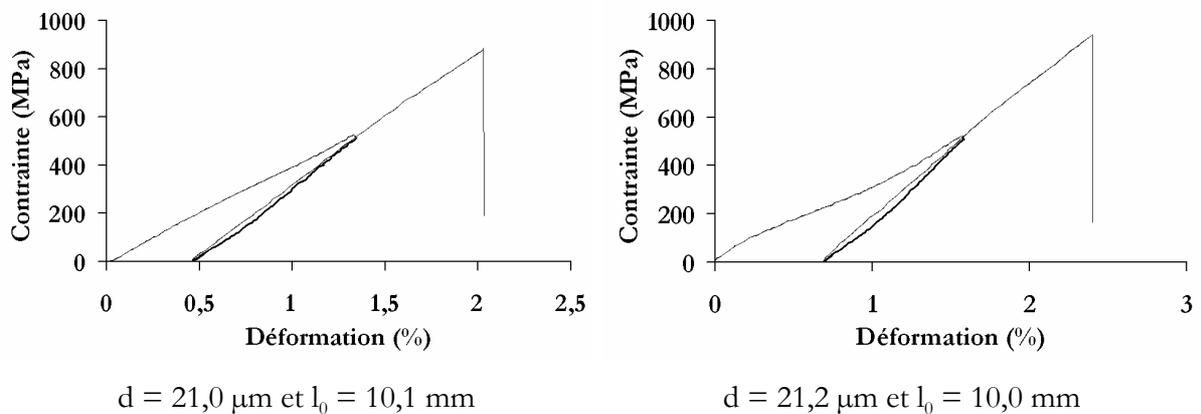


Fig. 3 - 5. Courbes contrainte-déformation pour deux fibres (seuil de déchargement : 0,18 N ; seuil de rechargement : 0,00 N) ; la partie en gras correspond au déchargement de la fibre

## II.2. Influences de la variété des fibres et de leur localisation dans la tige

Les résultats des essais de traction sur des fibres de la variété Hermès ou de la variété Agatha sont regroupés dans le tableau suivant, en prenant en compte la localisation des fibres dans la tige. Les valeurs sont globalement en accord avec les données de la littérature (cf. Tableau 1 - 7).

	Hermès					Agatha				
	n	d (µm)	$\sigma_r$ (MPa)	$\epsilon_r$ (%)	E (GPa)	n	d (µm)	$\sigma_r$ (MPa)	$\epsilon_r$ (%)	E (GPa)
Sommet	36	19,0	1129	1,9	59	57	21,5	753	1,8	51
		± 3,5	± 390	± 0,4	± 18		± 5,3	± 353	± 0,7	± 22
Milieu	37	20,2	1357	2,3	63	45	21,3	861	1,8	55
		± 6,8	± 739	± 0,5	± 29		± 6,3	± 417	± 0,7	± 24
Pied	31	20,1	755	1,6	47	59	23,5	783	2,0	51
		± 4,1	± 384	± 0,5	± 16		± 7,9	± 347	± 0,9	± 26

Tableau 3 - 2. Propriétés mécaniques moyennes (contrainte à la rupture  $\sigma_r$ , déformation à la rupture  $\epsilon_r$  et module d'élasticité E), diamètre moyen (d) et quantité (n) de fibres de variété Hermès ou Agatha et prélevées au sommet, au milieu ou au pied des tiges

La première conclusion importante du tableau 3 - 2 et des graphes comparatifs de la figure 3 - 6 est que les fibres de la variété Hermès semblent présenter de meilleures propriétés que les fibres de la variété Agatha, en particulier en ce qui concerne la contrainte à la rupture. La deuxième est que les fibres prélevées au milieu des tiges possèdent des modules d'élasticité et des contraintes à la rupture plus élevés que ceux des fibres provenant du sommet ou du pied des tiges. Ces deux résultats sont en accord avec le bilan des analyses biochimiques et morphologiques. Il semble donc qu'une organisation structurale définie à la fois par une porosité minimale et par des teneurs élevées en cellulose et en polymères incrustants puisse être corrélée à de bonnes propriétés des fibres de lin en traction. Un troisième point révélé par ces graphes est la forte dispersion des propriétés (écart-types relatifs de l'ordre de 45 % pour le module et la contrainte), qui sera discutée ultérieurement.

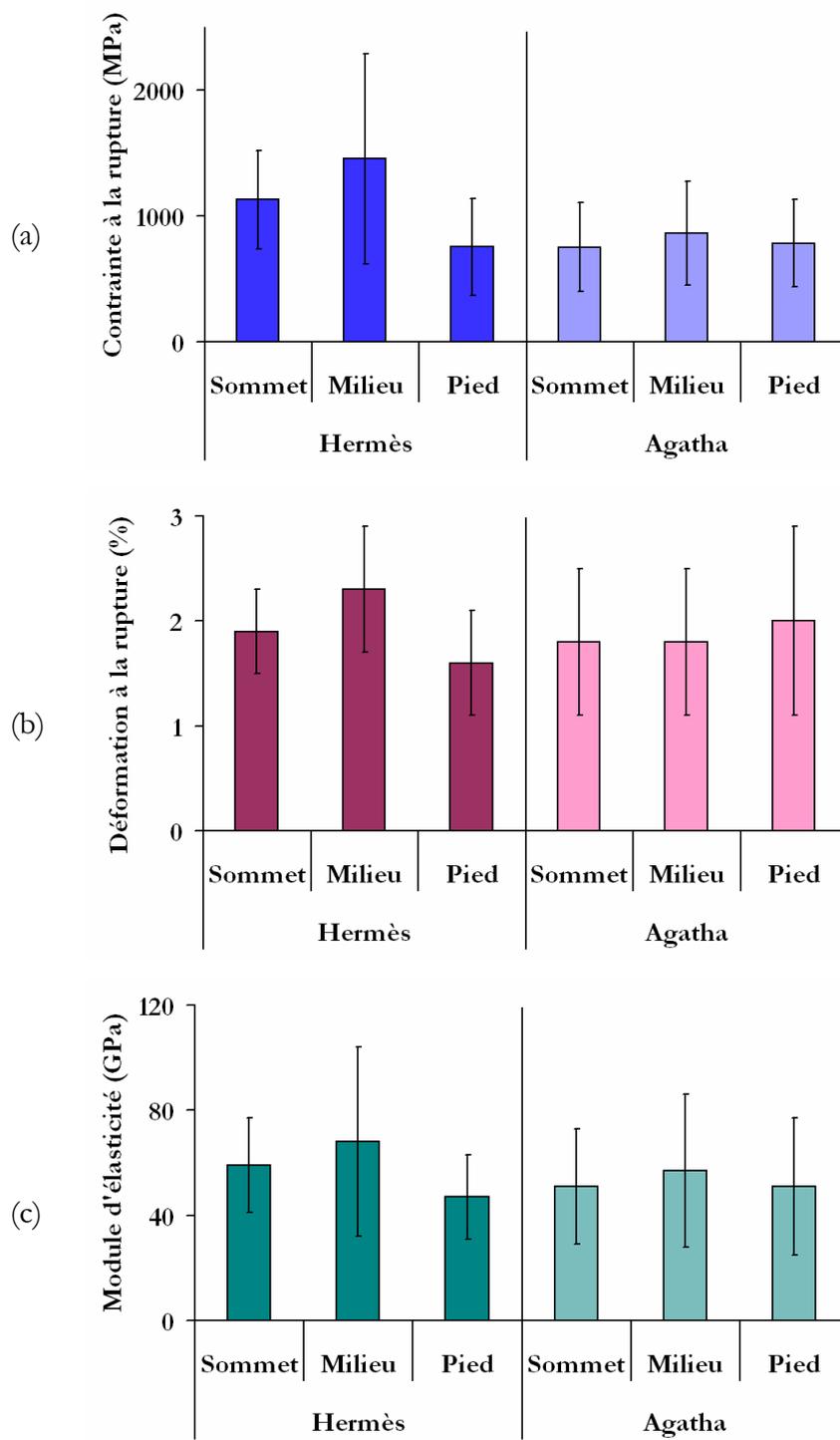


Fig. 3 - 6. Propriétés mécaniques moyennes de fibres de variété Hermès ou Agatha en fonction de leur zone de prélèvement dans la tige

### II.3. Influence des traitements de séparation des fibres de lin

Parmi les traitements facilitant l'extraction des fibres de lin de leurs faisceaux natifs par élimination du ciment pectique présent dans la lamelle mitoyenne, ceux à l'eau bouillante ou à l'EDTA (cf. Chp 1 § I.1.b et II.1.c) sont censés n'avoir qu'un faible impact sur les propriétés mécaniques des fibres. Afin de vérifier cette hypothèse, des essais de traction ont été conduits sur des fibres de la variété Hermès prélevées au milieu des tiges, qui ont été préalablement traitées à l'eau bouillante (20 minutes) puis, pour certaines, à l'EDTA (0,5 % massique, 20 minutes). Des fibres non traitées ont également été testées pour servir de référence.

Au niveau de leur manipulation, les fibres traitées à l'eau bouillante et à l'EDTA sont plus faciles à séparer les unes des autres que celles uniquement traitées à l'eau bouillante, et encore plus que celles non traitées ; cependant, elles restent tout de même en paquet et il est toujours nécessaire de vérifier, avant essai, que la fibre extraite est bien unitaire. Les résultats des essais de traction (Tableau 3 - 3) montrent que les propriétés mécaniques sont légèrement réduites lorsqu'un traitement à l'eau bouillante est infligé aux fibres, et que le traitement supplémentaire à l'EDTA ne les influence quasiment pas.

	n	d (μm)	$\sigma_r$ (MPa)	$\epsilon_r$ (%)	E (GPa)
Pas de traitement	26	18,5 ± 5,8	843 ± 308	2,3 ± 1,2	46 ± 19
Eau bouillante	15	20,2 ± 3,4	726 ± 197	2,0 ± 0,4	40 ± 13
Eau bouillante + EDTA	19	19,3 ± 6,0	691 ± 186	2,4 ± 1,4	39 ± 14

Tableau 3 - 3. Propriétés mécaniques de fibres préalablement traitées à l'eau bouillante ou à l'EDTA

Les effets de ces deux traitements ne sont donc pas significatifs en termes de résistance mécanique ou de rigidité, donc, compte tenu de la difficulté à extraire les fibres d'une mèche peignée, les traitements à l'eau bouillante et à l'EDTA pourraient être envisagés pour l'ensemble des fibres destinées à être testées en traction.

## II.4. Influence de la vitesse de déformation

Afin de déterminer l'impact de la vitesse de traction sur les propriétés mécaniques des fibres, et de vérifier si le choix d'une vitesse de déplacement de traverse de 1 mm/min (utilisée dans la majorité des données bibliographiques sur les essais de traction de fibres végétales) était raisonnable, des essais ont été réalisés à 0,5, 1 et 2 mm/min sur des fibres de la variété Hermès issues du milieu des tiges (Tableau 3 - 4). Les résultats semblent montrer que les propriétés diminuent légèrement quand la vitesse de déformation augmente. Cet effet est négligeable par rapport aux écart-types mesurés sur la vingtaine de fibres testées pour chaque vitesse, mais mérite d'être remarqué. Il confirmerait que la déformation des fibres en traction a une faible composante visqueuse (cf. § II.1).

v (mm/min)	n	d ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_r$ (MPa)	$\varepsilon_r$ (%)	E (GPa)
0,5	17	19,0 $\pm$ 4,1	870 $\pm$ 362	2,2 $\pm$ 0,8	47 $\pm$ 16
1	26	18,5 $\pm$ 5,8	843 $\pm$ 308	2,3 $\pm$ 1,2	46 $\pm$ 19
2	15	19,3 $\pm$ 4,8	800 $\pm$ 382	1,9 $\pm$ 0,5	45 $\pm$ 16

Tableau 3 - 4. Propriétés mécaniques de fibres sollicitées en traction à différentes vitesses.

### III. Discussion des résultats des essais de traction

#### III.1. Diamètre moyen des fibres sollicitées en traction

Les fibres testées en traction ont souvent un diamètre moyen supérieur à celui déterminé par analyse morphologique (cf. Chp 2), surtout dans le cas des fibres de la variété Agatha [90,150]. Rappelons que les diamètres moyens utilisés pour l'étude mécanique sont estimés à partir de mesures de projections longitudinales de fibres, alors que ceux déterminés par analyse morphologique correspondent à des mesures de sections de fibres enrobées dans une matrice époxy. On ne s'attend pas particulièrement à relever des écarts significatifs entre ces deux séries de valeurs de diamètre. Pourtant, sur le graphe suivant (Fig. 3 - 7), on remarque des différences sensibles entre ces deux types de mesures.

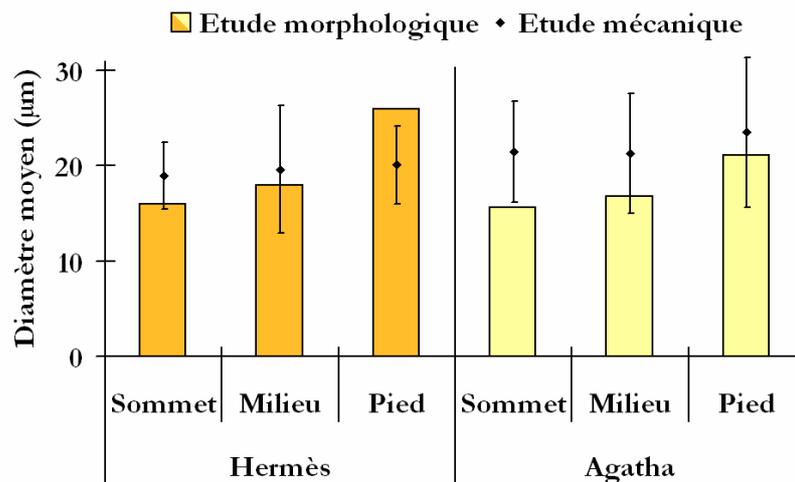


Fig. 3 - 7. Comparaison des diamètres moyens obtenus à partir des études morphologique ou mécanique menées sur des fibres de variété Hermès ou Agatha et issues du sommet, du milieu ou du pied des tiges

Ces différences tiendraient principalement au fait que les fibres utilisées pour les essais mécaniques ont été extraites manuellement de leur faisceau : il y a donc naturellement une sélection des fibres les plus grosses qui est faite à cette étape. Il ne faut pas oublier que l'analyse morphologique a été réalisée sur plusieurs milliers de fibres, alors que, pour des raisons pratiques évidentes, les essais de traction n'ont porté que sur une centaine de fibres pour chaque variété. Il est clair alors que le caractère aléatoire de la sélection manuelle n'est pas assuré. Ceci peut expliquer

également que les diamètres moyens des fibres de la variété Agatha soient légèrement supérieurs à ceux des fibres Hermès, ce qui est en contradiction avec les résultats de l'analyse morphologique (cf. Chp 2 § V). La sélection des fibres dont le diamètre est proche du diamètre moyen obtenu par analyse morphologique [90] a pour conséquence une augmentation des valeurs moyennes de contraintes à la rupture et de modules d'élasticité (d'environ 10%) mais sans modification de l'ampleur de la dispersion. Par ailleurs, cette sélection conserve la corrélation entre la localisation dans la tige et les propriétés mécaniques. Il n'y a donc pas lieu, dans cette étude, de retirer certaines fibres de l'échantillonnage simplement parce que leurs dimensions ne correspondent pas aux moyennes déterminées sur l'ensemble.

### III.2. Analyse de la diminution des propriétés avec le diamètre

Lorsque l'on trace les propriétés mécaniques de toutes les fibres testées en traction monotone à 1 mm/min (soit 433 fibres) en fonction de leur diamètre (Fig. 3 - 8), il apparaît une tendance à la diminution des contraintes à la rupture et des modules d'élasticité lorsque la taille des fibres augmente, tendance qui n'est pas constatée dans le cas des déformations à la rupture.

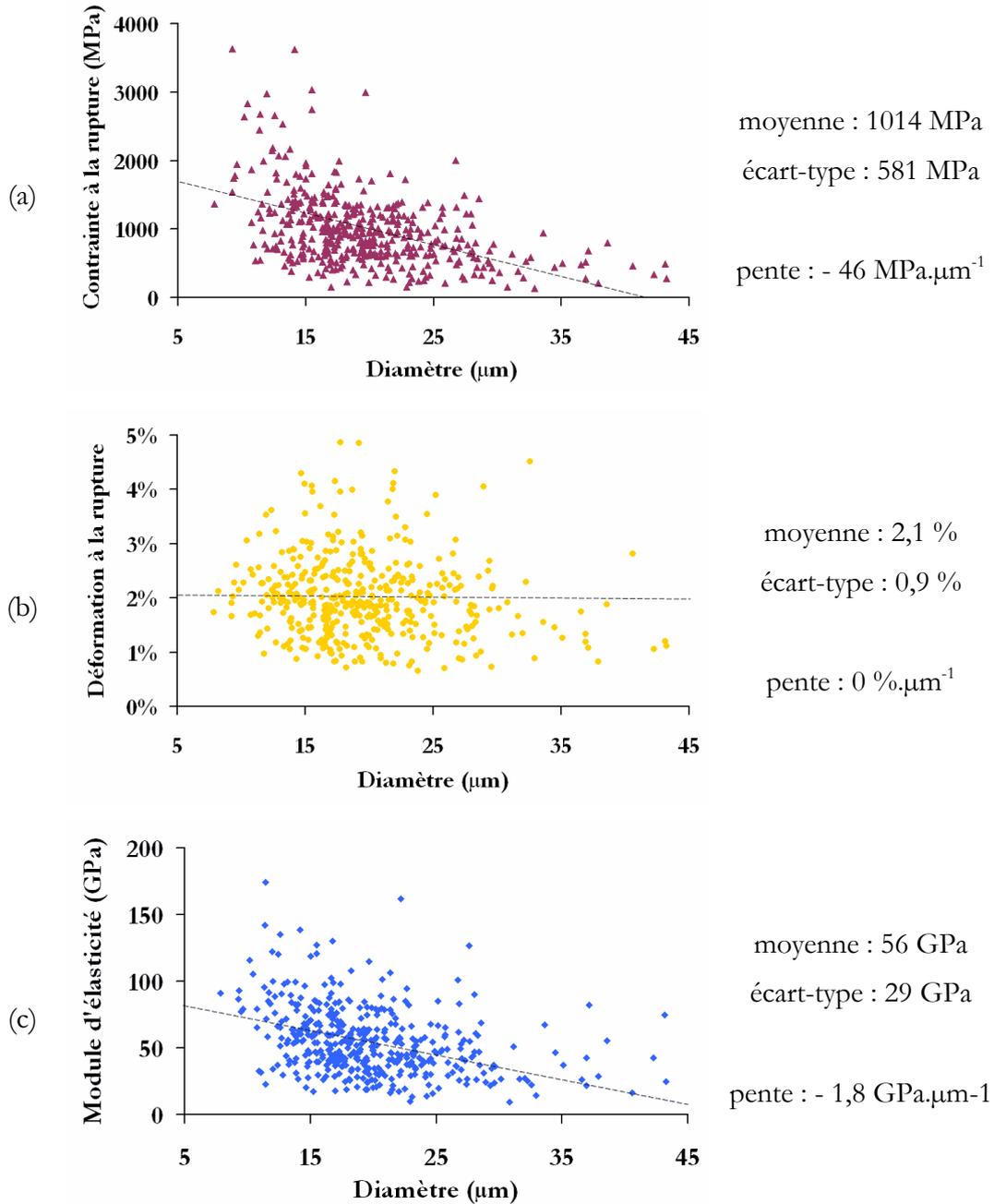


Fig. 3 - 8. Propriétés mécaniques en fonction du diamètre des fibres

### III.2.a. Diminution de la contrainte à la rupture

Cette diminution de la contrainte à la rupture quand le diamètre des fibres augmente (Fig. 3 - 8a) est compréhensible en termes de probabilité de rupture : plus une fibre est grosse, plus elle est susceptible de contenir de gros défauts, et donc de casser à une contrainte plus faible. En accord avec la règle du maillon le plus faible, ce n'est pas le nombre de défauts qui entraîne un risque de rupture anticipée mais plutôt le volume du plus gros défaut (dans le cas d'un matériau fragile avec des défauts de forme similaire). Ceci apparaît dans une étude de Baley [111] : d'abord, les fibres qui ont le plus de défauts ne sont pas forcément celles qui présentent la plus faible contrainte à la rupture (une fibre de 21  $\mu\text{m}$  environ ayant 16 défauts par millimètre présentait une contrainte à la rupture de 1600 MPa) ; ensuite, deux fibres ayant le même nombre de défauts par millimètre (environ 11) ont cassé à des contraintes à la rupture de 2000 MPa pour la plus fine (22  $\mu\text{m}$ ) et de 200 MPa pour la plus grosse (42  $\mu\text{m}$ ). Par conséquent, même si les défauts sont des sites préférentiels d'amorçage de la rupture, leur densité ne peut pas être reliée au niveau de contrainte à laquelle la rupture va se produire. La forme des défauts ne semble pas non plus pouvoir être corrélée à la contrainte à rupture [111]. Enfin, la détermination de la taille du plus gros défaut en surface de la fibre ne permet pas non plus de prévoir sa rupture en ce point. Il est probable que la localisation de la rupture d'une fibre et la contrainte associée puissent par contre être prédites à partir de la détermination, par exemple en microscopie à lumière polarisée, du plus gros défaut en volume contenu dans cette fibre.

### III.2.b. Diminution du module d'élasticité

Le module d'élasticité (Fig. 3 - 8c), qui est une valeur intrinsèque du matériau, n'est pas censé varier en fonction de la taille de l'échantillon. La diminution des valeurs calculées ne peut s'expliquer que par une mauvaise définition des paramètres de calcul. En reconsidérant la définition du module d'élasticité, c'est-à-dire en prenant en compte non plus la pente de la zone linéaire avant rupture mais celle calculée sur la totalité de la courbe, comme recommandé par Nechwatal *et al.* [132] (cf. § I.2), la tendance à la diminution persiste. Nilsson et Gustafsson [17] proposent l'existence de dislocations le long des microfibrilles de cellulose, dont l'angle avec l'axe de la fibre augmenterait avec son diamètre, ce qui pourrait expliquer la diminution de la rigidité lors d'un essai de traction. Cependant, la relation entre cet angle et le diamètre ainsi que la géométrie des dislocations doivent être précisées, et il n'est pas évident que l'introduction de tels défauts d'organisation microscopiques influence suffisamment le module d'élasticité pour effacer la tendance relevée en fonction de la taille des fibres.

La définition de la section est donc probablement la plus importante source d'erreur. Rappelons tout d'abord l'approximation faite sur la forme des sections des fibres : les considérer arbitrairement comme des disques et non des ellipses, par exemple, induit forcément une imprécision. Cependant, cette approximation est censée affecter toutes les fibres de la même façon, et pas particulièrement les plus grosses. Elle n'est donc pas à l'origine de la diminution des propriétés avec le diamètre des fibres. Nechwatal *et al.* [132] conseillent, pour le calcul des propriétés mécaniques, d'utiliser la section calculée à partir de la finesse et de la masse volumique de la fibre testée ; ceci est certainement valable pour les fibres synthétiques, mais deux problèmes se posent dans le cas des fibres de lin : d'une part, leur densité est approximative du fait de la variabilité de la taille des lumens (cf. Chp 2 § I.2.b) et d'autre part, cela reviendrait à ignorer les fortes variations de diamètre des fibres (cf. Chp 2 § III).

Il reste alors deux hypothèses sur la morphologie qui pourraient expliquer la diminution du module d'élasticité : la présence d'un lumen au centre de la fibre (cf. Chp 2 § I), correspondant à une macroporosité, et les fortes variations de taille mises en évidence auparavant (cf. Chp 2 § III).

#### *Hyp. n°1 : La présence d'un lumen au centre de la fibre*

La prise en compte de la surface du lumen réduit la surface de fibre effectivement porteuse de la charge. Le module d'élasticité étant inversement proportionnel à cette surface, cela conduit à une augmentation de la rigidité réelle de la fibre. Dans le cas des grosses fibres, qui ont une plus forte porosité (définie ici comme le rapport entre la surface du lumen et la surface totale de la fibre, cf. Chp 2 § II) [151], la considération de la porosité donne lieu à une révision à la hausse de leur module. Reste à déterminer si cette hausse compenserait la diminution du module soulignée ci-dessus.

Pour une fibre donnée de section  $S$ , de porosité  $p$  et de module  $E$ , la prise en compte du lumen dans le calcul de son nouveau module  $E'$  conduit à une section efficace de fibre  $S'$  définie par :

$$S' = S(1 - p) \quad \text{Eq. 3 - 4}$$

On a alors :

$$\frac{E'}{E} = \frac{S}{S'} = \frac{1}{1 - p} \quad \text{Eq. 3 - 5}$$

Concernant les petites fibres, de porosité quasi-nulle, ce calcul ne modifie presque pas son module. Pour avoir des modules indépendants de la taille des cellules, il faudrait que toutes les fibres, quel que soit leur diamètre, aient une telle valeur de module  $E_{\max}$  de l'ordre de 80 GPa (Fig. 3 - 8c).

Les plus grosses fibres, de porosité maximum  $p_{gf} = 20\%$  (cf. Fig. 2 - 4), pourraient atteindre cette valeur (i.e.  $E' = E_{max}$ ) à la condition que leur module initial  $E_{gf}$  satisfasse la relation suivante :

$$E_{gf} = E_{max} (1 - p_{gf}) \quad \text{Eq. 3 - 6}$$

c'est-à-dire  $E_{gf} = 64$  GPa. Or, ces grosses fibres ont des modules très inférieurs à cette valeur. En conclusion, même si la porosité augmente avec la taille de la fibre, cette augmentation n'est pas suffisante pour rendre le module indépendant du diamètre des fibres.

*Hyp. n°2 : Les variations de diamètre de la fibre*

Partant du principe que le diamètre de chaque fibre sollicitée en traction n'était qu'une moyenne estimée à partir de quelques micrographies optiques, le module d'élasticité a été recalculé en utilisant cette fois le diamètre proche de la zone de la rupture de la fibre. Ce diamètre n'a pas été choisi pour des raisons théoriques (il n'y a aucune raison pour que la taille de la fibre à l'endroit où elle casse soit corrélée à sa rigidité), mais pour des raisons pratiques de facilité de localisation.

Environ 40 fibres, de la variété Hermès, dont les diamètres moyens ont été préalablement estimés au microscope optique, ont donc été testées en traction puis observées au MEB au niveau de leur faciès de rupture. Leur diamètre a été mesuré à une certaine distance de ce faciès, afin d'éviter les possibles effets de recouvrement retardé de la déformation à l'endroit même de la rupture. Globalement, la moyenne des diamètres des fibres déterminés par microscopie optique est de  $19,1 \mu\text{m} \pm 4,9 \mu\text{m}$  alors que celle des diamètres déterminés près des zones de rupture vaut  $18,1 \mu\text{m} \pm 3,9 \mu\text{m}$ . Le diamètre obtenu près de la rupture est comparé à celui mesuré avant le chargement mécanique (Fig. 3 - 9). Comme le premier n'est pas toujours inférieur au second, cela signifie que les fibres ne cassent pas toujours à l'endroit où leur diamètre est le plus faible.

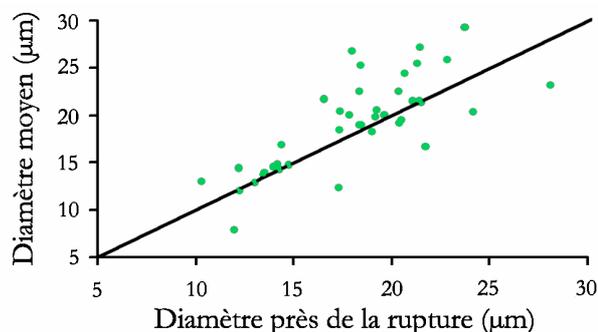


Fig. 3 - 9. Diamètres moyens des fibres déterminés au microscope optique avant le chargement mécanique en fonction des diamètres mesurés au MEB après essai près de la zone de rupture ; la droite correspond à l'égalité entre ces deux dimensions.

Les graphes suivants présentent les valeurs du module d'élasticité calculées à partir des diamètres moyens des fibres (Fig. 3 - 10a) ou à partir des diamètres mesurés à proximité des zones de rupture (Fig. 3 - 10b). La moyenne des premières vaut  $52 \text{ GPa} \pm 17 \text{ GPa}$  alors que celle des secondes atteint  $55 \text{ GPa} \pm 17 \text{ GPa}$ .

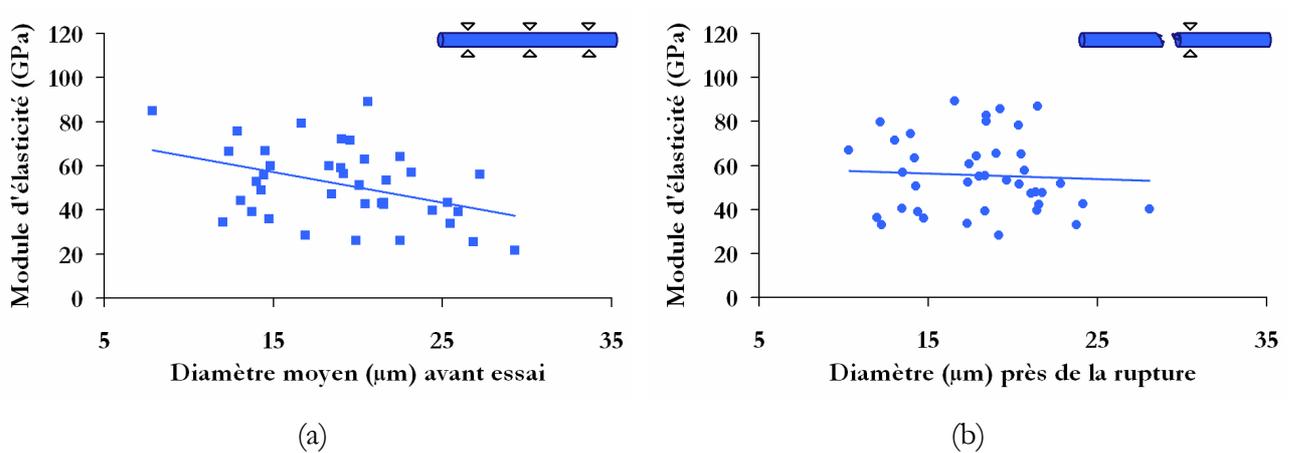


Fig. 3 - 10. Modules d'élasticité calculés à partir des diamètres moyens des fibres (a) ou à partir des diamètres proches de la rupture (b) en fonction de ces diamètres

Il apparaît que la tendance à la diminution du module d'élasticité en fonction de la taille des fibres est estompée lorsqu'il est calculé et représenté en fonction de leur diamètre à la rupture. Bien qu'il n'y ait pas de justification mécanique pour cela, il semble que le diamètre ainsi mesuré soit un meilleur paramètre dimensionnel que le diamètre moyen, étant donné qu'alors le module d'élasticité ne varie plus en fonction des dimensions de la fibre.

### III.2.c. Application de la méthode précédente à la contrainte à la rupture

La dépendance de la contrainte à la rupture à la taille des fibres  $a$ , à son tour, été étudiée en considérant les deux mêmes types de diamètre que précédemment. Les valeurs moyennes passent alors de  $915 \text{ MPa} \pm 354 \text{ MPa}$  lorsqu'il s'agit des diamètres moyens à  $995 \text{ MPa} \pm 345 \text{ MPa}$  lorsqu'on considère les diamètres à la rupture. L'analyse des graphes « avant-après » (Fig. 3 - 11) indique que cette dépendance est légèrement réduite dans le cas où le diamètre utilisé est estimé à proximité de la zone de rupture de la fibre. L'influence des défauts sur la contrainte à la rupture (détaillée dans le paragraphe III.2.a) est donc encore prédominante devant celle de la taille des fibres

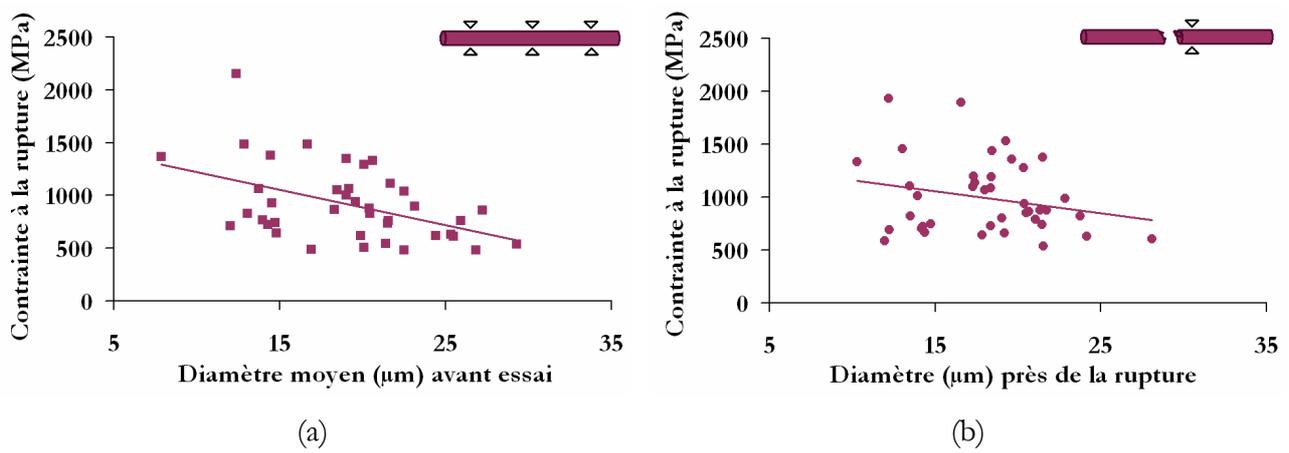


Fig. 3 - 11. Contraintes à la rupture calculées à partir des diamètres moyens des fibres (a) ou à partir des diamètres mesurés à proximité de la rupture (b) en fonction de ces diamètres.

Par ailleurs, il est intéressant de remarquer que l'utilisation du diamètre moyen ou de celui mesuré près de la zone de rupture n'influe pas sur les valeurs des écart-types autour des moyennes des contraintes à la rupture et des modules d'élasticité. La méthode de mesure du diamètre ne serait donc pas une cause de dispersion des propriétés mécaniques.

### III.3. Analyse de la dispersion

La variété de lin et la position des fibres dans les tiges sont deux sources (parmi d'autres) de dispersion des propriétés mécaniques déjà mentionnées dans la bibliographie (cf. Chp 1 § II.3.d). Ainsi, les graphes suivants (Fig. 3 - 12) présentent les évolutions des propriétés mécaniques en fonction du diamètre et de la variété des fibres, mais, dans un souci de lisibilité, uniquement pour celles prélevées au milieu des tiges (le même genre de graphes étant obtenu pour les autres fibres).

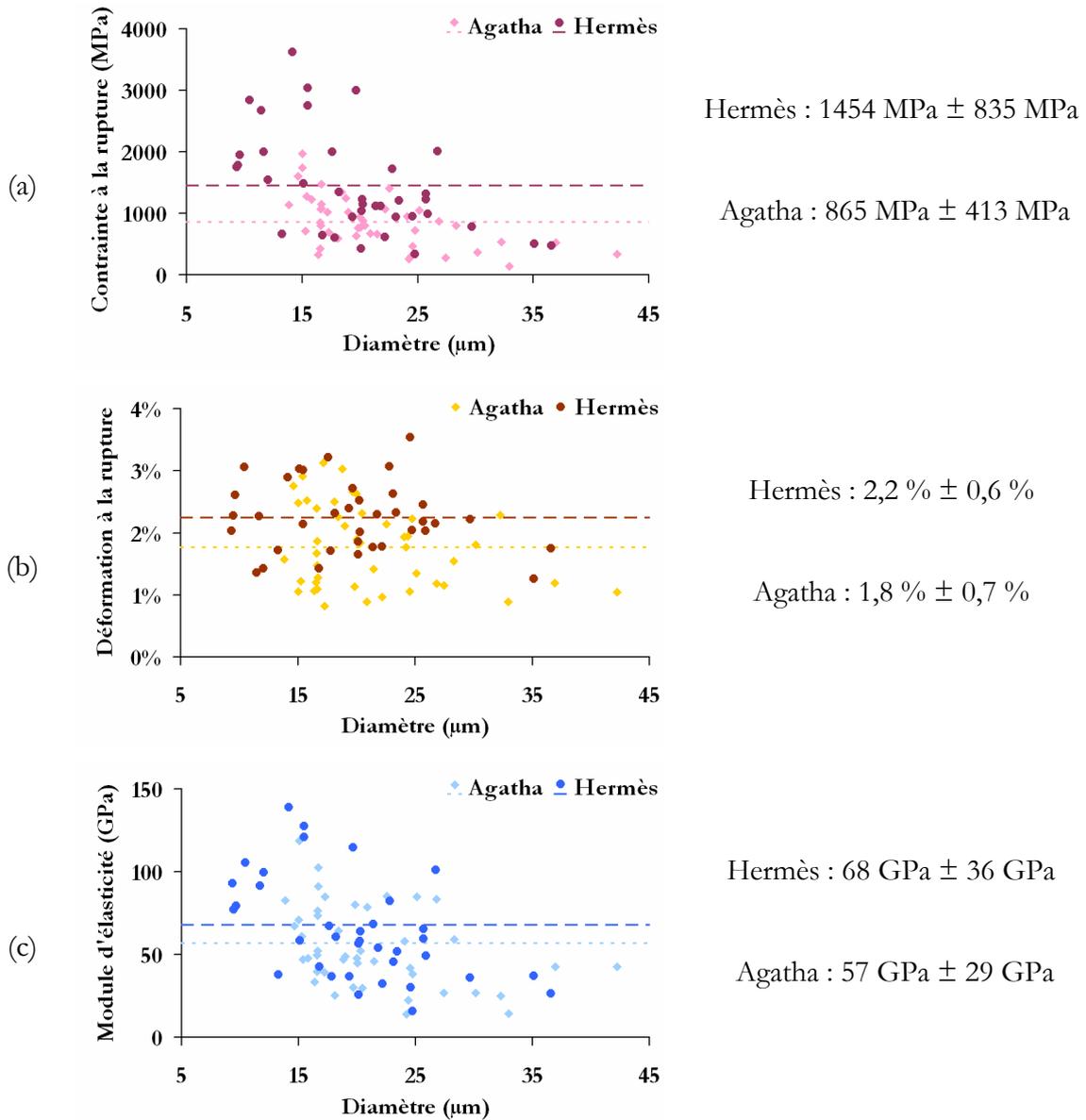


Fig. 3 - 12. Propriétés mécaniques de fibres issues du milieu de tiges de variété Hermès ou Agatha (les valeurs moyennes sont indiquées dans la colonne de droite et en pointillés sur les graphes)

Bien que les résultats soient présentés pour une variété et une position dans la tige fixées, les valeurs de contrainte à la rupture, de déformation à la rupture et de module d'élasticité apparaissent très dispersées. Ces dispersions semblent relever de la nature même des fibres car, d'après le paragraphe précédent, la méthode de mesure du diamètre utilisé pour les calculs des propriétés mécaniques n'influence pas leur dispersion. Parmi les autres sources de disparités, la présence d'un lumen central de dimensions variables pourrait jouer un rôle, mais les valeurs moyennes de la porosité ( $3,4 \% \pm 1,9 \%$  pour Hermès et  $2,2 \% \pm 1,8 \%$  pour Agatha, cf. Chp 2 § I.3) apparaissent trop faibles devant l'amplitude des dispersions pour en être la principale explication.

Un facteur important de la résistance mécanique d'une fibre de lin est sa teneur notamment en cellulose (cf. Chp 1 § II.3.c). La détermination de la composition chimique des fibres présentées ici (cf. Annexe 1) révèle peu de différences dans la teneur en cellulose (80 % et 79 % de la masse sèche pour chacune des variétés), mais atteste que la proportion de polymères non-cellulosiques (aussi bien de pectines que d'hémicelluloses) diffère d'une variété à l'autre (Hermès contient 14 % de NCP contre 11 % pour Agatha). Rappelons cependant que ces résultats ont été obtenus à partir de l'analyse de paquets de fibres et non de fibres unitaires, ce qui laisse supposer que de fortes dispersions de composition chimique pourraient en fait exister entre deux fibres de la même variété. La détermination des teneurs en polymères d'une fibre unitaire de lin reste à l'heure actuelle inaccessible du fait de la trop faible masse de l'échantillon (de l'ordre du  $\mu\text{g}$ ) et des limites technologiques. Il est donc envisageable que la composition chimique ne soit pas une constante pour toutes les fibres d'une même variété, mais plutôt un des principaux paramètres à l'origine des disparités observées, au moins en ce qui concerne les modules d'élasticité.

Enfin, les valeurs associées à la rupture dépendent surtout des défauts (i.e. des discontinuités structurales) présents dans et sur la fibre (cf. § III.2.a). Ces derniers étant principalement le résultat des conditions de croissance de la fibre, il n'y a aucun moyen de contrôler leur apparition, leur quantité ou leur taille (à part une étude systématique de chaque fibre) qui, d'après l'étude de Baley [111] présentent un fort caractère aléatoire. Ils participent donc aux dispersions importantes relevées pour les valeurs des contraintes et des déformations à la rupture.

En conclusion, la dispersion des propriétés mécaniques de la fibre de lin est principalement due à son caractère naturel qui implique que ses caractéristiques dépendent autant de la génétique que de son environnement de croissance, entraînant ainsi de fortes disparités dans sa composition chimique qui se répercutent ensuite sur sa rigidité et son comportement à la rupture.

## IV. Réorientation des fibrilles lors d'un essai de traction

### IV.1. Hypothèse de réorganisation interne

Une caractéristique de la déformation en traction d'une fibre de lin est la non-linéarité de sa courbe contrainte-déformation (Fig. 3 - 13). Une courbe moyenne présente généralement 3 pentes plus ou moins distinctes (cf. Fig. 3 - 4). A partir de la structure interne de la fibre de lin (cf. Chp 1 et 2), il est possible d'élaborer une interprétation de la courbe de chargement par des mécanismes de déformation caractéristique de chacun des domaines.

Après une rapide mise sous tension de l'ensemble des parois de la fibre (zone 1), la partie amorphe de la fibre se déformerait de façon élasto-visco-plastique en même temps que les microfibrilles de cellulose s'aligneraient avec l'axe de traction (zone 2), puis ces dernières se déformeraient de manière élastique jusqu'à rupture de l'ensemble de la fibre (zone 3). Jusqu'à maintenant, aucune preuve quantitative n'existait quant à la relation entre cette réorientation et l'allure de la courbe contrainte-déformation d'une fibre de lin.

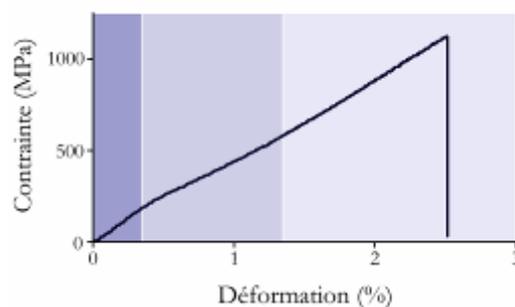


Fig. 3 - 13 Courbe de comportement d'une fibre de lin : mise en évidence de 3 zones distinctes

Dès 1941, une observation de fibres de lin au microscope optique en lumière polarisée a permis à Bossuyt [15] de comparer l'arrangement des microfibrilles dans une fibre à l'état initial avec celui de la même fibre après étirement manuel. Il apparaît clairement un changement d'orientation des microfibrilles après allongement de la fibre (il avait alors été supposé que cette réorientation concernait seulement la paroi primaire). Cette réorientation pourrait être envisageable grâce au cisaillement des pectines amorphes à l'intérieur des parois, comme il a été déjà question dans le cas de collenchymes de céleri [152]. C'est cette hypothèse de réorientation des microfibrilles qui est étudiée dans ce paragraphe.

## IV.2. Relation entre l'angle microfibrillaire et la déformation de la fibre

Lorsque les 200 courbes de traction sur des fibres unitaires sont superposées, on remarque que le début de la zone linéaire avant la rupture correspond à une déformation moyenne de  $1,4\% \pm 0,7\%$  (Fig. 3 - 14). Cette déformation peut être reliée de manière simple à l'angle d'orientation du renfort microfibrillaire (Fig. 3 - 15).

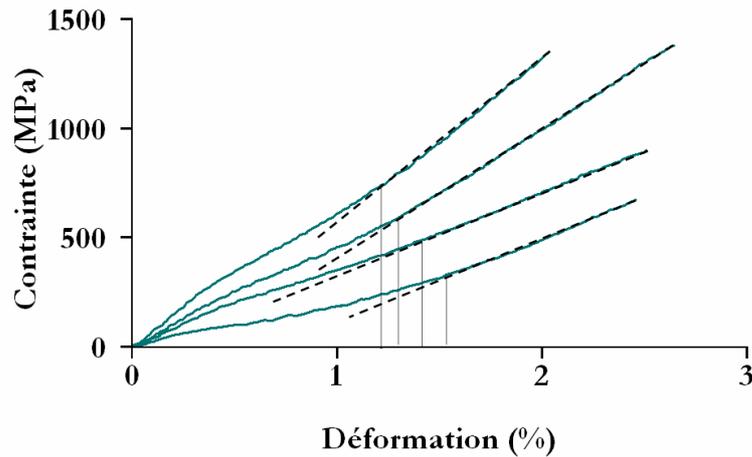


Fig. 3 - 14. Courbes contrainte-déformation de fibres de lin : mise en évidence du début de la zone linéaire finale autour d'une déformation de 1,4 %

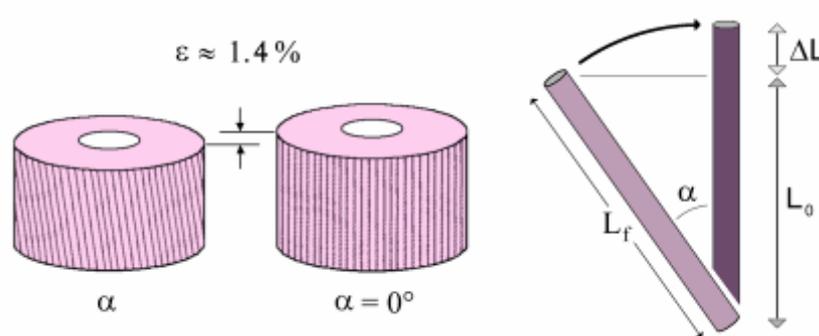


Fig. 3 - 15. Représentation simplifiée de la réorientation des microfibrilles

La longueur  $L_f$  d'une microfibrille orientée d'un angle initial  $\alpha$  par rapport à l'axe de la fibre, peut être reliée à sa projection suivant l'axe de la fibre  $L_0$  par :

$$L_0 = L_f \cos \alpha \quad \text{Eq. 3 - 7}$$

La tension de la fibre provoque une réorientation des microfibrilles et un allongement correspondant de la fibre  $\Delta L$  défini par :

$$\Delta L = L_f - L_0 \quad \text{Eq. 3 - 8}$$

ce qui entraîne, en reliant ces deux équations :

$$\Delta L = L_0 \left( \frac{1}{\cos \alpha} - 1 \right) \quad \text{Eq. 3 - 9}$$

soit une déformation globale :

$$\varepsilon = \ln \left( 1 + \frac{\Delta L}{L_0} \right) = -\ln(\cos \alpha) \quad \text{Eq. 3 - 10}$$

La détermination de l'angle correspondant à une déformation donnée peut donc être obtenue par l'équation :

$$\alpha = \text{Arccos}(\exp(-\varepsilon)) \quad \text{Eq. 3 - 11}$$

Pour une déformation de  $1,4\% \pm 0,7\%$ , cette équation conduit à un angle  $\alpha$  de  $9,4^\circ \pm 2,4^\circ$ , ce qui est de l'ordre de grandeur des angles microfibrillaires reportés dans la littérature (entre  $6$  et  $11^\circ$ , cf. Chp 1 § II.2.d, Tableau 1 - 6). La distribution des angles microfibrillaires calculés (Fig. 3 - 16) montre bien que la majorité des valeurs est comprise dans l'intervalle  $7 - 11^\circ$ .

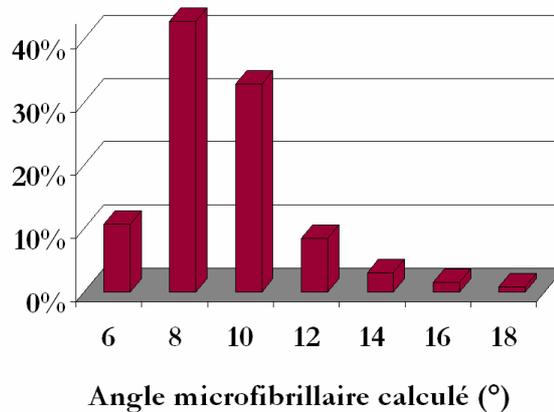


Fig. 3 - 16. Distribution des angles microfibrillaires des fibres de lin

Au vu de ces résultats, il semble donc bien que, lors d'un essai de traction, les microfibrilles de cellulose, initialement orientées à  $10^\circ$  de l'axe de la fibre, se réorganisent en s'alignant progressivement avec l'axe de traction. Cette réorganisation provoque des déformations visco-élasto-plastiques collatérales, certainement à l'origine de la non-linéarité de la courbe contrainte-déformation.

### IV.3. Application de l'hypothèse à d'autres fibres végétales

Pour confirmer la relation entre le niveau de déformation au début de la seconde zone linéaire et l'angle microfibrillaire, le même protocole a été utilisé pour tester des fibres de coton, de chanvre et de ramie qui possèdent des angles microfibrillaires différents de celui du lin. Les courbes de comportement de quelques-unes des fibres testées sont présentées dans la figure 3 - 17.

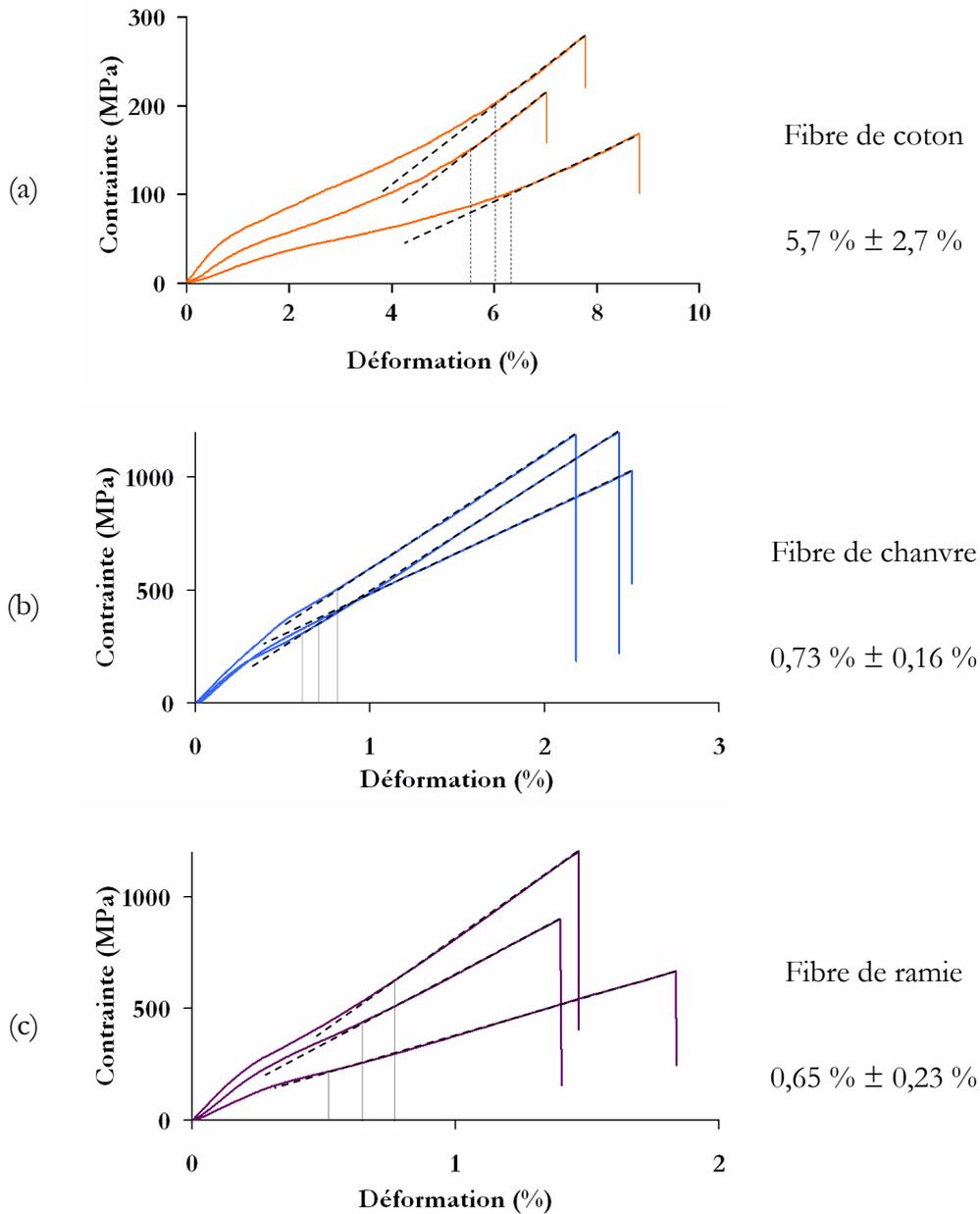


Fig. 3 - 17. Sélection de courbes contrainte-déformation de fibres de coton, de chanvre et de ramie (colonne de droite : valeurs moyennes des déformations au début de la zone linéaire finale)

A partir des déformations moyennes correspondant aux débuts des zones linéaires finales, les valeurs d'angle ont été calculées à partir de l'équation 3 - 11 puis comparées avec les valeurs d'angles microfibrillaires données dans la bibliographie (cf. Tableau 1 - 6).

	coton	chanvre	ramie
expérimental	$18,4^\circ \pm 4,9^\circ$	$6,9^\circ \pm 0,8^\circ$	$6,4^\circ \pm 1,2^\circ$
bibliographie	$1^\circ - 45^\circ$	$6^\circ - 7,5^\circ$	$3^\circ - 7,5^\circ$

Tableau 3 - 5. Comparaison des valeurs d'angles microfibrillaires issues du calcul ou de la bibliographie

Concernant les fibres de coton, il doit être précisé que, d'après certains auteurs [105], l'orientation des microfibrilles dépend de la maturité de la fibre et peut varier de  $1^\circ$  pour les jeunes fibres jusqu'à  $35^\circ$  pour les fibres matures. Pour d'autres encore [106], elle dépend de la zone de paroi secondaire considérée : en périphérie, l'angle formé par les microfibrilles avec l'axe de la fibre approcherait  $45^\circ$  mais diminuerait jusqu'à être quasiment nul près du centre de la fibre. Ces différentes considérations expliquent probablement l'important écart-type obtenu autour de la moyenne de l'angle microfibrillaire des fibres de coton.

Quoi qu'il en soit, les valeurs des angles obtenus par le calcul sont dans les intervalles donnés dans la littérature pour les trois types de fibres étudiés (Tableau 3 - 5), ce qui valide l'hypothèse formulée au début du paragraphe. Cela signifie que la partie incurvée de la courbe contrainte-déformation d'une fibre végétale, notamment de lin, peut être associée à une déformation élasto-visco-plastique de la partie amorphe de la fibre et à un alignement progressif des microfibrilles de cellulose suivant l'axe de traction puisque la déformation mise en jeu correspond globalement à la disparition de l'angle microfibrillaire.

## V. Modes de rupture

La fibre de lin peut être assimilée à une structure composite dans laquelle les microfibrilles de cellulose jouent le rôle de renfort de la matrice pectique et les hémicelluloses constituent le matériau d'interphase. Cette structure composite comporte de nombreux défauts, aussi bien en surface que dans le volume (Fig. 3 - 18a), créés notamment lors de la croissance de la fibre ou lors de leur extraction mécanique des tiges (c'est-à-dire lors du teillage et du peignage). En surface, ils apparaissent sous la forme de genoux ou de microfissures (cf. Chp 1 § II.2.e) ; en volume, ils peuvent correspondre à des discontinuités géométriques (extrémités de microfibrilles, irrégularités dans leur orientation...) ou à des hétérogénéités de composition (concentrations locales de polymères matriciels, interfaces entre lamelles...). Lorsque cette structure composite est sollicitée en tension, elle subit des réorganisations internes qui se manifestent par la réorientation progressive des microfibrilles parallèlement à l'axe de traction, par des microcisaillements dans la matrice pectique ainsi que par des ruptures de liaisons fibrille / matrice (Fig. 3 - 18b).

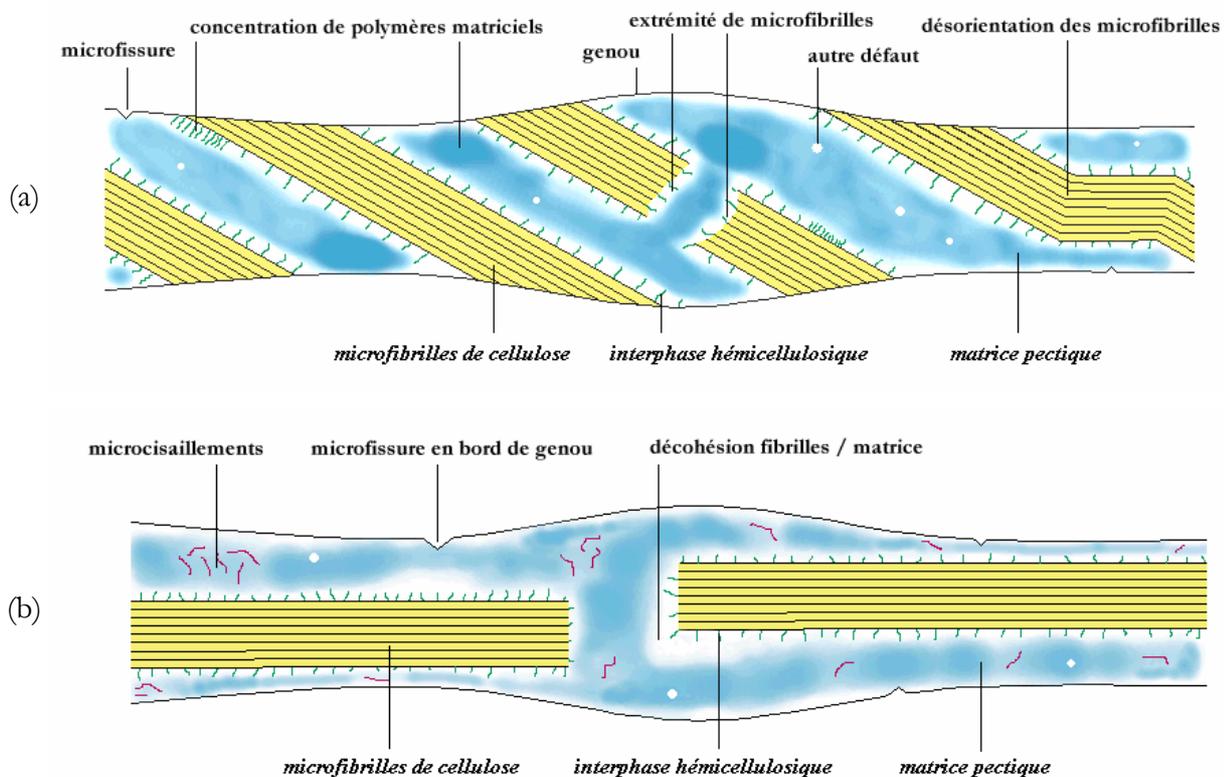


Fig. 3 - 18. Défauts présents en surface et dans le volume d'une fibre (a) et défauts apparus lors de la déformation de la fibre (b)

On peut alors interpréter la rupture d'une fibre en tension par deux scénarii extrêmes, représentés figure 3 - 19, l'un conduisant à un faciès de rupture plan (cas n°1), l'autre à un faciès en brosse (cas n°2). Dans les deux cas, la rupture peut être associée à l'extension d'une fissure amorcée sur un des défauts évoqués ci-dessus, favorablement orienté par rapport à la sollicitation mécanique.

Dans le cas extrême n°1, le défaut à l'origine de la fissure est orienté perpendiculairement à l'axe de la fibre ; cette fissure peut se propager brutalement par rupture des microfibrilles. Dans le cas extrême n°2, le défaut a une orientation telle que la fissure peut se propager à l'interface entre les fibrilles et la matrice, c'est-à-dire par cisaillement. L'occurrence du cas n°1 ou du cas n°2 dépend des discontinuités structurales au sein de la fibre (organisation microstructurale en front de fissure, orientation des défauts sur le trajet de la fissure, qualité de l'interface entre les fibrilles et la matrice...). En fait, la rupture d'une fibre se produit généralement par combinaison de ces deux cas extrêmes.

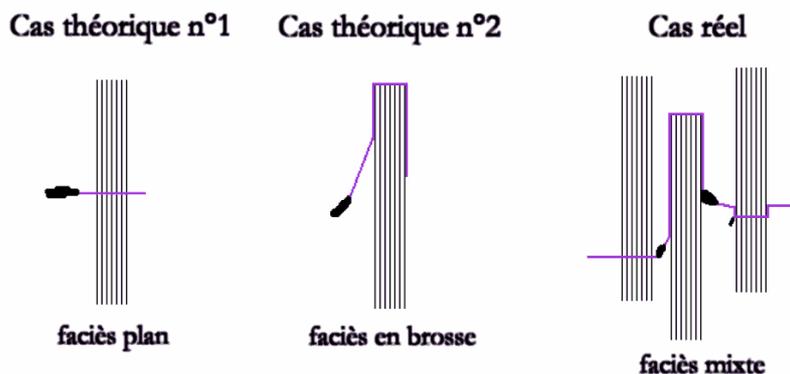
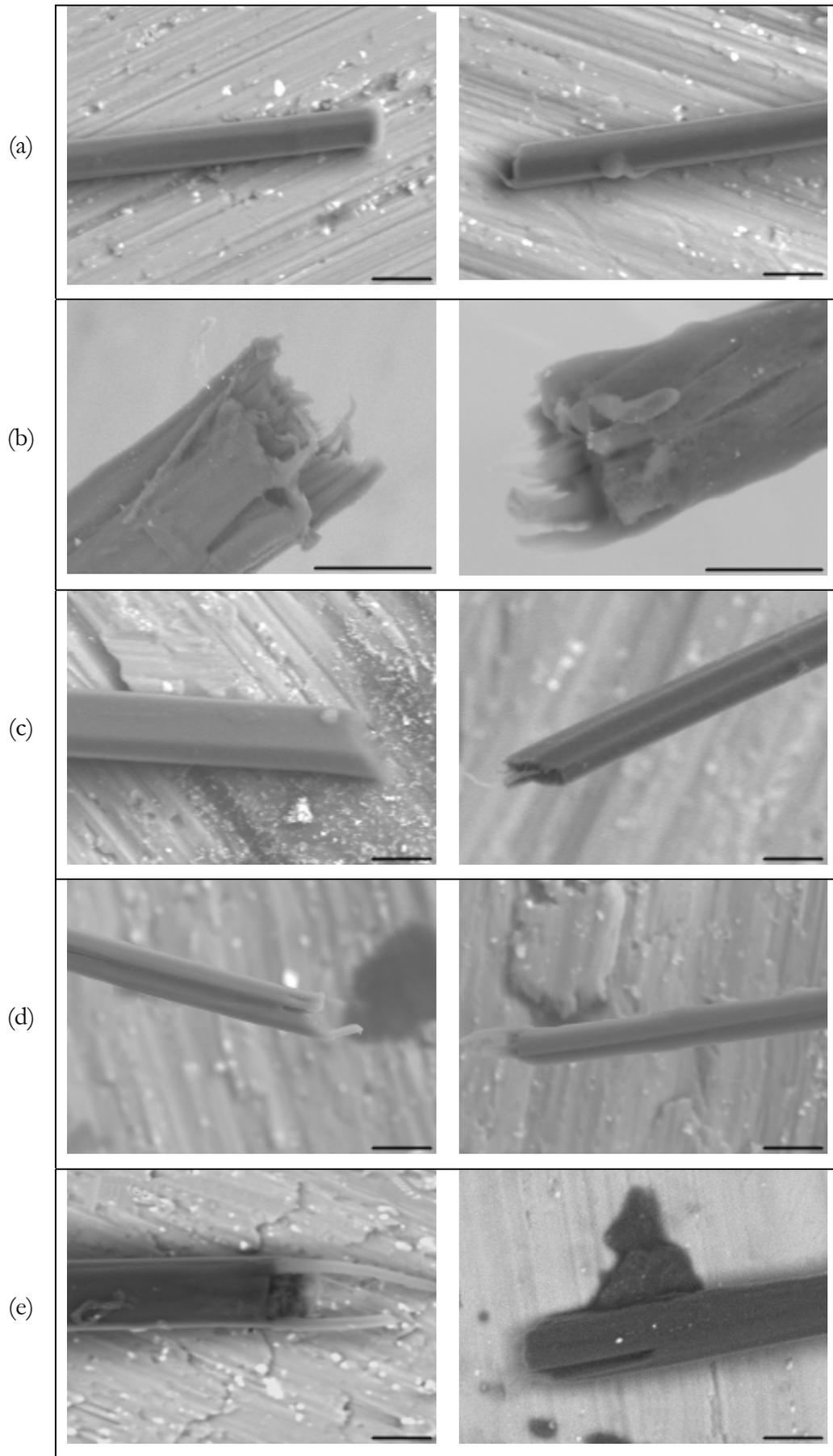


Fig. 3 - 19. Différents cas possibles de propagation de fissure

Les faciès de fibres présentés ci-après (Fig. 3 - 20) illustrent bien la coexistence dans différentes proportions de ces deux modes de rupture. Dans les premières images, les faciès de rupture quasiment plans attestent du cas n°1 ; sur les dernières images, des défibrillations, typiques du cas n°2, se produisent sur une longueur de fibre de plus en plus importante. La variété des faciès de rupture observés implique de fortes différences dans la structure interne de chaque fibre.

On peut supposer que les fibres (a) à (c), dont le plan de rupture ne présente pas (ou peu) de microfibrilles déchaussées, possédaient à cet endroit un défaut suffisamment gros et favorablement orienté pour amorcer une fissure que les microfibrilles ne sont pas parvenues à dévier de son plan initial. Par contre, pour les fibres dont la rupture donne lieu à d'importants déchaussements de microfibrilles (fibres (d) à (h)) ou même à des déchaussements inter-parois (fibre (h)), on peut attribuer la propagation de la fissure à l'action de plusieurs défauts.



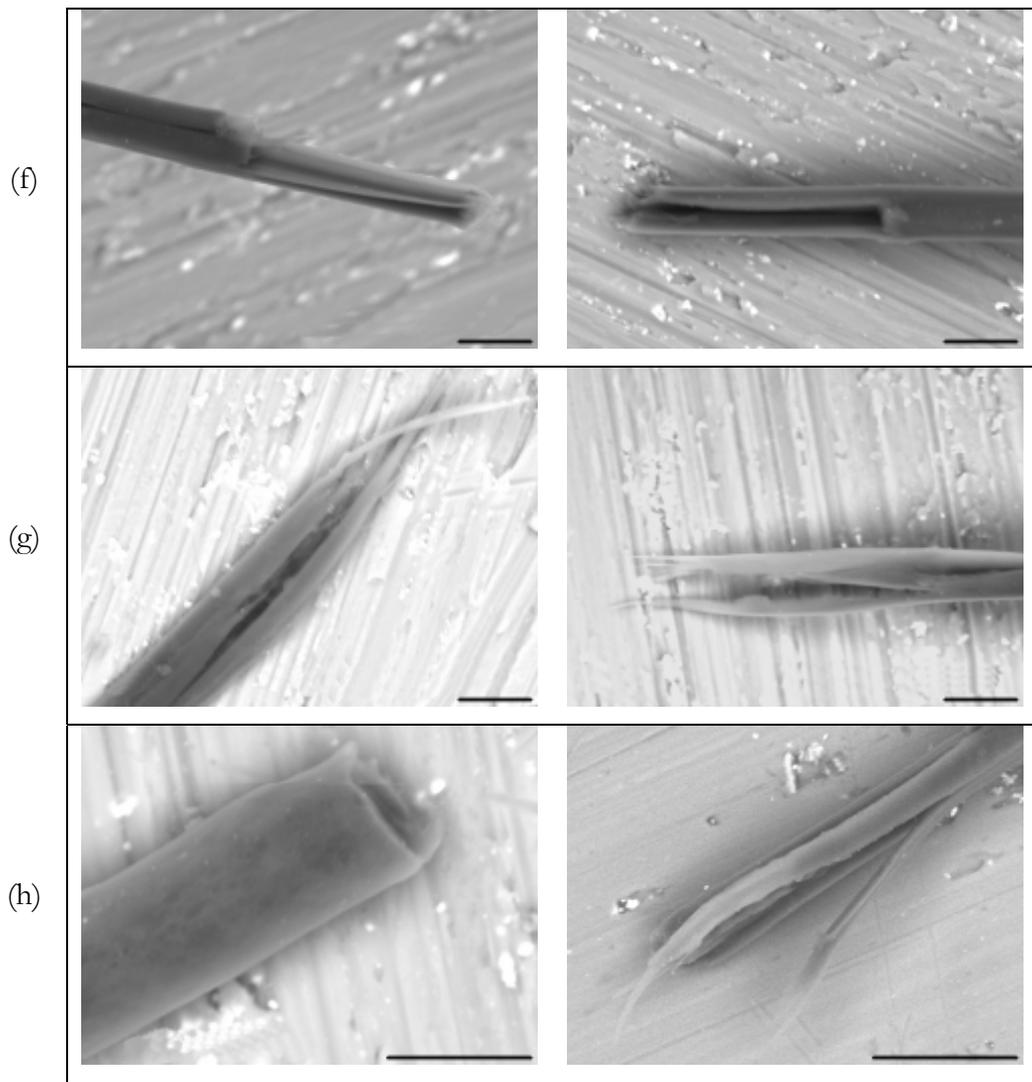
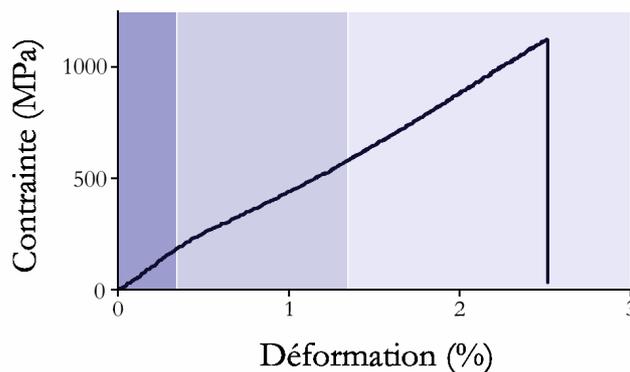


Fig. 3 - 20. Micrographies électroniques de faciès de rupture de fibres (la barre indique 20  $\mu\text{m}$ )

## VI. Synthèse : comportement en traction d'une fibre de lin

D'après les informations présentées dans ce chapitre sur le comportement en traction d'une fibre de lin, un schéma de synthèse de sa déformation peut être proposé (Fig. 3 - 21). La première zone, relativement linéaire, correspondrait à une extension élastique des parois, notamment de la paroi primaire, qui est, d'après la littérature, à la fois très molle et élastique. La deuxième zone serait, d'après le paragraphe précédent, révélateur d'une déformation élasto-visco-plastique pendant laquelle les microfibrilles de cellulose se réorienteraient pour s'aligner avec l'axe de traction de la fibre, entraînant un réarrangement des polymères amorphes les entourant. La troisième zone, enfin, verrait les microfibrilles s'allonger et glisser les unes par rapport aux autres, suivant un comportement également élasto-visco-plastique.



extension homogène des parois	réorientation progressive des microfibrilles + réarrangement de la matrice amorphe	extension des microfibrilles + cisaillements fibrilles / matrice + microruptures de la matrice et des microfibrilles
<b>ELASTIQUE</b>	<b>ELASTO-VISCO-PLASTIQUE</b>	<b>ELASTO-VISCO-PLASTIQUE</b>
pente initiale	- hystérésis - effet de la vitesse de traction - présence d'eau	- hystérésis - pente « faible » - décohésion

Fig. 3 - 21. Hypothèse de déformation d'une fibre de lin lors d'un essai de traction

Plusieurs remarques peuvent être faites sur la validité d'un tel modèle de déformation. Tout d'abord, la pente de la première zone est du même ordre de grandeur que celle de la zone finale ; l'élasticité de la paroi primaire, qui renferme beaucoup moins de cellulose que la paroi secondaire et qui ne présente pas une structure particulièrement bien organisée (cf. Chp 1 § I.1.d), ne peut donc pas être à elle seule responsable de la forte rigidité initiale. Il est plus probable que ce soit l'ensemble des parois qui commence à se déformer de façon homogène dès le début du chargement, mettant alors en jeu éventuellement des contraintes de cisaillement interfaciales entre parois et entre lamelles, qui pourraient expliquer la légère diminution de pente subséquente.

A propos de la suite de la courbe, l'hypothèse d'une déformation partiellement visqueuse est confortée par l'existence d'une boucle d'hystérésis lors d'essais de charge-décharge sur une fibre de lin (cf. Fig. 3 - 5), synonyme de perte d'énergie entre la décharge et la recharge de la fibre ; de telles boucles ont également été mises en évidence dans le cas de fibres de bois (cf. Fig. 1 - 20).

La déformation résiduelle, de l'ordre de 0,5 - 1 %, qui apparaît sur ces mêmes courbes contrainte-déformation, prouve, quant à elle, le caractère visco-plastique du comportement en traction de la fibre de lin ; cette déformation peut être causée soit par des changements conformationnels fortement visqueux des chaînes polymériques au sein des parois, soit par des endommagements irréversibles tels que des microfissures inter-fibrilles ou une rupture de la paroi primaire, soit par des déplacements irréversibles de molécules d'eau à l'intérieur de la matrice pectique ou aux interfaces entre parois [19], soit enfin par des déformations plastiques, résultant par exemple de contraintes internes de cisaillement de la matrice (Page *et al.* [134] ont, à ce sujet, proposé que le premier point d'inflexion sur une courbe de traction d'une fibre de bois reflétait la torsion des parois engendrée par de telles contraintes de cisaillement). L'ordre chronologique de déclenchement de ces phénomènes dépend du niveau d'énergie que chacun requiert pour être amorcé.

Concernant la non-linéarité de la courbe contrainte-déformation, une autre hypothèse a été proposée par Nilsson et Gustafsson [17] : elle consiste à supposer l'existence de dislocations le long des microfibrilles et à considérer que les hémicelluloses interfaciales ont un comportement élasto-plastique. Le cisaillement des hémicelluloses lors d'un essai de traction entraîne alors des rotations locales de la fibre qui ont pour effet de dérouler les microfibrilles et leurs dislocations, augmentant ainsi la rigidité de la fibre. La modélisation de cette hypothèse par éléments finis parvient à recréer la forme non-linéaire du début de la courbe contrainte-déformation d'une fibre de lin. La présence de telles dislocations serait donc une explication morphologique plausible à cette non-linéarité lors de la deuxième phase d'un essai de traction, qui va dans le même sens que celle développée ici, à savoir la réorientation des microfibrilles.

L'hypothèse de réarrangement des fibrilles à l'intérieur des parois, déjà validée par les calculs d'angle du paragraphe précédent, peut également être confirmée par des micrographies de fibres cassées en traction (Fig. 3 - 22) : il apparaît, sur des faciès de rupture observés à fort grossissement au MEB, que les fibrilles de cellulose sont quasiment alignées avec l'axe de la fibre, ce qui confirme leur déplacement au cœur même de la fibre lors d'un essai de traction.

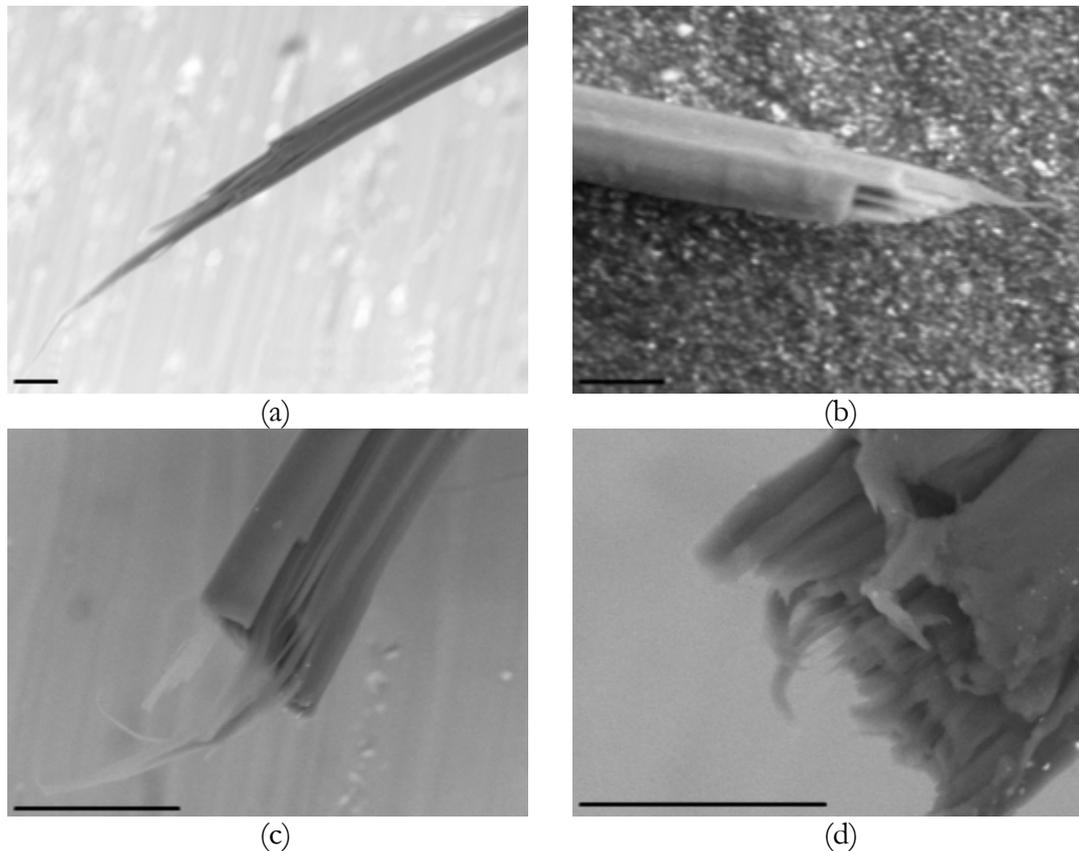


Fig. 3 - 22. Micrographies électroniques de faciès de rupture de fibres de lin : mise en évidence de l'alignement des fibrilles avec l'axe de la fibre à la fin de l'essai (la barre représente 20  $\mu\text{m}$ )

Enfin, lors de la dernière phase linéaire, le comportement de la fibre apparaît élastique, ce qui laisse penser que ce sont alors les microfibrilles de cellulose (fortement cristallines) qui portent intégralement la charge en se déformant élastiquement. Dans le même temps, les interphases entre les différentes couches de la fibre et/ou entre les microfibrilles de cellulose seraient alors supposées cisailer et certaines microfibrilles pourraient éventuellement être déjà cassées, ce qui expliquerait que la pente de la dernière zone n'atteint pas le module d'élasticité de la cellulose, estimé à 137 GPa [65], mais une valeur deux fois plus faible.

---

## Conclusion

Ce chapitre a permis de définir quelques caractéristiques mécaniques des fibres de lin. Tout d'abord, l'analyse des propriétés mécaniques des fibres a montré que les fibres issues du milieu des tiges ainsi que celles de la variété Hermès présentaient à la fois les meilleures contraintes à la rupture et les meilleurs modules d'élasticité. Ces résultats vont dans le même sens que les conclusions des études morphologiques (Chp 2) et biochimiques (Annexe 1) réalisées sur différents types de fibres. De plus, l'influence de deux traitements appliqués aux fibres de lin (connus pour faciliter leur séparation les unes des autres) sur leurs propriétés mécaniques a été étudiée : il est apparu que le traitement {eau bouillante + EDTA}, assez efficace vis-à-vis de l'extraction des fibres élémentaires, ne perturbait pas notablement les valeurs moyennes des caractéristiques mécaniques et pouvait donc être utilisé pour obtenir plus facilement des fibres unitaires pour les essais de traction.

Ensuite, de forts écart-types relatifs (proches de 50 %) autour des moyennes des propriétés mécaniques ont été obtenus. En plus de la variété et de la position des fibres dans les tiges, la teneur en cellulose et la présence de défauts semblent être les paramètres les plus critiques vis-à-vis de ces dispersions. En effet, la cellulose est le renfort principal de la fibre, tant en fraction massique (environ 70%) qu'en rigidité (module d'Young de 137 GPa) ; il paraît donc évident qu'une faible différence dans la teneur en cellulose d'une fibre à une autre entraîne de forts écarts entre leurs propriétés, notamment en termes de module d'élasticité. D'autre part, les défauts, créés non seulement au cours de la croissance de la fibre mais aussi lors des traitements mécaniques permettant son extraction des tiges, ont une répartition très aléatoire en termes de densité et de taille. Compte tenu de leur influence sur l'amorçage de la rupture, ces défauts permettent de comprendre pourquoi les propriétés associées sont à ce point dispersées. Enfin, les particularités géométriques et structurales, exposées au chapitre précédent, ont certainement un rôle substantiel dans le mode de rupture des fibres. Pour résumer, chaque fibre a été fabriquée de manière unique ; même si quelques tendances se dégagent (par exemple entre différentes variétés), sa principale caractéristique est d'être différente des autres aussi bien morphologiquement que biochimiquement, et donc mécaniquement.

Malgré ces dispersions, le comportement mécanique en traction uniaxiale des fibres de lin peut être étudié à partir de courbes et de propriétés moyennes. Le fait, par exemple, que ces dernières varient légèrement avec la vitesse de sollicitation atteste du caractère visco-élastique de la fibre de lin. L'existence d'une déformation résiduelle non négligeable lors d'un déchargement complet en traction révèle quant à elle le caractère visco-plastique de la fibre, du à certains endommagements créés lors du chargement initial.

Enfin, deux aspects particuliers des fibres de lin ressortent de cette étude : la diminution du module d'élasticité quand le diamètre des fibres augmente et la non-linéarité observée au début des courbes contrainte-déformation. En effet, le module n'est pas censé varier avec la taille du matériau ; sa dépendance vis-à-vis du diamètre a été fortement atténuée par l'utilisation du diamètre de la fibre mesuré à proximité de la rupture, à la place de celui estimé en plusieurs points le long de la fibre. Concernant l'allure des courbes de comportement en traction des fibres de lin, la zone incurvée qui apparaît dès le début du chargement a été attribuée à une réorganisation interne des constituants des parois, provoquée par l'alignement progressif des microfibrilles de cellulose avec l'axe de traction et, conséquemment, par le déplacement des polymères pectiques qui les entourent. Une corrélation entre le début de la phase « fibrilles alignées » sur la courbe de traction et l'angle initial des microfibrilles dans la paroi principale d'une fibre de lin, ainsi que des observations MEB de faciès de rupture sur lesquelles les microfibrilles de cellulose apparaissaient parallèles à l'axe de la fibre, ont permis de confirmer cette hypothèse.

La connaissance de la structure pariétale et du comportement en traction d'une fibre de lin pourrait être appliquée à la fabrication de matériaux composites synthétiques dont les constituants pourraient être d'origine naturelle, conduisant ainsi à des produits biobasés et biodégradables aux propriétés mécaniques maîtrisées.

# Chapitre 4

## Etude de composites unidirectionnels lin/polyester

L'étude de la loi de comportement en traction longitudinale de fibres de lin a permis de déterminer leur mode de déformation ainsi que leurs propriétés mécaniques moyennes. Ces données indiquent que les fibres de lin pourraient être des renforts efficaces de matrices polymères. Ce chapitre est consacré à l'étude des propriétés mécaniques de tels composites.

Une première partie bibliographique introduit la notion de fibres techniques comme renfort de composites, avant de détailler les principaux modes d'élaboration de ces derniers et les difficultés y afférant ; quelques résultats d'essais de traction sur des composites à base de fibres naturelles sont également présentés. La seconde partie regroupe les résultats et les analyses des essais mécaniques menés sur des composites unidirectionnels à base de longues fibres de lin et d'une matrice polyester, mis en forme selon différentes techniques. L'objectif est de montrer que les fibres de lin peuvent être utilisées comme renfort de matériaux structuraux et non plus seulement comme simple charge.

---

### I. Présentation des composites à base de fibres naturelles

#### I.1. Renfort

Le renfort utilisé dans les composites unidirectionnels à base de lin se présente sous la forme de fibres techniques, c'est-à-dire de fibres regroupées comme dans leurs faisceaux originels que les

diverses étapes de rouissage, teillage et peignage ont plus ou moins divisés mais sans atteindre, dans la majorité des cas, la fibre unitaire (cf. Fig. 1 - 12). Autrement dit, le renfort est constitué de fibres unitaires collées entre elles par leurs lamelles mitoyennes. Celles-ci contiennent en grande partie des pectines (principalement des acides polygalacturoniques et des rhamnogalacturonanes [57]), qui peuvent être retirées par des chélateurs (notamment par l'EDTA, qui capture les ions calcium reliant les pectines entre elles) ou par de l'eau bouillante [3]. Elles peuvent également être dégradées par des enzymes spécifiques aux pectines (principalement des endopectate lyases, des endopolygalacturonases, des pectine méthylestérases, des endoglucanases et des xylanases [74,76] ; on parle alors de rouissage enzymatique, dont le but est de diviser au maximum les fibres techniques sans affecter l'intégrité des fibres unitaires.

D'après leur définition, les fibres techniques ont des dimensions comprises entre celles des fibres unitaires et celles des faisceaux. Cela signifie que leur section peut varier de  $80 \mu\text{m}^2$  (équivalent à l'aire d'une fibre de  $10 \mu\text{m}$  de diamètre) à plus de  $20\,000 \mu\text{m}^2$  (équivalent à l'aire d'un faisceau de 40 fibres de diamètre moyen  $25 \mu\text{m}$ ). En fonction de la qualité du rouissage et du nombre de passages dans la peigneuse, les fibres techniques sont plus ou moins fines. Une étude de l'TTF-Lin [153] a montré que l'indice de finesse standard (IFS) des fibres techniques de lin pouvait être divisé par 2 au bout de quatre passages dans la peigneuse, conduisant à une proportion de fibres de sections inférieures à  $500 \mu\text{m}^2$  (équivalent à une fibre unitaire de diamètre  $25 \mu\text{m}$ ) de plus de 70 % (Fig. 4 - 1).

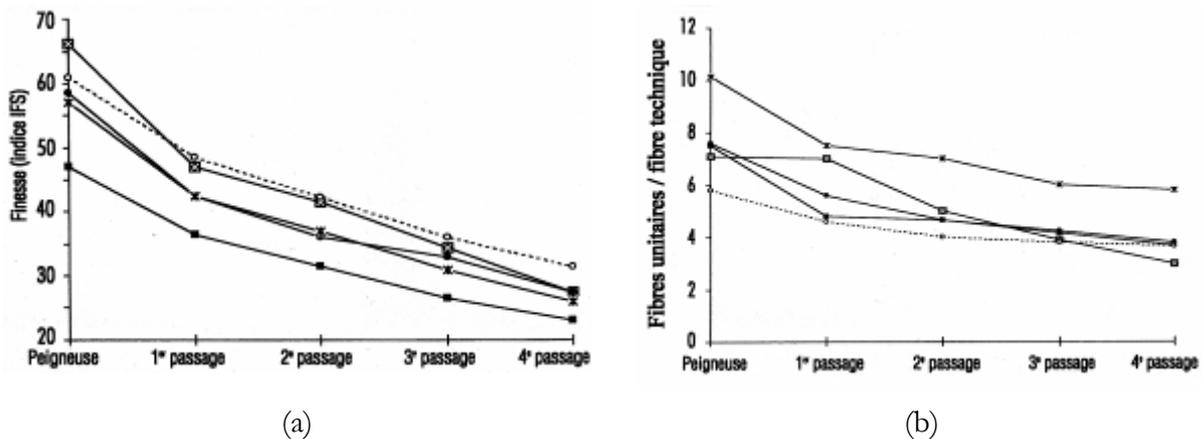


Fig. 4 - 1. Evolution de la finesse des fibres techniques (a) et du nombre de fibres unitaires par fibre technique (b) en fonction du nombre de passages dans la peigneuse [153]

Concernant leur longueur, les fibres techniques peuvent, en fonction du nombre de fibres unitaires qu'elles contiennent, mesurer jusqu'à près d'1 m, soit la hauteur moyenne d'une tige [126] ; généralement, elles ont une longueur comprise entre 30 et 60 cm. Le paramètre dimensionnel le plus

délicat à estimer est l'épaisseur de la lamelle mitoyenne entre deux fibres. Cette valeur ne peut pas être atteinte en microscopie optique, mais, d'après des images obtenues au FIB (cf. Fig. 2 - 36) ou au MET (Fig. 4 - 2, [73]), elle ne dépasse pas 0,2  $\mu\text{m}$ .

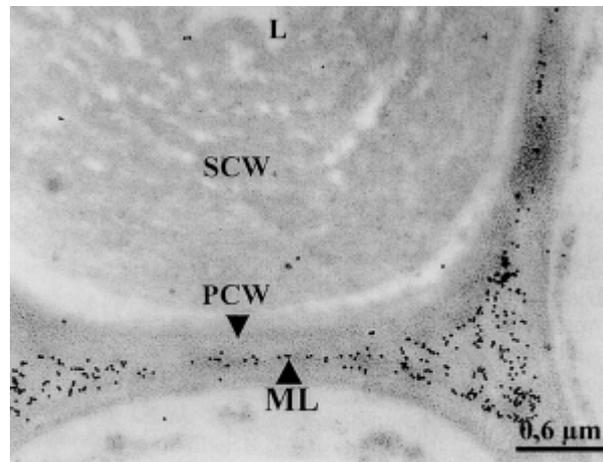


Fig. 4 - 2. Micrographie électronique d'une section de fibre technique [73] :

ML = lamelle mitoyenne ; PCW = paroi primaire ; SCW = paroi secondaire ; L = lumen.

Les courbes force-déplacement des fibres techniques présentent généralement des décrochements de la charge, appelés « pop-in » [126], qui sont associés à la formation de macrofissures par jonction des microfissures situées dans un même plan. D'après Nilsson et Gustafsson [17], ces courbes présentent une linéarité notoire par opposition aux courbes des fibres unitaires, parce que les pectines inter-fibres empêcheraient les rotations locales des microfibrilles. En effet, la lamelle mitoyenne paraît très sensible au cisaillement ; Zafeiropoulos et Baillie [38] proposent que la contrainte à la rupture plus élevée des fibres unitaires par rapport à celle des fibres techniques (Tableau 4 - 1) s'expliquerait par un amorçage de la rupture de ces dernières au niveau de la faible interface entre fibres.

	Fibre unitaire	Fibre technique	Référence
$L_0 = 3 \text{ mm}$	1491 MPa	851 MPa	[101]
$L_0 = 8 \text{ mm}$	766 MPa	157 MPa	[38]

Tableau 4 - 1. Comparaison des contraintes à la rupture moyennes de fibres unitaires et de fibres techniques pour des longueurs libres de fibres de 3 ou 8 mm.

Cette hypothèse a été confirmée par des observations au MEB [126] qui révèlent que la rupture d'une fibre technique (schématisée Fig. 4 - 3) commence par une décohésion longitudinale

(a), c'est-à-dire une fracture du ciment pectique, qui déclenche des microfissurations radiales à l'intérieur des fibres unitaires (b) ; s'ensuit alors le regroupement de ces microfissures en une macrofissure qui traverse les fibres unitaires suivant un chemin en zigzag (imposé par les différents types de défauts présents), avant de conduire à la rupture totale de la fibre technique (c). Bos [101] a également remarqué que les ruptures des fibres unitaires pouvaient parfois se produire à la même abscisse le long d'une fibre technique (et non en zigzag) ; elle propose que ce phénomène résulte de la présence d'importants défauts de type genoux situés cote à cote sur les différentes fibres unitaires d'une même fibre technique.

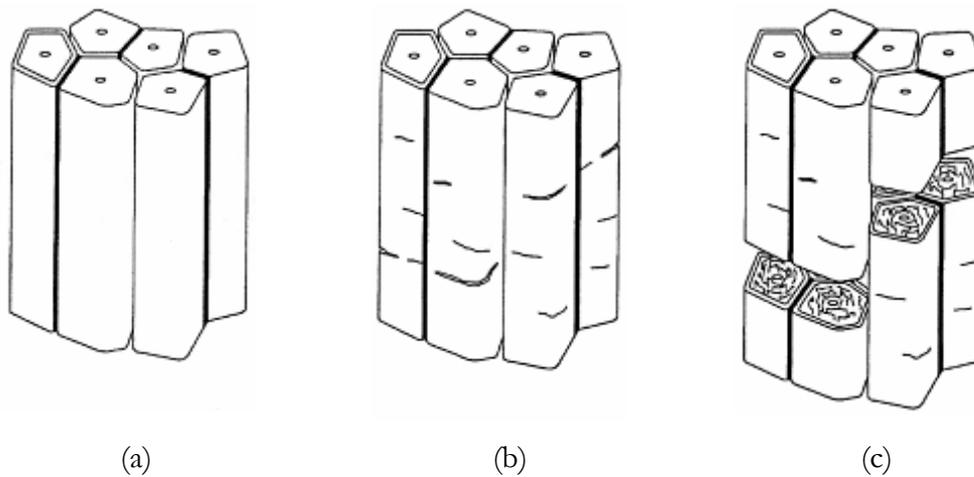


Fig. 4 - 3. Séquence de rupture d'une fibre technique [126] : ruptures du ciment pectique interfacial (a), microfissures transverses (b) et ruptures des fibres unitaires (c)

La résistance mécanique d'une fibre technique dépend évidemment des propriétés des fibres unitaires qu'elle contient (taille des fibres et des défauts) mais aussi de celles des lamelles mitoyennes (épaisseur et résistance au cisaillement). Romhany *et al.* [126] ont étudié ces fibres techniques de lin d'un point de vue mécanique et ont mis en évidence la dépendance des propriétés en traction avec la longueur de fibre testée (Tableau 4 - 2 et Fig. 4 - 4a). Bos [101] a suggéré que, pour de fortes longueurs de jauge ( $> 25$  mm), la rupture survenait par cisaillement des interphases pectiques entre fibres unitaires (de manière quasi instantanée et par écoulement plastique) alors que, pour de plus faibles longueurs (inférieures à la longueur moyenne des fibres unitaires), les fissures devaient traverser les très résistantes microfibrilles de cellulose (Fig. 4 - 4b). Des résultats similaires avaient déjà été reportés par Kohler et Wedler [154] pour des fibres techniques teillées.

Longueur de jauge (mm)	3	10	20	25	40	50	80	100
Contrainte à la rupture (MPa)	851	737	613	531	454	531	264	504
	± 314	± 281	± 442	± 184	± 231	± 186	± 127	± 173

Tableau 4 - 2. Contraintes à la rupture moyennes en fonction de la longueur de jauge [101,126]

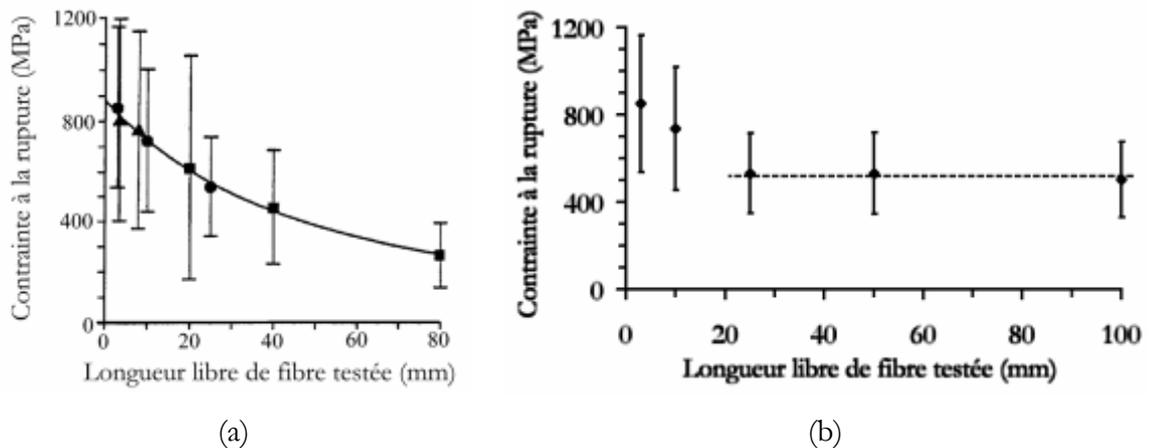


Fig. 4 - 4. Contraintes à la rupture de fibres techniques de lin en fonction de la longueur de jauge ;

(a) adapté de [126] : ■ [126], ▲ [125], ● [45]; (b) adapté de [101]

Il est utile de rajouter que, là encore, la détermination de la valeur de la section de fibre à utiliser pour le calcul de ses propriétés mécaniques est très délicate ; dans la majorité des cas, elle est définie à partir de la mesure, sur quelques micrographies, du diamètre apparent de la fibre technique, en considérant une section parfaitement circulaire. Cette approximation peut expliquer en partie les fortes dispersions des valeurs des contraintes à la rupture (écart-types relatifs d'environ 40 %).

Par conséquent, l'optimisation des propriétés des composites à base de fibres de lin nécessite de diviser au maximum la fibre technique afin, d'une part, de bénéficier des bonnes propriétés des fibres unitaires et, d'autre part, d'augmenter la surface de contact potentielle entre les fibres et la matrice. Bos [101] a effectivement montré que la taille des fibres techniques avait un rôle plus important sur leurs valeurs de contrainte à la rupture que ne l'avaient leur mode d'extraction (standard ou manuel) et les défauts qu'il engendrait. L'enjeu est donc de réussir à éliminer sélectivement les pectines présentes aux interfaces entre fibres sans dégrader celles des parois cellulaires. La formulation d'un procédé de rouissage enzymatique, qui mobilise actuellement de nombreuses unités de recherche biochimique, est donc un domaine de recherche particulièrement important pour le développement de ces éco-composites.

## I.2. Composites à base de fibres végétales

### I.2.a. Intérêts et débouchés

L'intérêt porté aux composites à base de fibres végétales depuis quelques années a plusieurs origines. La première est la prise de conscience écologique née dans les années 80 et concrétisée par le protocole de Kyoto en 1995. Parmi les objectifs de ce protocole, le remplacement progressif des produits pétrochimiques par des ressources renouvelables justifie l'importance accordée aux fibres ligno-cellulosiques comme renfort de matrices polymères en remplacement de fibres synthétiques [155]. La deuxième motivation à l'utilisation de telles fibres est économique : en fonction de leur qualité, le coût des fibres de lin est entre 2 et 10 fois inférieur à celui des fibres de verre [143,156]. Enfin, des arguments pratiques (filières de production déjà existantes, disponibilité locale) ou physiques (dimensions, densité, propriétés mécaniques) peuvent allonger la liste des avantages des fibres naturelles et rendre les composites qui en dérivent d'autant plus intéressants.

Ces composites trouvent des applications dans les domaines de la construction (comme produits d'isolation notamment), du mobilier et des jouets, mais le principal secteur bénéficiaire est l'industrie automobile [157]. La plupart des constructeurs européens les utilisent pour réaliser des pièces intérieures telles que des panneaux de porte, des tableaux de bord, des tablettes arrières, des panneaux de roue de secours, des revêtements de sol... [157,158], avec le plus souvent une orientation aléatoire des fibres, conduisant à des propriétés isotropes [67]. La fabrication de pièces plus techniques à partir de ces mêmes éléments est d'ores et déjà envisagée, par exemple en orientant les fibres dans des directions privilégiées.

Les fibres végétales sont les challengers des fibres de verre dans le domaine du renforcement de matrices polymères. En effet, ces deux types de fibres ont des propriétés mécaniques spécifiques du même ordre de grandeur, qui deviennent quasiment similaires dans le cas des fibres de lin (cf. Fig. 1 - 22) et qui se répercutent sur les propriétés des composites dérivés [159]. Il a d'ailleurs été estimé que les fibres végétales pourraient prendre jusqu'à un quart du marché mondial des fibres de verre utilisées dans les plastiques [160]. Des études comparatives des impacts environnementaux de composites à base de fibres végétales et de ceux de composites à base de fibres de verre utilisés dans le secteur automobile [143,155] ont démontré que les premiers avaient un bilan écologique supérieur aux seconds, et ce pour plusieurs raisons :

(1) La production de fibres végétales nécessite 5 fois moins d'énergie non renouvelable que celle des fibres de verre (9,6 MJ/kg contre 54,7 MJ/kg respectivement)

(2) Pour des propriétés mécaniques équivalentes, les composites à base de fibres naturelles nécessitent un taux volumique de renfort plus important, donc une quantité plus faible de résine (souvent très polluante et d'origine pétrochimique)

(3) Les composites à base de fibres naturelles ont des masses inférieures aux composites à base de fibres de verre, ce qui se traduit, lors de la phase d'utilisation, par des réductions de consommation de carburant et d'émission de gaz à effet de serre.

D'autre part, concernant plus spécifiquement les fibres de lin, leur culture ne nécessite que très peu d'azote [1] et leur cycle de vie est neutre vis-à-vis de l'émission de CO<sub>2</sub> [159]. Par conséquent, les composites renforcés par des fibres de lin peuvent être envisagés comme un moyen écologiquement efficace pour remplacer les composites à base de fibres de verre.

## I.2.b. Problèmes liés à l'élaboration

### *Problème de stabilité thermique*

La faible stabilité thermique des fibres végétales est un problème qui se manifeste notamment lors de la mise en œuvre des composites. Des expositions à des températures supérieures à 100°C provoquent des changements irréversibles (et donc destructifs) au cœur des parois, notamment au niveau des hémicelluloses. A 110°C, la vitesse de dégradation de la fibre est encore lente, mais elle augmente rapidement avec la température [67] jusqu'à la dégradation totale de la cellulose autour de 250°C [160]. Par conséquent, une exposition des fibres à plus de 200°C, même pendant quelques minutes seulement, peut entraîner des endommagements graves et altérer leur intégrité structurale. Il est généralement admis que la mise en œuvre des composites incorporant ces fibres doit éviter des expositions à des températures supérieures à 170°C pendant plus de 2 minutes.

### *Matrices utilisables*

Les matrices ainsi que les procédés de fabrication des composites doivent donc être choisis de telle sorte à éviter les expositions à des flux thermiques trop importants (combinaison température - temps de séjour). Concernant les matrices thermodurcissables, celles qui conviennent le mieux sont les époxy [49,161,162] ou les polyesters insaturés [163-165], car leur post-cuisson ne nécessite pas de température supérieure à 100°C. Parmi les matrices thermoplastiques, on retiendra plutôt celles à bas point de fusion, comme le polypropylène ( $T_f = 160^\circ\text{C}$ ).

L'émergence de biopolymères pouvant servir de matrice aux fibres végétales, rend envisageable la fabrication d'écocomposites. Avant toute chose, le terme de biopolymères doit être précisé : il s'agit de polymères biodégradables (i.e. qui peuvent être détruits sous l'action de

l'environnement et/ou de micro-organismes) mais pas forcément biobasés (exemple : les polymères synthétiques renfermant des liaisons esters ou amides hydrolysables tels que des polyesters amides aliphatiques [89]). La famille des biopolymères regroupe donc des polymères d'origine microbienne (le glucose), végétale (la cellulose, l'amidon), animale (la chitine), protéinique (la soie, la laine), ou synthétique (le polyacide lactique (PLA), le polycaprolactone (PCL), le polybutylène succinate (PBS), les polyhydroxyalcanoates (PHA) et leurs dérivés (PHB...)) [131]. Ces derniers ont fait l'objet de plusieurs études visant à estimer leur capacité à produire des éco-composites : il est apparu que, pour la majorité d'entre eux, les propriétés physiques et mécaniques étaient comparables aux matrices polymères traditionnellement utilisées avec les fibres végétales [24,116,131,163,166-169].

### *Procédés de mise en œuvre*

Les procédés les plus usités pour la fabrication de composites à fibres sont la compression (35% des composites fabriqués), l'injection (dont le resin transfer molding RTM) et le moulage au contact [157]. Les composites à base de fibres végétales semblent suivre la même tendance [159]. La compression consiste à consolider sous une presse, à température ambiante ou avec un chauffage approprié, les fibres (en forme de nappes unidirectionnelles ou de mats) et la matrice (liquide ou sous forme de film) [162,166,169,170]. Le principe du RTM est d'injecter une résine fluide à basse pression à travers un renfort sec placé dans un moule fermé [116,171,172]. La faisabilité d'un tel procédé sur des mats de lin a cependant été infirmée par des mesures de compressibilité et de perméabilité du renfort fibreux [173]. L'infusion repose sur le même principe que l'injection, à la différence près que la matrice est cette fois aspirée vers le renfort et non plus poussée. Il est évident que la viscosité de la matrice, sa température de mise en œuvre ainsi que son temps de gel sont des paramètres décisifs dans le choix du procédé de fabrication.

### *Problème d'encombrement des fibres*

Madsen et Lilholt [174] ont mis en évidence l'existence d'une fraction massique optimale de renfort dans un composite à base de fibres naturelles, qui permettait d'obtenir à la fois une forte teneur en fibres et une porosité relativement faible. A faible teneur en fibres, la porosité est contrôlée par les microporosités des fibres et de la matrice alors qu'à plus forte teneur, l'encombrement des fibres limite l'imprégnation des fibres par la matrice, d'où la formation de macroporosités et de zones sèches. La fraction massique correspondant à la transition entre ces deux cas dépend des conditions opératoires (mode de fabrication, pression et temps de consolidation...), de la morphologie du renfort (fibres en paquets ou bien séparées), et de la viscosité de la matrice.

Dans le cas de composites lin/polypropylène, le taux volumique optimal de fibres a été estimé entre 33 % et 41 %, en fonction de la pression de consolidation exercée (0,7 et 2,1 MPa respectivement) [174]. Dans le cas des composites à base de fibres de lin, les taux volumiques de fibres dépassent rarement 45 %.

### *Problème de compatibilité fibres/matrice*

Une autre caractéristique des fibres végétales est leur nature hydrophile. Les molécules de pectines et d'hémicelluloses qu'elles contiennent possèdent des groupes hydroxyles et des groupes d'acide carboxylique qui sont des sites préférentiels pour l'absorption d'eau atmosphérique [175]. La cellulose est également un constituant très hydrophile, bien que la linéarité et la forte cristallinité des microfibrilles empêchent une grande partie des molécules d'eau de parvenir jusqu'à leurs sites de sorption [67]. D'un autre côté, les matrices polymères pouvant être utilisées avec les fibres végétales pour fabriquer des composites sont la plupart du temps particulièrement hydrophobes et imprègnent mal ces fibres. Une des principales conséquences est l'absence d'interphase ou la formation d'une interface fibre/matrice faible (dite non-liée), à l'origine de mauvais transferts de charge. Dans cette configuration, les fibres peuvent alors être considérées comme des pores à l'intérieur de la matrice, et l'augmentation du taux volumique de renfort entraîne une chute des propriétés à la rupture des composites [163].

Par ailleurs, le caractère hydrophile des fibres se traduit par une grande instabilité dimensionnelle en fonction de l'humidité ambiante ; une exposition du composite à l'eau, par exemple, provoque le gonflement des fibres, qui entraîne à son tour des concentrations de contraintes à l'intérieur de la matrice, favorisant ainsi l'endommagement et la rupture du composite.

Des moyens ont donc été mis en œuvre pour tenter d'atténuer ce caractère hydrophile et d'améliorer la compatibilité entre les fibres végétales et les matrices communément utilisées. Les deux grandes familles de traitements pratiqués sont la compatibilisation et le couplage. La première consiste à modifier la surface de la fibre pour améliorer son imprégnation par les résines ; le second revient à insérer entre les fibres et la matrice un agent chimique bifonctionnel pouvant réagir avec les groupements hydrophiles de la fibre d'un côté et avec les groupements hydrophobes de la matrice de l'autre [67]. Parmi les traitements utilisés pour augmenter les propriétés des composites, ceux à la soude ou à l'EDTA semblent efficaces pour les composites lin/époxy [49,161,162,176]. Dans le cas des composites lin/polyester, des augmentations notables des performances mécaniques ont été obtenues après des traitements chimiques (solution {soude + anhydride acétique} ou acide formique [107]) ou physiques (plasma froid ou autoclave [164]). L'adhésion entre les fibres de lin et une matrice polypropylène a pu être améliorée par l'utilisation d'anhydride maléique (seul ou sous forme

de copolymère avec le polypropylène) [127,170,177-180] et celle entre les fibres de lin et du PHB par l'addition de thiodiphénol [167].

Il existe plusieurs types d'essai permettant d'évaluer l'adhérence des fibres avec une matrice donnée à travers l'estimation de la contrainte de cisaillement interfacial [181] : l'essai de déchaussement, soit d'une fibre enchâssée dans une matrice, soit d'une microgoutte de matrice déposée sur la fibre [107,182] ; le test de fragmentation, qui consiste à enrober une fibre dans une matrice transparente puis à solliciter par traction le composite ainsi formé jusqu'à rupture de la fibre ou du composite [127] ; le test de micro-indentation, lors duquel la fibre en surface du composite est poussée par la pointe d'un indenteur pour caractériser l'interface fibre/matrice [183].

Dans le cas de la liaison entre des fibres de lin et une résine polyester et à partir d'essais de déchaussement, Busnel [107] a estimé la contrainte de cisaillement interfacial à 14,2 MPa pour des fibres brutes, et a montré qu'un traitement des fibres à l'acide formique ne portait cette contrainte qu'à 16,4 MPa. Pour comparaison, une contrainte de cisaillement interfacial moyenne de 12,8 MPa a été mesurée par des essais de fragmentation entre des fibres rouies et une matrice de polypropylène [184], contre 17,3 MPa par des tests de déchaussement [185]. Enfin, une contrainte de 5,6 MPa a été déterminée par déchaussement de fibres de lin d'une matrice polyéthylène [185]. En conclusion, l'interface entre les fibres de lin et la résine polyester semble assez liée (en tout cas, par rapport aux autres matrices citées) pour ne pas nécessiter de prétraitements chimiques ou physiques destinés à augmenter la contrainte de cisaillement interfacial.

Enfin, il doit être noté que l'aspect « biodégradable » des fibres végétales, qui est un avantage souvent mis en avant pour justifier leur utilisation, devient un problème lorsqu'il s'agit de fabriquer des pièces structurales censées ne pas se dégrader sous l'action de la température, de l'humidité ou d'une certaine biomasse avant plusieurs années. Il y a donc ici encore un intérêt à bloquer chimiquement les sites réactifs vis-à-vis de l'environnement (notamment les groupements hydroxyles) pour que la teneur en eau des fibres ne dépasse pas son niveau naturel, à savoir environ 10% en volume.

### I.2.c. Propriétés mécaniques des composites

#### *Choix du renfort pour améliorer les propriétés mécaniques d'une matrice donnée*

Il existe deux types de renforcement de matrice polymère par des fibres, destinés tous les deux à améliorer les propriétés mécaniques de la matrice seule. Soit il s'agit d'augmenter la ténacité de matrices fragiles ; dans ce cas, on utilise des fibres dont l'allongement à rupture est supérieur à celui de la matrice ; la rupture est alors amorcée par les microfissures dans la matrice suivie du

pontage des fissures par les fibres pour conduire à la rupture finale par glissement des fibres dans la matrice. Soit il s'agit d'augmenter la rigidité de matrices très ductiles ; on utilisera alors des fibres dont l'allongement à rupture est inférieur à celui de la matrice mais dont le module d'élasticité est bien supérieur ; la rupture du composite est alors gouvernée par celle des fibres.

### *Influence de la qualité de l'interface fibre/matrice sur les propriétés mécaniques*

Dans les deux cas, une bonne adhésion entre les fibres et la matrice, c'est-à-dire qui permet le transfert de charge de l'un à l'autre, est nécessaire. Si l'interface entre les fibres et la matrice est forte, la rigidité du composite est très importante, mais comme les fibres ne peuvent pas glisser par rapport à la matrice et que les microfissures initiées dans la matrice traversent facilement les fibres, la rupture du composite se fait de manière fragile [186-188]. Si, par contre, l'interface fibre/matrice est trop faible, le transfert de charge n'est plus efficace [189] et les propriétés du composite sont similaires à celles de la matrice non renforcée. Par conséquent, il y a un compromis à trouver entre ces deux situations extrêmes de telle sorte que les fissures puissent être déviées et croître le long de l'interface, et que les fibres puissent se déchausser de la matrice sans casser, afin de retarder la rupture [181,190].

Dans le cas de composites lin/époxy, Eichhorn et Young [191] ont montré que des liaisons existaient entre la matrice et les fibres, au niveau des extrémités de ces dernières ; on peut supposer que ceci est dû à leur forme élancée, par opposition aux fibres synthétiques qui sont coupées net et dont la géométrie des extrémités ne permet pas de transfert de charge. D'après ces auteurs, l'existence d'un transfert de charge efficace à cet endroit compense la discontinuité des fibres naturelles. On peut également ajouter que les fortes variations diamétrales des fibres (cf. Chp 2 § III) facilitent leur ancrage mécanique au sein des matrices polymères, conduisant à de bonnes propriétés à la rupture.

### *Modes d'endommagement et rupture des composites*

Les types d'endommagement les plus critiques dans les composites sont la fissuration de la matrice, le déchaussement et la rupture des fibres [192] ; chacun de ces mécanismes de rupture induit des endommagements locaux qui peuvent être accélérés s'ils sont couplés entre eux. Souvent, la fissuration aux interfaces fibre/matrice apparaît en premier et se transmet à l'interface suivante via la matrice, et ainsi de suite jusqu'à rupture du composite. Les fissurations (dans la matrice et aux interfaces) peuvent être quantifiées par analyse de l'émission acoustique ou par des observations MEB, ou encore par radiographie aux rayons X.

*Propriétés mécaniques de composites sollicités par traction (bibliographie)*

Enfin, quelques propriétés mécaniques obtenues à partir d'essais de traction sur des composites à base de fibres de lin, relevés dans la littérature, sont regroupées dans le tableau 4 - 3. Les propriétés des composites unidirectionnels (UD) sont supérieures (à taux volumique de fibres comparable) à celles de matériaux dont le renfort est disposé de façon aléatoire (il s'agit souvent de mats). Cela s'explique simplement par le fait que, dans un UD, 100 % des fibres sont efficaces lors de la mise en tension longitudinale du composite, par opposition aux mats dans lesquels seule une petite proportion des fibres est réellement efficace suivant la direction de sollicitation. Quel que soit le renfort utilisé, les propriétés mécaniques des composites à base de matrices thermodurcissables ou thermoplastiques (dont notamment les biopolymères) sont comparables. Globalement, pour un taux volumique de 30% environ, la contrainte à la rupture d'un composite unidirectionnel est de l'ordre de 150 MPa (50 MPa pour un mat), le module d'élasticité 20 GPa (8GPa pour un mat) et la déformation à rupture 1,5%.

Par rapport aux propriétés des composites renforcés par des mats de fibres de verre, celles des composites à base de fibres de lin ne sont que légèrement inférieures, surtout en termes de propriétés à la rupture, mais leur rigidité pour le même taux de fibres est similaire ; l'écart serait encore plus faible si la comparaison était faite au niveau des propriétés spécifiques (c'est-à-dire à masses de composites égales).

renfort		matrice	$t_{\text{fibres}}^v$ (%)	$\sigma_r$ (MPa)	$\varepsilon_r$ (%)	E (GPa)	référence
anisotrope	lin	polyester	48	157	1,0	43	[164]
		epoxy	32 - 40	132 - 249	-	15 - 28	[49,101,116,161]
		polypropylène	43	251	-	27	[174]
		amidon	25	124	-	11	[193]
isotrope	lin	polyester	25 - 44	13 - 73	0,8	1 - 12	[163,173,194]
		polypropylène	29 - 40	19 - 68	1,5 - 2,8	2 - 8	[24,131,166,179,195]
		polyéthylène HD	30	42	1,8	8	[140]
		polyacide lactique	30	53 - 99	1 - 1,5	8 - 10	[166,169]
		polycaprolactone	21	25	1,3	4	[131]
	verre	polyester	28 - 32	130 - 135	1,6 - 1,7	10 - 11	[169,173]
		polypropylène	22 - 40	88 - 100	-	6	[24,159]

Tableau 4 - 3. Propriétés mécaniques en traction de composites isotropes ou anisotropes à base de fibres de lin en fonction du type de matrice et du taux volumique de fibres ; comparaison avec des composites isotropes renforcés par des fibres de verre

*Propriétés mécaniques de composites sollicités en flexion (bibliographie)*

Le tableau suivant regroupe quelques propriétés mécaniques de composites unidirectionnels obtenues à partir d'essais de flexion 3 points. Ces valeurs serviront de référence pour juger de la qualité des résultats issus des essais de flexion par flambement sur des composites lin / polyester présentés dans le paragraphe suivant.

renfort	matrice	$t_{\text{fibres}}^v$ (%)	$\sigma_r$ (MPa)	$\varepsilon_r$ (%)	E (GPa)	référence
UD	polypropylène	17	90	1,8	11	[170]
	epoxy	40	218	-	18	[161]
mat	polypropylène	30	43 - 50	-	3,4 - 3,9	[178,179,195]

Tableau 4 - 4. Propriétés mécaniques en flexion de composites isotropes ou anisotropes à base de fibres de lin en fonction du type de matrice et du taux volumique de fibres

---

## II. Composites lin / polyester étudiés

L'objectif de ce paragraphe est de décrire les différents protocoles utilisés pour la fabrication de composites à fibres de lin et à matrice polyester ; sont également présentées les méthodes d'obtention des taux volumiques de fibres et d'évaluation de la porosité (détaillées dans l'annexe 2). Dans toute l'étude, la résine utilisée est un polyester insaturé isophtalique (Norsodyne G703) de masse volumique  $1,08 \text{ g/cm}^3$  à l'état liquide et  $1,17 \text{ g/cm}^3$  à l'état durci (à  $20^\circ\text{C}$ ). Le catalyseur est un peroxyde organique (Luperox) utilisé dans la proportion massique 1 %. L'accélérateur de la réaction entre la résine et le catalyseur est le cobalt (0,15 % en masse). Les fibres utilisées proviennent de tiges de la variété Hermès cultivées en Normandie en 2003.

### II.1. Protocole de fabrication des composites

#### II.1.a. Moulage au contact

Des moules en PVC de forme rectangulaire (voir Fig. 4 - 10) ont été réalisés par l'entreprise Omnium Composite Industrie (OCI). Des fibres techniques, de longueur 220 mm, ont été prélevées des mèches et utilisées telles quelles ou peignées pour éliminer les fibres courtes ; dans la suite, les premières seront appelées « courtes » et les secondes « longues ». Quelques échantillons de fibres longues ont été traités à la soude ( $5.10^{-2} \text{ mol/L}$  pendant 20 minutes suivi de rinçages à l'eau, à l'acide chlorhydrique  $10^{-4} \text{ mol/L}$  puis à l'eau et enfin séchage à  $80^\circ\text{C}$  pendant 8 heures), ce qui est censé diviser encore les fibres techniques.

Les fibres sont ensuite pesées, imprégnées par un mélange résine - accélérateur - catalyseur (ajoutés dans cet ordre), déposées dans le moule préalablement ciré puis recouvertes à ras bord de la matrice. La manipulation doit être rapide car le temps de gel de la matrice catalysée et accélérée est d'environ 20 minutes. Des plaques de verre et des poids d'environ 10 kg sont ensuite placés sur les moules pour maintenir une pression constante. Les composites sont ainsi laissés 24 heures à température ambiante pour la polymérisation, puis démoulés. Des composites à base de fibres de verre ont été fabriqués de la même façon à des fins de comparaison (les propriétés mécaniques des fibres de verre étant bien définies), ainsi que des éprouvettes de matrice seule, dans le but de déterminer ses propriétés mécaniques. Entre 8 et 17 éprouvettes de chaque type ont ainsi été fabriquées.

La masse volumique de la résine thermodurcie, estimée à partir des échantillons de matrice seule, vaut  $\rho_{\text{matrice}} = 1,152 \text{ g.cm}^{-3}$  (ce qui est proche des données du fournisseur). La porosité  $t_{\text{pores}}^v$  moyenne calculée sur l'ensemble des échantillons (cf. Eq. A - 8) vaut  $2,6 \% \pm 1,7 \%$ . Elle est de l'ordre de 5 % pour les composites à base de fibres de verre alors qu'elle dépasse rarement 3 % pour les éprouvettes à base de fibres de lin. Elle n'est pas négligeable devant les taux volumiques de fibres dans les composites fabriqués (cf. Eq. A - 5), qui varient de 5 à 19 %, avec une moyenne à  $10,7 \% \pm 3,6 \%$ .

### II.1.b. Compression à chaud

Pour obtenir des plaques de composites unidirectionnels à base de fibres de lin et de résine polyester, un moule en acier, de dimensions 300 mm x 300 mm, et son contre-moule, formant un entrefer de 2 mm, sont préalablement cirés (l'épaisseur du composite final dépendra de l'épaisseur des cales entre le moule et son contre-moule ; ici, une épaisseur finale de 4 mm est choisie). Les mèches de lin sont peignées, pour retirer les fibres courtes et aligner les fibres longues les unes par rapports aux autres, puis coupées à une longueur de 290 mm avant d'être déposées au fond du moule.

La matrice est préparée avec la résine polyester et son catalyseur, mais cette fois sans accélérateur, de façon à obtenir une masse  $m_{\text{matrice}}$ . Elle est ensuite versée sur la nappe de lin dans le moule, puis le contre-moule et les cales sont placés pour fermer l'ensemble, qui est ensuite déposé dans la presse chauffante.

Une pression d'environ 1,7 MPa est appliquée sur le moule et une température de 80°C est imposée pendant 1 heure. Le moule est ensuite laissé à refroidir à température ambiante pour que la résine finisse de polymériser sans déformer le composite. Les plaques sont mesurées et pesées en sortie du moule pour évaluer leur porosité moyenne (cf. Eq. A - 8). Elles sont ensuite découpées par OCI en éprouvettes pour les essais mécaniques.

Six plaques ont ainsi été fabriquées, avec des taux volumiques de fibres (calculés à partir de l'Eq. A - 11) variant de 10 % à 40 % (moyenne à  $25,8 \% \pm 7,3 \%$ ) et des porosités moyennes de l'ordre de 5 %. Il est clair que cette méthode de mise en forme des composites permet d'atteindre des teneurs en fibres plus élevées que par le moulage au contact, du fait de la plus forte pression appliquée.

### II.1.c. Infusion

Des tentatives de fabrication par infusion de plaques lin/polyester ont également été faites. Le principal problème était le temps de gel de la résine catalysée, qui était trop court pour lui permettre de parcourir une distance suffisamment importante le long des mèches peignées de lin. De plus, ce procédé continu en alimentation de résine ne permet pas de calculer facilement la porosité et le taux volumique de fibres. Des éprouvettes destinées aux essais de traction et de flambement ont tout de même pu être prélevées dans une partie de plaque infusée dont le taux volumique de fibres a été estimé à 32 %.

## II.2. Evaluation microstructurale du taux volumique de fibres

Les objectifs de cette étude sont multiples. Il s'agit d'une part de vérifier que le taux de fibres calculé par les pesées et mesures des dimensions des différents éléments correspond bien à la réalité du composite fabriqué ; d'autre part, d'estimer la taille moyenne des sections des fibres techniques présentes dans un composite ; enfin, de juger de l'efficacité du traitement à la soude sur la morphologie des fibres dans le composite.

Pour cela, une partie d'une éprouvette de type fibres longues (de taux volumique calculé 10,6 %) et une partie d'une éprouvette dont les fibres longues avaient été traitées à la soude (de taux volumique 16,9 %) ont été prélevées, enrobées, polies et observées transversalement au microscope optique. Quelques images issues de ces observations sont présentées dans les figures suivantes.

Il apparaît tout d'abord que la répartition des fibres n'est pas vraiment homogène dans la section (Fig. 4 - 5) ; cela peut être dû au faible taux volumique de fibres présentes dans le composite. Ensuite, il semble que le traitement alcalin n'améliore pas la division des fibres techniques (Fig. 4 - 6), malgré ce qui était attendu d'un tel traitement. Les distributions du nombre de fibres élémentaires par fibre technique (obtenues par comptage) sont comparées à la suite (Fig. 4 - 7).

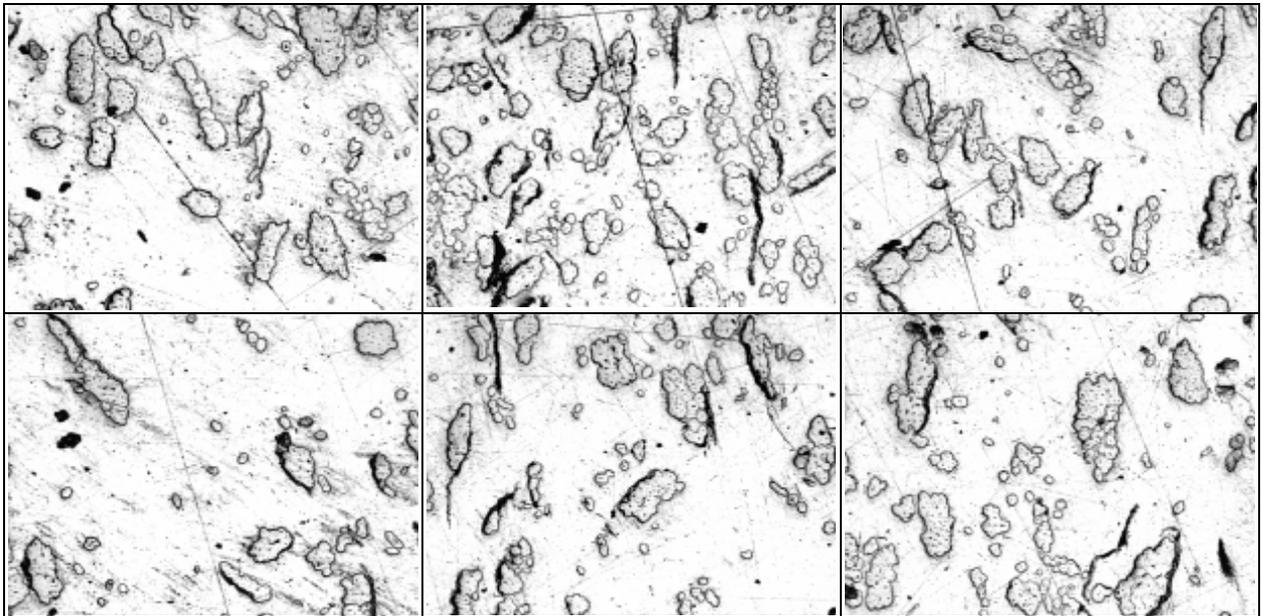


Fig. 4 - 5. Micrographies optiques d'une section d'un composite à fibres longues :  
mise en évidence de l'hétérogénéité de la répartition des fibres techniques

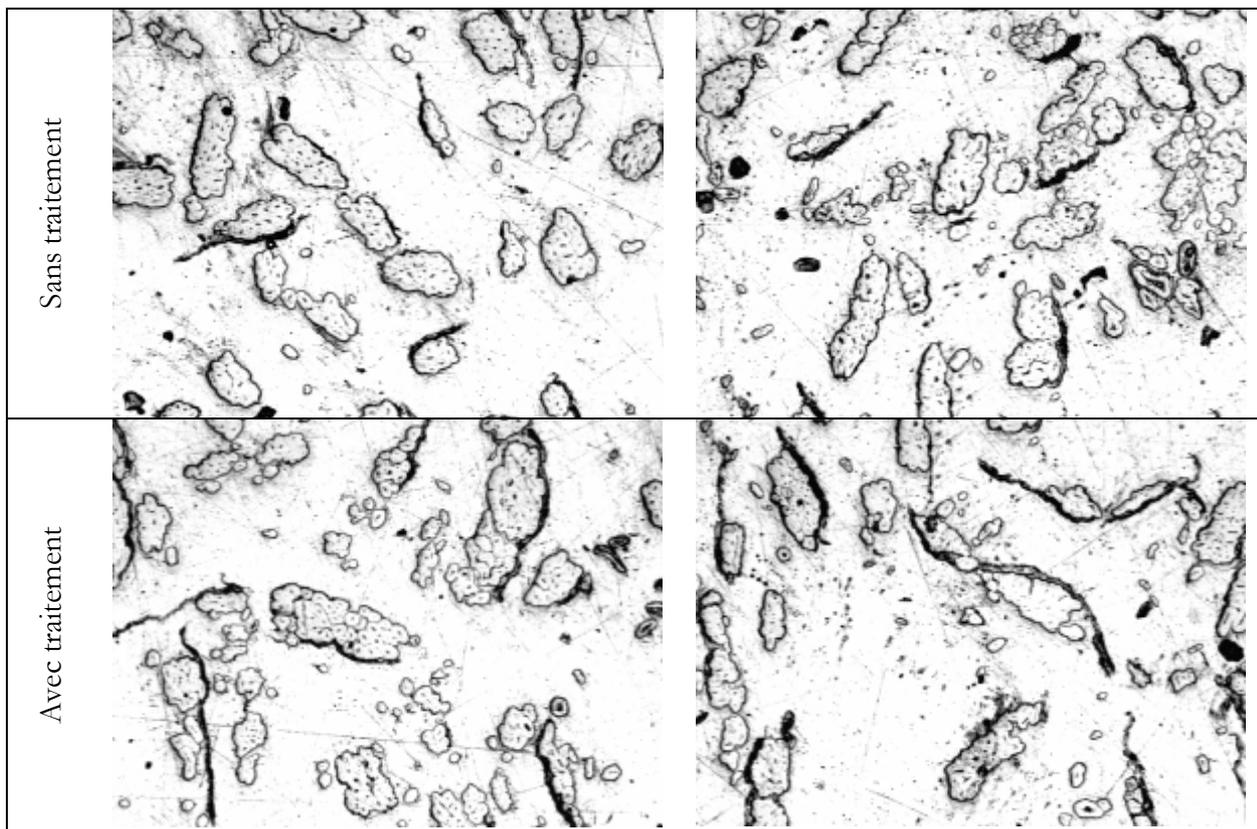
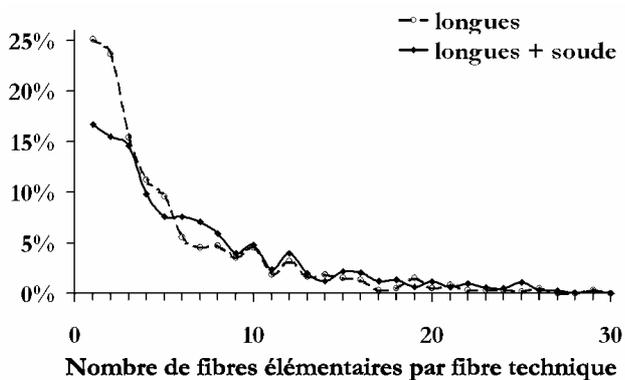


Fig. 4 - 6. Micrographies optiques de sections d'un composite à fibres longues et de sections d'un composite à fibres longues traitées à la soude



Composite à fibres longues :

1296 fibres élémentaires sous forme unitaire (25%)  
 3868 fibres élémentaires sous forme de faisceau  
 nombre moyen de fibres élémentaires par fibre technique : 6

Composites à fibres longues traitées à la soude :

1872 fibres élémentaires sous forme unitaire (17%)  
 9340 fibres élémentaires sous forme de faisceau  
 nombre moyen de fibres élémentaires par fibre technique : 8

Fig. 4 - 7. Distribution des nombres de fibres unitaires par fibre technique dans des composites à fibres longues : influence du traitement à la soude

Grâce à un programme d'analyse d'image appliqué sur les sections des composites, l'aire des fibres techniques peut être estimée (Fig. 4 - 8). En seuillant correctement l'image initiale en niveaux de gris (a), la surface de chacune de ces fibres peut être obtenue en binaire (b) ; le programme permet ensuite de superposer le contour des fibres détectées sur l'image initiale (c) afin de vérifier qu'aucune fibre n'a échappé au seuillage. Si c'est le cas, il est possible de sélectionner manuellement les fibres ignorées et de les inclure dans le calcul des aires.

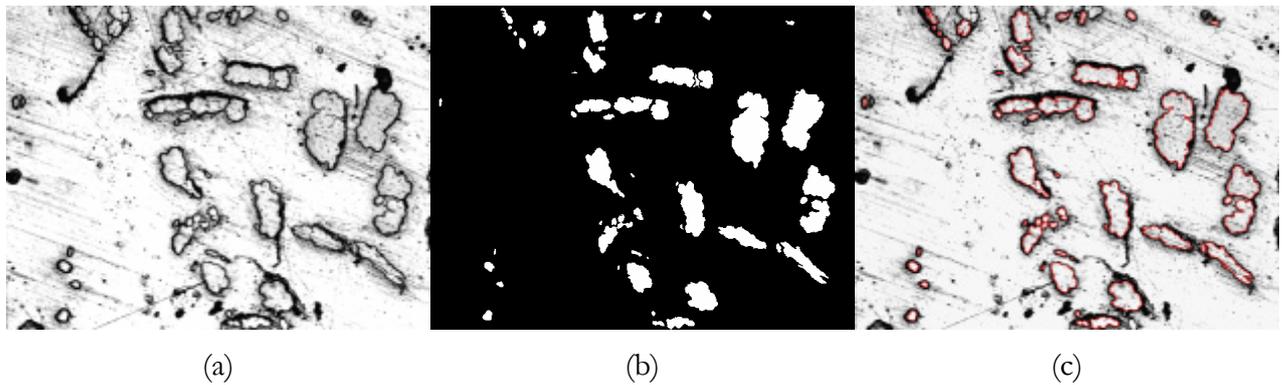


Fig. 4 - 8. Description du traitement de mesure des sections de fibres techniques sur une partie du composite à fibres longues : image initiale (a), image binaire (b) et identification des fibres techniques mesurées (c)

A partir de la mesure de l'aire de chaque fibre technique, on peut tracer leur distribution sur l'ensemble de la section du composite (Fig. 4 - 9) ; connaissant l'aire de la section de composite observée, on peut ensuite en déduire un taux surfacique moyen de fibres. Dans le cas de l'échantillon à fibres longues non traitées, ce taux surfacique atteint 10,7 %, à comparer avec le taux volumique de 10,6 % obtenue par l'Eq. A - 5 ; pour l'échantillon à fibres longues traitées à la soude, le calcul du taux surfacique conduit à 17,3 % (contre 16,9 % de taux volumique calculé).

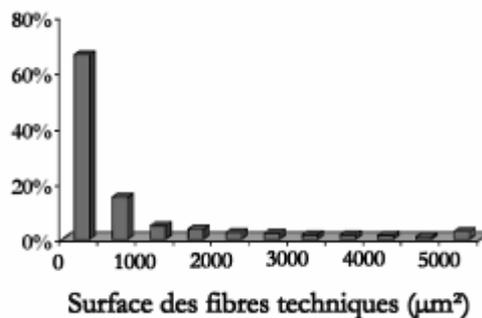


Fig. 4 - 9. Distribution en taille des fibres techniques du composite à fibres longues non traitées

En conclusion, la répartition des fibres n'est pas homogène sur une section, mais elle semble l'être sur la longueur de l'échantillon, puisque les taux surfaciques de fibres mesurés sur des sections aléatoirement choisies dans deux composites sont tout à fait comparables aux taux volumiques calculés lors de la mise en forme. Il ressort de cette étude que la méthode de mise en œuvre par moulage au contact ne permet pas de fabriquer des matériaux à forte teneur en fibres, ce qui provoque de fortes hétérogénéités transverses de localisation du renfort fibreux.

### III. Propriétés mécaniques des composites

Les composites fabriqués ont ensuite été testés par traction et en flambement, afin de déterminer leurs propriétés mécaniques en tension et en flexion.

#### III.1. Essais de traction

##### III.1.a. Eprouvettes de traction

Les éprouvettes utilisées pour les essais de traction sont soit de type haltère (Fig. 4 - 10a) pour les composites fabriqués par compression à chaud ou par infusion, soit de forme rectangulaire (Fig. 4 - 10b) pour les composites moulés au contact [196].

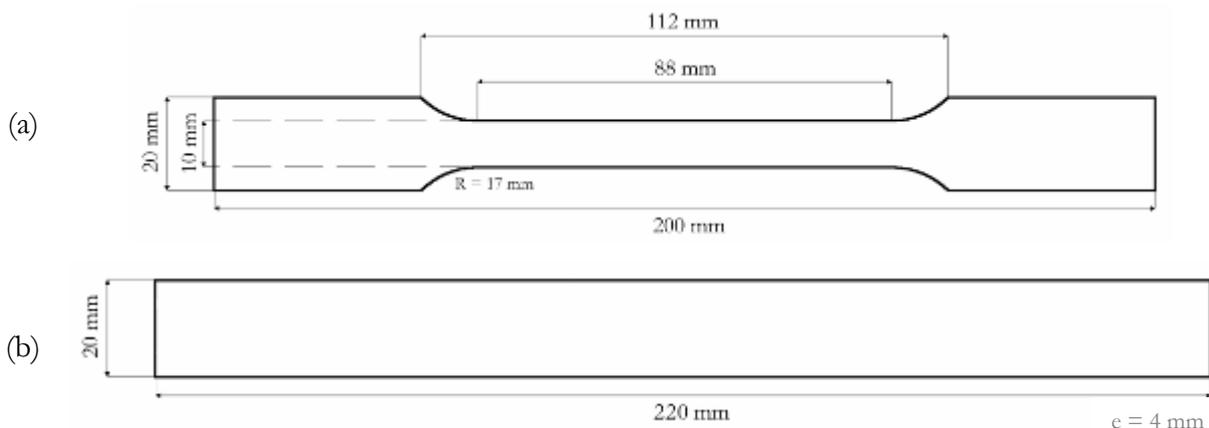


Fig. 4 - 10. Dimensions des éprouvettes de type haltère (a) ou rectangulaire (b)

Les essais ont été réalisés sur une machine de traction Instron (modèle 5566) équipée d'une cellule de charge de 10 kN et pilotée en déplacement de traverse à 1 mm/min. Après serrage dans les mors, la longueur libre de l'échantillon est mesurée précisément. La fréquence d'acquisition des données est fixée à 10 Hz et la déformation de l'éprouvette est mesurée à l'aide d'un extensomètre.

## III.1.b. Résultats des essais de traction sur la matrice seule

Deux courbes typiques contrainte-déformation d'éprouvettes de résine polyester sont présentées dans la figure 4 - 11 en fonction de leur mode de mise en forme. Les valeurs moyennes des propriétés de ces éprouvettes (12 réalisées au contact et 5 par compression) sont regroupées dans le tableau 4 - 5. Les écarts entre les valeurs d'allongement à rupture pour ces deux modes de mise en œuvre sont dus aux différences de température et de pression appliquées lors de la fabrication des plaques, qui influencent fortement l'état de réticulation de la matrice durcie et donc son comportement à la rupture. Il semble que la rupture des éprouvettes réalisées au contact se produise de manière anticipée ; il est probable que, même si leurs valeurs de porosité (déterminées par pesée dans le paragraphe précédent) sont inférieures à celles estimées pour les plaques fabriquées par compression, la morphologie des défauts engendrés par la mise en forme au contact soit plus critique vis-à-vis de l'amorçage et de la propagation des fissures.

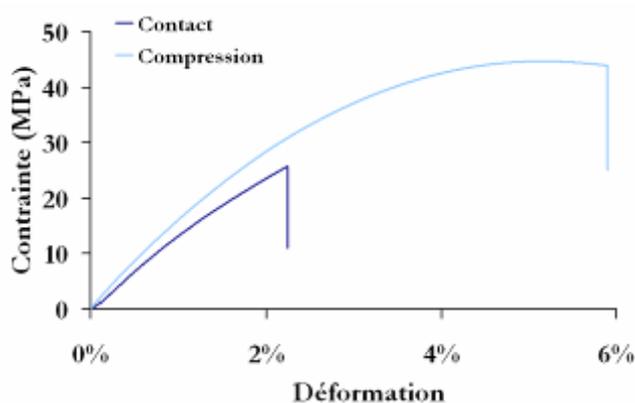


Fig. 4 - 11. Courbes contrainte-déformation de la résine polyester en fonction de sa mise en œuvre

	$\rho$ (g.cm <sup>-3</sup> )	$\sigma_{\max}$ (MPa)	$\epsilon_R$ (%)	E (GPa)
fiche technique du fournisseur	1,17	70	2,2	-
mise en forme par contact	1,152	27 ± 12	1,9 ± 0,9	1,5 ± 0,6
mise en forme par compression	1,160	42 ± 8	6,2 ± 2,4	1,4 ± 0,2

Tableau 4 - 5. Propriétés mécaniques de la résine polyester en fonction de la mise en forme utilisée

## III.1.c. Résultats des essais de traction sur les composites : allure des courbes

La même allure de courbe de comportement est observée pour les composites, quelle que soit la méthode de mise en forme considérée (Fig. 4 - 12). Leur allure globale ressemble d'ailleurs fortement à celle des fibres unitaires (cf. Chp 3) : après un premier domaine de comportement linéaire, la courbe s'infléchit pour mener à une seconde zone linéaire avant la rupture brutale.

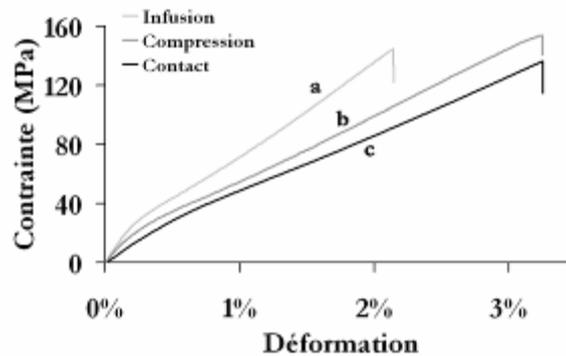


Fig. 4 - 12. Courbes représentatives du comportement en traction de composites fabriqués par infusion ( $t_{\text{fibres}}^v = 32\%$ , a), par compression ( $t_{\text{fibres}}^v = 20\%$ , b) ou au contact ( $t_{\text{fibres}}^v = 11\%$ , c)

On peut également remarquer que la fin de la zone linéaire initiale, c'est-à-dire le premier point de changement de pente, correspond globalement à la même déformation dans le cas du composite que dans le cas de la fibre unitaire (Fig. 4 - 13), soit une déformation de l'ordre de 0,3 %, avec toutefois une plus grande dispersion dans le cas des fibres.

Ces observations signifient que la synergie fibres/matrice opère dès le début du chargement mécanique ; cela augure d'une bonne qualité de l'interface entre les fibres et la matrice. En effet, les fibres, dont la déformation à la rupture est de l'ordre de 2 % (cf. Chp 3 § II), c'est-à-dire inférieure à celle de la matrice, commencent à casser les unes après les autres ; la contrainte est progressivement transférée sur la matrice, jusqu'à ce que celle-ci cède et que la rupture du composite se produise. Des éléments de la littérature (cf. § I.2.b) indiquent, de plus, que l'interface entre les fibres de lin et une résine polyester est plutôt liée. Il est donc probable que, dans le cas présent, le comportement initial du composite soit imposé par celui des fibres.

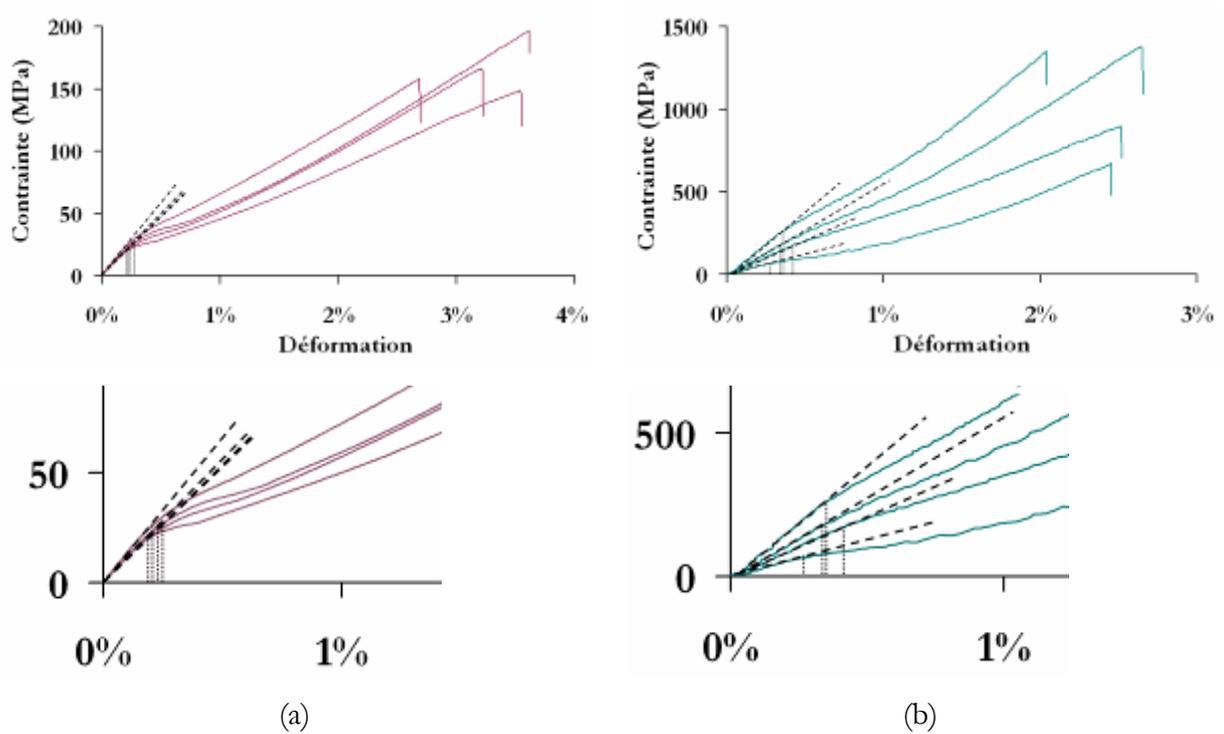


Fig. 4 - 13. Courbes contrainte-déformation de composites unidirectionnels lin/polyester (a) et de fibres unitaires de lin (b) (les graphes du bas sont des zooms des graphes du haut)

### III.1.d. Résultats des essais de traction sur les composites : propriétés mécaniques

A partir des courbes de comportement des composites obtenues par traction, on peut déterminer, en plus de la contrainte et de la déformation à la rupture, un module d'élasticité « initial » et un autre « final ». Les valeurs moyennes de ces quatre paramètres sont regroupées dans le tableau 4 - 6.

Renfort	quantité	$t_{\text{fibres}}^v$ (%)	$\sigma_r$ (MPa)	$\varepsilon_r$ (%)	$E_{\text{initial}}$ (GPa)	$E_{\text{final}}$ (GPa)
Fibres courtes de lin	15*	$10 \pm 3$	$111 \pm 30$	$2,8 \pm 0,4$	$4,3 \pm 1,1$	$3,5 \pm 0,9$
Fibres longues de lin	17*	$10 \pm 3$	$111 \pm 30$	$3,0 \pm 0,4$	$4,2 \pm 1,4$	$3,5 \pm 0,7$
	40°	$26 \pm 7$	$154 \pm 37$	$3,2 \pm 0,6$	$10,9 \pm 2,4$	$4,9 \pm 1,1$
	4 <sup>+</sup>	$32 \pm 1$	$154 \pm 47$	$3,0 \pm 0,3$	$14,1 \pm 1,9$	$6,3 \pm 0,5$
Fibres longues traitées	8*	$12 \pm 5$	$111 \pm 35$	$3,7 \pm 0,7$	$3,9 \pm 2,1$	$3,7 \pm 1,6$
Fibres de verre	9*	$12 \pm 5$	$254 \pm 126$	$4,7 \pm 1,0$	$6,5 \pm 2,5$	$5,5 \pm 3,4$

Tableau 4 - 6. Comparaison des propriétés mécaniques des composites en fonction du renfort et de la méthode de mise en forme (\* au contact ; ° par compression à chaud ; <sup>+</sup> par infusion)

La dispersion notable de ces paramètres est mise en évidence dans leurs graphes d'évolution en fonction du taux volumique de fibres (Fig. 4 - 14). Les écart-types relatifs des contraintes à rupture des composites (de l'ordre de 30 %) sont à comparer à ceux obtenus pour les fibres techniques (environ 40 %, cf. Tableau 4 - 2) : il semblerait que la dispersion des contraintes à rupture de ces dernières influence l'étalement des contraintes à rupture des composites dérivés.

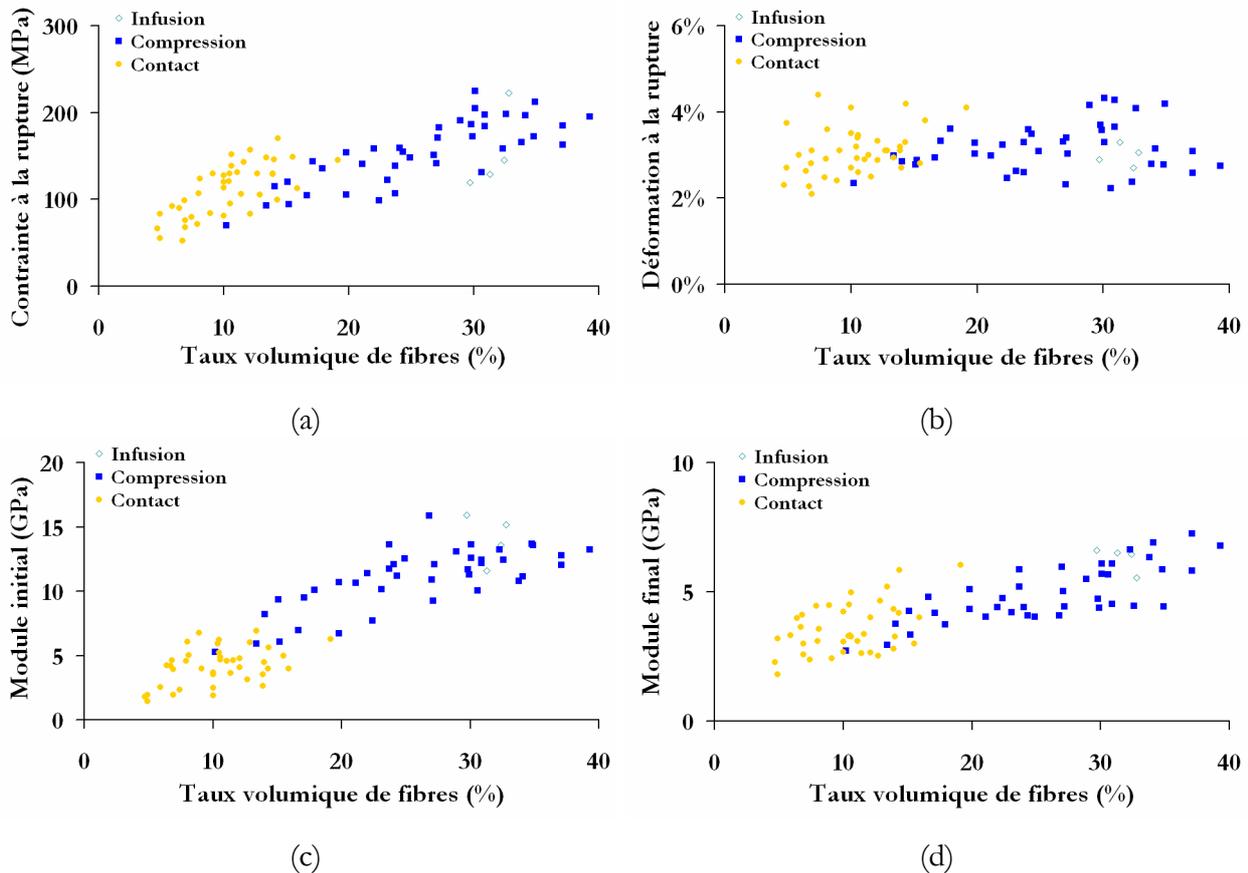


Fig. 4 - 14. Propriétés mécaniques des composites à base de fibres longues fabriqués soit par infusion, soit par compression à chaud, soit au contact, en fonction du taux volumique de fibres

### III.1.e. Evolution des propriétés mécaniques en fonction du taux de fibres

Il est important de remarquer, d'après les graphes précédents et le tableau 4 - 6, que les propriétés mécaniques des composites dépendent davantage du taux volumique de fibres que de la méthode de mise en œuvre. En effet, à part pour les déformations à rupture qui restent stables autour de 3 %, on observe une augmentation monotone des autres propriétés mécaniques des composites lorsque le taux de fibres augmente, qu'ils aient été fabriqués au contact, par compression ou par infusion. De plus, concernant le peignage préalable des fibres (permettant d'obtenir des fibres

« longues ») ou leur traitement par une solution alcaline, leurs influences sur les caractéristiques mécaniques des composites sont quasiment nulles.

### *Cas de la contrainte à la rupture*

D'après les propriétés mécaniques des matrices (Tableau 4 - 5) qui varient en fonction de la mise en forme utilisée, deux cas sont à distinguer pour étudier l'évolution des contraintes à la rupture des composites en fonction de leur taux volumique de renfort [197].

Dans le cas des composites mis en forme par contact, le renfort possède une déformation à la rupture légèrement supérieure à celle de la matrice. Il existe alors un seuil minimal du taux de fibres  $t_{\text{fibres}}^*$  pour que la présence de ces dernières améliore effectivement la résistance de la matrice ; ce taux est défini par :

$$t_{\text{fibres}}^* = \frac{\sigma_{\text{matrice}}^R}{\sigma_{\text{fibres}}^R - \sigma_{\text{fibres}}^* + \sigma_{\text{matrice}}^R} \quad \text{Eq. 4 - 1}$$

avec  $\sigma_i^R$  la contrainte à la rupture de la phase  $i$  (500 MPa pour les fibres et 27 MPa pour la matrice) et  $\sigma_{\text{fibres}}^*$  la contrainte que supportent les fibres lorsque la matrice a atteint sa déformation à la rupture ( $\sigma_{\text{fibres}}^* = \varepsilon_{\text{matrice}}^R E_{\text{fibres}}$ ). Le problème est que le module des fibres sous forme technique n'est pas connu.

En-dessous de cette valeur  $t_{\text{fibres}}^*$ , la matrice casse en premier et les fibres ne sont pas assez nombreuses pour supporter la contrainte qu'elle leur a transférée ; la contrainte à rupture du composite vaut alors :

$$\sigma_{\text{composite}}^R = \sigma_{\text{fibres}}^* t_{\text{fibres}} + \sigma_{\text{matrice}}^R (1 - t_{\text{fibres}}) \quad \text{Eq. 4 - 2}$$

La pente de la droite de régression de la Fig. 4 - 14a, estimée à environ 790 MPa si on impose  $\sigma_{\text{matrice}}^R$  comme ordonnée à l'origine, permet de déterminer  $\sigma_{\text{fibres}}^*$  puis  $E_{\text{fibres}}$  le module d'élasticité des fibres techniques dans le composite. On obtient une valeur de 43 GPa, qui est, comme on l'attendait, légèrement inférieure aux valeurs de modules calculées à partir d'essais de traction de fibres unitaires.

Pour un taux de fibres supérieur à  $t_{\text{fibres}}^*$ , les fibres sont alors en mesure de reprendre la charge lors de la rupture de la matrice ; la contrainte à la rupture du composite ne dépend alors que de la résistance des fibres :

$$\sigma_{\text{composite}}^R = \sigma_{\text{fibres}}^R t_{\text{fibres}} \quad \text{Eq. 4 - 3}$$

Cette fois, la pente de régression est estimée à 1030 MPa, ce qui pourrait correspondre à la contrainte à la rupture moyenne des fibres unitaires, ou à la limite supérieure des contraintes à la rupture relevées pour les fibres techniques (cf. Tableau 4 - 2).

Dans le cas des composites fabriqués par compression, la matrice a une déformation à la rupture bien supérieure (6,2 %) à celle du renfort. En tension, ce sont donc les fibres qui risquent de casser en premier. Le taux volumique de fibres minimal  $t_{\text{fibres}}^o$  au-delà duquel la rupture des fibres entraîne celle brutale du composite est :

$$t_{\text{fibres}}^o = \frac{\sigma_{\text{matrice}}^R - \sigma_{\text{matrice}}^o}{\sigma_{\text{fibres}}^R - \sigma_{\text{matrice}}^o + \sigma_{\text{matrice}}^R} \quad \text{Eq. 4 - 4}$$

avec  $\sigma_{\text{matrice}}^R$  la contrainte à la rupture de la matrice (42 MPa en moyenne),  $\sigma_{\text{fibres}}^R$  la contrainte à la rupture des fibres (de l'ordre de 500 MPa) et  $\sigma_{\text{matrice}}^o$  la contrainte à laquelle est soumise la matrice lorsque les fibres cassent. D'après les courbes de comportement de la matrice (Fig. 4 - 11), cette contrainte est estimée à 30 MPa. Le taux critique de fibres  $t_{\text{fibres}}^o$  vaut donc 2 %, ce qui est inférieur aux taux volumiques de fibres des composites réalisés dans cette étude. La contrainte transférée sur la matrice lorsque les fibres cassent est suffisamment importante pour entraîner la rupture brutale du composite, dont la contrainte vaut alors :

$$\sigma_{\text{composite}}^R = \sigma_{\text{fibres}}^R t_{\text{fibres}} + \sigma_{\text{matrice}}^o (1 - t_{\text{fibres}}) \quad \text{Eq. 4 - 5}$$

En imposant  $\sigma_{\text{matrice}}^o$  comme ordonnée à l'origine de la droite de régression du graphe 4 - 14a, la pente vaut alors environ 470 MPa, ce qui conduit à une contrainte à la rupture des fibres de l'ordre de 500 MPa.

Cette valeur est comparable à celles reportées dans la bibliographie pour les fibres techniques (Fig. 4 - 4b). Le procédé de mise en œuvre semble donc influencer les propriétés des fibres, de façon négative pour la compression à chaud. Il est probable que la pression de consolidation exercée provoque de nombreux endommagements au sein du renfort, surtout aux forts taux volumiques de fibres, qui n'apparaissent pas (ou moins) lors de la mise en forme par contact. De même, la température appliquée lors de la consolidation, bien que normalement tolérée par les fibres, entraîne probablement des défauts au niveau des parois cellulaires, qui diminuent ensuite la résistance des fibres dans le composite. Par conséquent, la mise en forme par compression permet certes d'obtenir des taux volumiques de fibres importants (jusqu'à 40% environ) et une matrice plus ductile que la mise en forme par contact, mais il semble qu'elle provoque des endommagements de fibres néfastes pour la résistance du composite.

### Cas du module d'élasticité

Concernant cette fois le module d'élasticité, une analyse similaire à celle réalisée sur la contrainte à la rupture conduit à un module de 35 GPa pour les fibres techniques, ce qui est inférieur à la valeur moyenne de 56 GPa déterminée à partir d'essai de traction de fibres unitaires de variété Hermès (Fig. 3 - 8c) mais aussi à celle de 43 GPa déterminée ci-dessus.

Certains auteurs [139,140,198], ont déjà proposé des estimations du module d'élasticité du renfort à partir de celui des composites par une loi des mélanges plus ou moins complexe ; le plus souvent, ils obtenaient aussi une valeur calculée inférieure à celle déterminée expérimentalement à partir d'essais de traction. L'explication la plus plausible à ce décalage est que le renfort associé à la matrice est sous forme de fibres techniques, et non pas de fibres unitaires, à l'instar des fibrilles de cellulose dans la matrice pectique à l'échelle de la fibre.

L'interface fibre/matrice étant apparemment liée, on peut supposer que lors de la déformation du composite, les fibres ont pu se réorganiser suivant le mode de déformation proposé au chapitre précédent. Cela expliquerait la non-linéarité de la courbe contrainte-déformation. Au-delà de cette transition, qui se situe à une déformation de 1 - 2 %, on peut également envisager que seule une partie des fibres (par exemple les mieux imprégnées par la résine, les plus résistantes ou les mieux réorientées par rapport à l'axe de sollicitation) continuent de participer au renforcement de la matrice. Cela impliquerait que, une fois la phase de réorganisation franchie, le taux volumique effectif de fibres serait inférieur au taux nominal. Le module d'élasticité du composite serait alors une combinaison du module de la matrice et de celui des fibres restantes. La loi des mélanges s'écrit alors :

$$E_{\text{composite}} = \alpha t_{\text{fibres}}^v E_{\text{fibre}} + (1 - \alpha t_{\text{fibres}}^v) E_{\text{matrice}} \quad \text{Eq. 4 - 6}$$

avec  $\alpha$  un facteur d'efficacité compris entre 0 et 1. La droite de régression qui retranscrit le mieux l'évolution du module final en fonction du taux de fibres et dont l'ordonnée à l'origine est fixée à 1,5 GPa (Fig. 4 - 14d) a une pente de 0,14 GPa/%. En considérant que le module des fibres techniques est compris entre 35 et 56 GPa, alors le facteur d'efficacité calculé à partir de l'Eq. 4 - 6 est compris entre 0,26 et 0,42. Cela signifierait que pas plus de la moitié des fibres ne participerait effectivement à la rigidité du matériau en fin de chargement.

Le graphe suivant (Fig. 4 - 15) représente l'évolution du module final des différents composites en fonction du taux volumique de fibres. L'évolution des points expérimentaux est bien décrite par la loi des mélanges donnée ci-dessus (Eq. 4 - 6) avec  $\alpha = 0,32$  et  $E_{\text{fibre}} = 45$  GPa, ce qui confirmerait qu'environ un tiers seulement des fibres présentes dans le composite renforcerait réellement la matrice.

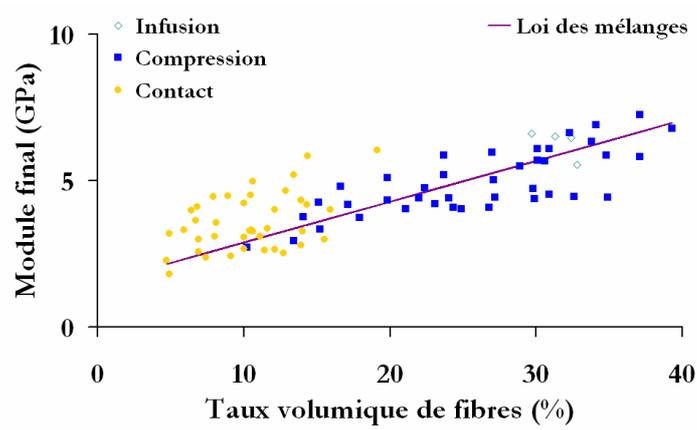


Fig. 4 - 15. Evolution du module final des composites en fonction du taux volumique de fibres

### III.1.f. Faciès de rupture

Trois photographies d'éprouvettes de composites fabriqués par compression et sollicités en tension jusqu'à rupture sont regroupées figure 4 - 16. Différents modes de rupture y sont observés : fissuration transverse, déviation de fissures, cisaillement le long d'interfaces fibre/matrice... Le fait que les fibres ne soient pas parfaitement alignées dans l'axe de sollicitation facilite ce dernier mécanisme.

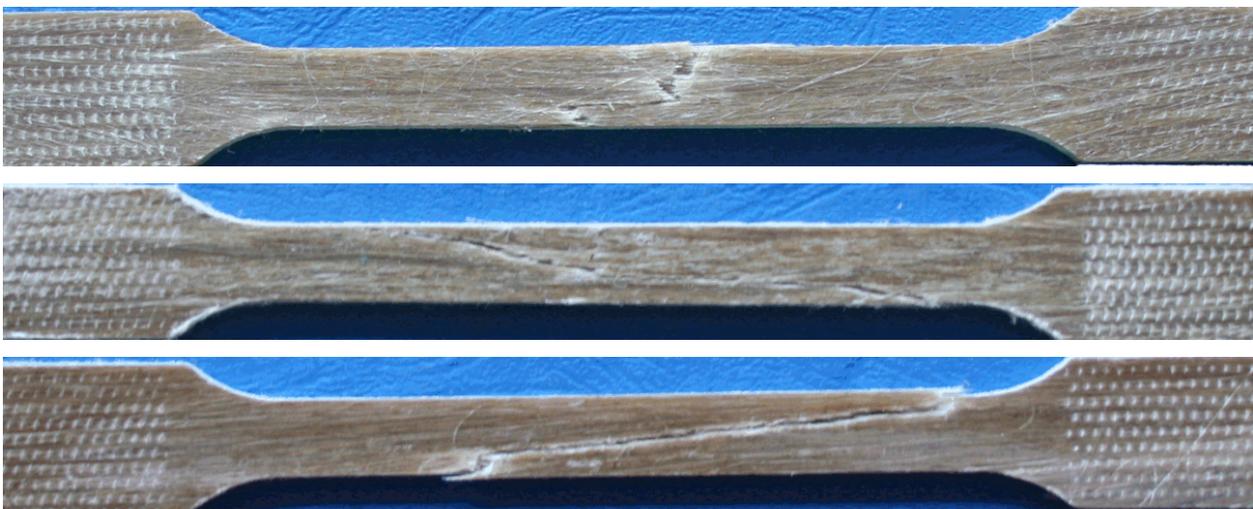


Fig. 4 - 16. Photographies d'éprouvettes de composites fabriqués par compression et sollicités en tension jusqu'à rupture

Des micrographies électroniques de quelques faciès de rupture de composite fabriqués au contact sont présentées figure 4 - 17. Elles mettent en évidence la diversité des modes de rupture (a). La multifissuration de la matrice (b) confirme sa relative fragilité par rapport aux fibres (dont

l'allongement à rupture est légèrement supérieur dans le cas de la mise en forme au contact). Dans quelques cas, les fibres unitaires d'une même fibre technique cassent toutes dans le même plan, comme si elles constituaient un matériau unique et compact (c). Dans d'autres cas, la rupture des fibres techniques se produit en zigzag, c'est-à-dire que la fissure de propagation à la fois par rupture des fibres unitaires et par cisaillement de l'interface entre elles (d). On distingue rarement des extrémités fines de fibres, mais plus souvent des ruptures nettes (e). Enfin, des empreintes de fibres ayant glissé dans la matrice sur de grandes longueurs (f) témoignent de l'ampleur du mécanisme de déchaussement de fibres dans la matrice. Tout cela semble indiquer que l'interface fibre/matrice n'est pas aussi liée que les éléments de la bibliographie le laissaient croire (cf. § I.2.b).

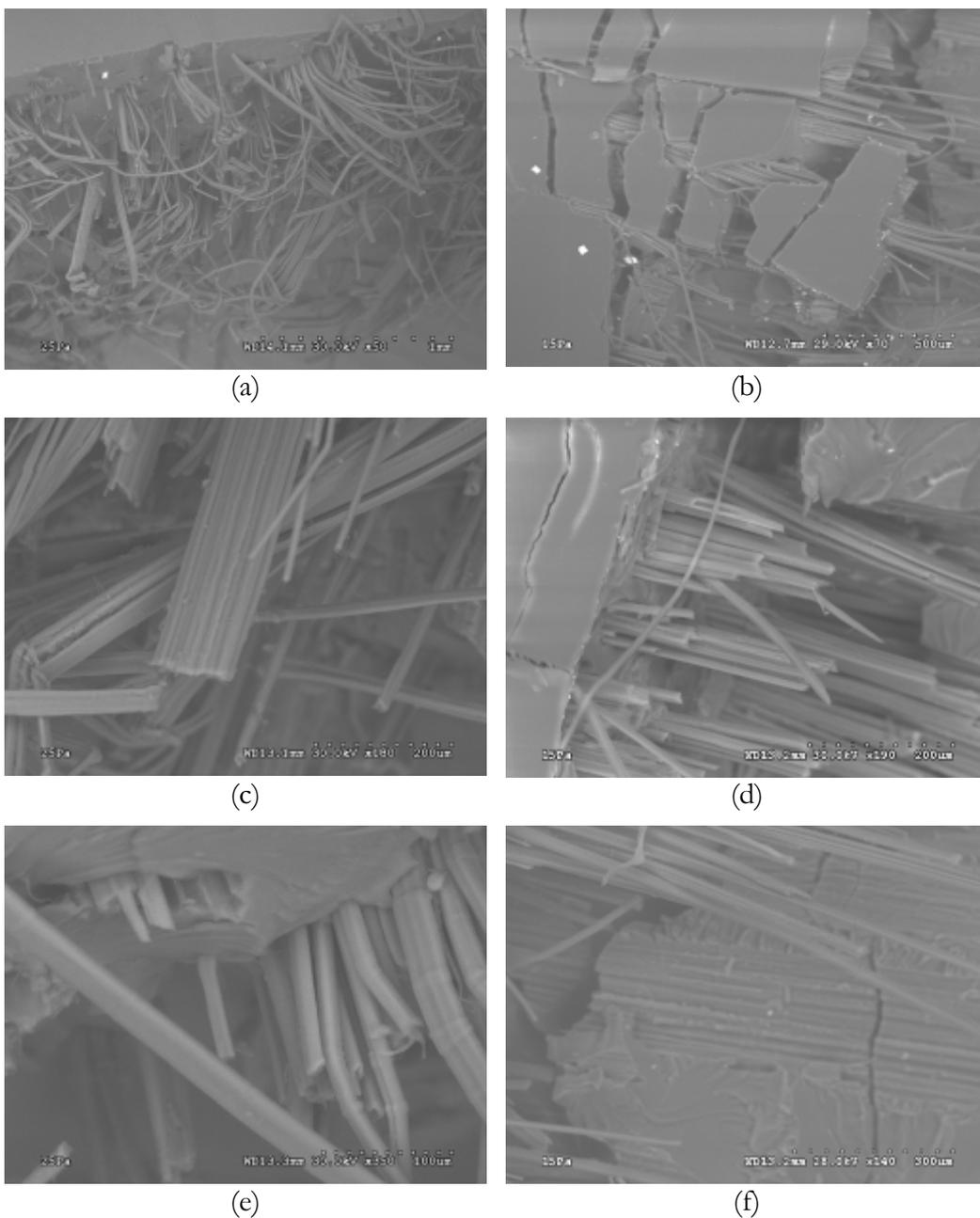


Fig. 4 - 17. Micrographies de faciès de rupture de composites à fibres longues fabriqués au contact

### III.2. Flambement

#### III.2.a. Protocole

Par opposition à un essai de flexion 3 points dont les différents appuis peuvent endommager le matériau et provoquer sa rupture anticipée, un essai de flexion par flambement permet de déterminer les mêmes caractéristiques mécaniques tout en s'affranchissant de ce type d'endommagement. Des photographies du montage mis au point au CRISMAT et des mors rotatifs sont présentées figure 4 - 19.

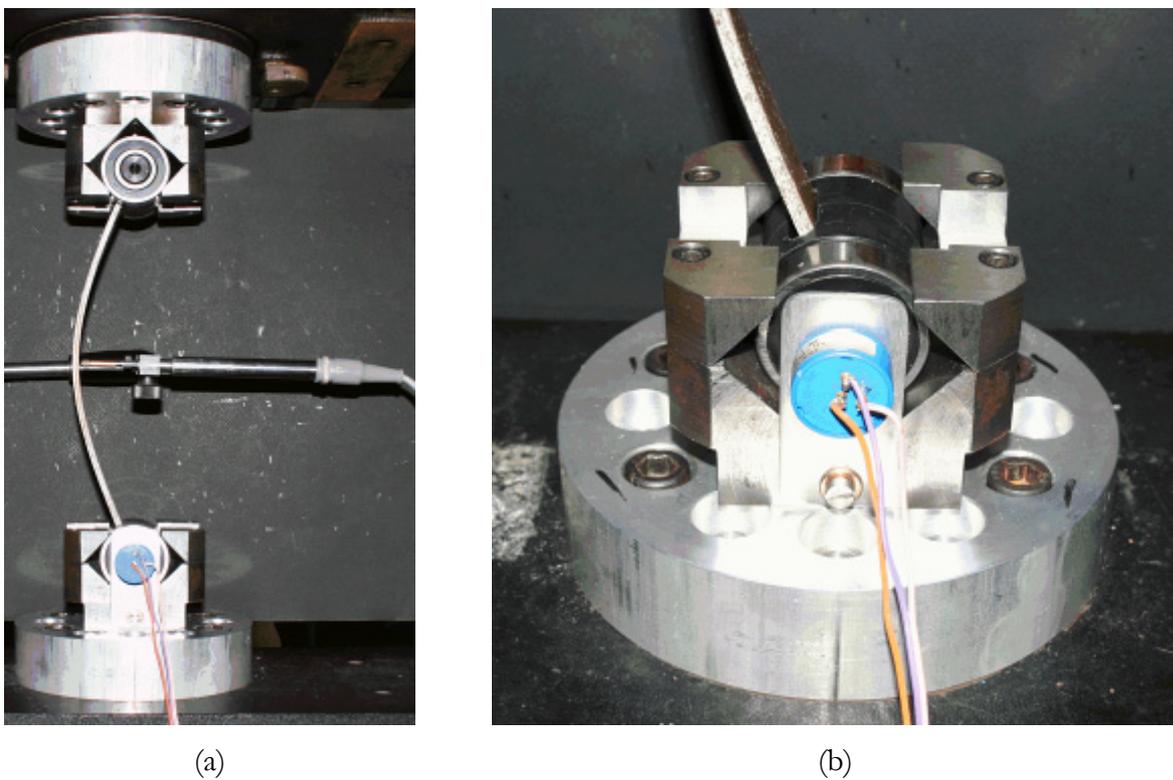


Fig. 4 - 18. Photographies du montage de flexion par flambement

Le principe de cet essai est de solliciter une poutre rectiligne, de largeur  $l$  et d'épaisseur  $e$ , en compression axiale par application d'un effort jusqu'à obtenir un déplacement transverse. A partir de l'état d'équilibre stable, caractérisé par une forme rectiligne de la poutre, l'augmentation de l'effort de compression  $F$  pourra la faire fléchir (état d'équilibre métastable) sans qu'elle se rompe si son élancement est suffisamment grand. Quelques exemples de courbes de comportement de matériaux soumis à un essai de flexion par flambement sont donnés figure 4 - 20.

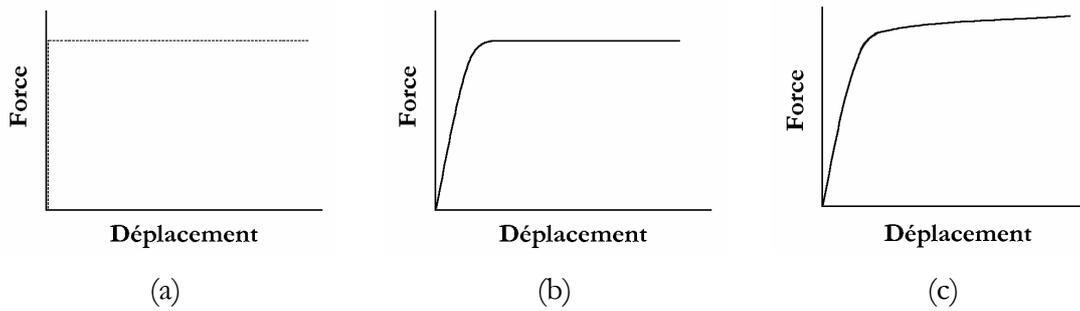


Fig. 4 - 19. Courbes force-déplacement de traverse d'un matériau parfaitement élastique (a), d'un matériau élastique homogène isotrope réel (b) et d'un composite verre/époxy [199] (c)

Les échantillons testés en flambement doivent, comme dans le cas de la flexion 3 points, être dimensionnés de telle sorte que les déformations dues au cisaillement interlaminaire et à la compression pure soient minimisées [200]. Les premières apparaissent parce qu'une fois la poutre fléchie, les sections ne sont plus perpendiculaires à l'axe de sollicitation. Les secondes imposent de rester sous la limite élastique du matériau et conditionnent le déplacement transverse de l'éprouvette. D'après Fournier [199], la contribution de la compression pure devient négligeable par rapport à celle de la flexion lorsque les dimensions de l'éprouvette vérifient :

$$\frac{\text{Longueur}}{\text{Épaisseur}} > 52 \quad \text{Eq. 4 - 7}$$

Dans notre cas, l'épaisseur des plaques de composites ne dépassant pas 4 mm, la longueur des éprouvettes destinées à être testées en flambement a été fixée à 220 mm.

L'échantillon est placé dans des mors cylindriques qui lui permettent une libre rotation tout en maintenant ses extrémités dans le même axe vertical. Le potentiomètre angulaire mesure l'angle formé par la tangente à l'échantillon à son point d'accroche avec la verticale. Le capteur LVDT permet de mesurer l'évolution de la flèche au début de l'essai (à partir d'un certain déplacement transverse de l'échantillon, le capteur ne se situe plus au centre de l'éprouvette) et de valider les valeurs de flèche issues des indications du potentiomètre. Enfin, la force et le déplacement de traverse (dont la vitesse est imposée) sont enregistrés en cours d'essai jusqu'à rupture de l'échantillon.

La valeur critique,  $F_{\text{critique}}$ , qui correspond à la transition entre le stade de compression axiale pure et celui de la flexion, est appelée charge critique d'Euler [201] et est définie par :

$$F_{\text{critique}} = \frac{\pi^2 E_{\text{flexion}} I}{L_0^2} \quad \text{Eq. 4 - 8}$$

avec  $E_{\text{flexion}}$  le module de flexion,  $I$  le moment d'inertie (égal à  $le^3/12$ ) et  $L_0$  la longueur de la poutre. A partir de cette valeur critique et de la connaissance de l'angle  $\alpha$  formé par la poutre avec la verticale et de la force  $F$  à chaque instant de l'essai, on peut obtenir la flèche  $f$  et le moment fléchissant  $M$  de l'éprouvette grâce aux équations :

$$f = \frac{2L_0}{\pi} \sqrt{\frac{F_{\text{critique}}}{F}} \sin \frac{\alpha}{2} \quad \text{Eq. 4 - 9}$$

$$M = Ff \quad \text{Eq. 4 - 10}$$

qui conduisent aux valeurs de contrainte et de déformation en flexion :

$$\sigma_{\text{flexion}} = E_{\text{flexion}} \varepsilon_{\text{flexion}} = \frac{6M}{le^2} \quad \text{Eq. 4 - 11}$$

La prise en compte de la compression dans le calcul de la contrainte de flexion s'exprime par l'addition d'une contrainte  $\sigma_{\text{compression}}$  ou d'une déformation  $\varepsilon_{\text{compression}}$  définies par :

$$\sigma_{\text{compression}} = \frac{F}{le} \quad \text{Eq. 4 - 12}$$

$$\varepsilon_{\text{compression}} = \frac{F}{Ele} \quad \text{Eq. 4 - 13}$$

ce qui entraîne, en fonction de la face concernée (la face intérieure est en compression et la face extérieure est en traction), les contraintes effectives suivantes :

$$\sigma_{\text{effectif}}^{\text{intérieure}} = \sigma_{\text{flexion}} + \sigma_{\text{compression}} = \frac{F}{le} \left( \frac{6f}{e} + 1 \right) \quad \text{Eq. 4 - 14}$$

$$\sigma_{\text{effectif}}^{\text{extérieure}} = \sigma_{\text{flexion}} - \sigma_{\text{compression}} = \frac{F}{le} \left( \frac{6f}{e} - 1 \right) \quad \text{Eq. 4 - 15}$$

et les déformations correspondantes :

$$\varepsilon_{\text{effectif}}^{\text{intérieure}} = \varepsilon_{\text{flexion}} + \varepsilon_{\text{compression}} = \frac{F}{Ele} \left( \frac{6f}{e} + 1 \right) \quad \text{Eq. 4 - 16}$$

$$\varepsilon_{\text{effectif}}^{\text{extérieure}} = \varepsilon_{\text{flexion}} - \varepsilon_{\text{compression}} = \frac{F}{Ele} \left( \frac{6f}{e} - 1 \right) \quad \text{Eq. 4 - 17}$$

### III.2.b. Résultats

Des essais préliminaires ont été conduits sur des éprouvettes de résine polyester découpées dans une plaque fabriquée par compression à chaud, afin de caractériser son comportement en flambement. Sa rupture est brutale (Fig. 4 - 20a) et se produit en plusieurs endroits simultanément. Par contre, l'endommagement des composites lin/polyester commence dès le début de la phase flexion (Fig. 4 - 20b), sûrement provoqué par des ruptures de fibres et d'interfaces fibres/matrice :

c'est ce qui explique la diminution continue de la force lorsque le déplacement de la traverse augmente, comportement non observé dans le cas de la matrice seule.

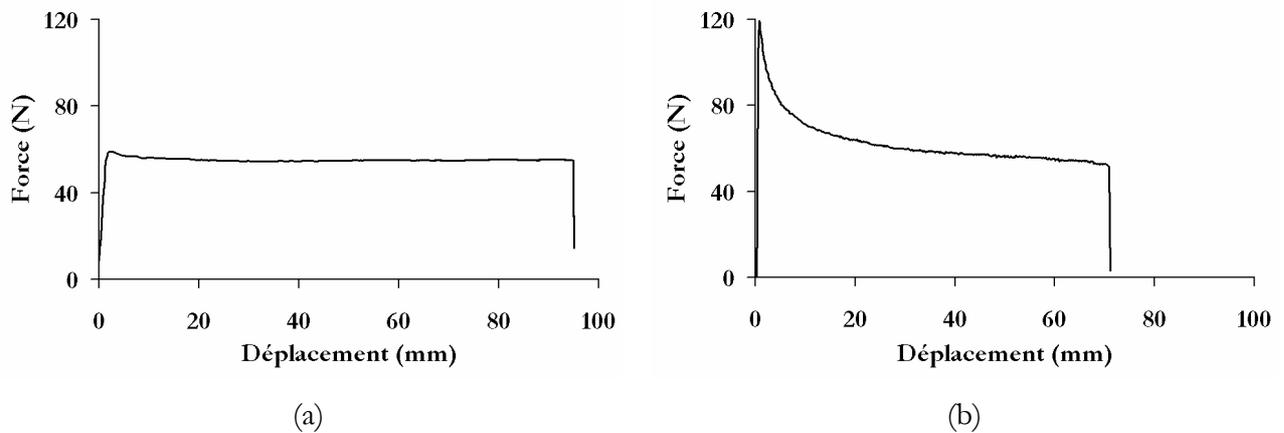


Fig. 4 - 20. Courbes force - déplacement de traverse d'une éprouvette de résine (a) et d'un composite de taux volumique de fibres 18,6 % (b)

Quatorze éprouvettes rectangulaires fabriquées par compression à chaud ont été testées. Les différentes caractéristiques mécaniques (mesurées ou calculées) définies précédemment ont été déterminées pour chacune d'entre elles. Leurs valeurs moyennes sont regroupées dans le tableau 4 - 7 et leurs évolutions en fonction du taux volumique de fibres sont présentées figure 4 - 22. Il faut noter que les termes correctifs (introduits par la prise en compte de la compression) deviennent négligeables devant le reste de l'expression lorsque l'on s'approche de la rupture, du fait de la forte déflexion des éprouvettes lors de l'essai.

		Matrice	Composite
Mesurées	Force critique (N)	67	225 ± 59
	Force à rupture (N)	59	78 ± 16
	Déplacement à rupture (mm)	103	66 ± 11
	Angle à rupture (°)	61	52 ± 7
Calculées	Module de flexion (GPa)	2	9 ± 2
	Flèche à rupture (mm)	67	85 ± 6
	Moment fléchissant à rupture (N.m)	4	7 ± 2
	Contrainte de flexion à rupture (MPa)	66	132 ± 16
	Déformation de flexion à rupture (%)	3,2	1,5 ± 0,2

Tableau 4 - 7. Propriétés mécaniques moyennes en flambement des composites unidirectionnels lin / polyester

Les propriétés moyennes de flexion issues des essais de flambement des composites sont en accord avec la littérature (Tableau 4 - 3). Les valeurs moyennes du module et de la contrainte à la rupture obtenues ici sont d'ailleurs comparables à celles déterminées en traction (cf. Tableau 4 - 6) ; cela confirme que l'essai de flambement ne met réellement en jeu que de la flexion pure.

Il apparaît que l'addition de fibres de lin améliore les propriétés mécaniques en flexion de la matrice en termes de force, de module, de moment et de contrainte, mais diminue sa ductilité (baisse sensible du déplacement et de la déformation de flexion à rupture). L'augmentation de la flèche à la rupture alors que le déplacement de traverse et l'angle diminuent ne peut s'expliquer que par la très forte augmentation de la force critique due à la présence de fibres.

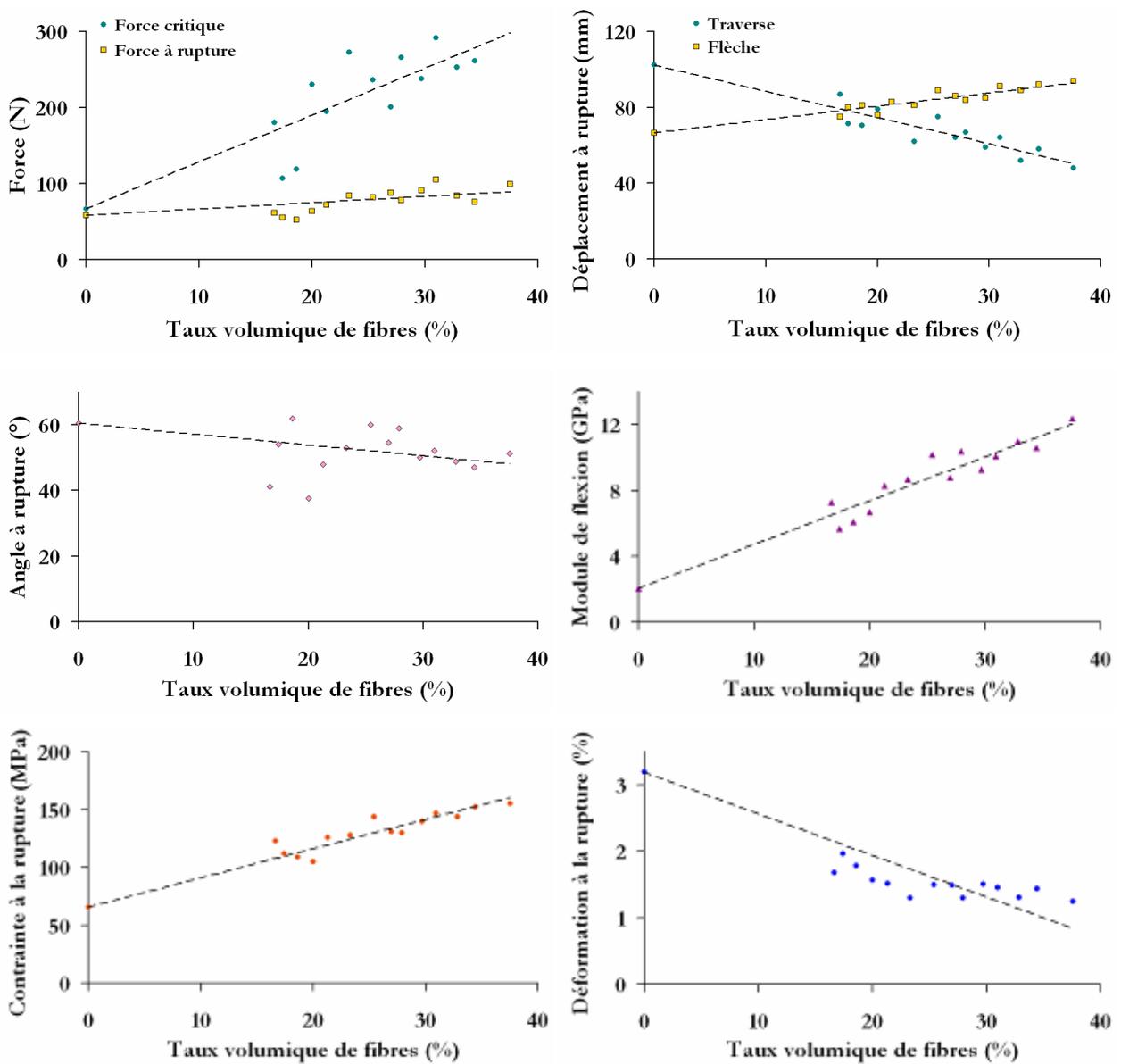


Fig. 4 - 21. Evolution des propriétés mécaniques en flambement des composites en fonction du taux volumique de fibres

### III.2.c. Endommagements relevés

La rupture par flambement intervient sur la face en traction, comme le montrent les images suivantes (Fig. 4 - 22). Les fissures dans la matrice se propagent principalement le long des fibres, mais elles peuvent aussi parfois être déviées (a). Sur la face en compression, on aperçoit des microflambages de fibres (b), qui s'amplifient au fur et à mesure que la flèche augmente en cours d'essai. La mise en œuvre par compression semble induire une structure en plis des fibres de lin, discernable sur la tranche des éprouvettes (c,d). Les décohésions observées au niveau de ces plis peuvent être assimilées à des délaminages, dont l'impact sur la propagation des fissures dans la zone en traction n'est probablement pas négligeable.

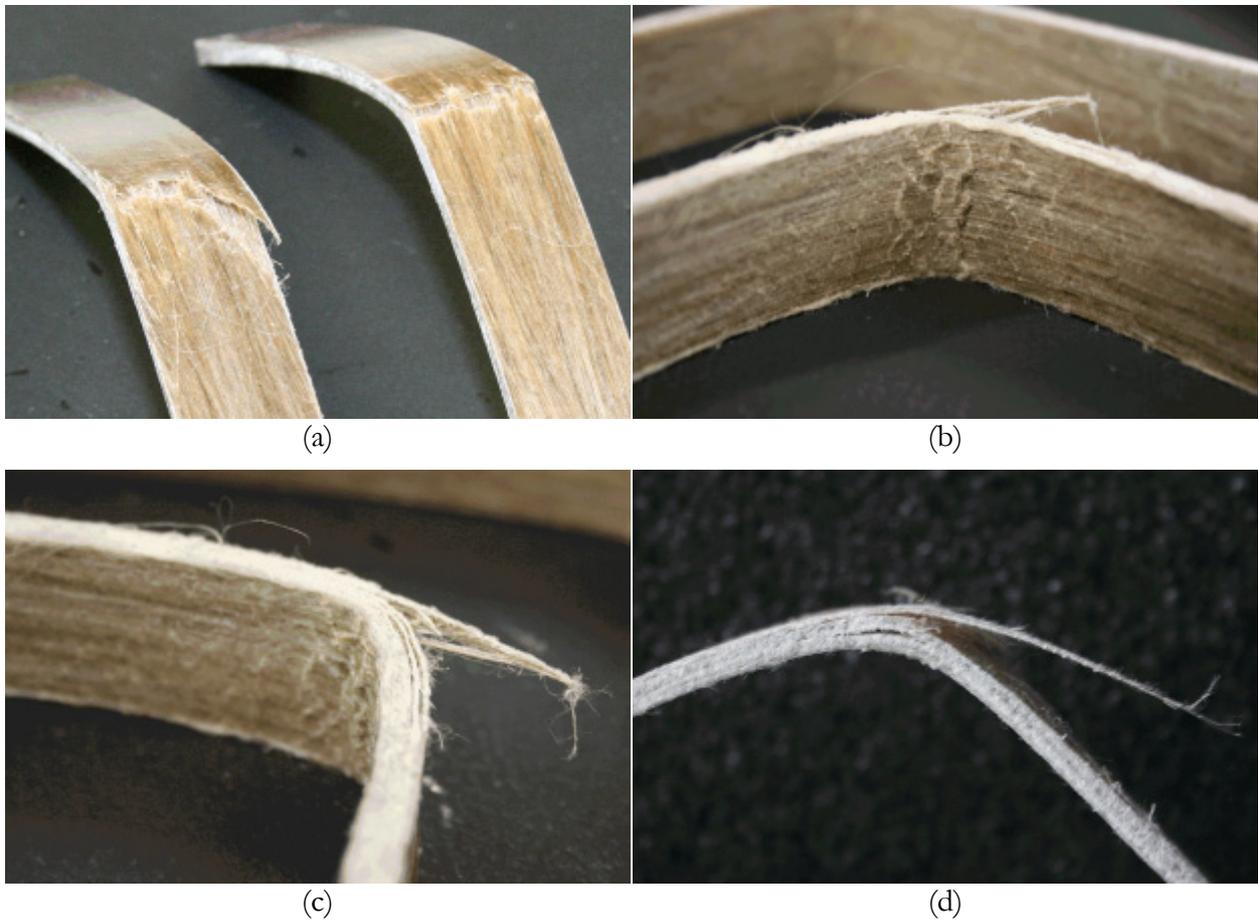


Fig. 4 - 22. Photographies de faciès de rupture d'éprouvettes de composites fabriqués par compression et sollicités par flambement

---

## Conclusion

L'étude de composites unidirectionnels fabriqués à partir de fibres techniques de lin et d'une matrice polyester a permis de mettre en évidence leurs bonnes propriétés mécaniques en traction et flexion pure. Les valeurs moyennes obtenues pour un composite de taux volumique de fibres 30 % atteignent 180 MPa en tension et 132 MPa en flexion pure pour les contraintes à la rupture, et entre 5 et 12 GPa pour les modules. Cependant, il s'avère que l'association de fibres avec la matrice réduit sensiblement sa ductilité. L'amplitude de la dispersion de ces propriétés (de l'ordre de 30 %) est moindre que celle des fibres techniques (40 %), qui elle-même est plus faible que celle des fibres unitaires (50 %). La présence d'une matrice, à l'échelle mésoscopique comme à l'échelle macroscopique, semble donc estomper la nocivité de certains défauts du renfort fibreux.

Différentes méthodes de mise en forme des composites ont été utilisées (le moulage au contact, la compression à chaud et l'infusion) afin d'évaluer leur impact sur les caractéristiques mécaniques. Une étude de la répartition du renfort dans le volume de composites moulés au contact a montré qu'elle n'était pas homogène dans l'épaisseur, probablement à cause du faible taux volumique de renfort inhérent à cette méthode (10 % en moyenne). La compression à chaud, qui permet d'opérer jusqu'à 40 % en volume de renfort, peut dégrader sensiblement les fibres. L'infusion permet elle aussi d'obtenir une teneur importante en fibres tout en s'affranchissant de l'utilisation d'une presse.

Il est apparu que les propriétés des composites ne dépendaient quasiment pas de la préparation préalable du renfort (peignage et lissage). Par ailleurs, le traitement à la soude, qui devait, d'après des données bibliographiques, favoriser la division des fibres techniques, n'a pas produit les effets escomptés, ni sur la morphologie des fibres techniques, ni sur les caractéristiques mécaniques des composites.

Les propriétés mécaniques des fibres techniques ont été évaluées à partir de celles des composites. Une contrainte à la rupture comprise entre 500 et 1000 MPa a été obtenue, ainsi qu'un module de 35 à 43 GPa. Ces valeurs sont légèrement inférieures à celles des fibres unitaires ; cela peut s'expliquer par la présence de l'interface pectique qui maintient les fibres ensemble dans les faisceaux et favorise certainement le cisaillement entre fibres unitaires.

L'observation des faciès de rupture des composites testés par traction et en flambement a révélé que l'interface fibre/matrice était moyennement liée. L'endommagement de ces matériaux procède par déchaussement des fibres avec de grandes longueurs d'extraction, et une multifissuration matricielle prononcée. Ces processus reflètent l'architecture fibreuse, à savoir un

arrangement séquentiel de « plis » constitués par des groupements de fibres techniques dont les constituants sont beaucoup moins longs que la longueur de jauge des éprouvettes. Une amélioration de la résistance au délaminage pourrait être obtenue en réalisant d'abord une liaison des groupements de fibres techniques entre eux avant l'infiltration de la matrice polyester.



# Conclusion

La fibre de lin peut être considérée comme un composite naturel, dont le renfort serait la cellulose et la matrice un ensemble de polymères pectiques et hémicellulosiques ; sa densité et ses propriétés mécaniques en font un constituant de choix pour le renforcement d'une matrice polymère. Le but de cette étude était d'apporter une contribution à la définition plus précise de cette fibre afin d'optimiser son emploi pour le développement de matériaux composites structuraux.

Les données bibliographiques sur les composites à base de fibres de lin sont récentes : peu d'entre elles remontent à plus de dix ans. Elles mettent en évidence des propriétés suffisamment élevées pour envisager des débouchés industriels autres que ceux de la filière textile. Leurs avantages sont nombreux par rapport aux fibres actuellement disponibles sur le marché des composites. Le premier est écologique : la prise de conscience de la fragilité de notre environnement face à certaines interventions humaines promeut l'utilisation d'agroressources en remplacement de matériaux issus de la pétrochimie et/ou néfastes pour la préservation de la planète. La fibre de lin, dont la culture est quasiment neutre vis-à-vis de l'environnement, entre dans ce cadre de développement durable. Le deuxième avantage est économique : le coût du kilogramme de matériau composite à base de fibres végétales depuis sa production jusqu'à la fin du cycle de vie n'est pas plus élevé que celui des matériaux renforcés, par exemple, par des fibres de verre. Le lin a comme atout supplémentaire d'être largement cultivé dans nos régions. La légèreté et la résistance mécanique de ses fibres, ainsi que leur remarquable rapport longueur/diamètre et leur importante teneur en constituants cellulosiques fortement orientés, les rendent particulièrement compétitives vis-à-vis des fibres de verre.

Toutefois, quelques caractéristiques particulières freinent encore l'emploi des fibres de lin dans la fabrication de composites structuraux. D'abord, en tant que matériaux naturels, elles sont très sensibles à leur environnement : des conditions extrêmes, ou même seulement anormales, de

température ou d'humidité altèrent profondément leur structure. Ensuite, leur variété ainsi que les conditions de leur croissance influent notablement sur leurs propriétés mécaniques, qui sont d'ailleurs particulièrement dispersées, sans commune mesure avec la plupart des matériaux synthétiques.

La première partie des travaux concernait l'analyse de la morphologie d'une fibre de lin et visait à définir précisément sa structure et ses dimensions. Les tailles moyennes des fibres, ainsi que celles de leur lumen central, ont été estimées et de forts écart-types autour de ces valeurs ont été obtenus. Une étude statistique des dimensions des fibres et des lumens a permis de constater qu'il n'existait pas de relation permettant d'estimer la taille du lumen à partir de celle de la fibre. De plus, une étude de coupes sérielles de tiges de lin a montré que les aires des sections des fibres dépendaient fortement de leur localisation au sein de ces tiges. En effet, alors que les fibres de la partie basale des tiges apparaissaient grosses et creuses, et celles de la partie apicale particulièrement fines, les fibres issues du milieu des tiges, qui sont également les plus longues d'après des études antérieures, présentaient des sections de taille et de porosité moyenne ; la zone de tige correspondant à ces fibres a pu être identifiée et délimitée grâce à l'analyse de coupes sérielles.

Il est également apparu, à partir de ces coupes successives de tiges et d'observations longitudinales de fibres au microscope électronique à balayage, que la variation diamétrale d'un faisceau de fibres était bien inférieure à celle d'une fibre unitaire. Ces considérations ont permis de prendre conscience de la variabilité de leurs dimensions : il semblerait que seuls un diamètre moyen et un écart-type puissent décrire correctement et de façon globale la section d'une fibre de lin.

Par ailleurs, la structure multi-couches de la fibre a été mise en évidence à la suite de balayages d'ions gallium réalisés sur une section de fibre par un microscope à faisceau d'ions focalisés : en plus d'une zone périphérique quasiment insensible à l'irradiation, quatre couches internes autour du lumen ont été détectées. Ces bandes concentriques, délimitées par des zones de transition très sensibles au balayage ionique, avaient déjà été remarquées sur des coupes fines au MET. Le FIB présente donc l'avantage d'apporter des informations complémentaires aux observations par microscopie électronique sur la composition et la structure de la fibre. Cependant, l'interprétation des images reste très délicate, vu qu'aucune donnée n'est disponible sur le véritable impact de cette irradiation sur des matériaux naturels.

Il pourrait être intéressant par la suite d'appliquer ces protocoles d'analyse morphologique (notamment l'analyse FIB) à d'autres fibres végétales, afin de déterminer plus précisément leur structure, de la comparer à celles des fibres de lin et de valider leur possible utilisation comme renfort naturel de polymères.

Les propriétés mécaniques des fibres de lin ont ensuite été étudiées, et notamment la façon dont leur morphologie pouvait influencer leur comportement lors d'un essai de traction. La première caractéristique mise en évidence est la forte dispersion des résultats, probablement due au cumul de plusieurs effets, tels que la variété de lin, la localisation des fibres dans la tige, la présence d'un lumen central de taille variable, la teneur en polymères cellulosiques et incrustants, la variation importante de la section suivant la longueur, la répartition aléatoire des défauts en surface et en volume, etc. Il est également apparu que les propriétés mécaniques semblaient diminuer lorsque la taille des fibres augmentait : alors que ce comportement est relativement compréhensible concernant les propriétés à la rupture, il est anormal dans le cas du module d'élasticité. Cette tendance à la diminution a pu être estompée par l'utilisation dans les calculs du diamètre mesuré à proximité du plan de rupture de la fibre. Il semble donc que ce dernier soit un paramètre dimensionnel mieux adapté pour l'estimation des propriétés mécaniques que le diamètre moyen mesuré en quelques points de la fibre.

L'étude spatiale des tiges, entamée dans le deuxième chapitre, a été poursuivie en termes de propriétés mécaniques. Les résultats ont indiqué une supériorité des fibres médianes par rapport aux autres fibres de la tige, ce qui laisse penser que leur structure et leur composition biochimique, résultant des conditions de croissance, influencent notablement leurs propriétés.

L'analyse des courbes de comportement en traction a permis de constituer une hypothèse quant au mode de déformation d'une fibre de lin sollicitée en tension. La non-linéarité observée en début de chargement a pu être reliée à une réorientation progressive des microfibrilles selon l'axe de traction, accompagnée d'un réarrangement des polymères matriciels. Des essais de charge-décharge réalisés sur des fibres unitaires ont mis en évidence les faibles composantes visqueuse et plastique de leur déformation, certainement dues à la présence d'eau et de polymères amorphes dans les parois. En effet, étant principalement constituées de microfibrilles de cellulose cristalline, les fibres de lin se déforment principalement de manière élastique mais sans atteindre les performances mécaniques de la cellulose. Leurs propriétés mécaniques sont néanmoins parmi les plus élevées des fibres végétales et, rapportées à la masse des fibres, elles sont mêmes comparables, voire supérieures, à celles des fibres de verre.

Enfin, une étude préliminaire du comportement mécanique de composites fabriqués à base de fibres de lin et d'une matrice polyester a été menée. Leurs propriétés, estimées à partir d'essais de traction et d'essais de flexion par flambement, révèlent l'efficacité du renforcement par ces fibres. L'analyse de l'évolution des propriétés mécaniques des composites testés par traction, en fonction de leur taux volumique de renfort, a permis une évaluation indirecte de la contrainte à la rupture et du

module d'élasticité des fibres techniques de lin. Celles-ci, constituées de fibres unitaires de lin collées entre elles par un ciment pectique, présentaient des caractéristiques mécaniques légèrement inférieures à celles déterminées sur des fibres unitaires.

Trois méthodes de mise en forme des composites, le moulage au contact, la compression à chaud et l'infusion, ont été comparées : leur influence sur les propriétés mécaniques ne s'est pas révélée significative. La mise en œuvre au contact n'altère pas, a priori, le renfort mais limite physiquement la teneur en fibres des composites, alors que la compression à chaud et l'infusion, qui permettent d'atteindre des taux de renfort élevés, imposent une forte pression aux fibres, qui n'est probablement pas sans effet sur leur résistance mécanique. Il faut enfin souligner, pour ces trois méthodes, la difficulté à préparer les mèches de fibres longues de lin à partir de rubans peignés. La fabrication industrielle de renfort fibreux sous la forme, non pas de rubans ni de tissés, mais de nappes d'épaisseur régulière, serait une avancée importante pour le développement de composites unidirectionnels à base de fibres de lin.

Cette étude a permis d'apporter de nouveaux résultats morphologiques et mécaniques sur la fibre de lin, contribuant ainsi à mieux définir ce matériau multi-couches. Ces éléments devraient pouvoir alimenter une base de données utile au traitement statistique de ses propriétés et à la réalisation d'un modèle numérique prédictif de son comportement. De plus, ils pourraient servir à la conception de nouveaux matériaux inspirés de la structure de la fibre.

Pour conclure, l'utilisation de fibres naturelles comme renfort de composites à matrice polymère est en passe de devenir industriellement viable, grâce à leurs nombreux avantages écologiques, économiques, physiques et mécaniques. Cependant, le développement de ces éocomposites exige la levée d'un certain nombre de verrous, liés au choix des variétés, aux méthodes d'extraction et de sélection des fibres, et de la réalisation de semi-produits techniques. A tout cela viennent s'ajouter des difficultés fondamentales, telles que la définition des paramètres géométriques à la base de la caractérisation mécanique, l'optimisation de la compatibilité entre les fibres et la matrice, et l'amélioration de la stabilité hygrothermique et mécanique des composites.

# Références

- 1 Agrice/Ademe, « Lin fibre », rapport d'étude en collaboration avec l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie et l'Institut Technique des Céréales et des Fourrages (1998), [www.ademe.fr/htdocs/publications/publipdf/lin.pdf](http://www.ademe.fr/htdocs/publications/publipdf/lin.pdf)
- 2 Baley C., "Analysis of the flax fibers tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase", *Composites : Part A* (2002), **33**, 939-948.
- 3 Jauneau A., Morvan C., Lefebvre F., Demarty M., Ripoll C., Thellier M., "Differential extractability of calcium and pectin substances in different wall regions of epicotyl cells in young flax plants", *J. Histochem Cytochem.* (1992), **40**, 1183-1189.
- 4 Hearle J.W.S., "The fine structure of fibres and crystalline polymers - Interpretation of the mechanical properties of fibres", *Journal of applied polymer science* (1963), 7, 1207-1223.
- 5 Gassan J., "Naturfaserverstärkte Kunststoffe - Korrelation zwischen Struktur und Eigenschaften der Fasern und deren Composites", Thèse, University of Kassel, Allemagne (1997).
- 6 Fink H.P., Ganster J., Fraatz J., Nywlt M., « Relations between structure and mechanical properties of cellulosic man-made fibres », *Akzo-Nobel Viscose Chemistry Seminar "Challenge in Cellulosic Man-Made Fibres"*, Stockholm, Sweden (1994).
- 7 Bowes B.G., in : A colour atlas of plant structure, Manson Publishing Ltd., Londres (1996).
- 8 Vallade J., in « Structure et développement de la plante. Morphogénèse et biologie de la reproduction des angiospermes », édité par Dunod, Paris (1999).
- 9 Nultsch W., in : Botanique générale, édité par De Boeck, Paris (1998).
- 10 Lapiere I., Belmont P., « Bilan écologique du lin de la graine au tissu », Mémoire de fin d'étude de l'Ecole Nationale Supérieure des Arts et Industries Textiles de Roubaix (1994).
- 11 Han J.S., Rowell J.S., "Chemical Composition of fibers", in : Paper and Composites from agro-based resources, édité par R.M. Rowell, R.A. Young et J. Rowell, CRC Press, p.122-123 (1996).
- 12 Batra S.K., "Other long vegetable fibers", in : Handbook of fiber Chemistry, édité par M. Lewin et E.M. Pearce (1998), 505-575.

- 13 Lillholt H., Toftegaard H., Thomsen A.B., Schmidt A.S., “Natural composites based on cellulosic fibres and polypropylene matrix - Their processing and characterization”, 12ème Conférence Internationale sur les Matériaux Composites, Paris, France, 5-9 juillet 1999.
- 14 Thiery I.P., *J Microsc.* (1967), **6**, 987.
- 15 Bossuyt V., « Etude la structure et des propriétés mécaniques de la fibre de lin », Thèse de doctorat, Lille (1941).
- 16 Brett C.T., Waldron K.W., in : *Physiology and biochemisty of plant cell walls*, édité par Chapman et Hall, Londres (1996).
- 17 Nilsson T., Gustafsson P.J., “Influence of dislocations and plasticity on the tensile behaviour of flax and hemp fibres”, *Composites : Part A* (2007), **38**, 1722-1728.
- 18 Preston R.D., in : *The physical biology of plant cell walls*, édité par Chapman et Hall, Londres (1974).
- 19 Baley C., Morvan C., Grohens Y., “Influence of the absorbed water on the tensile strength of flax fibers”, *Macromol. Symp.* (2005), **222**, 195-201.
- 20 Harada H., Miyazaki Y., Wakashima T., “Electron-microscopic investigation on the cell wall structure of wood”, *Bulletin of Forest Experimental Station (Meguro, Tokyo, Japan)* (1958), **104**, 1-115.
- 21 Wardrop A.B., Bland D.E., “The process of lignification in woody plants”, in : *Actes du 4ème congrès international de biochimie*, édité par Pergamon Press, New York, vol. 2, p. 76-81 (1959).
- 22 Forgacs O.L., “The characterization of mechanical pulps”, *Pulp Paper Mag. Can.* (1963), **64**, T89-T118.
- 23 Emons A.M.C., Mulder B.M., “The making of the architecture of the plant cell wall : how cells exploit geometry”, *Proc Natl Acad Sci* (1998), **95**, 7215-7219.
- 24 Bledzki A.K., Gassan J., *Composites reinforced with cellulose based fibres*, *Prog Polym Sci* (1999), **24**, 221-274.
- 25 Bos H.L., Donald A.M., “In situ ESEM study of the deformation of elementary flax fibres”, *Journal of Materials Science* (1999), **34**, 3029-3034.
- 26 Wang H.H, Drummond J.G., Reath S.M., Hunt K., Watson P.A., “An improved fibril angle measurement method for wood fibres”, *Wood Science and Technology* (2001), **34**, 493-503.
- 27 Roland J.C., Mosiniak M., Roland D., « Dynamique du positionnement de la cellulose dans les parois des fibres textiles du lin (*Linum usitatissimum*) », *Acta Bot Gallica* (1995), **142**, 463-484.
- 28 Mark R.E., in : *Cell wall mechanics of tracheids*, Newhaven et Londres, Yale University Press. (1967).
- 29 Emons A.M.C., “Winding threads around plant cells: a geometrical model for microfibril deposition”, *Plant, Cell and Environment* (1994), **17**, 3-14.
- 30 Hulleman S.H.D., van Hazendonk J.M., Van Dam J.E.G., “Determination of crystallinity in native cellulose from higher plants with diffuse reflectance Fourier transform infrared spectroscopy”, *Carbohydrate Research* (1994), **261**, 163-172.

- 31 Nishiyama Y., Okano T., Langan P., Chanzy H., “High resolution neutron fibre diffraction data on hydrogenated and deuterated cellulose”, *International Journal of Biological Macromolecules* (1999), **26**, 279-283.
- 32 Frey-Wyssling A., “The general structure of fibres”, in : *Fundamentals of Papermaking Fibres*, édité par F. Bolam F., 1-6 (1958).
- 33 Näslund P., Vuong R., Chanzy H., Jésior J.C., *Textile Research Journal* (1988), **58**, 414.
- 34 Emons A.M.C., communication personnelle (2006).
- 35 Fujita M., Harada H., “Ultrastructure and formation of wood cell wall”, in : *Wood and Cellulosic Chemistry*, édité par D.N.S. Hon et N. Shiraishi, Marcel Dekker, Inc., New York, 3-57 (1991).
- 36 Hearle J.W.S., “The structure and mechanical properties of fibres”, *Journal of Textile Institute Proceedings* (1962), 53, 449-464.
- 37 Fink H.P., Hofmann D., Purz H.J., “On the fibrillar structure of native cellulose”, *Acta polymerica* (1990), **41**, 131-137.
- 38 Eichhorn S.J., Baillie C.A., Zafeiropoulos N., Mwaikambo L.Y., Ansell M.P., Dufresne A., Entwistle K.M., Herrera-France P.J., Escamilla G.C., Groom L., Hughes M., Hill C., Rials T.G., Wild P.M., “Current international research into cellulosic fibres and composites”, *Journal of Materials Science* (2001), **36**, 2107-2131.
- 39 Bert F., « Lin : filière, production, transformation, marchés, freins au développement de nouvelles valorisations », Présentation à la Région Haute-Normandie, 18 janvier 2007.
- 40 Gorshkova T.A., Wyatt S.E., Chemikosova S.B., Salnikov V.V., Gibeaut D.M., Ibragimov M.R., Lozovaya V.V., Carpita N.C., “Cell-wall polysaccharides of developing flax plant”, *Plant Physiol.*, (1996), **110**, 721-729.
- 41 Neville A.C., “Molecular and mechanical aspects of helicoid development in plant cell walls”, *Bioessays* (1985), **3**, 4-8.
- 42 Vincent J.F.V., “From cellulose to cell”, *Journal of experimental biology* (1999), **202**, 3263-3268.
- 43 Morvan C., Abdul Hafez A.M., Jauneau A., Demarty M., « Les composés pectiques, marqueurs de la croissance du lin », *Bull. Soc. Bot. Fr.* (1991), **138**, 339-350.
- 44 Gorshkova T.A., Wyatt S.E., Lozovaya V.V., Carpita N.C., “Flax : a genetic and biochemical model to study primary and secondary wall biogenesis”, in : *The cell wall meeting*, édité par T. Zarra et G. Revilla, St Jacques de Compostelle, Espagne (1995).
- 45 Bos H.L., Van den Oever M.J.A., Peters O.C.J.J., “Tensile and compressive properties of flax fibres for natural fibre reinforced composites”, *Journal of Materials Science* (2002), **37**, 1683-1692.
- 46 Zafeiropoulos N.E., Williams D.R., Baillie C.A., Matthews F.L., “Engineering and characterization of the interface in flax fibre-polypropylene composite materials - Part I. Development and investigation of surface treatment”, *Composites : Part A* (2002), **33**, 1083-1093.
- 47 Morvan C., Jauneau A., Voreux H., Morvan O., Demarty M., “Contribution des ciments aux caractéristiques physicochimiques des fibres de lin : application à un rouissage enzymatique”, *C.R. Soc. Biol.* (1990), **184**, 18-30.

- 48 Ouest France, “En pays rochois, on sort les routoirs de l’ombre”, p. 11, édition du 2 avril 2006.
- 49 Van de Weyenberg I., Ivens J., De Coster A., Kino B., Baetens E., Verpoest I., “Influence of processing and chemical treatment of flax fibres on their composites”, *Composites science and technology* (2003), **63**, 1241-1246.
- 50 Girault R., Bert F., Rihouey C., Jauneau A., Morvan C., Jarvis M., “Galactans and cellulose in flax fibres : putative contributions to tensile strength”, *Int J Bio Macromol* (1997), **21**, 179-188.
- 51 Hawkins S., « Biotechnologies et maturation des fibres de lin », Conférence Valofibres, Compiègne, France, mai 2006.
- 52 Bismark A., Aranberri-Askargorta I., Springer J., “Surface characterization of flax, hemp and cellulose fibers - Surface properties and the water uptake behaviour”, *Polymer Composite* (2002), **23**, 872-894.
- 53 Tserki V., Zafeiropoulos N.E., Simon F., Panayiotou C., “A study of the effect of acetylation and propionylation surface treatments on natural fibres”, *Composites : Part A* (2005), **36**, 1110-1118.
- 54 Hon D.N.S., “A new dimensional creativity in lignocellulosic chemistry”, in: Chemical modification of lignocellulosic materials, édité par M. Dekker Inc., New York., USA (1996).
- 55 Khalil H.P.S.A., Rozman H.D., Ahmad M.N., Ismail H., “Acetylated plant-fibre-reinforced polyester composites: a study of mechanical, hydrothermal and aging characteristics”, *Polym Plast Technol Eng.* (2000), **39**, 757-781.
- 56 Pallensen, B.D., “The quality of combined-harvested fibre flax for industrial purposes depends on the degree of retting”, *Ind Crops Prod* (1996), **5**, 65-78.
- 57 Morvan C., Andème-Onzighi C., Girault R., Himmelsbach D.S., Driouich A., Akin D.E., “Building flax fibres : more than one brick in the walls”, *Plant physiology and biochemistry* (2003), **41**, 935-944.
- 58 Goubet F., Boulard T., Girault R., Alexandre C., Van de Velde M.C., Morvan C., “Structural features of galactans from flax fibres”, *Carbohydr Polym* (1995), **27**, 221-227.
- 59 Dubois M., Gilles K.A., Hamilton J.K., Rebers P.A., Smith F., “Colorimetric methods for determination of sugars and related substances”, *Anal Chem* (1956), **28**, 350-356.
- 60 Treiber E., in : Die Chemie der Pflanzenzellwand, édité par Springer, Berlin (1957).
- 61 Goring D.A.I., Timell T.E., “Molecular weight of native cellulose”, *TAPPI J.* (1962), **45**, 454-459.
- 62 Lenholm H., Larson I., Iversen I., “Determination of cellulose Ix and Ib in lignocellulosic material”, *Carbohydrate Research* (1994), **261**, 119-131.
- 63 Fink H.P., Walenta E., Kunze J., “The structure of natural cellulosic fibres - Part 2. The supermolecular structure of bast fibres and their changes by mercerization as revealed by X-ray diffraction and C-13-NMR-spectroscopy”, *Papier* (1999), **53**, 534-542.
- 64 Centre d’animation régional en matériaux avancés (CARMA), « Glossaire des matériaux composites renforcés de fibres d’origine renouvelable » (2006), [http://web13754.vs.netbenefit.net/html/pdf/glossaire\\_composite\\_biodeg\\_CARMA2.pdf](http://web13754.vs.netbenefit.net/html/pdf/glossaire_composite_biodeg_CARMA2.pdf)

- 65 Sakudara I., Nukushina Y., Ito T., “Experimental determination of the elastic modulus of crystalline regions in oriented polymers”, *Journal of Polymer Science* (1962), **57**, 651-660.
- 66 Davies G.C., Bruce D.M., “Effect of environmental relative humidity and damage on the tensile properties of flax and nettle fibres”, *Textile Res. J.* (1998), **68**, 623-629.
- 67 Lilholt H., Lawther J.M., “Natural organic fibers”, in : *Comprehensive Composite Materials*, édité par A. Kelly et C. Zweben, Pergamon Press, New York, 303-325 (2000).
- 68 Cousins W.J., “Young’s modulus of hemicellulose as related to moisture content”, *Wood Science and Technology* (1978), **12**, 161-167.
- 69 Derminot J., Tasdhomme M., « Mise au point d’une méthode d’analyse chromatographique des sucres et exemples d’application aux fibres techniques du lin », *Bull Sci ITF* (1977), **6**, 179-189.
- 70 Davis E.A., Derouet C., Hervé du Penhoat C., Morvan C., “Isolation and an NMR study of pectins from flax [*Linum usitatissimum* L.]”, *Carbohydr Res* (1990), **197**, 205-215.
- 71 Pariot C., Martini F., Thellier M., Ripoll C., “Quantitative imaging of the distribution of boron in hypocotyl sections of flax seedlings using neutron capture radiography”, *Journal of Trace and Microprobe Techniques* (1994), **12**, 61-85.
- 72 Andème-Onzighi C., Girault R., His I., Morvan C., Driouich A., “Immunocytochemical characterisation of early-developing flax fiber cells”, *Protoplasma* (2000) **213**, 235-245.
- 73 His I., Andème-Onzighi C., Morvan C., Driouich A., “Microscopic studies on mature flax fibers embedded in LR white : immunogold localization of cell wall matrix polysaccharides”, *The journal of histochemistry and cytochemistry* (2001), **49**, 1-11.
- 74 Mooney C., Stolle-Smith T., Schols H., de Jong E., “Analysis of retted and non-retted flax fibers by chemical and enzymatic means”, *Journal of Biotechnology* (2001), **89**, 205-216.
- 75 Jauneau A., Cabin-Flaman A., Verdus M.C., Ripoll C., Thellier M., “Involvement of calcium in the inhibition of endopolygalacturonase activity in epidermis cell wall of *Linum usitatissimum*”, *Plant Physiol Biochem* (1994), **32**, 839-846.
- 76 Jauneau A., Roy S., Reis D., Vian B., “Probes and microscopical methods for the localization of pectins in plant cells”, *Int J Plant Sci* (1998), **159**, 1-13.
- 77 Reis D., Roland J.C., « Mise en évidence de l’organisation de parois des cellules végétales en croissance par extraction ménagées des polysaccharides associées à la cytochimieultrastructurale », *J. Microscopie* (1974), **20**, 271-284.
- 78 Baker C.J., Aist J.R., Bateman D.F., “Ultrastructural and biochemical effect of endopectate lyase on cell walls from suspension cultures of bean and rice”, *Canadian Journal of Botany* (1980), **58**, p.867-880.
- 79 Akin D.E., Gamble G.R., Morrison III W.H., Rigsby L.L., “Chemical and structural analysis of fiber and core tissues from flax”, *J. Sci. Food Agric.* (1996) **72**, 155-165.
- 80 Day A., Dehorter B., Neutelings G., Czeszak X., Chabbert B., Belingheri L., David H., “Caffeoyl-coenzyme A 3-O-methyltransferase enzyme activity, protein and transcript accumulation in flax [*Linum usitatissimum*] stem during development”, *Physiol Plant* (2001), **113**, 275-284.
- 81 Gorshkova T.A., Salnikov V.V., Pogodina N.M., Chemikosova S.B., Yablokova E.V., Ulanov A.V., Agreeva M.V., Van Dam J.E.G., Lozovaya V.V., “Composition and

- distribution of cell wall phenolic compounds in flax [*Linum usitatissimum* L.] stem tissues”, *Ann. Bot.* (2000), **85**, 477-486.
- 82 Hodgson K.T., Berg J.C., “Dynamic wettability properties of single wood pulp fibers and their relationship to absorbency”, *Wood and Fiber Science* (1988), **20**, 3-17.
- 83 TAPPI (1955), Standard T13M.
- 84 Turner A.J., in : *The structure of Textile Fibers*, édité par The Textile Institute, Manchester, Royaume-Uni, 91-117 (1953).
- 85 Timell T.E., “Some Properties of Native Hemp, Jute, and Kapok Celluloses”, *Textile Research Journal* (1957), **27**, 854-859.
- 86 Bhatia P., Gupta K.C., *The Indian Textile Journal* (1991), **101**, 60-62.
- 87 McGovern J.N., “Vegetable Fibers”, in : *Polymers-Fibers and textiles, a Compendium*, University of Wisconsin Press, Madison, Wisconsin, USA (1990).
- 88 Gassan J., Bledski A.K., “Modification methods on nature fibres and their influence on the properties of the composites”, *Plastics* (1996), **54**, 2552–2557.
- 89 Mohanty A.K., Misra M., Hinrichsen G., “Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites : an overview”, *Macromol Mater Eng* (2000), **276/277**, 1-24.
- 90 Charlet K., Baley C., Morvan C., Jernot J.P., Gomina M. and Breard J., “Characteristics of Hermès flax fibers as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites”, *Comp. Part A* (2007), **38**, 1912-1921.
- 91 Harris M., in : *Harris’s Handbook of textile fibers*, Harris Research Laboratory, Washington D.C., USA (1954).
- 92 The Textile Institute, “Identification of Textile Materials”, 7ème édition, édité par The Textile Institute, Manchester, Royaume-Uni (1975).
- 93 Chakravarty A., *The Indian Textile Journal* (1974), 81-89.
- 94 Sinha M.K., *J. Text. Inst.* (1974), **65**.
- 95 Rowell R.M., Han J.S., Rowell J.S., “Characterization and factors effecting fiber properties”, In : *Natural Polymers and Agrofibers composites*, édité par E. Frollini, A.L. Leao et L.H.C. Mattoso, San Carlos, Brésil, p.115-134 (2000).
- 96 Stout H.P., Jenkins J.A., “Comparative strengths of some bast and leaf fibres”, *Annales Textiles Belges* (1955), **4**, 231-251.
- 97 Fausten M., « Etude de l'homogénéité des populations de fibres », Rapport ITF Lin (1992).
- 98 Chakravarty A., Hearle J.W.S., *J. Text. Inst.* (1967), **58**, 651-656.
- 99 Herzog R.O., *Der Flachs in Technologie der Textilfasern*, édité par J. Springer, Berlin (1930).
- 100 Baley C., « Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites », *Techniques de l'Ingénieur* (2004), **AM 5130**, 12p.
- 101 Bos H.L., “The potential of flax fibres as reinforcement for composite materials”, Thèse, Eindhoven (2004).

- 102 Mukherjee P.S., Satyanarayana K.G., “An empirical evaluation of structure-property relationships in natural fibres and their fracture behaviour”, *Journal of Materials Science* (1986), **41**, 4162-4168.
- 103 Nishiyama Y., Okano T., “Morphological changes of ramie fiber during mercerization”, *Journal of Wood Science* (1998), **44**, 310-313.
- 104 Balashov V., Preston R.D., Ripley G.W., Sparks L.C., *Proc. R. Soc.* (1957), **146**, 460.
- 105 Krakhmalev V.A., Paiziev A.A., “Spiral structures of cotton fiber”, *Cellulose* (2006), **13**, 45-52.
- 106 Wakelyn P.J., Bertoniere N.R., French A.D., Zeronian S.H., Nevell T.P., Thibodeaux D.P., Blanchard E.J., Calamari T.A., Triplett B.A., Bragg C.K., Welch C.M., Timpa J.D., Goynes W.R., “Cotton fibers”, in : Handbook of fiber Chemistry, édité par M. Lewin et E.M. Pearce (1998).
- 107 Busnel F., « Contribution de matériaux composites à matrice organique renforcés par des fibres de lin. Influence des traitements chimiques sur la liaison interfaciale fibre/matrice », Thèse, Université de Bretagne Sud, Lorient, France (2006).
- 108 Satta A., “New concepts on the ultrastructure of the cell wall of flax”, 4<sup>ème</sup> Congrès International sur la Paroi, Paris, 1986.
- 109 Hughes M., Hill C., Sèbe G., Hague J., Spear M., Mott L., “An investigation into the effect of micro-compressive defects on interphase behaviour in hemp-epoxy composites using half-fringe photoelasticity”, *Composite Interfaces* (2000), **7**, 13-29.
- 110 Frey-Wyssling A., in : Deformation and flow in biological systems, édité par A. Frey-Wyssling, Amsterdam, Pays-Bas, 195-254 (1952).
- 111 Baley C., “Influence of kink bands on the tensile strength on flax fibers”, *Journal of materials science* (2004), **39**, 331-334.
- 112 Baley C., Lamy B., « Propriétés mécaniques des fibres de lin utilisées comme renforts de matériaux composites », *Revue des composites et des matériaux avancés* (2000), **10**, 7-24.
- 113 Sridhar S.K., Basavarajappa G., Kasturi S.G., Balasubramanian N., “Evaluation of jute as reinforcement in composites”, *Ind. J. Text. Res.* (1982), **7**, 87.
- 114 Ganster J., Fink H.P., “Physical constants of cellulose”, in: “Polymer handbook”, édité par J. Brandrup, E.H. Immergut, E.A. Grulke E.A., Wiley, New York (1999).
- 115 Troger F., Wegener G., Seemann C., “Miscanthus and flax as raw material for reinforced particleboards”, *Ind Crops Prod* (1998), **8**, 113-121.
- 116 Oksman K., “High quality flax fibre composites manufactured by the resin transfer moulding process”, *Journal of reinforced plastics and composites* (2001), **20**, 621-627.
- 117 Van de Velde K., Kiekens P., “Thermoplastic pultrusion of natural fibre reinforced composites”, *Composite structures* (2001), **54**, 355-360.
- 118 Van den Oever M.J.A., Bos H.L., Van Kemenade M.J.J.M., *Appl Compos Mater* (2000), **7**, 387-402.
- 119 Centre of Lightweight structures TUD-TNO, “Natural fibre composites from upholstery to structural components” (2005), [www.clc.tno.nl/projects/recent/flax.html](http://www.clc.tno.nl/projects/recent/flax.html)

- 120 Beukers A., Van Hinte E., in : *Lightness : the inevitable renaissance of minimum energy structures*, publié par O10 Publishers, Rotterdam (1999).
- 121 Peijs T., Van Vught R.J.M., Govaert L.E., “Mechanical properties of poly(vinyl alcohol) fibres and composites”, *Composites* (1995), **26**, 83-90.
- 122 Bergander A., Salmen L., “Cell wall properties and their effects on the mechanical properties of fibers”, *Journal of Materials Science* (2002), **37**, 151-156.
- 123 Lamy B., Baley C., “Stiffness prediction of flax fibres-epoxy composite materials”, *J. Mater. Sci. Lett.* (2000), **198**, 979-980.
- 124 Stamboulis A., Baillie C.A., Peijs T., “Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers”, *Composites : Part A* (2001), **32**, 1105-1115.
- 125 Stamboulis A., Baillie C.A., Garkhail S.K., Van Melick H.G.H., Peijs T., “Environmental durability on flax fibers and their composites based on polypropylene matrix”, *Appl. Comp. Mater.* (2000), **7**, 273-294.
- 126 Romhány G., Karger-Kocsis J., Czigány T., “Tensile fracture and failure behavior of technical flax fibers”, *Journal of Applied Polymer Science* (2003), **90**, 3638-3645.
- 127 Joffe R., Andersons J., Wallström L., “Strength and adhesion characteristics of elementary flax fibres with different surface treatments”, *Composites : Part A* (2003), **34**, 603-612.
- 128 Andersons J., Sparnins E., Joffe R., Wallström L., “Strength distribution of elementary flax fibres”, *Composites Science and Technology* (2005) **65**, 693-702.
- 129 Zafeiropoulos N.E., Baillie C., “A study of the effect of surface treatments on the tensile strength of flax fibres : Part II. Application of Weibull statistics”, *Composites : Part A* (2007), **38**, 629-638.
- 130 Bodros E., Baley C., “Study of the tensile properties of stingind nettle fibres (*Urtica dioica*)”, *Materials Letters* (2007), in press (doi:10.1016/j.matlet.2007.11.034).
- 131 Baley C., « Contribution à l'étude de matériaux composites à matrice organique renforcés par des fibres de lin », Habilitation à diriger des recherches, Université de Bretagne Sud, Lorient, France (2003).
- 132 Nechwatal A., Mieck K.P., Reusmann T., “Developments in the characterization of natural fibre properties and in the use of natural fibres for composites”, *Composites Science and Technology* (2003), **63**, 1273-1279.
- 133 Meredith R., in : *Mechanical properties of textile fibers*, Interscience, New York, USA (1956)
- 134 Page D.H., El-Hosseiny F., Winkler K., “Behaviour of single wood fibres under axial tensile strain”, *Nature* (1971), **229**, 252-253.
- 135 Wild P.M., Provan J.W., Pop S., Guin R., “The effects of cyclic axial loading of single wood pulp fibers. at elevated temperature and humidity”, *TAPPI journal* (1999), **82**, 209.
- 136 Hearle J.W.S., Peters R.H., in: *Fiber structure*, édité par Butterworth & Co Ltd, Londres, p. 255-265 (1963).
- 137 McLaughlin E.C., Tait R.A., “Fracture mechanism of plant fibres”, *Journal of Materials Science* (1980), **15**, 89-95.

- 138 Gassan J., Chate A., Bledzki A.K., “Calculation of elastic properties of natural fibres”, *Journal of materials science* (2001), **36**, 3715-3720.
- 139 Baley C., d'Anselme T., Guyader J., « Fibres végétales : renfort de matériaux composites à matrice organique », *Revue des composites et des matériaux avancés* (1997), **7**, 79-97.
- 140 Singleton A.C.N., Baillie C.A., Beaumont P.W.R., Peijs T., “On the mechanical properties, deformation and fracture of a natural fibre-recycled polymer composite”, *Composites : Part B* (2003), **34**, 519-526.
- 141 Gay D., in : *Matériaux composites*, Edition Hermes, Paris, France (1997).
- 142 Kessler R.W., Becker U., Kohler R., Goth B., *Biomass and bioenergy* (1998), **14**, 237.
- 143 Joshi S.V., Drzal L.T., Mohanty A.K., Arora S., “Are natural fiber composites environmentally superior to glass fiber reinforced composites ?”, *Composites : Part A* (2004), **35**, 371-376.
- 144 Foulk J.D., Akin D.E., Dodd R.B., “New low cost flax fibers for composites”, SAE Technical Paper number 2000-01-1133, SAE World Congress, Detroit, USA, 6-9 mars 2000.
- 145 Lantuéjoul C., Beucher S., “On the use of the geodesic metric in image analysis”, *Journal of Microscopy* (1981), **121**, 39-49.
- 146 Osborne G.G., “Micro-analysis of textile fibres - Part IV : Observation on the structure of Flax, Manila and Jute”, *Textile Research Journal* (1935), **5**, 351-369.
- 147 [http://www.fei.com/Portals/default/pdfs/content/mrs\\_bulletin\\_2007\\_fib\\_machining.pdf](http://www.fei.com/Portals/default/pdfs/content/mrs_bulletin_2007_fib_machining.pdf)
- 148 Perrin D., Alteirac M., Corn S., Shanahan M.E.R., “A novel method for the measurement of elastic moduli of fibres”, *Composites : Part A* (2007), **38**, 71-79.
- 149 Corn S., communication personnelle (2006).
- 150 Charlet K., Jernot J.P., Gomina M., Morvan C., Baley C., Bréard J., “Influence of an Agatha flax fibre location in a stem on its mechanical chemical and morphological properties”, *Composites Science and Technology*, sous presse.
- 151 Charlet K., Morvan C., Bréard J., Jernot J.P., Gomina M., « Etude morphologique d'un composite naturel - la fibre de lin », *Revue des Composites et des Matériaux Avancés* (2006), **16**, 11-24.
- 152 Fenwick K.M., Jarvis M.C., Apperley D.C., “Estimation of polymer rigidity in cell walls of growing and nongrowing celery collenchyma by solid-state nuclear magnetic resonance in vivo”, *Plant Physiology* (1997), **115**, 587-592.
- 153 Ferrari M., Robinet L., Tschirhart A., « Caractérisation des fibres de lin », *L'industrie textile* (1993), n°1243, p. 44-46.
- 154 Kohler R., Wedler M., “Non-textile applications of flax fibres”, 6 Internationales Techtexil Symposium, Francfort, Allemagne, 15-17 juin 1994.
- 155 Van Dam J.E.G., Bos H.L., « Etude sur l'impact environnemental des fibres naturelles dans les applications industrielles », *Agrotechnology and Food Innovations (A&F)*, Wageningen UR, Pays-Bas (2004), résumé dans : [http://www.fao.org/es/esc/common/ecg/343/fr/esc\\_4\\_fr.pdf](http://www.fao.org/es/esc/common/ecg/343/fr/esc_4_fr.pdf)

- 156 Stauder F., « Les fibres naturelles dans les matériaux composites en Allemagne », Fiche Technique CCI Agro-Industrie n°30 (2007), <http://veillestrategique.champagne-ardenne.cci.fr/>.
- 157 Lucas T., “Les composites passent au vert”, *L’Usine Nouvelle* (2007), n°3049, 59-66.
- 158 Windels F., « Les matières renouvelables dans l’automobile », Fiche Technique CCI Agro-Industrie n°29 (2007), <http://veillestrategique.champagne-ardenne.cci.fr/>.
- 159 Wambua P., Ivens J., Verpoest I., “Natural fibres: can they replace glass in fibre reinforced plastics ?” *Composites Science and Technology* (2003), **63**, 1259-1264.
- 160 Windels F., « Des composites renforcés de fibres végétales », Fiche Technique CCI Agro-Industrie n°26 (2007), <http://veillestrategique.champagne-ardenne.cci.fr/>.
- 161 Van de Weyenberg I., Chi Truong T., Vangrimde B., Verpoest I., “Improving the properties of UD flax fibre reinforced composites by applying an alkaline fibre treatment”, *Composites : Part A* (2006), **37**, 1368-1376.
- 162 Stuart T., Liu Q., Hughes M., McCall R.D., Sharma H.S.S., Norton A., “Structural biocomposites from flax - Part I: Effect of bio-technical fibre modification on composite properties”, *Composites : Part A* (2006), **37**, 393-404.
- 163 Baiardo M., Zini E., Scandola M., “Flax fibre-polyester composites”, *Composites : Part A* (2004) **35**, 703-710.
- 164 Baley C., Busnel F., Grohens Y., Sire O., “Influence of chemical treatments on surface properties and adhesion of flax fibre-polyester resin”, *Composites : Part A* (2005), **37**, 1626-1637.
- 165 Marais S., Gouanvé F., Bonnesoeur A., Grenet J., Poncin-Epaillard F., Morvan C., Métayer M., “Unsaturated polyester composites reinforced with flax fibers: effect of cold plasma and autoclave treatments on mechanical and permeation properties”, *Composites : Part A* (2005), **36**, 975-986.
- 166 Oksman K., Skrifvars M., Selin J.F., “Natural fibres as reinforcement in polylactic acid (PLA) composites”, *Composites science and technology* (2003), **63**, 1317-1324.
- 167 Wong S., Shanks R., Hodzic A., “Interfacial improvements in poly(3-hydroxybutyrate)-flax fibre composites with hydrogen bonding additives”, *Composites science and technology* (2004), **64**, 1321-1330.
- 168 Nishino T., Hirao K., Kotera M., “X-ray diffraction studies on stress transfer of kenaf reinforced poly(L-lactic acid) composite”, *Composites : Part A* (2006), **37**, 2269-2273.
- 169 Bodros E., Pillin I., Montrelay N., Baley C., “Could biopolymers reinforced by randomly scattered flax fibre be used in structural applications ?”, *Composites Science and Technology* (2007), **67**, 462-470.
- 170 Van de Velde K., Kiekens P., “Effect of material and process parameters on the mechanical properties of UD and multiD flax-polypropylene composites”, *Composite structures* (2003), **62**, 443-448.
- 171 Thielemans W., Wool R.P., “Butyrate kraft lignin as compatibilizing agent for natural fiber reinforced thermoset composites”, *Composites : Part A* (2004), **35**, 327-338.
- 172 Rouison D., Sain M., Couturier M., “Resin transfer molding of natural fiber reinforced composites : cure simulation”, *Composites science and technology* (2004), **64**, 629-644.

- 173 Bréard J., Bizet L., Montrelay N., Baley C., « Comparaison des propriétés de composites mats verre/polyester et lin/polyester pour faisabilité par procédé RTM », *Revue des Composites et des Matériaux Avancés* (2006), **16**, 101-113.
- 174 Madsen B., Lilholt H., “Volumetric interaction model in natural fiber composites – A concept to be used in design and process optimization of composites”, 16ème Conférence Internationale sur les Matériaux Composites, Kyoto, Japon, 8-13 juillet 2007.
- 175 Avramidis S., “The basics of sorption”, International Conference of COST Action E8, Mechanical Performance of wood and wood products, Copenhagen, Denmark, 16-17 juin 1997.
- 176 Gassan J., Mildner I., Bledzki A.K., “Influence of fibre structure modification on the mechanical properties of flax fiber-epoxy composites”, *Mechanics of composite materials* (1999), **35**, 435-440.
- 177 Wielage B., Lampke T., Utschick H., Soergel F., “Processing of natural fibre reinforced polymers and the resulting dynamic-mechanical properties”, *Journal of materials processing technology* (2003), **139**, 140-146.
- 178 Cantero G., Arbelaiz A., Llano-Ponte R., Mondragon I., “Effects of fiber treatment on wettability and mechanical behaviour of flax-polypropylene composites”, *Composites science and technology* (2003), **63**, 1247-1254.
- 179 Arbelaiz A., Fernandez B., Cantero G., Llano-Ponte R., Valea A., Mondragon I., “Mechanical properties of short flax fibre bundle/polypropylene composites - influence of matrix/fibre modification, fibre content, water uptake and recycling”, *Composites Science and Technology* (2005) **65**, 1582-1592.
- 180 Park J.M., Quang S.T., Hwang B.S., De Vries K.L., “Interfacial evaluation of modified jute and hemp fibers/polypropylene (PP)-maleic anhydride polypropylene copolymers (PP-MAPP) composites using micromechanical technique and nondestructive acoustic emission”, *Composites Science and Technology* (2006), **66**, 2686-2699.
- 181 Zafeiropoulos N.E., Baillie C.A., Hodgkinson J.M., “Engineering and characterization of the interface in flax fibre-polypropylene composite materials - Part II. The effect of surface treatments on the interface”, *Composites : Part A* (2002), **33**, 1185-1190.
- 182 Miller B., Muri P., Rebenfeld L., “A microbond method for determination of the shear strength of a fiber/resin interface”, *Composites Science and Technology* (1987), **28**, 17-32.
- 183 Drzal L.T., Herrera-Franco P.J., Ho H., “Fibre-matrix interface tests”, In : *Comprehensive composite materials*, édité par A. Kelly et C. Zweben, New York, Pergamon Press (2000).
- 184 Zafeiropoulos N.E., Baillie C.A., Matthews F.L., “Modification and characterization of the interface in flax/polypropylene composite materials”, 9ème Conférence Européenne sur les Matériaux Composites, Brighton, 4-7 juin 2000.
- 185 Stamboulis A., Baillie C.A., Schulz E., “Interfacial characterization of flax fibre-thermoplastic polymer composites by the pull-out test”, *Die Angewandte Makromolekulare Chemie* (1999), **272**, 117-120.
- 186 Cox B. N., Marshall D. B., “Stable and Unstable Solution for Bridged Cracks in Various Specimens”, *Acta Metall. Mater.* (1991), **39**, 579-589.
- 187 Ramakrishnan V., Jayaraman N., “Mechanistically based fatigue-damage evolution model for brittle matrix fibre-reinforced composites”, *Journal of Materials Science* (1993), **28**, 5592-5602.

- 188 Bao G., Song Y., “Crack bridging for fiber composites with slip-dependent interfaces”, *J. Mech. Phys. Solids* (1993), **41**, 1425-1444.
- 189 Matthews F.L., Rawlings R.D., in : *Composite Materials: Engineering and Science*, Woodhead Publishing, Cambridge (1999).
- 190 Gassan J., “A study of fibre and interface parameters affecting the fatigue behaviour of natural fibre composites”, *Composites : Part A* (2002), **33**, 369-374.
- 191 Eichhorn S.J., Young R.J., “Deformation micromechanics of natural cellulose fibre networks and composites”, *Composites science and technology* (2003), **63**, 1225-1230.
- 192 Renard J., Thionnet A., “Damage in composites: From physical mechanisms to modelling”, *Composites Science and Technology* (2006), **66**, 642-646.
- 193 Hanselka H., Herrmann A.S., 7 Internationales Techtexil Symposium, Francfort, Allemagne, 20-22 juin 1995.
- 194 Burgueño R., Quagliata M.J., Mohanty A.K., Mehta G., Drzal L.T., Misra M., “Load-bearing natural fiber composite cellular beams and panels”, *Composites : Part A* (2004), **35**, 645-656.
- 195 Bos H.L., Mussig J., Van den Oever M.J.A., “Mechanical properties of short-flax fibre reinforced compounds”, *Composites : Part A* (2006), **37**, 1591-1604.
- 196 Norme européenne AFNOR, “Plastiques - Détermination des propriétés en traction - Partie 5 : Conditions d'essai pour les composites plastiques renforcés de fibres unidirectionnelles”, NF EN ISO 527-5, juillet 1997.
- 197 Rouillon M.H., “Résistance à la propagation de fissure de matériaux composites céramiques SiC/C/SiC 2D”, Thèse, Université de Caen (1993).
- 198 Pomel C., Lamy B., Baley C., “Composites renforcés par des textiles de lin - Comportement mécanique”, *Revue des Composites et des Matériaux Avancés* (2003), **13**, 189-203.
- 199 Fournier P., « Comportement sous sollicitation cyclique des composites unidirectionnels verre/époxy. Cas des résines à ténacité améliorée », Thèse, Ecole Centrale de Lyon (1992).
- 200 Salaün A., « Etude de l'endommagement en flexion 3 points et en flambage de composites carbone/époxy 1D et 2D à plis croisés », Thèse, Université de Caen, France (1998).
- 201 Timoshenko S., « Résistance des matériaux : Tome 1 », édité par Dunod, Paris, p. 420 (1968).

# Annexes

---

## A1. Composition biochimique des fibres de lin

Des fibres techniques ont été prélevées dans chacune des trois zones de tiges de lin (au sommet, au milieu et au pied) de deux variétés différentes (Agatha, cultivée en 2003 et Hermès, cultivée en 2002). Ces fibres ont été analysées afin de déterminer leur teneur en cellulose, hémicelluloses et pectines [90,150].

Elles sont tout d'abord débarrassées de leurs résidus de rouissage par un lavage à l'eau bouillante. Ensuite, le ciment pectique, qui maintient les fibres élémentaires solidaires les unes aux autres dans une fibre technique, est dissous grâce à un traitement à l'EDTA (0.5 % massique d'EDTA- $\text{Na}_2$  3 fois 1 heure à 100°C) [3,58]. Les polymères non-cellulosiques (c'est-à-dire principalement les pectines et les hémicelluloses) de la paroi secondaire sont dissous dans l'acide chlorhydrique (HCl 0,015 M pendant 1 heure à 100°C suivi de deux rinçages à l'eau 1 heure à 100°C) puis dans la soude (NaOH 1,5 M additionné de  $\text{Na}_2\text{BH}_3$  10 mM pendant 1 heure à 100°C suivi de deux rinçages à l'eau 1 heure à 100°C). Le traitement à l'acide permet de dissoudre plutôt les pectines alors que le traitement à la soude est plus spécifique des hémicelluloses. Après chacun de ces traitements, les concentrations en polysaccharides sont obtenues par colorimétrie [59] (Tableau A - 1).

Afin de déterminer par chromatographie en phase gazeuse [58] les proportions des composants pectiques et hémicellulosiques extraits par l'acide et la soude, une méthanolyse et une silylation sont réalisées sur les échantillons. Finalement, les fibres sont traitées à l'acide sulfurique ( $\text{H}_2\text{SO}_4$  pendant 1 heure, puis dilution jusqu'à 1 M, puis chauffage 2 heures à 110°C) qui dissout les microfibrilles et permet de quantifier la teneur en cellulose dans les parois. Le résidu de cette

opération est appelé lignine de Klason. La masse de matière après extraction (Tableau A - 2) est rapportée à 1 g de fibres techniques nettoyées à l'eau bouillante et séchées (24 heures à 40°C puis 1 heure à 80°C).

		EDTA			HCl			NaOH			somme		
		S	M	P	S	M	P	S	M	P	S	M	P
HERMES	pectines	28	26	29	46	58	62	7	10	6	81	94	97
	hémicelluloses	3	3	3	11	10	10	41	32	28	55	45	41
	somme	31	29	32	57	68	72	48	42	34	136	139	138
AGATHA	pectines	24	22	33	39	44	26	10	12	8	73	78	67
	hémicelluloses	3	3	3	9	9	4	27	21	21	39	33	28
	somme	27	25	36	48	53	30	37	33	29	112	111	95

Tableau A - 1. Composition des polymères non-cellulosiques extraits des parois par les traitements à l'EDTA, à l'acide chlorhydrique et à la soude (en mg/g de fibres techniques sèches) pour différentes fibres issues du sommet (S), du milieu (M) ou du pied (P) de tiges de la variété Hermès ou Agatha.

		Cellulose	NCP	lignine de Klason	autre
HERMES	Sommet	740	135	25	100
	Milieu	790	140	20	50
	Pied	795	140	25	40
AGATHA	Sommet	700	110	40	150
	Milieu	800	110	20	70
	Pied	800	95	20	85

Tableau A - 2. Masse (en mg) de matières extraites par gramme de fibres techniques sèches issues du sommet, du milieu ou du pied de tiges de la variété Hermès ou Agatha.

## A2. Calcul du taux volumique de fibres dans un composite

- Composite fabriqué au contact

Après démoulage des composites, leur volume  $V_{\text{composite}}$  et leur masse  $m_{\text{composite}}$  peuvent être reliés aux caractéristiques de leurs composants par :

$$V_{\text{composite}} = V_{\text{matrice}} + V_{\text{fibres}} + V_{\text{pores}} \quad \text{Eq. A - 1}$$

$$m_{\text{composite}} = m_{\text{matrice}} + m_{\text{fibres}} \quad \text{Eq. A - 2}$$

Soient  $t_i^v$  et  $t_i^m$  les fractions volumiques et massiques de la phase  $i$  dans le composite, définies par :

$$t_i^v = \frac{V_i}{V_{\text{composite}}} \quad \text{Eq. A - 3}$$

$$t_i^m = \frac{m_i}{m_{\text{composite}}} \quad \text{Eq. A - 4}$$

Elles peuvent être reliées par la formule :

$$\boxed{t_i^v = \frac{\rho_{\text{composite}}}{\rho_i} t_i^m} \quad \text{Eq. A - 5}$$

Les équations A - 1 et A - 2 peuvent également s'écrire :

$$t_{\text{fibres}}^v + t_{\text{matrice}}^v + t_{\text{pores}}^v = 1 \quad \text{Eq. A - 6}$$

$$t_{\text{fibres}}^m + t_{\text{matrice}}^m = 1 \quad \text{Eq. A - 7}$$

ce qui entraîne :

$$t_{\text{pores}}^v = 1 - t_{\text{fibres}}^v + t_{\text{matrice}}^v = 1 - \frac{\rho_{\text{composite}}}{\rho_{\text{fibres}}} t_{\text{fibres}}^m + \frac{\rho_{\text{composite}}}{\rho_{\text{matrice}}} t_{\text{matrice}}^m$$

$$\boxed{t_{\text{pores}}^v = 1 - \rho_{\text{composite}} \left( \frac{t_{\text{fibres}}^m}{\rho_{\text{fibres}}} + \frac{(1 - t_{\text{fibres}}^m)}{\rho_{\text{matrice}}} \right)} \quad \text{Eq. A - 8}$$

- Composite fabriqué par compression à chaud

En fonction de la masse de fibres préparées  $m_{\text{fibres}}$  (qui peut être choisie pour réaliser un composite de taux volumique donné), la masse de matrice  $m_{\text{matrice}}$  à ajouter pour fabriquer la plaque de composite est calculée suivant :

$$m_{\text{matrice}} = \rho_{\text{matrice}} \left( V_{\text{moule}} - \frac{m_{\text{fibres}}}{\rho_{\text{fibres}}} \right) \quad \text{Eq. A - 9}$$

avec  $\rho_i$  les masses volumiques ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) et  $V_{\text{moule}} = 360 \text{ cm}^3$

Chaque éprouvette est également mesurée et pesée pour calculer son taux volumique de fibres, qui peut être obtenu grâce à l'équation :

$$\rho_{\text{composite}} = t_{\text{fibres}}^v \rho_{\text{fibres}} + \left( 1 - t_{\text{fibres}}^v - \overline{t_{\text{pores}}^v} \right) \rho_{\text{matrice}} \quad \text{Eq. A - 10}$$

(avec  $\overline{t_{\text{pores}}^v}$  calculé à partir de l'Eq. A - 8), ce qui conduit à :

$$t_{\text{fibres}}^v = \frac{\rho_{\text{composite}} - \rho_{\text{matrice}} \left( 1 - \overline{t_{\text{pores}}^v} \right)}{\rho_{\text{fibres}} - \rho_{\text{matrice}}} \quad \text{Eq. A - 11}$$



## **Résumé**

Cette thèse porte sur la caractérisation morphologique et mécanique des fibres de lin. En effet, leur faible densité et leurs bonnes propriétés mécaniques permettent d'envisager leur utilisation comme renfort de polymères en remplacement des fibres de verre.

Des fibres de lin ont d'abord été étudiées à partir d'observations de leurs sections et de leur profil longitudinal, ce qui a permis de déterminer leurs tailles moyennes et leur dispersion et de formuler un schéma d'organisation interne de la fibre de lin.

Des essais de traction ont ensuite été réalisés sur des fibres unitaires. Leur comportement élasto-visco-plastique présente une non-linéarité initiale qui a été interprétée comme un réarrangement interne des constituants des parois. La comparaison avec d'autres fibres végétales ainsi que des observations de faciès de rupture de fibres ont permis de valider cette hypothèse de réorganisation.

A partir de l'étude de fibres issues de différentes variétés de lin et prélevés en différents endroits le long des tiges, il est apparu que les fibres présentes dans la zone médiane des tiges présentaient des dimensions optimales et des propriétés mécaniques supérieures aux fibres apicales ou basales.

Enfin, des composites unidirectionnels lin / polyester ont été fabriqués par contact et par compression, avec différents taux volumiques de fibres. Ceux-ci ont été testés en traction et en flexion par flambement afin de déterminer leurs propriétés mécaniques et de préciser leur mode d'endommagement. Les résultats montrent que, en plus de leur avantage écologique, les composites à base de fibres de lin sont mécaniquement compétitifs par rapport à ceux à base de fibres de verre.

---

## Contribution to the study of flax fibre reinforced unidirectional composites: relationships between the fibre microstructure and its mechanical properties

### **Abstract**

This doctoral dissertation deals with morphological and mechanical characteristics of flax fibres. Indeed, due to their lightness and their good mechanical properties, these fibres are considered as good alternatives for the glass fibres commonly used as reinforcement in polymer composites.

At first, sections and longitudinal profiles of flax fibres were observed in order to determine their mean sizes and their scattering and to draw up an internal organisation scheme.

Then, tensile tests were then performed on elementary fibres. Their mechanical behaviour displays a typical elasto-visco-plasticity as well as an initial non-linearity which has been attributed to an internal rearrangement of the cell wall constituents. The comparison with other natural fibres and the observation of fibre rupture surfaces allowed to corroborate this hypothesis.

The study of fibres issued from two varieties and from different parts of the stems led to the conclusion that the median fibres exhibited optimal dimensions as well as higher mechanical properties than the apical or the basal ones.

Finally, unidirectional composites made of flax fibres and polyester were processed by hand lay-up or by compression moulding, with several fibre volume fractions. They were tensile and flexural tested in order to determine their mechanical properties and their damage modes. The results show that flax fibres reinforced composites, in addition to their ecological benefit, are mechanically competitive compared to glass fibres reinforced composites.

---

**Mots clés** (indexation Rameau) :

Lin, Fibres végétales, Composites, Propriétés mécaniques, Cellules--Morphologie

---

Discipline : Chimie des matériaux

Laboratoire de Cristallographie et Science des Matériaux  
6 boulevard Maréchal Juin  
14 050 Caen Cedex 4