

Influence du diamètre sur le module d'Young apparent des fibres de chanvre. Effet géométrique ou microstructural ?

V. PLACET, F. TRIVAUDEY, O. CISSE, V. GUICHERET-RETEL, L. BOUBAKAR

FEMTO-ST – Département Mécanique Appliquée - UMR CNRS 6174, 24 rue de l'Épitaphe, F-25000 BESANCON

Résumé :

Ce travail a pour objectif d'apporter des éléments de compréhension sur les origines de la dépendance du module d'Young apparent des fibres végétales à leur diamètre. Un modèle analytique 3D, basé sur la théorie de la mécanique des milieux continus, appliqué aux structures cylindriques tubulaires est développé afin d'étudier les relations entre les paramètres géométriques et microstructuraux et les propriétés élastiques apparentes des fibres issues du chanvre. La fibre végétale est considérée comme un multicouche cylindrique à parois épaisses constitué de microfibrilles de cellulose noyées dans une matrice polymérique. Les résultats des calculs numériques mettent en évidence un effet structural affectant sensiblement les propriétés mécaniques de la fibre. Cet effet de structure pourrait contribuer à la décroissance du module d'Young pour les diamètres croissants de fibres, mais ne peut expliquer à lui seul la forte chute enregistrée expérimentalement. Seuls les paramètres microstructuraux pourraient justifier ces observations.

Abstract :

This work deals with the understanding of the diameter dependence of the elastic modulus of natural fibres. A comprehensive model based on the 3D elastic theory, applied on cylindrical specimen, is derived to link the microstructure, the mechanical properties of the constitutive components, the geometry and the dimensions of the fibre to the macroscopic mechanical properties. The elementary fibre is considered as a multilayered tube made of a stacking of perfectly thick cylindrical layers mixed up with cellulose microfibrils in a matrix of hemicelluloses and lignins. Numerical data emphasize a structural effect involving some variations in the elastic modulus of the fibre. This structural effect could play a role in the diameter dependence of the elastic modulus, but cannot justify alone the large drop often observed in experiments. Only microstructural parameters could justify these observations.

Mots clefs : Fibres de chanvre, modélisation, module d'Young apparent, diamètre fibre

1 Introduction

Les fibres végétales issues des plantes annuelles présentent un comportement mécanique relativement complexe et bien différent des matériaux synthétiques usuels. Leur comportement macroscopique est effectivement dicté par une organisation structurale et macromoléculaire ainsi qu'une composition biochimique de la paroi cellulaire considérablement intriquée. La caractérisation, la compréhension et la modélisation de ce comportement sont primordiales en vue de la substitution des fibres végétales aux fibres de verre dans les composites à matrice organique. Les fibres végétales sont particulièrement marquées par une forte dispersion de leurs propriétés mécaniques, dispersion qu'il est impératif d'intégrer dans les outils de dimensionnement pour aboutir à une utilisation pérenne de cette ressource issue de la biomasse. Une forte diminution de la résistance et de la rigidité des fibres en fonction de leur diamètre a en particulier été mise en évidence dans la littérature par différents auteurs [1-9, 11-14] (Fig. 1). La résistance des fibres a été largement étudiée pour le lin [1-4], le chanvre [5], le bambou [6], le jute [7] et le sisal [8-9]. Il semble que la résistance des fibres végétales réponde à la théorie de Griffith établie dans le domaine de la mécanique de la rupture pour les matériaux fragiles [10].

La rupture des fibres végétales seraient donc pilotée par la présence de défauts. Ainsi, plus le diamètre d'une fibre est élevé, plus la probabilité de présence d'un défaut est importante et donc plus la probabilité d'obtenir une rupture prématurée est grande.

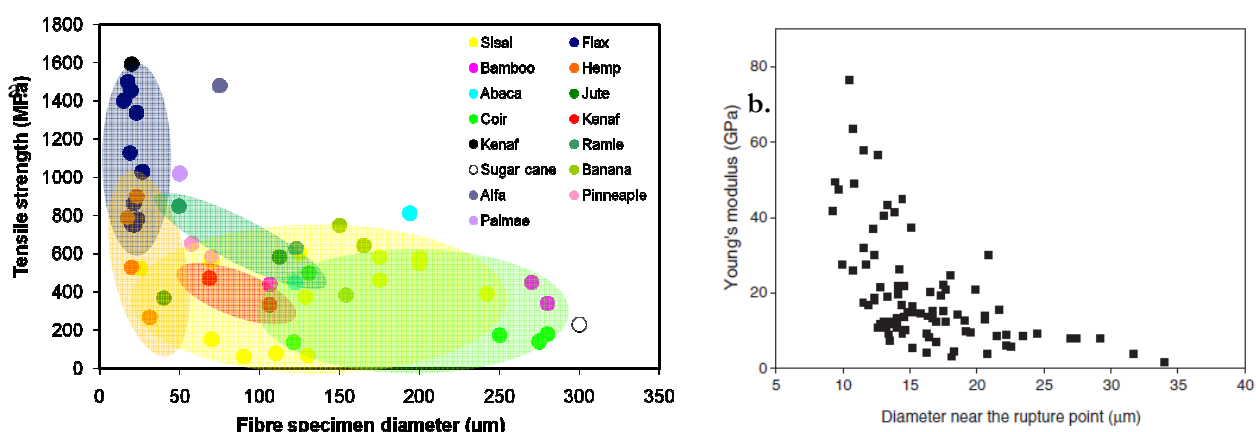


FIG. 1 – Evolution des propriétés mécaniques en fonction du diamètre de la fibre (extraits de la littérature). **a.** Résistance mécanique des fibres végétales en fonction de leur diamètre – données compilées à partir d’une centaine de publications – **Source Fibres Recherche Développement®, Troyes, France, 2010.** **b.** Module d’Young apparent de fibres de chanvre (*Fedora*) en fonction du diamètre – **Source Duval et al. [14]**

Si la variation de la résistance des fibres végétales en fonction de leur diamètre semble être bien comprise, l’évolution de la rigidité des fibres reste quant à elle inexpliquée. Effectivement, une sérieuse diminution du module d’Young apparent est relevée en fonction du diamètre pour plusieurs fibres végétales telles que le lin [11-12], l’ortie [13] et le chanvre [14] (Fig. 1b). La théorie de Griffith ne peut expliquer cette évolution, les défauts affectent la résistance des matériaux mais en aucun cas le module d’Young. Plusieurs hypothèses sont avancées pour clarifier ce phénomène [3, 11-14]. Elles sont liées principalement à la détermination de la section utile de la fibre.

L’objectif de ce travail est d’apporter un éclairage sur les origines possibles de la dépendance du module d’Young au diamètre des fibres de chanvre. Pour ce faire, un modèle analytique 3D, basé sur la théorie de la mécanique des milieux continus, a été développé. Celui-ci permet de relier les paramètres géométriques et dimensionnels, la composition biochimique et l’organisation microstructural au comportement macroscopique de la fibre. Il est basé sur une loi des mélanges et est adapté à des structures tubulaires à parois épaisses. En effet, la plupart des modèles développés dans la littérature concernent le matériau bois ; la cellule y est alors modélisée par une éprouvette plane, multicouche ne prenant pas en compte la géométrie tubulaire. La validité de ce modèle pour les fibres végétales, qui présentent des parois épaisses, peut être soulevée. Seuls, quelques travaux [15-17] présentent des modèles 3D capables d’intégrer cette géométrie. Ces modèles plus sophistiqués requièrent des méthodes EF pour la résolution des calculs. Dans ce contexte, nous proposons une approche 3D analytique.

2 Modélisation de la fibre de chanvre

Les fibres de chanvre sont des cellules végétales constituées d’une paroi cellulaire et d’un vide cellulaire. Elles sont dotées d’une section irrégulière et non-uniforme, variant d’une forme polygonale à cylindrique. Le diamètre varie dans une plage 10-50 microns pour une longueur de l’ordre de 8 à 14 mm [18]. Le diamètre du lumen varie de 4 à 10 microns pour une surface d’environ 70 à 130 μm² et représente généralement environ 13 à 16% de la surface totale de la fibre [18]. La paroi est divisée en couches et sous-couches concentriques d’épaisseur différentes (Fig. 2). La couche la plus externe est la paroi primaire, elle est généralement fine (0,2 microns [19]) et peut présenter à sa surface des résidus pectiques ; la pectine étant une substance organique à l’origine de la cohésion des fibres dans la plante. La paroi secondaire est subdivisée en 3 sous-couches notées S₁, S₂ et S₃. La sous-couche S₂ est la paroi dominante en termes d’épaisseur, elle représente environ 90% de la paroi cellulaire. Chaque sous-couche est constituée principalement d’un mélange de 3 polymères : cellulose, hémicelluloses et lignine. Les mailles élémentaires de la cellulose forment des microfibrilles d’environ 2-3 nm de largeur pour 30 nm de long [20]. Ces zones de cellulose cristalline alternent avec des zones amorphes. Le taux de cristallinité est d’environ 55% [21-23]. Les interstices entre les microfibrilles de cellulose sont remplis par un mélange amorphe d’hémicelluloses et de lignine. D’après Fahlén et Salmén [24], ces agglomérats de microfibrilles de cellulose et de matrice amorphe forment des lamelles concentriques d’environ 20 à 30 nm d’épaisseur. Les microfibrilles de cellulose sont

enroulées en hélice par rapport à l'axe de la fibre. Les sous-couches se différencient par l'Angle de ces MicroFibrilles (AMF). Le tableau I récapitule les valeurs d'AMF dans les différentes couches ainsi que l'ensemble des données relatives à la géométrie et aux constituants de la paroi cellulaire.

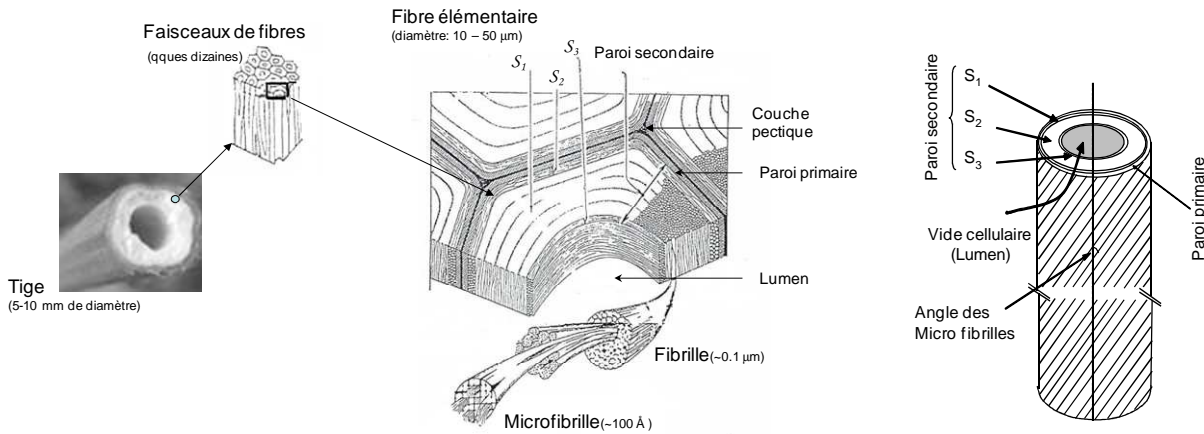


FIG. 2 – Structure et organisation de la fibre de chanvre

Pour modéliser les fibres de chanvre, qui présentent une organisation relativement complexe, des hypothèses simplificatrices sont adoptées. Le modèle proposé est basé sur des considérations macroscopiques et utilise la théorie de la mécanique des milieux continus. La fibre élémentaire de chanvre est considérée comme un multicouche tubulaire formé de 5 couches concentriques dont les propriétés géométriques sont précisées dans le tableau 1. Chaque couche est modélisée par des fibres de cellulose, dont le comportement est supposé isotrope transverse, noyées dans une matrice modélisée par le mélange de lignines au comportement isotrope, d'hémicelluloses au comportement isotrope transverse, et d'autres composants plus anecdotiques (extractibles...) dont le comportement mécanique est négligé. Chaque couche est formée du même type de matériau, seul l'AMF varie d'une couche à l'autre.

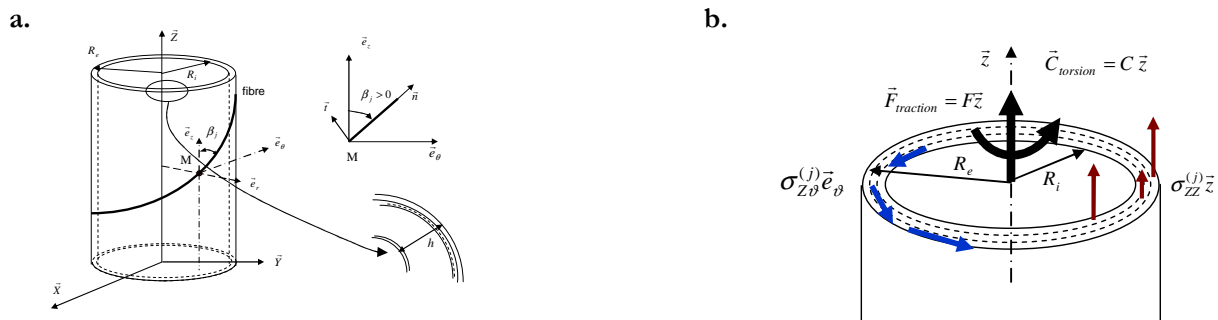


FIG. 3 – Représentation du système de coordonnées (a.) et de la distribution sous chargement multiaxial (b.)

	Cellulose	Hémicellulose	Lignine
E_L^{comp} (MPa)	134 000	7000	2000
E_T^{comp} (MPa)	27 200	3500	-
G_{LT}^{comp} (MPa)	4400	1750	760
ν_{LT}^{comp}	0,1	0,2	0,3
Masse (%)	60	15	3

	Couches			
	1 (I)	2 (II S ₁)	3 (II S ₂)	4 (II S ₃)
Epaisseur (µm)	0,1	0,15	1,5	0,03
AMF (°)	35	-70,+70	10	70

TAB. 1. Paramètres du modèle (données issues de la bibliographie)

La loi de comportement élastique isotrope transverse s'écrit dans le référentiel du pli :

$$\{\underline{\sigma}\} = [\underline{S}]^{-1} \{\underline{\varepsilon}\} \quad (1)$$

$$\underline{S} = \begin{bmatrix} \frac{1}{E_L} & -\frac{\nu_{TL}}{E_T} & -\frac{\nu_{TL}}{E_T} & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{\nu_{LT}}{E_L} & \frac{1}{E_T} & -\frac{\nu_{TT}}{E_T} & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{\nu_{LT}}{E_L} & -\frac{\nu_{TT}}{E_T} & \frac{1}{E_T} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{LT}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{LT}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{TT}} \end{bmatrix} \quad \frac{\nu_{TL}}{E_T} = \frac{\nu_{LT}}{E_L} \quad \text{où} \quad \{\underline{\sigma}\} = \begin{pmatrix} \sigma_{nn} \\ \sigma_{tt} \\ \sigma_{rr} \\ \sigma_{nt} \\ \sigma_{nr} \\ \sigma_{rt} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \{\underline{\varepsilon}\} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{nn} \\ \varepsilon_{tt} \\ \varepsilon_{rr} \\ \gamma_{nt} \\ \gamma_{nr} \\ \gamma_{rt} \end{pmatrix} \quad (2)$$

où les coefficients E_L , E_T , G_{LT} , G_{TT} , ν_{LT} sont déterminés à partir d'une loi des mélanges et des coefficients de chaque composant du pli.

Les hypothèses utilisées pour pouvoir intégrer analytiquement les équations de la mécanique reposent d'une part sur la géométrie et la structure de la fibre qui implique une indépendance de la solution par rapport à la variable circonférentielle ϑ , et d'autre part sur le fait que les déformations de cisaillement γ_{rz} et $\gamma_{r\theta}$ sont négligeables. L'intégration des équations d'équilibre est réalisée avec l'hypothèse des petites perturbations, en s'assurant de la compatibilité des déformations. On obtient pour chaque couche la forme des déformations

$$\text{suivantes :} \quad \varepsilon_{\vartheta\vartheta} = \frac{q(r)}{r}, \quad \varepsilon_{zz} = P^*, \quad \varepsilon_{rr} = q'(r) \quad \text{et} \quad \gamma_{z\vartheta} = -rA^* \quad (3)$$

$$\text{avec} \quad q(r) = C^* r^{\alpha_1} + D^* r^{\alpha_2} + \frac{(2K34 - K14)}{(4K33 - K11)} A^* r^2 - P^* r \frac{(K32 - K12)}{(K33 - K11)} \quad (4)$$

et les déplacements

$$u_{\vartheta} = -r(A^* z + b^*), \quad u_r = \left(C^* r^{\alpha_1} + D^* r^{\alpha_2} + \frac{(2K34 - K14)}{(4K33 - K11)} A^* r^2 - P^* r \frac{(K32 - K12)}{(K33 - K11)} \right), \quad u_z = P^* z + g^* \quad (5)$$

Les coefficients K_{ij} correspondent aux composantes de la matrice raideur de la couche exprimée dans le repère lié au tube donc fonction de l'orientation des fibres dans la couche. Les caractères étoilés représentent les constantes à déterminer par les conditions aux limites et de continuité entre chaque couche qui donnent un système important à résoudre (6 inconnues par couches).

3 Résultats et discussions

3.1 Section utile de la fibre

La présence du lumen est souvent occultée lors de la détermination de la surface utile de la fibre du fait des difficultés expérimentales rencontrées pour le mesurer. Effectivement la plupart des méthodes de mesure sont destructives ou invasives (coupe et observation microscopique de la section) et donc incompatibles avec les essais de caractérisation mécanique. Les techniques non-invasives (tomographie) sont extrêmement gourmandes en temps et ne sont donc pas adaptées aux campagnes d'essais à fort nombre d'échantillons, comme c'est le cas pour les fibres végétales. Pour l'ensemble de ces raisons, la fibre végétale est considérée à section pleine par la plupart des auteurs. Un simple calcul d'erreur (Fig. 4a.) montre que le module d'Young apparent de la fibre est ainsi largement sous-estimé lorsque la présence du lumen n'est pas prise en compte dans la détermination de la section utile de la fibre. Ce calcul est effectué pour une section parfaitement circulaire.

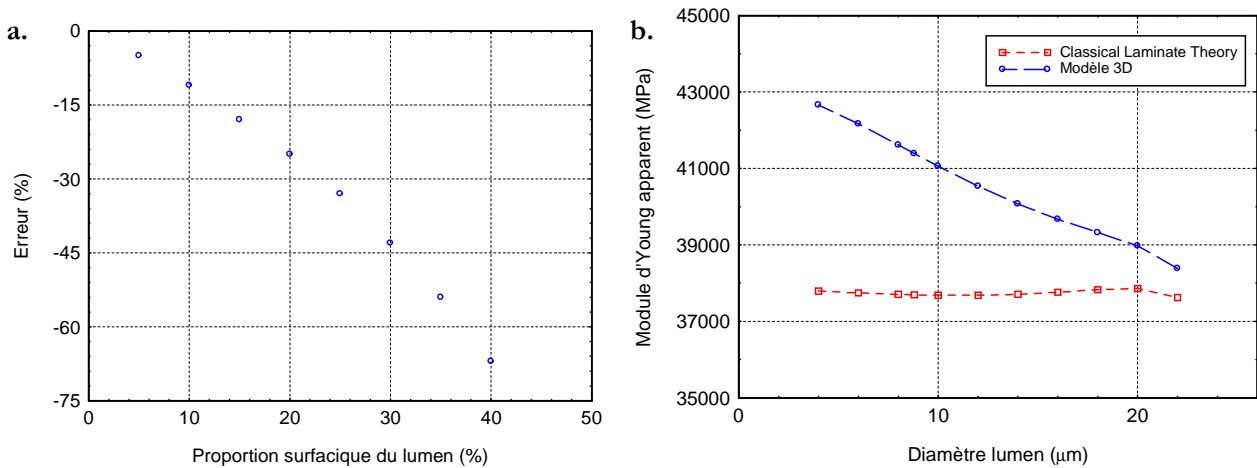


FIG. 4 – **a.** Erreur commise sur la détermination du module apparent de la fibre lorsque la présence du lumen est ignorée en fonction de la proportion surfacique du lumen. **b.** Evolution du module d'Young apparent de la paroi cellulaire en fonction du diamètre du vide cellulaire (diamètre fibre 28 μm)

Pour une proportion surfacique du lumen vraisemblable de 10 à 20% de la section totale de la fibre [18], la sous-estimation du module d'Young est d'environ 10 à 25%. Néanmoins, si la proportion du lumen est considérée constante quelle que soit le diamètre de la fibre, l'erreur commise sur la détermination du module d'Young est également constante. Seule une forte augmentation de la proportion surfacique du lumen avec le diamètre de la fibre pourrait expliquer les tendances enregistrées expérimentalement (Fig. 1b), hypothèse peu probable au vu des observations morphologiques réalisées sur les fibres de chanvre [18].

3.2 Morphologie et géométrie de la fibre – évidence d'un effet structural

Un effet de structure attribué à la géométrie de type cylindrique et à l'enroulement en hélice des microfibrilles de cellulose est mis en évidence à l'aide des résultats numériques collectés par le modèle 3D développé. La figure 4b. dévoile une décroissance du module d'Young apparent d'une fibre de diamètre constant (28 μm) en fonction de la dimension du vide cellulaire. En considérant les plages de diamètre de fibre de 10 à 50 microns et de proportion surfacique du lumen (10 à 20%) inspirées des données bibliographiques, cette chute du module élastique peut atteindre 11%. La fig. 4b. montre également clairement que cette tendance ne peut pas être mise en évidence et quantifiée par les modèles basés sur la théorie des stratifiés.

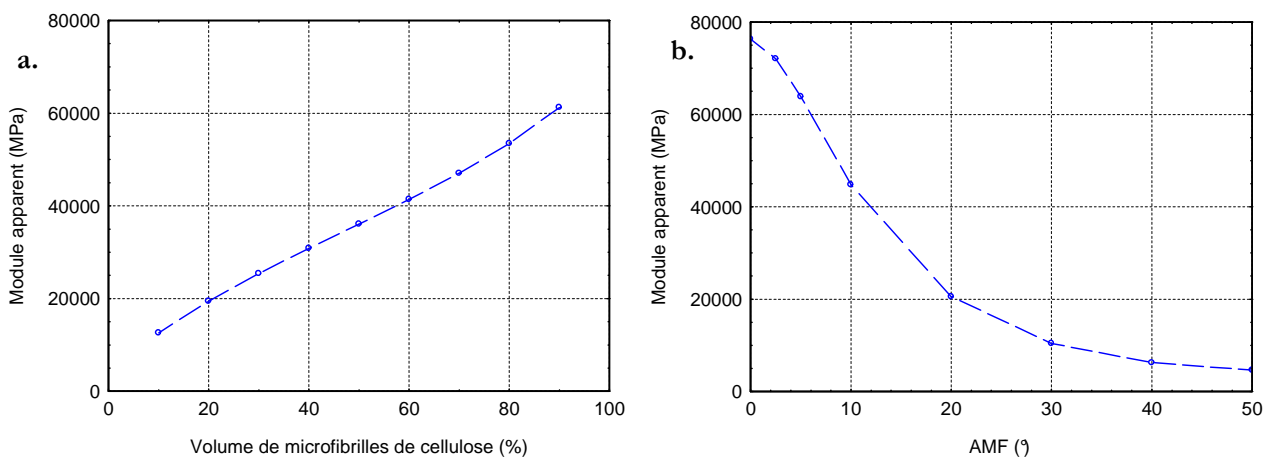


FIG. 5 – Evolution du module d'Young apparent en fonction du volume de microfibrilles (a.) et de l'AMF(b.)

3.3 Constitution et microstructure de la fibre

Cet effet structural ne peut expliquer qu'en partie la variation du module d'Young des fibres de chanvre en fonction de leur diamètre observé expérimentalement. Les travaux de Duval *et al.* [14] révèlent une variation du module d'Young apparent des fibres végétales de chanvre entre 2 et 78 GPa entre 10 et 35 microns de diamètre. Seuls des paramètres liés à la constitution (fraction volumique de microfibrilles de cellulose) et la microstructure (index de cristallinité, angle des microfibrilles de cellulose) pourraient expliquer une telle variation. Le modèle développé permet de quantifier l'influence de ces paramètres sur le comportement macroscopique des fibres (Fig. 5) et tend à appuyer l'hypothèse de variations microstructurales importantes en fonction du diamètre des fibres.

4 Conclusions

Ce papier présente un outil numérique capable de relier les paramètres microstructuraux et géométriques des fibres végétales à leur comportement macroscopique. Cet outil a pour avantage majeur de prendre en compte la géométrie cylindrique et la forte épaisseur des parois cellulaires, il se démarque ainsi des outils traditionnels basés sur la CLT (Classical Laminate Theory). Les résultats numériques collectés révèlent l'existence d'un effet structural pouvant induire des modifications sensibles du module d'Young de la paroi cellulaire en fonction des diamètres de la fibre et du vide cellulaire. Les hypothèses formulées pour modéliser la structure complexe des fibres végétales demeurent néanmoins pour certaines grossières. Le recours à des modèles plus élaborés et plus proches de la physique du matériau est nécessaire pour une prédiction plus fine et plus réaliste du comportement rhéologique des fibres.

References

- [1] Andersons J., Spärnins E., Joffe R., Wallström. Strength distribution of elementary flax fibres. *Composites Science and Technology* 65, 693-702, 2005.
- [2] Zafeiropoulos NE., Baillie CA. A study of the effect of surface treatments on the tensile strength of flax fibres: Part II. Application of Weibull statistics. *Compos: Part A* 38, 629-638, 2007.
- [3] Charlet K., 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 de doctorat, 2008.
- [4] Hu W., Ton-That MT., Perrin-Sarazin F., Denault J., An improved method for single fiber tensile test of natural fibers. *Polym Eng Sci* 50(4), 819-825, 2010.
- [5] Fan M., Characterization and performance of elementary hemp fibres: factors influencing tensile strength. *BioResources* 5(4), 2307-2322, 210.
- [6] da Costa LL., Loiola RL., Monteiro SN., Diameter dependence of tensile strength by Weibull analysis: Part I bamboo fiber. *Revista Matéria* 15(2), 110-116, 2010.
- [7] Bevitori AB., da Silva ILA., Lopes FPD., Monteiro SN., Diameter dependence of tensile strength by Weibull analysis: Part II jute fiber. *Revista Matéria* 15(2), 125-131, 2010.
- [8] Inacio WP., Lopes FPD., Monteiro SN., Diameter dependence of tensile strength by Weibull analysis: Part III sisal fiber. *Revista Matéria* 15(2), 124-130, 2010.
- [9] de Andrade Silva F., Chawla N., de Toledo Filho RD., Tensile behavior of high performance natural (sisal) fibers. *Composites Science and Technology* 68, 3438-3443, 2008.
- [10] Griffith AA., The phenomena of rupture and flow in solids. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A* 221, 163-198, 1921.
- [11] Charlet K., Baley C., Morvan C., Jernot JP., Gomina M., Bréard J. Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites. *Comp Part A* 38, 1912-1921, 2007.
- [12] Bourmaud A., Morvan C., Baley C. Importance of fiber preparation to optimize the surface and mechanical properties of unitary flax fiber. *Industrial Crops and Industry* 32, 662-667, 2010.
- [13] Bodros E., Baley C. Study of the tensile properties of stinging nettle fibres (*Urtica dioica*). *Mater Lett* 62, 2143-2145, 2008.
- [14] Duval A., Bourmaud A., Augier L., Baley C., Influence of the sampling area of the stem on the mechanical properties of hemp fibers. *Materials Letters* 65, 797-800, 2011.
- [15] Baley C. Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Compos: Part A* 33, 939-948, 2002.
- [16] Gassan J., Chate A., Bledzki AK. Calculation of elastic properties of natural fibers. *J Mater Sci* 36, 3715-3720, 2001.
- [17] Nilsson T., Gustafsson PJ. Influence of dislocations and plasticity on the tensile behaviour of flax and hemp fibres. *Compos: Part A* 38, 1722-1728, 2007.
- [18] Schäfer T., Hornermeier B. Effect of sowing date and plant density on the cell morphology of hemp (*Cannabis sativa L.*). *Industrial Crops and Products* 23, 88-98, 2006.
- [19] Bergander A., Salmén L. Transverse Fibre Wall Properties. *Holzforschung* 54, 654-660, 2000.
- [20] Andersson S., Serimaa R., Paakkari T., Saranpää P., Personen E. Crystallinity of wood and the size of cellulose crystallites in Norway spruce (*Picea abies*). *J Wood Sci* 49, 531-437, 2003.
- [21] Medeghini Bonatti P., Ferrari C., Foche B., Grippo C., Torri G., Cosentino C. Histochemical and supramolecular studies in determining quality of hemp fibre for textile applications. *Euphytica* 140, 55-64, 2004.
- [22] Mohanty AK., Misra M., Drzal LT. *Natural Fibers, biopolymer and biocomposites*. Taylor & Francis, 2005.
- [23] Dai D., Fan M. Investigation of the dislocation of natural fibres by Fourier-transform infrared spectroscopy. *Vibrational Spectroscopy* 55, 300-306, 2011.
- [24] Fahlén J., Salmén L. Reflections on the ultrastructure of softwood fibres. *Cell Chem Technol* 40, 181-185, 2006.