

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

Contexte

Dans les matériaux composites, les principaux renforts utilisés sont d'origine minérale ou pétrochimique: fibres de verre, fibres de carbone, fibres organiques. Récemment, les enjeux économiques liés à la gestion des structures en fin de vie, aux coûts croissants des ressources fossiles ainsi qu'à leur disparition annoncée, font que l'incorporation de fibres végétales au sein d'une matrice organique constitue, pour l'industrie, un défi d'envergure et une réponse à certains problèmes liés à l'environnement. Les polymères renforcés par des fibres végétales représentent ainsi un nouveau débouché pour la filière lin. L'équipe PM2E a étudié particulièrement les propriétés mécaniques d'un lin/époxyde (fils de lin imprégnés de résine époxyde). Plusieurs industries de pointe telles que la compétition nautique, le cycle, l'aéronautique, la formule 1, s'intéressent à ce matériau. Les premiers produits « grand public » commercialisés sont du matériel pour les sport et loisirs (velo Museu, raquette Artengo). Nous avons obtenu, en tant que partenaire de la société LINEO, le premier prix de l'innovation au JEC 2010 catégorie Bio-based materials pour un travail d'optimisation de la raquette Artengo. Nous avons montré, dans le cadre de nos travaux de recherche, que les polymères renforcés par des fibres de lin ont un comportement mécanique singulier. Ce comportement est visco-élastoplastique et les paramètres qui le gouvernent sont très dépendant des conditions ambiantes (température et humidité). Nous étudions aussi les propriétés mécaniques de la fibre élémentaire, notamment via une collaboration avec l'université du Maine.

Le travail de thèse proposé utilise nos compétences en micro-traction et en métrologie optique d'une part et en diffraction des rayons X d'autre part, pour analyser les relations « micromécanique des fibres de lin - macromécanique des composites à renfort lin » par diffraction X et traction *in-situ*, et lever le doute qui subsiste quant à l'effet ou non de la réorientation des microfibrilles de cellulose sur les composites à renfort lin. Les enjeux du projet sont 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. Cette particularité fait que les composites lin ne peuvent pas subir de grandes déformations de manière réversible. C'est sur ce point qu'il est important d'apporter des éclaircissements quant à l'origine du phénomène observé : Provient-il de défauts générés durant la mise en œuvre des composites ? Provient-il des propriétés de l'interface fibre/résine ? Ou bien provient-il des fibres de lin elles même ? L'objectif du travail de thèse sera entre autre de mettre au point une méthode de mesure multi-échelle fiable pour déterminer l'orientation des microfibrilles de cellulose dans une fibre isolée, un faisceau de fibres, et un minicomposite, lorsque celui-ci (ou celle-ci) est tendu(e). La caractérisation portera sur des lots de matière première traçabilisés qui nous sont fournis par ARVALIS Institut du végétal. L'objectif à long terme est d'établir les lois micro-macro qui relient le comportement des composites à renfort végétal au mouvement des microfibrilles constitutives des fibres végétales élémentaires.

Ce travail abordera trois aspects avec des défis spécifiques :

a) Matériaux Le matériau à disposition se présente sous forme de lin teillé ou peigné. Les fibres isolées et les faisceaux de fibres seront prélevés manuellement. Elles seront si besoin intégrées dans une résine afin d'élaborer des mini-échantillons de matériau composite. Il convient d'élaborer des composites à renfort végétaux parfaitement unidirectionnels, ce qui n'est jamais le cas pour l'instant dans un contexte de production industrielle. Le degré d'orientation des fibres dans la matrice sera à étudier.

b) Propriétés mécaniques Les caractérisations mécaniques les plus difficiles sont celles des fibres isolées et des faisceaux de fibres. Les propriétés mécaniques des fibres de lin élémentaires ont fait l'objet de nombreux travaux. La méthode classique est l'essai de traction. La mesure de la déformation en traction est globale, la section retenue est une section moyenne. Les résultats présentent de fortes dispersions inhérentes à l'origine naturelle des fibres. Parmi les facteurs influents, la forte variabilité de la section des fibres, même sur des longueurs faibles (quelques millimètres), pose des difficultés d'interprétation des résultats : la contrainte et la déformation ne sont pas constantes. D'autres méthodes sont plus locales, comme la mesure par spectroscopie Raman, ou indirecte comme les tests de fragmentation, mais ces méthodes ne résolvent pas les problèmes de dispersion. Nous proposons ici l'établissement d'une topographie de chaque fibre, tronçon par tronçon, et l'utilisation de la corrélation d'images numériques, domaine dans lequel nous bénéficions d'une reconnaissance internationale (participation au GDR 2519 « Mesure de champs et identification » du CNRS de 2006 à 2014), pour déterminer la répartition de la contrainte et de la déformation le long de la fibre. Notre méthode a été ébauchée dans le cadre d'un stage L2 et d'un doctorat. Les premiers résultats ont fait l'objet de quelques communications. L'étude sera une analyse statistique visant à exprimer les propriétés mécaniques des fibres en fonction de la section vraie. Les essais de traction avec mesure des déformations par méthode optique seront à mettre en œuvre sur les trois échelles d'échantillons prévues. Cette partie du travail constitue en soi un premier

défi. Elle permettra de confirmer les hypothèses fondamentales concernant le comportement macroscopique non élastique des fibres isolées de lin et des composites associés via un moyen de mesure semi-local des déformations, non utilisé jusqu'à maintenant dans la communauté scientifique.

c) Diffraction des rayons X Le dialogue micro-macro nécessite la mesure de l'orientation des microfibrilles pour divers niveaux d'élongation des échantillons. La méthode envisagée consiste à effectuer des mesures de diffraction des rayons X tout en mettant les échantillons en tension *in-situ*. Les microfibrilles de cellulose sont en effet constituées, à l'échelle moléculaire, d'une multitude de chaînes de cellulose arrangées alternativement en zones très ordonnées et en zones parfaitement amorphe. C'est cet arrangement « périodiquement cristallin » qui offre la possibilité d'utiliser la technique de diffraction des rayons X sur un matériau organique. Les premières mesures de diffraction X effectuées au laboratoire en utilisant une micro-source Molybdène et caméra CCD ont permis d'accéder – via la technique d'analyse combinée développée dans le programme MAUD – à la texture et à la microstructure d'un microfil constitué de plusieurs microfibrilles. Ce résultat préliminaire, en montrant la possibilité d'extraire des informations quantitatives des mesures de diffraction X, est donc prometteur en vue du second challenge de ce travail de thèse visant (i) à effectuer des mesures de diffraction sur des échantillons préalablement mis en tension de façon totalement contrôlée et (ii) à déterminer les relations existant entre l'orientation des microfibrilles (texture) avec les courbes de traction obtenues sur banc d'essai *ex-situ*, ceci quel que soit le type d'échantillon considéré (fibre isolée, faisceau de fibres, minicomposite). Dans le même temps, des prélèvements seront effectués pour mener des analyses de microscopie électronique aussi bien à balayage qu'en transmission. Il sera ainsi possible de connaître l'influence des différents paramètres sur la microstructure de ces matériaux de l'échelle du micron à celle des molécules constitutives.

Principales actions de recherche entreprise

1. Traction d'une fibre ou d'un faisceau de fibres avec mesure des déformations locales par corrélation d'images.
2. Mesure d'orientation des fibrilles de cellulose par diffraction de rayons X dans une fibre tendue.
3. Établissement des lois micro-macro qui relie le comportement des composites à renfort végétal au mouvement des microfibrilles constitutives des fibres végétales élémentaires.

Ces trois actions sont innovantes. Les relations micro-macro entre le comportement des composites à renfort végétal et les mouvements des microfibrilles de cellulose n'ont jamais été établies, cette information est capitale pour prédire le comportement des structures (raquettes, skis, canne à pêche...). La corrélation d'images numériques n'a jamais été utilisée pour mesurer les déformations lors de la traction d'une fibre, cette méthode va améliorer nettement la connaissance des propriétés des fibres végétales.

Contacts

Directeurs de Thèse : Magali Morales (magali.morales@ensicaen.fr, tél : 023145 26 58) / Christophe Poilâne (christophe.poilane@unicaen.fr, tél : 02 33 80 81 67)

Responsable équipe PM2E : Pierre Ruterana (pierre.ruterana@ensicaen.fr; tél : 0231452653)