

Développement de composites biocompostables renforcés par des non-tissés de fibres de lin : étude de mise en œuvre et de performances mécaniques

Development of biocompostable composites reinforced with non-woven flax fibres: a study of manufacturing and mechanical properties

Delphin Pantaloni¹, Darshil U. Shah², Christophe Baley¹, Alain Bourmaud¹

1 : Univ. Bretagne Sud, UMR CNRS 6027, IRDL, F-56100 Lorient, France
e-mail : delphin.pantaloni@univ-ubs.fr

2 : Centre for Natural Material Innovation, Dept. of Architecture,
University of Cambridge, Cambridge, UK

Résumé

La place des fibres de lin dans le domaine des composites n'est plus à présenter. Ces dernières sont déjà couramment utilisées dans le domaine de l'automobile et des pièces structurelles se développent. Cependant, dans la réalisation des composites actuels, la capacité de biodégradation des fibres de lin est souvent délaissée en raison l'utilisation de résine non biodégradable. Cette étude s'intéresse aux paramètres de la mise en œuvre ainsi qu'aux propriétés mécaniques de composites biocompostables réalisés à partir d'un non-tissé de lin et de trois polymères thermoplastiques biocompostables: Le poly-(hydroxy-alcanoate) (PHA), le poly-(lactide) (PLA) et le Poly-(butylène-succinate) (PBS). Des études rhéologiques et calorimétriques ont permis de déterminer une température de mise en œuvre optimale pour chacun des composites afin de travailler à viscosité constante avec le procédé de film-stacking. Les résultats mécaniques montrent que le non-tissé PLA-lin possède la plus forte rigidité, mais que le PBS/lin permet d'atteindre un allongement important tout en conservant une rigidité, une contrainte et un allongement à rupture performants par rapport au poly-(propylène) (PP) de référence. Ces résultats préliminaires permettent d'envisager le développement de nouveaux composites non-tissés thermoplastiques, recyclables, biocompostables et aux performances mécaniques adaptables au cahier des charges en fonction de la matrice sélectionnée.

Abstract

Flax fibres progressively find their place in the composite sector. There are already largely used in the automotive sector and some semi-structural part starts to be built. Nevertheless, the biodegradation aspect of flax fibres is often neglected because of the non-biodegradable petrochemical resin used to make those composites. This study deals with the manufacturing parameters as well as the mechanical properties of biocompostable composites made of a flax non-woven and three biocompostable thermoplastic polymers: the poly-(hydroxyalkanoate) (PHA), the poly-(lactic acid) (PLA) and the poly-(butylene succinate) (PBS). Rheology and calorimetry studies were used to determine an optimal manufacturing temperature for each polymers, aiming to work at a constant viscosity during the film-stacking process. Mechanical results highlight that non-woven flax/PLA shows the highest stiffness however, the flax/PBS has an important strain with an acceptable strength and stiffness regarding the poly-propylene as reference. These preliminary results show the possibility to develop new non-woven composites which are thermoplastic, recyclable, biocompostable, with configurable mechanical properties depending on the selected matrix.

Mots Clés : Lin, composite, non-tissé, bio-polymère, propriétés mécaniques

Keywords : Flax, composite, non-woven, bio-polymer, mechanical properties

Introduction

L'intérêt croissant pour l'écologie et le développement d'alternatives moins polluantes ont permis aux fibres de lin de trouver leur place dans le monde du composite. Elles sont déjà couramment utilisées dans le domaine de l'automobile pour des pièces semi-structurelles telles que des tableaux de bord ou encore des panneaux de coffre [1]. Cet intérêt pour les fibres de lin provient également de leur propriétés spécifiques importantes qui leur permettent de concurrencer les fibres de verre, largement répandues dans le monde du composite [2], [3]. Elles ont également été utilisées comme preuve de concept pour des applications structurelles telles que la construction d'un navire [4] ou la carrosserie d'une voiture [5]. Néanmoins, l'avantage de la capacité de biodégradation des fibres de lin est régulièrement négligé par l'utilisation courante de résine non biodégradable telles que l'époxy ou le PP. L'utilisation de résine biocompostable comme le PLA, le PHA ou le PBS pour la réalisation de composite à base de fibre de lin engendrerait un matériau totalement biocompostable qui permettrait de limiter grandement la problématique de fin de vie de nombreuses pièces composites [6].

De nombreuses études ont déjà été menées sur la biodégradation des biopolymères tels que le PHA, PLA et PBS [7]–[11]. Ils présentent des réactions différentes face à la dégradation, le PHA et le PBS vont se détériorer en surface sous l'action d'enzymes et de microorganismes alors que le PLA va se dégrader d'une manière globale et nécessite une hydrolyse préliminaire avant la digestion de ce dernier par les microorganismes [10]. La température joue un rôle primordial ; en effet le PLA ne présente une biodégradation qu'à des températures excédant 60°C, limitant son compostage à des moyens industriels et non domestiques, alors que le PBS et le PHA se biodégradent à des températures proches de l'ambiante [12], [13].

Malgré leur intérêt écologique croissant, peu de travaux concernent la biodégradation de biocomposites à base de préforme en fibres de lin. Bayerl et al. [14] se sont intéressés à l'influence de l'architecture des renforts de lin (non-tissé de fibres courtes/non tissé de fibres longues/UD) sur la biodégradation d'un composite PLA/lin. Ils ont observé que le lin facilite la dégradation du PLA en servant de chemin préférentiel pour l'eau, augmentant ainsi la surface du PLA soumis à l'hydrolyse. Barkoula et al. [15] a étudié la dégradation en enfouissement dans le sol d'un biocomposite PHBV/lin. Une perte rapide des propriétés mécaniques dans les deux premières semaines est observée. Les auteurs ont émis l'hypothèse que cette décroissance n'est pas due à la dégradation, mais à l'absorption d'eau par le composite. Ainsi, à la connaissance des auteurs, aucune étude n'a été menée traitant de la biodégradation de composite PHA/lin, PLA/lin et PBS/lin soumis exactement au même environnement, en s'intéressant à la perte de masse et la perte de propriété mécanique.

Cette étude vise à mieux comprendre le comportement thermique des trois bio-polymères retenus : PLA, PHA et PBS, ceci dans le but d'obtenir les informations nécessaires à l'élaboration de bio-composites à base de fibres de lin par film stacking. Premièrement, le comportement thermique des trois bio-polymères est étudié grâce à une étude de calorimétrie différentielle à balayage et à une étude de rhéologie afin de définir les conditions optimales de transformation. Ensuite, une observation de la préforme en lin est réalisée afin d'obtenir ses caractéristiques structurelles. La dernière section s'attachera à comparer les propriétés mécaniques en traction des différents bio-composites réalisés.

2. Matériaux et Méthodes

2.1 Matériaux

Un voile de cardé léger ($100 \pm 15 \text{ g/m}^2$) de lin, fourni par Ecotechnilin SAS (Yvetot, France), est utilisé pour la réalisation des bio-composites. Trois thermoplastiques biodégradables couramment étudiés dans la littérature [7], [8], [10], [16], [17] sont choisis pour cette étude : le PHA (PHI002 fourni par NaturPlast), le PLA (PLA3001D fourni par NatureWorks) et PBS (BioPBSTM FZ71PM fourni par pttMCC).

2.2 Caractérisation thermique et rhéologique des polymères

Afin de caractériser les changements d'état des polymères, une étude par calorimétrie différentielle à balayage est réalisée à l'aide d'un appareil *DSC3 Mettler Toledo*. Les échantillons sont soumis à une rampe de 25°C à 200°C à une vitesse de $10^\circ\text{C}/\text{min}$. La température de fusion est analysée, sa connaissance est primordiale pour la mise en œuvre des polymères. Deux essais sont réalisés afin d'être sûrs de la répétabilité des résultats, la moyenne arithmétique est alors calculée.

L'analyse des matrices est complétée par une étude rhéologique plan/plan en mode stationnaire à l'aide d'un rhéomètre *Anton Paar Physica MCR 301*. Les courbes d'écoulement des polymères sont obtenues en appliquant une vitesse de cisaillement comprise entre $0,01\text{s}^{-1}$ et 100 s^{-1} à différentes températures : de $130/140/150/160/170^\circ\text{C}$ pour le PBS, $180/190/200^\circ\text{C}$ pour le PLA et de $175/180/190^\circ\text{C}$ pour le PHA. L'entrefer sélectionné est de $300 \mu\text{m}$. Pour chaque température, trois essais sont réalisés. Les résultats obtenus permettent de sélectionner une température de mise en œuvre propre à chaque polymère afin de travailler à viscosité constante.

2.3 Observation du renfort sec

Le voile de cardé sec est métallisé par pulvérisation cathodique avec un métalliseur *Edwards* avant d'être observé à l'aide d'un *MEB Jeol JSM 6460LV* à 20KV .

2.4 Mises en œuvre des films

Les polymères sont extrudés à l'aide d'une extrudeuse mono-vis Labstation Plasticorder Brabender puis calandrés avec une calandre Univex Brabender équipée d'une filière plate (largeur 20 cm) afin d'obtenir du film. Avant la réalisation des films, les polymères sont étuvés sous un vide secondaire de 600 mbar à une température de 60°C pendant 12h . Les paramètres de mise en œuvre des films dépendent du polymère et sont résumés dans le tableau 1.

Polymère	Paramètres d'extrusion					Paramètres de calandrage	
	T filière	T zone 3	T zone 2	T zone 1	Vitesse de vis (tr/mn)	Température des rouleaux	Vitesse des rouleaux (tr/mn)
PHA	170°C	190°C	190°C	190°C	40	60°C	1
PBS	130°C	140°C	140°C	160°C	40	45°C	1
PLA	190°C	190°C	190°C	190°C	50	50°C	5

Tab. 1 : Paramètres d'extrusion et de calandrage de film.

2.5 Mises en œuvre des composites

Des plaques de composites de $195 \times 195 \times 2 \text{ mm}$ sont réalisées par thermocompression à l'aide d'une presse hydraulique *LabTech Scientific 50T* suivant la méthode du film-stacking (compression en température d'un empilement de films de polymères et de nappes de renfort). Lors de l'agencement de l'empilement, un intérêt particulier est porté sur la répartition du polymère. Les fractions

volumiques des composites lin/PHA, lin/PBS et lin/PLA obtenus sont respectivement de 24%, 22% et 30%. Les plis de lin sont tous disposés dans le même sens afin de conserver le caractère anisotrope du voile de lin. Le composite est obtenu en soumettant l'empilement au cycle de température/pression suivant : 3 min de contact, 2 min à 20 bars, 3 min à 50 bars. Les plaques lin/PHA, lin/PBS et lin/PLA sont respectivement réalisées à 175°C, 170°C et 200°C. Des plaques de polymères vierges sont réalisées à partir du même procédé afin de servir de témoin.

2.6 Essais mécaniques

Les propriétés mécaniques en traction sont testées pour chaque formulation. Une machine *Instron 5566A* équipée d'une cellule de 10kN soumet l'échantillon à une vitesse de déformation de 1 mm/min. La déformation est mesurée par un extensomètre *Instron* avec une distance initiale de 25mm. Les échantillons ont une géométrie en forme d'haltère suivant la norme ISO 527. Le module est calculé entre 0,025% et 0,1% d'allongement. La contrainte et l'allongement à la rupture sont également mesurés.

3. Résultats et discussion

3.1 Caractérisation des polymères

La Figure 1 présente les thermo-grammes obtenus en DSC des trois polymères étudiés obtenus lors de la première montée en température. Ils présentent un pic de fusion relativement étroit avec une légère asymétrie, ce qui signifie que la fusion du polymère commence à une température inférieure à la température de fusion relevée. Ainsi, il est possible de mettre en œuvre les polymères à une température légèrement inférieure à la température de fusion obtenue par DSC, cela est utile pour le PHA qui s'avère très fluide. Les températures de fusion du PBS, PLA et PHA relevées en DSC sont respectivement 119°C, 172°C et 177°C.

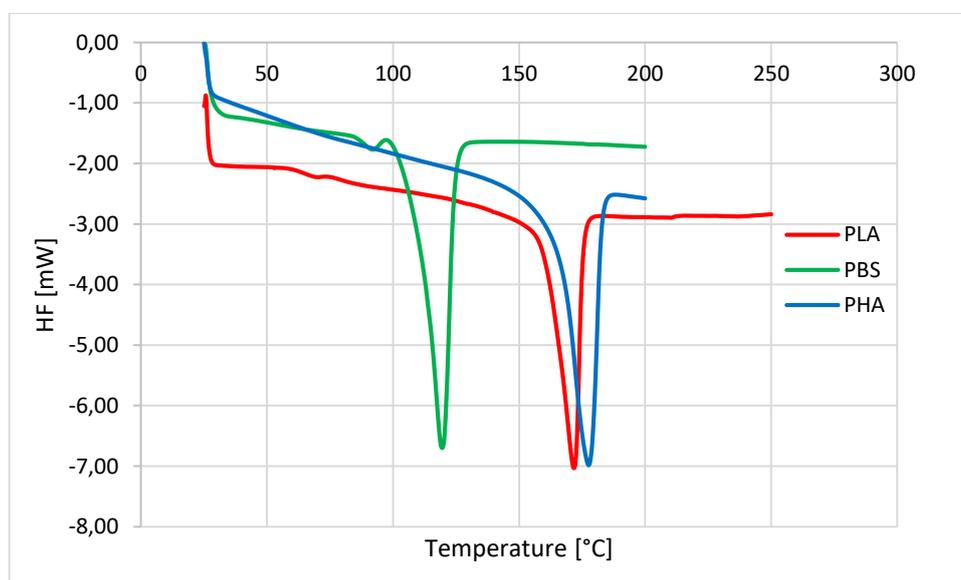


Fig. 1: Détermination du point de fusion du PHA par DSC (10°C/min)

Ces résultats de DSC permettent d'estimer des plages de transformation pour les trois polymères (Figure 2) qui sont compatibles avec la sensibilité thermique des parois végétales. Leur endommagement dépend de la température, mais aussi du temps d'exposition en température qui, dans notre cas, est de 8 mn environ. Lors de travaux précédents, nous avons pu mettre en évidence

que les performances mécaniques des fibres de lin commençaient à être dégradées à partir de 210°C pour un temps d'exposition de 8 mn [18]. Après cette étape, les films de polymères ont été caractérisés en rhéologie afin de connaître la température permettant d'obtenir une viscosité de mise en œuvre adaptée. La valeur visée de viscosité est de 500 Pa.s pour une vitesse de cisaillement de $4s^{-1}$, typique du procédé de film-stacking [19]-[20] et qui permet une bonne imprégnation.

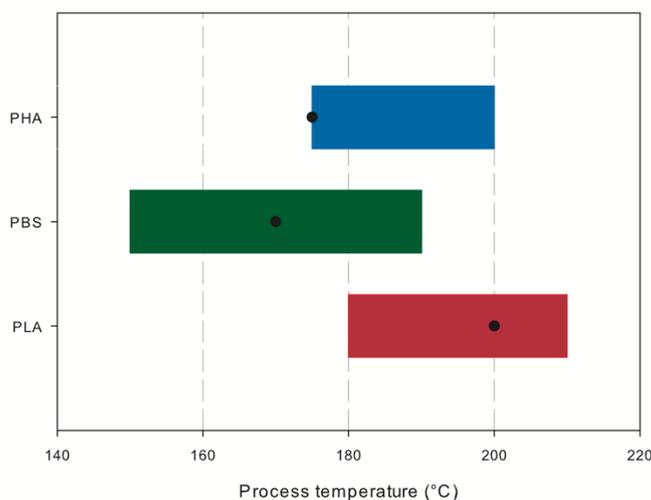


Fig. 2: Plages de température de moulage admissibles pour le PLA, PBS et PHA. Les points noirs correspondent à la température donnant une viscosité proche de 500 Pa.s pour un cisaillement de $4s^{-1}$

La Figure 3 présente les courbes d'écoulement obtenues, pour les trois polymères, à différentes températures de travail. Comme dit précédemment, le PHA est peu visqueux. À 180°C, sa viscosité atteint déjà les 300 Pa.s alors qu'il est soumis à une température excédant sa température de fusion de 3°C seulement. À l'inverse, le PBS reste relativement visqueux même à 50°C au-dessus de son point de fusion. De plus, la variation de viscosité diminue avec l'augmentation de la température, elle passe de 614 ± 58 à 160 °C à 566 ± 18 à 170°C. Afin d'obtenir une bonne imprégnation du voile de carte, il a été observé qu'une viscosité de 500 Pa.s était suffisante. Cela est supérieur aux données de la littérature [20], [21], mais peut s'expliquer par le faible grammage et le caractère peu compact du mat utilisé. Celui-ci est un voile de carte non consolidé et réalisé sans aiguilletage ce qui lui confère une très bonne aptitude à l'imprégnation (forte perméabilité transverse non caractérisée ici), en contrepartie sa manipulation peut s'avérer délicate.

Ainsi, la mise en œuvre des composites peut être réalisée à 170°C, 175°C et 200°C respectivement pour le PBS, PHA et PLA (Fig.2). Cela correspond respectivement, pour une vitesse de cisaillement de $4s^{-1}$, à une viscosité de 566 ± 18 Pa.s, 443 ± 92 Pa.s et 449 ± 13 Pa.s ce qui est cohérent avec les 500 Pa.s recherchés.

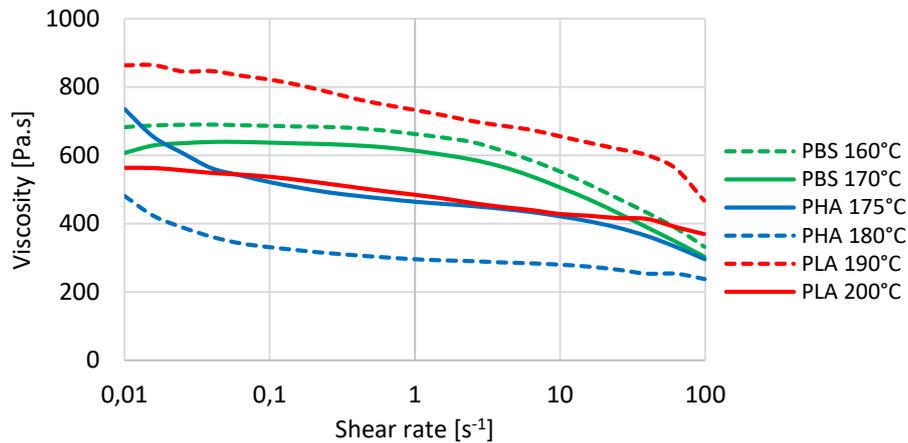


Fig. 3 : Viscosité à différentes températures des biopolymères utilisés.

3.2 Observation microscopique du voile de carde sec

La Figure 4 présente une observation réalisée au microscope électronique à balayage (MEB) du voile de carde. On observe que celui-ci présente une direction privilégiée des fibres. Ceci est attendu, car l'équipement utilisé a tendance à aligner les fibres dans la direction machine. Il n'est suivi d'aucune opération complémentaire d'aiguilletage ou de nappage et n'est constitué que d'une seule couche de voile. Cette orientation anisotrope des fibres est respectée dans les composites en orientant les différents plis de lin de la même manière.

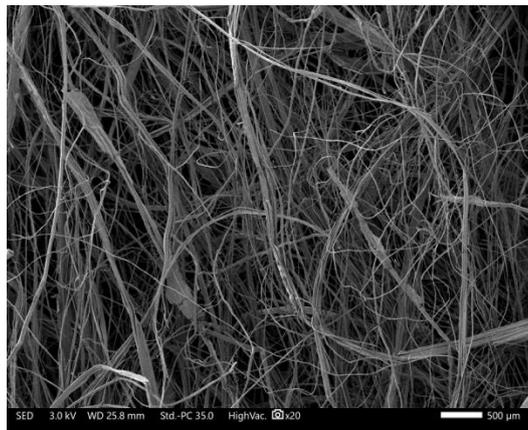


Fig. 4 Observation au MEB du voile de carde sec

3.3 Propriétés mécaniques des biocomposites

Le tableau 2 compare les résultats mécaniques obtenus en traction sur nos matériaux avec des valeurs de la littérature. Pour chacun des lots, une courbe contrainte-déformation représentative de la moyenne de chaque échantillon est présentée sur la figure 5.

Une variation importante des fractions volumiques est observée d'un lot à l'autre, de 22% à 30% sur seulement trois plaques. Cela souligne le fait qu'il est important d'améliorer le procédé de réalisation des composites afin de diminuer cet écart en vue de la future étude des conséquences d'un biocompostage. Les fractions volumiques des composites sont respectivement de 22% pour le PBS/lin, 24% pour le PHA/lin et 30% pour le PLA/lin.

D'après les données du fournisseur, on remarque que le module du PBS (0,63 GPa) est bien inférieur au module du PLA (3,6 GPa) et du PHA (2,95 GPa). Cette différence de module est fortement atténuée avec l'ajout du non-tissé de lin. En effet, le module du PBS/lin ($7,07 \pm 0,64$ GPa) présente un écart restreint avec le PHA/lin ($11,02 \pm 2,57$ GPa) et le PLA/lin ($13,54 \pm 0,7$ GPa). Ainsi, le gain de module par rapport au polymère vierge est plus important pour le PBS que pour le PHA, +1022% contre +274%. Le PLA/lin présente aussi un plus faible gain que le PBS, +276%, néanmoins il possède le module le plus élevé ($13,54 \pm 0,7$ GPa), près de deux fois supérieur à celui du PBS/lin. De plus, il présente la contrainte à rupture la plus haute, $88,8 \pm 10,1$ MPa alors qu'il n'y a pas de différence significative entre celle du PBS et le PHA étant respectivement de $59,2 \pm 1,4$ MPa et de $60,4 \pm 5,5$ MPa, Fig. 5. Ainsi, le PLA/lin est le composite le plus rigide. Néanmoins, il a une déformation à la rupture faible ($0,9 \pm 0,1\%$), près de deux fois inférieure à celle du PBS/lin de $1,6 \pm 0,1\%$, ce qui peut être problématique pour des applications pour lesquelles la capacité du matériau à se déformer est un critère important.

Ainsi, au vu des propriétés mécaniques, le PLA/lin semble être le bio-composite le plus adapté pour des applications mécaniques où la rigidité est primordiale alors que le PBS permet de favoriser l'allongement à la rupture du composite.

Les résultats obtenus dans cette étude sont meilleurs que ceux obtenus dans la littérature (Tableau 2), cela est dû à l'orientation préférentielle des fibres dans l'axe de traction (Figure 4) ainsi qu'à la longueur des fibres qui s'avère être plus faible pour les composites injectés obtenus dans la littérature. Garkhail et al. ont réalisé un composite PP/lin, avec une fraction volumique de 30%, à partir d'un mat de 725g/m^2 et ont obtenu un module de 10 ± 2 GPa et une contrainte de 30 ± 5 MPa [22]. Ainsi, ces composites biocompostables présentent des propriétés mécaniques proches des composites PP/lin, faisant d'eux une solution de substitution mécaniquement viable. Néanmoins, ceci est à nuancer par l'anisotropie du voile de cadre, seule la traction dans la direction de l'alignement des fibres ayant été testée.

	Vf (%)	Module [MPa]	Gain module	Contrainte [MPa]	Gain contrainte	Allongement [%]	Reference
PP vierge	N/A	1600	N/A	$32 \pm 0,2$	N/A	-	[22]
PP/lin NW	30	10000 ± 2000	+525%	30 ± 5	-6%	-	[22]
PLA vierge*	N/A	3600	N/A	62	N/A	3,5	This study
PLA/lin NW	30	13540 ± 700	+276%	89 ± 10	+44%	$0,9 \pm 0,1$	This study
PLA/lin NW	36,5	7500 ± 100	+108%	65 ± 2	+5%	No data	[23]
PLA/lin injection	25,7	7437 ± 21	+106%	$55,4 \pm 1,2$	-11%	$1,4 \pm 0,1$	[24]
PHA vierge*	N/A	2950	N/A	35	N/A	2	This study
PHA/lin NW	24	11020 ± 2570	+274%	60 ± 5	+71%	$1,0 \pm 0,3$	This study
PHBV/jute injection	27,0	7000 ± 260	-	35 ± 1	-	$0,8 \pm 0,0$	[25]
PBS vierge*	N/A	630	N/A	40	N/A	170	This study
PBS/lin NW	22	7070 ± 640	+1022%	59 ± 1	+48%	$1,6 \pm 0,1$	This study
PBS/lin injection	25,5	3636 ± 179	+477%	$39 \pm 0,1$	-3%	$3,9 \pm 0,1$	[24]

Tab. 2 : Comparaison entre les résultats de cette étude et ceux de la littérature ; le gain est exprimé entre les propriétés du composite et celles du polymère vierge ; les valeurs dont les classes sont marquées d'une * sont obtenues d'après les données du fournisseur

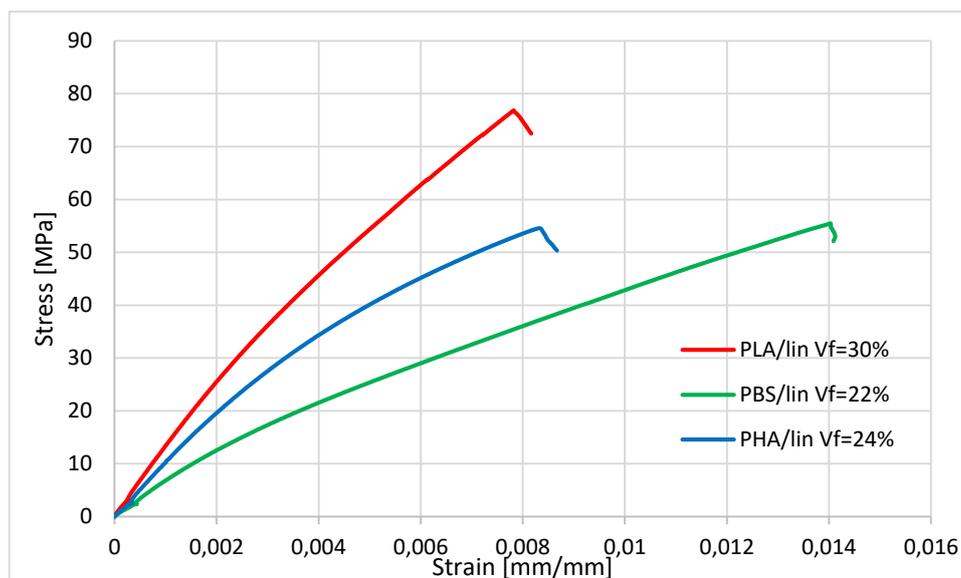


Fig. 5: Comportement en traction des différents biocomposites

Conclusion

Ce travail préliminaire d'élaboration et de caractérisation mécanique de bio-composites biocompostables à base de renforts non-tissés de lin a permis de mettre en avant les différences de rigidité, de contrainte et d'allongement à rupture en fonction de la nature de la matrice (PHA/PLA/PBS) et de comparer les propriétés mécaniques de ces matériaux, entre eux et par rapport à une référence PP.

Les points de fusion des différents thermoplastiques obtenus par méthode de calorimétrie différentielle à balayage ont été utilisés pour la transformation de ces derniers sous forme de films afin de pouvoir réaliser les composites par film-stacking. L'étude rhéologique a permis de trouver une température de mise en œuvre des composites pour chaque polymère afin de travailler à une viscosité proche de 500 Pa.s quel que soit le polymère. Les différences de comportement entre le PBS visqueux et le PHA plus fluide ont été résolues en choisissant une température de 50°C supérieure à la température de fusion du PBS et une température de 2°C sous le point de fusion pour le PHA. Ces choix ont été effectués en tenant compte de la sensibilité thermique des fibres de lin.

Les propriétés mécaniques mesurées ont mis en évidence que le composite PLA/lin présentait le plus haut module ($13,54 \pm 0,70$ GPa) et la plus haute contrainte à rupture ($88,8 \pm 10,1$ MPa). Néanmoins le PBS/lin possède un allongement à la rupture de $1,6 \pm 0,1\%$, ce qui est supérieur à celui du PLA/lin de $0,9 \pm 0,1\%$, tout en possédant un module et une contrainte acceptable, respectivement de $7,07 \pm 0,64$ GPa et de $59,23 \pm 1,42$ MPa. Ainsi il peut être préférable d'opter pour une matrice PBS pour des applications où la capacité de déformation est un facteur important. Le PHA/lin présente un module de $11,02 \pm 2,57$ et un allongement de $1,0 \pm 0,3\%$ ce qui est similaire au PLA/lin avec cependant une contrainte à rupture moindre, 60,39 MPa. Le PHA engendre des composites au comportement proche de celui obtenu avec le PLA avec cependant des propriétés mécaniques inférieures.

Ces résultats, relativement élevés pour des composites à base de mat de lin, s'expliquent par des longueurs de fibres importantes et une orientation prédominante des fibres du renfort dans l'axe de traction, orientation observée au microscope électronique à balayage. Néanmoins, une comparaison avec des composites PP/lin montre que ces composites biocompostables sont des solutions de

substitution viable mécaniquement. Ils représentent par ailleurs, une alternative intermédiaire entre composites non-tissés et unidirectionnels avec un coût de production très réduit par rapport aux UD.

Ces travaux sont préliminaires à une étude visant à caractériser la biodégradation en compost de ces trois bio-composites. Un intérêt particulier sera porté sur la perte des propriétés mécaniques et sur l'évolution de la microstructure. Cela donnera des informations complémentaires pour le choix d'un biocomposite optimum.

Références

- [1] J. Holbery et D. Houston, « Natural-fiber-reinforced polymer composites in automotive applications », *JOM*, vol. 58, n° 11, p. 80-86, nov. 2006.
- [2] P. Wambua, J. Ivens, et I. Verpoest, « Natural fibres: can they replace glass in fibre reinforced plastics? », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 63, n° 9, p. 1259-1264, juill. 2003.
- [3] C. Baley et A. Bourmaud, « Average tensile properties of French elementary flax fibers », *Mater. Lett.*, vol. 122, p. 159-161, mai 2014.
- [4] L. Bossier, E. Poisson, E. Grossmann, et P. Davies, « The first all-flax composite trimaran », *JEC Mag.*, vol. 84, p. 45-47, 2013.
- [5] « bcomp news », *Electric GT Championship*. [En ligne]. Disponible sur: <http://www.electricgt.co/bcomp-news>. [Consulté le: 24-avr-2019].
- [6] A. Conroy, S. Halliwell, et T. Reynolds, « Composite recycling in the construction industry », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 37, n° 8, p. 1216-1222, août 2006.
- [7] V. M. Ghorpade, A. Gennadios, et M. A. Hanna, « Laboratory composting of extruded poly(lactic acid) sheets », *Bioresour. Technol.*, vol. 76, n° 1, p. 57-61, janv. 2001.
- [8] G. Kale, T. Kijchavengkul, R. Auras, M. Rubino, S. E. Selke, et S. P. Singh, « Compostability of Bioplastic Packaging Materials: An Overview », *Macromol. Biosci.*, vol. 7, n° 3, p. 255-277, mars 2007.
- [9] J.-H. Zhao, X.-Q. Wang, J. Zeng, G. Yang, F.-H. Shi, et Q. Yan, « Biodegradation of poly(butylene succinate) in compost », *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 97, n° 6, p. 2273-2278, sept. 2005.
- [10] B. Laycock *et al.*, « Lifetime prediction of biodegradable polymers », *Prog. Polym. Sci.*, vol. 71, p. 144-189, août 2017.
- [11] M. Deroiné, G. César, A. Le Duigou, P. Davies, et S. Bruzard, « Natural Degradation and Biodegradation of Poly(3-Hydroxybutyrate-co-3-Hydroxyvalerate) in Liquid and Solid Marine Environments », *J. Polym. Environ.*, vol. 23, n° 4, p. 493-505, déc. 2015.
- [12] D. S. Rosa, N. T. Lotto, D. R. Lopes, et C. G. F. Guedes, « The use of roughness for evaluating the biodegradation of poly- β -(hydroxybutyrate) and poly- β -(hydroxybutyrate-co- β -valerate) », *Polym. Test.*, vol. 23, n° 1, p. 3-8, févr. 2004.
- [13] Y. Tokiwa et B. P. Calabria, « Biodegradability and Biodegradation of Polyesters », *J. Polym. Environ.*, vol. 15, n° 4, p. 259-267, oct. 2007.
- [14] T. Bayerl, M. Geith, A. A. Somashekar, et D. Bhattacharyya, « Influence of fibre architecture on the biodegradability of FLAX/PLA composites », *Int. Biodeterior. Biodegrad.*, vol. 96, p. 18-25, déc. 2014.
- [15] N. M. Barkoula, S. K. Garkhail, et T. Peijs, « Biodegradable composites based on flax/polyhydroxybutyrate and its copolymer with hydroxyvalerate », *Ind. Crops Prod.*, vol. 31, n° 1, p. 34-42, janv. 2010.
- [16] Y.-X. Weng, L. Wang, M. Zhang, X.-L. Wang, et Y.-Z. Wang, « Biodegradation behavior of P(3HB,4HB)/PLA blends in real soil environments », *Polym. Test.*, vol. 32, n° 1, p. 60-70, févr. 2013.
- [17] Y.-X. Weng, X.-L. Wang, et Y.-Z. Wang, « Biodegradation behavior of PHAs with different chemical structures under controlled composting conditions », *Polym. Test.*, vol. 30, n° 4, p. 372-380, juin 2011.
- [18] D. Siniscalco, O. Arnould, A. Bourmaud, A. Le Duigou, et C. Baley, « Monitoring temperature effects on flax cell-wall mechanical properties within a composite material using AFM », *Polym. Test.*, vol. 69, p. 91-99, août 2018.
- [19] S. T. Jespersen, M. D. Wakeman, V. Michaud, D. Cramer, et J.-A. E. Månson, « Film stacking impregnation model for a novel net shape thermoplastic composite preforming process », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 68, n° 7, p. 1822-1830, juin 2008.
- [20] A. Bourmaud, A. Le Duigou, C. Gourier, et C. Baley, « Influence of processing temperature on mechanical performance of unidirectional polyamide 11-flax fibre composites », *Ind. Crops Prod.*, vol. 84, p. 151-165, juin 2016.
- [21] P. Ouagne, L. Bizet, C. Baley, et J. Bréard, « Analysis of the film stacking processing parameters for PLLA/flax fibre biocomposites », p. 27, 2009.
- [22] S. K. Garkhail, R. W. H. Heijenrath, et T. Peijs, « Mechanical Properties of Natural-Fibre-Mat- Reinforced Thermoplastics based on Flax Fibres and Polypropylene », p. 22.

- [23] S. Alimuzzaman, R. H. Gong, et M. Akonda, « Nonwoven polylactic acid and flax biocomposites », *Polym. Compos.*, vol. 34, n° 10, p. 1611-1619, oct. 2013.
- [24] A. Bourmaud, Y.-M. Corre, et C. Baley, « Fully biodegradable composites: Use of poly-(butylene-succinate) as a matrix and to plasticize l-poly-(lactide)-flax blends », *Ind. Crops Prod.*, vol. 64, p. 251-257, févr. 2015.
- [25] A. K. Bledzki et A. Jaszkiwicz, « Mechanical performance of biocomposites based on PLA and PHBV reinforced with natural fibres – A comparative study to PP », *Compos. Sci. Technol.*, vol. 70, n° 12, p. 1687-1696, oct. 2010.