

## **Sujet de thèse PM2E Magali Morales/Christophe Poilâne/Florian Gehring**

### **Analyse des relations « micromécanique des fibres de lin - macromécanique des composites à renfort lin » par microdiffraction des rayons X et traction in-situ**

L'équipe Propriétés des Matériaux pour l'Économie d'Énergie (PM2E) du CIMAP travaille sur le lin et les composites associés depuis 2007 [1] en partenariat avec l'industrie [2][3]. Elle participe activement à la sensibilisation des différents acteurs par des actions de vulgarisation [4], de participation à des sociétés savantes [5], d'organisation de conférences [6]. **Plusieurs industries de pointe telles que l'automobile, la compétition nautique, le cycle, l'aéronautique, la formule 1, s'intéressent à ce matériau.** Les premiers produits « grand public » sont du matériel pour les sports et loisirs (vélo Museu, raquette Artengo). Nous avons obtenu, en tant que partenaire de la société normande LINEO, le premier prix de l'innovation au JEC 2010 catégorie Bio-based materials [7] pour un travail d'optimisation de la raquette de tennis Artengo. Nous avons montré que les polymères renforcés par des fibres de lin ont un comportement mécanique visco-élastoplastique [8]. Les paramètres qui le gouvernent sont très dépendants de la température et de l'humidité. Ceci se traduit par des courbes de traction en trois domaines apparent, le premier domaine est quasi-élastique, le troisième fait penser à un durcissement microstructural. Il est très tentant de relier ce comportement macroscopique au comportement en traction des fibres isolées de lin, présentant lui-même trois domaines [9]. La réorientation des microfibrilles de cellulose durant l'allongement des fibres – hypothèse couramment émise pour expliquer le comportement des fibres isolées – pourrait intervenir dans le comportement macroscopique des composites. Cette hypothèse fait l'objet de nombreux commentaires dans la littérature et mérite d'être confirmée ou infirmée dans le cas des composites à fibres de lin. La complexité et la diversité des fibres végétales facilitent en effet les mauvaises interprétations.

L'équipe PM2E du CIMAP entend, en s'appuyant sur ses compétences en micro-traction et métrologie optique d'une part [1] et en diffraction des rayons X d'autre part [10][11], analyser les relations « micromécanique des fibres de lin - macromécanique des composites à renfort lin » par traction et diffraction X in-situ. Nous ambitionnons de lever le doute qui subsiste quant à la relation entre la réorientation des microfibrilles de cellulose et le comportement macroscopique des composites lins. **Les enjeux de ce sujet de thèse sont très importants.** En effet, les composites à renfort lin soutiennent la comparaison avec les composites à renfort verre (qui constituent actuellement l'essentiel de la production mondiale) sur bien des points. C'est le cas notamment sur la rigidité spécifique. Mais nous avons montré que leur seuil d'élasticité est très faible et fortement tributaire de la température et du taux d'humidité du matériau [2]. Cette particularité fait que les composites lins sont globalement non élastiques ! C'est sur ce point qu'il est important d'apporter des certitudes quant à l'origine du phénomène observé : Provient-il de défauts générés durant la mise en œuvre des composites ? Provient-il des fibres de lin elles-mêmes ? Ou bien provient-il des propriétés de l'interface fibre/résine ? **L'objectif de cette thèse est donc d'établir les lois micro-macro qui relient le comportement des composites à renfort végétal aux mouvements des microfibrilles constitutives des fibres végétales élémentaires. Malgré leurs importances pour prédire le comportement des structures composites biosourcées, ces lois n'ont jamais été établies.**

A court terme, il s'agit de mettre au point une méthode de mesure fiable pour mesurer pendant un essai de traction l'orientation des microfibrilles de cellulose sur fibre isolée, faisceau de

fibres, et surtout mini-composite. Le déroulement des microfibrilles durant une traction – on parle de réorientation des microfibrilles – a été démontré par diffraction des rayons X uniquement sur un échantillon massif de bois, grâce à des mesures effectuées dans un synchrotron [12]. Une méthode de microscopie multiphotonique appliquée à des tissus biologiques a aussi permis de démontrer la réorientation des fibrilles de collagène – matériau qui présente des similitudes avec les fibres végétales – durant leur traction [13]. **Ces deux dispositifs de mesure (synchrotron, microscopie multiphotonique) sont des dispositifs lourds et délicats qui n'ont pour l'instant pas permis de démontrer la réorientation des microfibrilles de cellulose sur un échantillon de composite à fibre végétal. Nous avons pour ambition de réussir cette mesure sur un dispositif de microdiffraction X de laboratoire.**

Conformément aux objectifs, la thèse se déroulera en plusieurs étapes. Les fibres que nous allons étudier ont fait l'objet d'un protocole de traçabilité, en collaboration avec ARVALIS Institut du végétal. Le premier temps de ce travail de thèse sera consacré à la mise en œuvre des matériaux (trois échelles dimensionnelles) et à leur caractérisation physico-chimique. Le second temps sera consacré aux essais de traction ex-situ et à l'analyse des déformations des fibres de lin en traction par corrélation d'images. Les moyens optiques et les compétences sont présents au laboratoire [1]. Il s'agit de les appliquer au cas des échantillons monodimensionnels. Le troisième temps sera consacré aux essais de diffraction X, sur les trois types d'échantillons. Il est à noter que les premières mesures de microdiffraction des rayons X effectuées récemment par l'équipe PM2E en utilisant une micro-source Molybdène et caméra CCD ont permis d'accéder – via la technique d'analyse combinée développée dans le programme MAUD [10] – à la texture et à la microstructure d'une fibre de lin. Ce résultat préliminaire, en montrant la possibilité d'extraire des informations quantitatives des mesures de diffraction X au laboratoire, est donc prometteur en vue du challenge de ce troisième temps du travail de thèse. Le quatrième temps sera consacré au dialogue micro-macro, aussi bien expérimental – puisqu'il faut parvenir à effectuer une mise en tension contrôlée in-situ dans le diffractomètre – que théorique – pour établir les lois micro-macro qui relient le comportement des composites à renfort végétal aux mouvements des microfibrilles constitutives des fibres végétales élémentaires. Concernant l'aspect théorique, il faut noter que notre équipe est leader dans la modélisation phénoménologique du comportement macroscopique des composites à fibres végétales [2,14], modélisation qui permettra de relier scientifiquement les observations microscopiques aux observations macroscopiques, aussi bien sur une fibre isolée que sur un composite. L'ensemble de ce protocole permettra de vérifier l'hypothèse de réorientation des microfibrilles de cellulose en cours de traction d'un composite, in situ, par diffraction des rayons X. Il faut souligner que l'utilisation complémentaire d'une mesure de champs par corrélation d'images numériques d'une part – jamais utilisée pour analyser la traction des fibres végétales – et la technique de microdiffraction des rayons X d'autre part – jamais utilisée pour analyser la réorientation des microfibrilles dans les composites durant sa mise en tension – est novatrice et constitue un véritable challenge, car elle n'a pour l'instant jamais été appliquée avec succès sur un matériau composite biosourcé. **Notre objectif étant d'établir les lois mécaniques micro-macro de ces composites à renfort végétal, la complémentarité d'une mesure de traction avec analyse approfondie des déformations locales de l'échantillon et d'une mesure de diffraction par rayon X est la clé du succès.**

- [1] [https://www.researchgate.net/profile/Christophe\\_Poilane/](https://www.researchgate.net/profile/Christophe_Poilane/)
- [2] Z E Cherif, « Caractérisation et optimisation d'un pré-imprégné industriel fibres de lin/résine époxy pour les matériaux composites », Thèse CIFRE, UCBN, Teillage Saint Martin, Alençon, 2013
- [3] C Poilâne, Partenaire du projet FEDER OLCO, Linière Saint Martin, depuis septembre 2016
- [4] C Poilâne, « Le lin, de la plante au renfort », Conférence Université Inter Âge, janvier 2016
- [5] C Poilâne, Responsable du GT MÉCAMAT/AMAC « Écomatériaux », <https://www.mecamat.asso.fr/>
- [6] C Poilâne, Co-organisateur de la formation doctorale 2016 du GDR « Mise en oeuvre des composites et propriétés induite », Université du Havre, du 7 au 10 novembre 2016, <https://micweek2016.sciencesconf.org/>
- [7] <http://www.industrie.com/it/materiaux/materiaux-composites-les-laureats-des-jec-innovation-awards-2010,9290>
- [8] C Poilâne et al., "Polymer reinforced by flax fibers as a viscoelastoplastic material", Compos Structure, Vol. 112, pp. 100–112, 2014
- [9] K 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 », Thèse en Chimie des Matériaux, UCBN , Caen, 2008
- [10] <http://www.inel.fr/en/news-home/103-workshop-maud-inel-company2016>
- [11] [https://www.researchgate.net/profile/Magali\\_Morales2](https://www.researchgate.net/profile/Magali_Morales2)
- [12] K Kölln et al., « Mechanical properties of cellulose fibres and wood. Orientational aspects in situ investigated with synchrotron radiation », J Synchrotron Radiat, Vol. 12, pp. 239-244, 2005
- [13] I Gusachenko et al., « Polarization-Resolved Second-Harmonic Generation in Tendon upon Mechanical Stretching », J Biomechanics, vol. 102, pp. 2220-2229, 2012
- [14] C Poilâne, F Gehring et al., "About nonlinear behavior of unidirectional plant fibre composite », in Advances in Natural Fibre Composites. Raw Materials, Processing and Analysis, Springer International Publishing, R Figueiro and S Rana editors, 2018.

Directeurs : Magali Morales, Christophe Poilâne, MCF HDR

Coencadrant : Florian Gehring