

UNIVERSITÉ DE REIMS CHAMPAGNE-ARDENNE

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES DU NUMÉRIQUE ET DE L'INGÉNIEUR (SNI)

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE REIMS CHAMPAGNE-ARDENNE

Discipline : MÉCANIQUE DES SOLIDES, GÉNIE MÉCANIQUE, PRODUCTIQUE, TRANSPORT ET GÉNIE CIVIL

Spécialité : *Mécanique*

Présentée et soutenue publiquement par

Belahcen DJELLOULI

Le 17 décembre 2021

Modélisation du comportement mécanique de biocomposites hybrides en présence du vieillissement

Thèse dirigée par M. Rezak AYAD

JURY

M. Christophe BALEY,	Professeur,	Université Bretagne Sud,	Président
M. Houman BOROUCHEKI,	Professeur,	Université de Technologie de Troyes,	Rapporteur
M. Abdelghani SAOUAB,	Professeur,	Université du Havre,	Rapporteur
M. Hocine KEBIR,	Maître de Conférences HDR,	Université de Technologie de Compiègne,	Examineur
M. Nathalie LEBLANC,	Enseignant chercheur HDR,	UniLaSalle Rouen,	Examineur
M. Xavier DREUX,	Docteur	Fibres Recherche Développement,	Invité
M. Rezak AYAD,	Professeur,	Université de Reims Champagne-Ardenne,	Directeur
M. Mustapha ASSARAR,	Maître de Conférences HDR,	Université de Reims Champagne-Ardenne,	Co-directeur
M. Wajdi Zouari,	Maître de Conférences HDR,	Université de Reims Champagne-Ardenne,	Co-Encadrant

Production scientifique

En plus de ce mémoire de thèse, ces travaux ont conduit à la publication et aux communications suivantes :

Djellouli B, Zouari W, Assarar M, Ayad R. Analysis of the hygroscopic and hygroelastic behaviours of water aged flax-epoxy composite. *Composite Structures* 2021:113692. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2021.113692>.

Djellouli B, Zouari W, Assarar M, Ayad R. Identification of Longitudinal and Radial Moisture Diffusion Parameters of Flax Fibres by Means of Experimental and Numerical Analysis. 23 th International Conference on Composite Structures (ICCS23), Porto, Portugal & online 01-04 September 2020

Djellouli B, Assarar M, Zouari W, Ayad R. Assessment of the mechanical behaviour of aged hybrid flax-glass composites. 3rd Flower Event, Biobased Composites in Marine Environment Lorient, France & online - 22-23 April 2021

Djellouli B, Zouari W, Assarar M, Ayad R. Finite Element Analysis of The Hygroscopic and The Hygroelastic Behaviours of Flax-epoxy Composite Using Fick's and Langmuir's Models. 24th International Conference on Composite Structures (ICCS24), Porto, Portugal & online 14-16 June 2021

Remerciements

Cette étude doctorale a été effectuée au sein de l'Institut de Thermique, Mécanique, Matériaux (ITheMM), de l'Université de Reims Champagne-Ardenne (URCA). L'ensemble des travaux associés ont été réalisés au département de Génie Mécanique et Productique (GMP), de l'Institut Universitaire de Technologie de Troyes.

Je voudrais avant tout adresser mes remerciements à l'ensemble des membres du jury de thèse, messieurs les professeurs Houman BOROUCAKI et Abdelghani SAOUAB pour avoir accepté de juger et de rapporter mes travaux, madame la professeure Nathalie LEBLANC, monsieur le professeur Christophe BALEY et monsieur Hocine KEBIR, maître de conférences HDR, pour m'avoir fait l'honneur d'examiner ce travail.

Je ne peux m'empêcher d'exprimer également toute ma reconnaissance à l'ensemble de mon équipe d'encadrement. Je commence par mon directeur de thèse, monsieur le professeur Rezak AYAD, pour m'avoir fait confiance, pour son regard objectif et constructif apporté à mes travaux de thèse, pour ses valeurs tant humaines que professionnelles dont il a fait preuve tout au long de cette thèse. Je remercie également mon co-directeur de thèse, monsieur Mustapha ASSARAR, et mon co-encadrant, monsieur Wajdi ZOUARI, respectivement maîtres de conférences HDR. Un grand merci pour leur encadrement de qualité, leur compréhension, leur motivation, leur soutien et leur aide tout le long de mon travail doctoral. J'ai beaucoup apprécié leur disponibilité, la qualité de nos échanges, la pertinence de leurs points de vue et de leurs conseils et critiques constructives qui m'ont été fort utiles et ont permis d'orienter l'étude au mieux et d'atteindre les objectifs fixés.

Un grand merci également à la direction de l'IUT de Troyes, au chef du département GMP et à tout le personnel de l'institut.

Mes remerciements vont aussi à monsieur le professeur Thierry DUVAUT, directeur de l'ITheMM, pour m'avoir accueilli au sein de son laboratoire.

Je souhaite également remercier mes collègues de bureau Hejer, Adélaïde, Youssef, pour toutes ces années partagées ensemble, ces sorties de week-end et tous les moments de soutien moral et de rigolade.

Je ne saurai terminer sans exprimer ma très grande reconnaissance à ma mère et à toute ma famille.

Enfin, je ne saurais clore cette page sans remercier tous mes amis Rostom, Aissa, Anis, Youcef, Younes, Rafik, Boudjemaa, Manal, Bedro, Amirouche, Taha et toutes les autres personnes que j'ai côtoyées durant ce long vécu doctoral troyen, pour leur précieux soutien et leur encouragement sans cesse.

Résumé

Les composites renforcés par des fibres végétales s'imposent aujourd'hui progressivement comme une alternative à certaines fibres synthétiques. L'utilisation des fibres végétales comme renfort permet de combiner le respect de l'environnement et d'avoir de matériaux composites présentant des propriétés mécaniques spécifiques intéressantes. Toutefois, la sensibilité des fibres végétales à l'humidité limite leur utilisation dans les applications structurales. De ce fait, l'hybridation des fibres végétales avec des fibres synthétiques, comme la fibre de verre, peut constituer une des solutions à la variation des propriétés mécaniques des composites à fibres végétales. Dans ce contexte, nous proposons dans cette étude doctorale d'évaluer la durabilité de matériaux composites à fibres de lin, de verre et hybrides lin-verre après leur exposition à un milieu humide à température ambiante. Tout d'abord, les comportements statiques de la résine et des composites hybrides et non hybrides sont analysés. Par la suite, nous évaluons la cinétique de diffusion d'eau dans les composites par identification de leurs paramètres de diffusion 1D et 3D, via une approche d'optimisation basée sur les modèles de Fick et de Langmuir. Ensuite, nous développons et nous implémentons dans le logiciel de calcul par éléments finis ABAQUS deux éléments finis triangulaires de membrane à trois nœuds pour modéliser le comportement hygroscopique des composites de l'étude. Cette modélisation nous permet entre autres d'estimer les paramètres diffusifs radial et longitudinal de la fibre de lin, difficile à déterminer expérimentalement. Après, nous développons et nous implémentons dans ABAQUS des éléments finis triangulaires de membrane à trois nœuds afin de modéliser le comportement hygro-élastique des composites de l'étude. L'objectif de cette partie est d'estimer leur durabilité à travers le calcul des contraintes et des déformations hygroscopiques. Pour cela, des modèles hygro-élastiques découplés, basés sur le modèle de Fick et de Langmuir, sont considérés. Enfin, nous étudions l'impact de l'humidité sur le comportement mécanique, à travers l'étude de la perte progressive des propriétés élastiques de ces composites.

Mots clés : Fibre de lin, composites hybrides, durabilité, modélisation par éléments finis.

Modelling the mechanical behaviour of hybrid biocomposites in the presence of ageing

Résumé

Natural fibre-reinforced composites are progressively becoming an alternative to certain synthetic fibres. The use of vegetal fibres as reinforcement makes it possible to combine respect of the environment with having composite materials presenting attractive specific mechanical properties. However, the sensitivity of vegetal fibres to moisture limits their use in structural applications. Therefore, the hybridization of vegetal fibres with synthetic fibres, such as glass fibre, can be one of the solutions to the variation of mechanical properties of vegetal fibre composites. In this context, we propose in this PhD study to evaluate the durability of flax, glass and flax-glass hybrid composites after their exposure to a humid environment at room temperature. First, the static behaviour of the resin and the hybrid and non-hybrid composites are analysed. Then, we evaluate the water diffusion kinetics in the composites by identifying their 1D and 3D diffusion parameters, using an optimisation approach based on the Fick and Langmuir models. Then, we develop and implement in the ABAQUS FEA software two triangular three-node membrane finite elements to model the hygroscopic behaviour of the studied composites. This modelling allows us, among other things, to estimate the radial and longitudinal diffusive parameters of the flax fibre, which are difficult to determine experimentally. Then, we develop and implement in ABAQUS three-node triangular membrane finite elements to model the hygroelastic behaviour of the studied composites. The objective of this part is to estimate their durability through the calculation of hygroscopic stresses and strains. For this purpose, decoupled hygroelastic models, based on the Fick' and Langmuir's model, are considered. Finally, we study the impact of moisture on the mechanical behaviour, through the investigation of the progressive loss of elastic properties of these composites.

Mots clés : Flax fibre, hybrid composites, durability, finite element modelling.

TABLE DES MATIERES

Introduction Générale.....	12
-----------------------------------	-----------

Chapitre 1 Étude Bibliographique	15
---	-----------

1.1. Introduction	17
1.2. Les fibres végétales et la fibre de lin	17
1.2.1. Généralités sur les fibres végétales	17
1.2.2. Structure et composition de la fibre de lin	19
1.2.3. Comportement mécanique de la fibre de lin	21
1.3. Les matrices	24
1.3.1. Matrices thermoplastiques	24
1.3.2. Matrices thermodurcissables	25
1.4. Comportement mécanique des composites à fibres de lin.....	26
1.5. Vieillessement	28
1.5.1. Généralités sur le problème de diffusion	28
1.5.2. Cinétique de diffusion.....	28
1.5.3. Modèles de diffusion.....	29
1.5.4. Phénomènes physico-chimiques générés par la diffusion d'eau.....	30
1.6. Vieillessement des matériaux composites renforcés par des fibres végétales	33
1.6.1. Comportement hygroscopique des fibres végétales.....	33
1.6.2. Impact du vieillissement hygroscopique sur les propriétés mécaniques des composites à fibres végétales.....	36
1.7. Matériaux composites à renfort hybride	39
1.7.1. Généralités	39
1.7.2. Effet de l'hybridation sur le comportement mécanique.....	40
1.7.3. Effet de l'hybridation sur l'absorption d'eau.....	42
1.8. Analyse par éléments finis du comportement hygro-mécanique	44
1.8.1. Modèles hygroscopiques et hygro-élastiques découplés	45
1.8.2. Modélisation du couplage Mécanique-Diffusion.....	48
1.9. Conclusion.....	52

Chapitre 2 Caractérisation Mécanique Des Matériaux De L'étude	55
--	-----------

2.1. Introduction	57
2.2. Présentation des constituants	57
2.2.1. La résine époxyde	57
2.2.2. Le FlaxTape	58
2.2.3. Les fibres de verre.....	59
2.3. Mise en œuvre des composites non hybrides et hybrides.....	60
2.4. Analyse des microstructures par microscopie électronique à balayage (MEB)	64
2.5. Caractérisation mécanique en traction des matériaux étudiés	67
2.5.1. Présentation des éprouvettes et du dispositif expérimental	67
2.5.2. Comportement mécanique en charge-décharge	68
2.5.3. Caractérisation de l'endommagement.....	69
2.5.4. Analyse des propriétés mécaniques en traction	71

2.6. Conclusion.....	77
----------------------	----

Chapitre 3 Etude Expérimentale Et De Modélisation De La Cinétique De Diffusion D'eau Dans Les Composites De L'étude..... 79

3.1. Introduction	81
3.2. Procédure expérimentale	82
3.2.1. Préparation des échantillons	82
3.2.2. Évolution de l'absorption d'eau.....	83
3.3. Cinétique de diffusion d'eau	83
3.3.1. Modèle de Fick	83
3.3.2. Modèle de Langmuir.....	85
3.4. Démarche d'optimisation en vue de l'identification des paramètres de diffusion	86
3.5. Résultats et discussion.....	87
3.5.1. Identification des paramètres de diffusion des échantillons colmatés	87
3.5.2. Identification des coefficients de diffusion des échantillons non colmatés	93
3.5.3. Effet de l'hybridation.....	95
3.6. Modélisation par éléments finis du comportement hygroscopique des composites de l'étude	97
3.6.1. Formulation variationnelle faible de l'équilibre hygroscopique.....	97
3.6.2. Approximation par éléments finis.....	100
3.7. Résultats de la modélisation par éléments finis.....	103
3.7.1. Estimation des coefficients de diffusion des fibres de lin.....	103
3.7.2. Effet de l'hybridation lin-verre	108
3.8. Conclusion.....	109

Chapitre 4 Modélisation Par Eléments Finis Du Comportement Hygro-Elastique Des Composites De L'étude 111

4.1. Introduction	113
4.2. Formulation variationnelle faible de l'équilibre hygro-élastique.....	113
4.3. Approximation par éléments finis	116
4.4. Résultats de l'analyse par éléments finis.....	119
4.4.1. Estimation des contraintes mécaniques internes au sein des échantillons lin-époxyde vieillis	119
4.4.2. Estimation des contraintes mécaniques internes au sein des échantillons verre-époxyde vieillis	128
4.4.3. Estimation des contraintes mécaniques internes au sein des échantillons hybrides [L ₂ V ₂] _s vieillis.....	130
4.5. Conclusion.....	131

Chapitre 5 Influence du vieillissement hydrique sur le comportement mécanique des composites à fibres de lin 133

5.1. Introduction	135
5.2. Vieillissement hydrique des éprouvettes de traction	135

5.3. Comportement mécanique en traction monotone des éprouvettes vieilles	137
5.3.1. Réversibilité des propriétés mécaniques	143
5.3.2. Analyse microscopique de l'endommagement	146
5.4. Caractérisation en traction charge-décharge des matériaux composites	149
5.4.1. Analyse des signaux d'émission acoustique sur des essais charge-décharge....	154
5.5. Conclusion.....	157
Conclusion générale	161
Bibliographie.....	165

Introduction générale

De nos jours, l'utilisation des matériaux composites à matrices polymériques renforcées par des fibres végétales se développe dans de nombreux secteurs industriels tels que le bâtiment, l'automobile, la construction navale et le sport. L'utilisation récente de ces composites, considérés comme matériaux écologiquement responsables, est motivée par le contexte économique et environnemental qui favorise la lutte contre la raréfaction des énergies fossiles et l'émission de gaz à effet de serre. De plus, ces matériaux présentent des propriétés mécaniques spécifiques comparables à celles des composites à fibres de verre, ce qui leur permet de constituer une alternative prometteuse aux matériaux composites conventionnels. Cependant, certaines études ont émis des réserves sur leur durabilité, notamment en milieu humide, ce qui peut entraver leur développement dans certaines applications industrielles. En effet, plusieurs travaux de la littérature ont souligné la sensibilité des composites à fibres végétales à l'humidité, en raison de la nature fortement hydrophile de certains de leurs constituants. L'impact de cette exposition se situe principalement au niveau de l'interface fibre-matrice à cause du gonflement différentiel entre les fibres végétales, fortement hydrophiles, et les matrices polymériques quasi-hydrophobes. Ceci conduit à la fragilisation de l'interface fibre-matrice, entraînant par voie de conséquence une variation importante des propriétés mécaniques des composites à fibres végétales. Ainsi, il semble crucial d'analyser le vieillissement hygroscopique de ce type de composites et les phénomènes qui peuvent se produire tout au long de leur cycle de vie. En outre, il est important de disposer d'un outil numérique capable de décrire l'évolution de ce vieillissement et d'estimer les contraintes mécaniques internes liées au gonflement différentiel entre les fibres et la matrice, ce qui constituera une aide précieuse à la prédiction de la durée de vie de ces composites.

C'est donc à ces préoccupations que nous proposons, dans ce travail doctoral, d'apporter un élément de réponse. Menée au sein de l'Institut de Thermique, Mécanique, Matériaux (ITheMM), cette étude doctorale s'articule autour de cinq chapitres. Nous présentons dans le premier chapitre une étude bibliographique sur les composites à renfort naturel, plus particulièrement la fibre de lin, à travers un exposé de sa composition physicochimique et ses propriétés mécaniques. Ensuite, nous décrivons les phénomènes et les mécanismes liés au vieillissement hygroscopique des composites à fibres végétales. Nous dressons également un état de l'art des travaux ayant trait à l'effet de l'hybridation sur l'absorption d'eau et les propriétés mécaniques des composites à fibres végétales. Enfin, nous citons quelques travaux sur la modélisation par éléments finis de la diffusion d'eau au sein des matériaux composites en général et à fibres végétales en particulier.

Dans le deuxième chapitre, nous décrivons, dans un premier temps, les matériaux composites non hybrides et hybrides à fibres de lin et de verre étudiés dans ce travail doctoral, leur procédé de mise œuvre, les équipements et les conditions expérimentales des différents essais mécaniques et de vieillissement. Ensuite, nous analysons leur comportement mécanique à partir des essais de traction monotone. A l'issue de cette étude, seulement deux composites hybrides seront choisis pour la suite des investigations.

Le troisième chapitre est consacré à l'analyse de la diffusion tridimensionnelle (3D) de l'eau dans les composites non hybrides et hybrides lin-verre, retenus à l'issue de l'étude menée au chapitre 2. Dans un premier temps, nous déterminons leurs paramètres de diffusion à l'aide d'une démarche d'optimisation basée sur des modèles de Fick et de Langmuir 1D et 3D. Nous avons en particulier analysé l'influence de la direction de diffusion et l'effet de l'hybridation. La deuxième partie de ce chapitre est consacrée à la formulation théorique par éléments finis du problème hygroscopique à travers le développement de deux éléments finis de membrane triangulaires à trois nœuds basés sur les modèles de Fick et de Langmuir. L'objectif principal de cette partie est d'estimer les coefficients de diffusion longitudinal et radial de la fibre de lin en considérant l'aspect hétérogène du composite lin-époxyde.

Dans le quatrième chapitre, nous proposons de modéliser le comportement couplé hygro-élastique des matériaux de l'étude en considérant leur hétérogénéité. Pour cela, nous étendons les formulations des deux éléments finis hygroscopiques présentés dans le chapitre 3, au problème hygro-élastique. Le but est d'estimer les contraintes mécaniques internes liées au vieillissement hydrique, en particulier dans les échantillons composites lin-époxyde et hybrides lin-verre-époxyde. Nous achevons le chapitre 4 par la proposition d'une étude comparative entre les modèles hygroélastiques de Fick et de Langmuir.

Le cinquième chapitre est dédié à l'analyse de l'effet du vieillissement hydrique sur les propriétés élastiques et à la rupture des composites de l'étude. Nous investiguons en outre l'évolution de ces propriétés en fonction de la durée d'immersion dans l'eau. Nous étudions également la réversibilité de ces propriétés en effectuant un cycle absorption-séchage. Afin d'évaluer l'évolution de l'endommagement au sein des matériaux étudiés, nous réalisons des essais de charge-décharge en traction sur des échantillons non vieillis et vieillis.

Enfin, nous synthétisons les résultats obtenus dans la conclusion générale et ouvrons aussi un certain nombre de perspectives intéressantes.

Chapitre 1

Étude Bibliographique

1.1. Introduction

Les préoccupations croissantes et récurrentes à l'égard des questions environnementales ont eu pour effet un regain d'intérêt pour les matériaux plus respectueux de l'environnement. Dans cette optique, les matériaux composites renforcés par des fibres végétales sont particulièrement concernés et relèveraient ainsi d'une grande importance. Toutefois, le développement de ces matériaux composites dans diverses applications semi-structurelles et structurelles nécessite de disposer d'informations supplémentaires sur leurs propriétés mécaniques ainsi que leur durabilité, notamment en milieu humide.

Ce chapitre propose une synthèse bibliographique mettant en exergue quelques éléments scientifiques qui soutiendront la compréhension et l'interprétation des résultats obtenus tout au long de cette étude doctorale. Dans un premier temps, nous présentons la microstructure de la fibre de lin, sa composition chimique et son comportement mécanique, ainsi que les matrices utilisées pour la mise en œuvre du matériau final : le composite. Ensuite, nous décrivons les phénomènes et les mécanismes mis en jeu lors du vieillissement hygrothermique des composites à fibres végétales, notamment son effet sur leurs propriétés mécaniques. Par la suite, l'hybridation des matériaux composites à fibres végétales par les fibres synthétiques est définie. Une revue de la littérature mettant en exergue l'effet de l'hybridation sur les propriétés mécaniques et l'absorption d'eau des composites à fibres végétales est réalisée. Enfin, une synthèse bibliographique est proposée sur les travaux en relation avec la modélisation par éléments finis des comportements hygroscopique et hygro élastique découplé des composites à fibres végétales. Cette dernière partie est clôturée par une présentation de deux approches pour la modélisation du couplage hygro-mécanique des composites de l'étude.

1.2. Les fibres végétales et la fibre de lin

1.2.1. Généralités sur les fibres végétales

Les fibres naturelles sont issues de ressources renouvelables et neutres en dioxyde de carbone. Elles peuvent être d'origine végétale, animale ou minérale [1] comme le montre la figure 1.1. Les fibres minérales telles que l'amiante peuvent être utilisées en raison de leurs propriétés thermique, électrique et leur résistance à l'action corrosive des produits chimiques [2]. Cependant leur nature toxique provoque des maladies du système respiratoire de l'homme, ce qui limite désormais leur usage [3]. Les fibres animales proviennent des soies de vers et d'araignées ou de la toison animale. Elles possèdent des propriétés mécaniques remarquables, tout en étant légères et biodégradables [4–6]. Toutefois, il est difficile d'en assurer une production étendue pour une utilisation à l'échelle industrielle. Quant aux fibres végétales, leur

utilisation est en nette expansion dans divers secteurs industriels tels que l'industrie du textile [7] et les domaines utilisant des matériaux composites [8–14]. Ces fibres proviennent généralement des graines (coton, kapok), des feuilles (sisal, abaca, alfa), des fruits (noix de coco) ou des tiges (chanvre, lin, jute, bambou) [15]. Les fibres situées dans les tiges sont les plus intéressantes du point de vue des propriétés mécaniques [15,16] comme le souligne la figure 1.2.

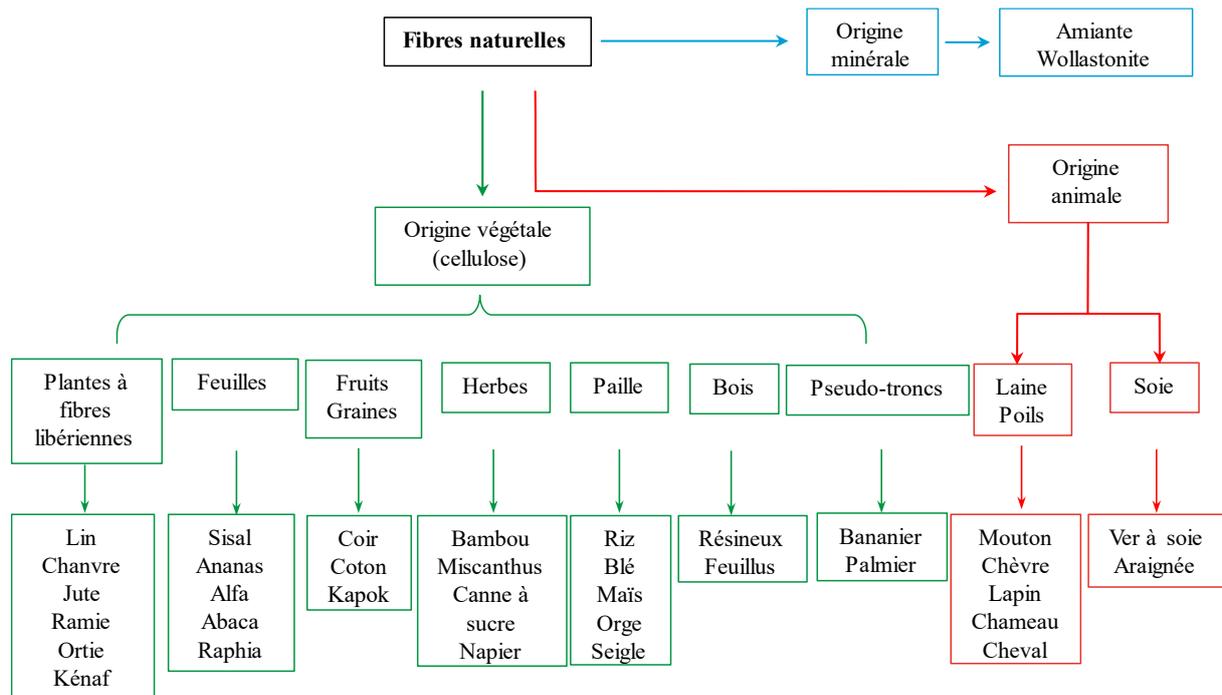


Figure 1.1: Classification des fibres naturelles en fonction de leur origine [1].

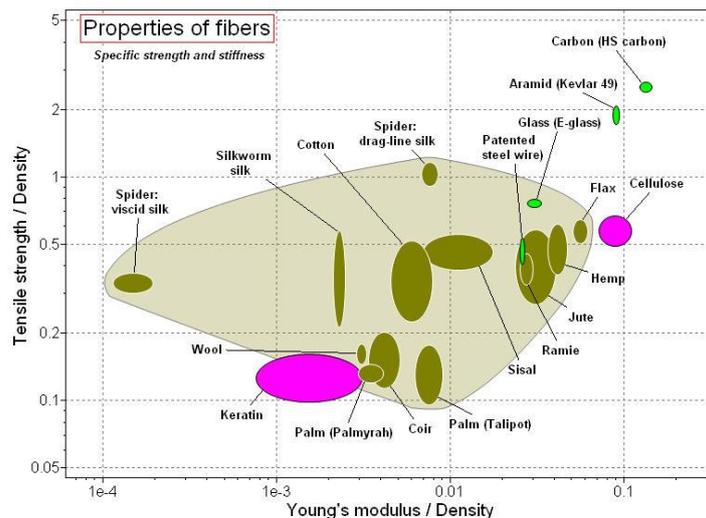


Figure 1.2: Contraintes à la rupture et modules d'Young spécifiques des fibres naturelles comparés à ceux des fibres synthétiques[16].

Dans la présente étude, les fibres de lin sont choisies comme renfort des matériaux composites étudiés en raison de leurs caractéristiques physiques et mécaniques intéressantes [12,17–19].

Le lin appartient à la famille des Linacees (la variante cultivée est la *Linum usitatissimum* ; ce qui signifie lin extrêmement utile). C'est une plante annuelle dont la hauteur de la tige pouvant varier de 0,6 à 1,2 m de hauteur pour un diamètre de 1 à 3 millimètres. En Europe, elle est principalement cultivée en France (particulièrement en région Normandie au Nord, comprenant aussi le bassin parisien), en Belgique, aux Pays-Bas, en Russie et en Pologne [1].

Les fibres de lin sont extraites des tiges de lin mures, à travers différentes opérations [1] :

- D'abord, le rouissage qui consiste à détruire les pectoses afin de faciliter l'extraction des fibres des parties ligneuses.
- Ensuite, le teillage qui comprend une série d'étapes conduisant à la décortication et à la séparation des différents constituants.
- Enfin, le peignage qui a pour but d'affiner les faisceaux de fibres et d'isoler fibres en fibres techniques.



Figure 1.3: Étapes d'extraction du lin et préparation à la filature : rouissage, teillage et peignage [1,20].

1.2.2. Structure et composition de la fibre de lin

La tige de lin peut, au vu de sa structure morphologique, être considérée comme étant un matériau composite possédant une structure concentrique [1,21–24] où les fibres se situent à la périphérie sous forme de faisceaux (figure 1.4). Chaque faisceau regroupe entre 10 à 40 fibres [25]. Le nombre de faisceaux dans une tige varie selon la variété et le stade de croissance lors de la récolte [26]. Les fibres sont liées entre elles par les lamelles mitoyennes et sont composées principalement de cellulose, d'hémicellulose, de pectine, de lignine et de l'eau [17,25]. Le tableau 1.1 présente les pourcentages de chaque constituant.

D'un point de vue microscopique, la fibre de lin peut être assimilée à un composite, dont l'hémicelluloses et la pectine jouent le rôle de la matrice, qui est renforcée par les microfibrilles

de cellulose [21,27,28] (figure 1.5). Comme la tige est soumise à une structuration multi échelle, de l'extérieur au centre de la fibre, elle est composée d'une paroi primaire (P), suivie de trois parois secondaires (S1, S2 et S3) et d'une partie creuse appelée lumen dont le diamètre varie entre 1 et 10 μm [29]. Sa taille dépend des conditions de croissance et du degré de maturité de la tige [18,30].

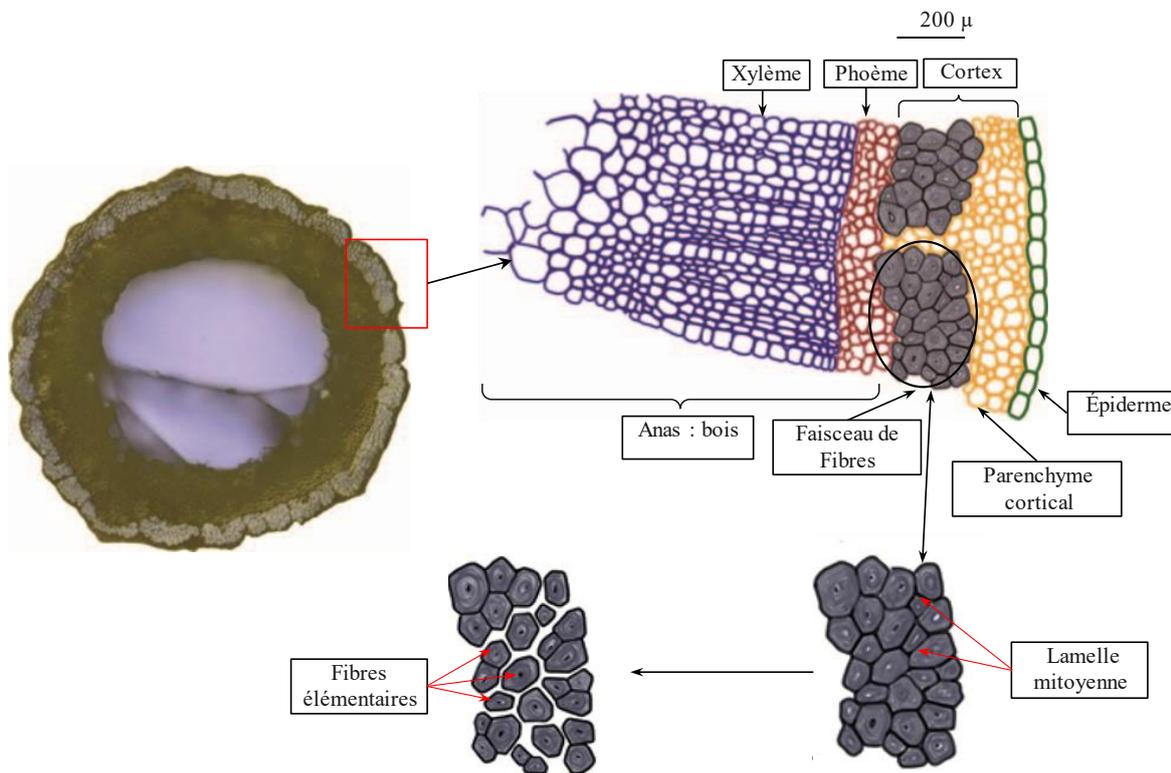


Figure 1.4: : Coupe transversale d'une tige de lin [1,21–24].

Tableau 1.1: Proportion des composants chimiques de la fibre de lin.

Composant	(%)	Références
Cellulose	65 - 81	[31–33]
Hémicelluloses	11 – 20,6	[31–33]
Pectines	1,8 - 3	[31–33]
Lignine	2,0 - 2,5	[31–33]
Cire	1,3 - 1,5	[31,33]
Eau	4,7 – 10	[31–33]

La paroi primaire a une faible épaisseur de 0,2 μm [34,35] et elle est composée essentiellement de pectines et un faible taux de microfibrilles de cellulose (8% à 14%), ce qui limite son rôle dans la tenue mécanique de la fibre de lin [1,15].

La paroi secondaire, de diamètre de l'ordre de 15 μm , présente la partie majeure du volume de la fibre de lin et contient trois sous-couches appelées S1, S2 et S3 selon leur ordre d'apparition durant la croissance de la fibre (figure 1.5). La sous-couche S2 a une épaisseur comprise entre 5 et 10 μm [34] et conditionne très largement le comportement mécanique de la fibre de lin. Ceci est dû au pourcentage de cellulose élevé qu'elle contient (64% à 75%) sous forme de fibrilles, orientées en hélice suivant un angle très petit appelé « angle micro fibrillaire ($\sim 10^\circ$) » [36].

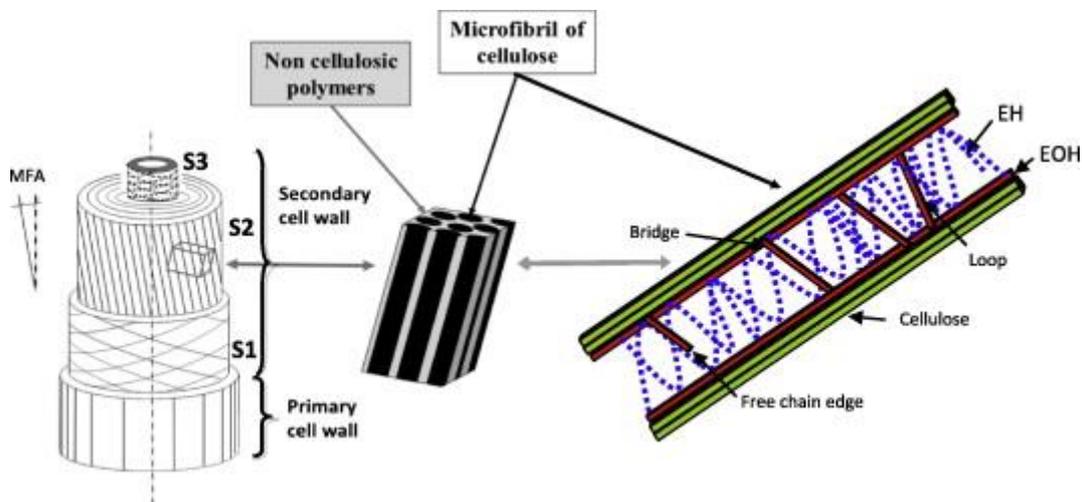


Figure 1.5: Représentation de la structure d'une fibre de lin et de l'orientation hélicoïdale des fibrilles de cellulose [28].

1.2.3. Comportement mécanique de la fibre de lin

L'intérêt porté aux fibres de lin est dû à leurs propriétés mécaniques spécifiques intéressantes comparables à celles des fibres de verre [15,18]. Malheureusement, la fibre de lin présente des inconvénients qui peuvent limiter son utilisation. Parmi ces derniers, nous citons la grande dispersion de leurs propriétés mécaniques qui dépendent de la variété de la plante et de son origine [37] (figure 1.6).

D'autres paramètres peuvent également affecter le comportement mécanique de la fibre de lin comme la maturité de la plante, la technique et la zone de prélèvement de la fibre dans la tige, ainsi que les défauts correspondant aux désorientations des microfibrilles par rapport à leur orientation principale [37].

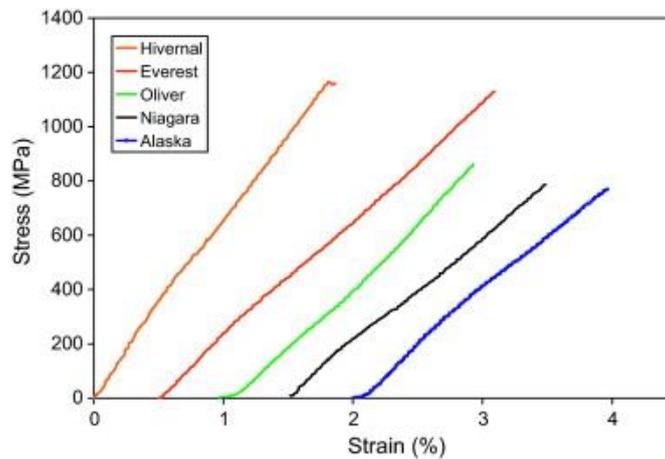


Figure 1.6 : Courbes contrainte-déformation pour différentes variétés de fibres de lin [37].

La composition et la structure complexe de la fibre de lin se répercutent sur son comportement mécanique en traction non linéaire comme le montre les figures 1.6 et 1.7. Ce comportement non linéaire de la fibre de lin a été expliqué dans divers travaux de la littérature[38–40]. A titre d'exemple, Baley et al. [38] ont associé ce comportement à la diminution progressive de l'angle micro-fibrillaire engendrant un réalignement des microfibrilles de cellulose sur l'axe de sollicitation. D'autres auteurs, comme Page et al. [39], ont attribué cette non-linéarité à la torsion des parois cellulaires générée par des contraintes de cisaillement lors de l'essai de traction. Selon Nilsson et al. [40], cette non-linéarité serait dû à l'existence de dislocations générées lors du réaménagement des constituants pendant la croissance de la fibre.

Les positions correspondantes aux points d'inflexion séparant les différentes zones de la courbe de traction (figure 1.7) dépendent principalement des propriétés élastiques et des épaisseurs des parois ainsi que de l'angle microfibrillaire [41]. En plus de la teneur en cellulose et de l'angle microfibrillaire qui contrôlent essentiellement la rupture finale de la fibre de lin [42,43], la présence de défauts appelés «dislocations» ou «kink-bands» réduit les propriétés mécaniques à la rupture (figure 1.8). Ces défauts peuvent apparaître lors de la croissance [44] ou du teillage des tiges [45].

D'une manière générale, la courbe contrainte-déformation d'une fibre de lin peut être divisée en trois zones principales [12,25,46,47] comme le montre la figure 1.7 :

- Zone 1 : elle illustre la première partie linéaire, reflétant globalement la déformation élastique des microfibrilles et de la matrice amorphe (hémicelluloses et pectines);
- Zone 2 : elle est caractérisée par une forte diminution de la rigidité des fibres due essentiellement à la rupture des liaisons hydrogène de la matrice amorphe accentuée par le

niveau des contraintes élevé ainsi que le réarrangement des microfibrilles de cellulose avec l'axe de chargement.

- Zone 3 : elle est caractérisée par un comportement quasi-linéaire, allant jusqu'à la rupture de la fibre de lin. Elle correspond à la réponse élastique des parties de cellulose amorphe et des microfibrilles une fois alignées avec l'axe.

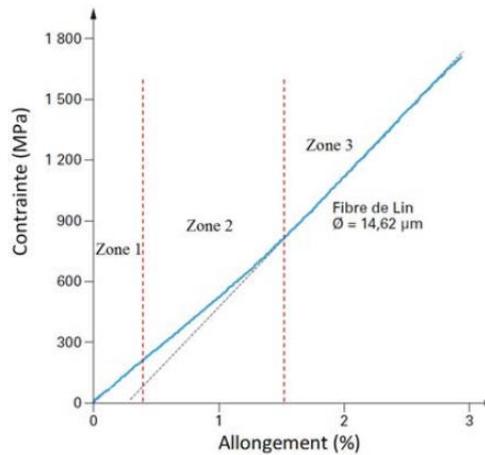


Figure 1.7: Courbe contrainte-déformation en traction d'une fibre unitaire de lin [12].

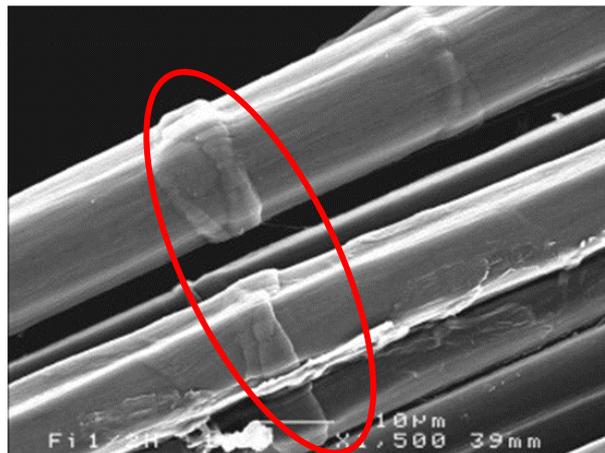


Figure 1.8: Image par microscopie électronique à balayage d'une fibre de lin montrant une dislocation (kink band) [38].

Dans une étude proposée par Baley [38], des essais de traction en fatigue et en charge-décharge ont été effectués sur des fibres élémentaires de lin. Les résultats correspondants ont révélé une hausse du module d'Young de 60 à 80% entre le dernier et le premier cycle (figure 1.9.b). Le même comportement a été enregistré en charge décharge comme le décrit la figure 1.9. a. Selon Baley [38], cette augmentation de rigidité est due principalement à une réorganisation de la structure liée à la diminution de l'angle micro fibrillaire et la tendance des fibrilles de cellulose à s'aligner par rapport à l'axe de la charge.

Dans une autre étude réalisée par Placet et al. [48], des essais de charge-décharge ont été conduits sur une fibre élémentaire de chanvre. Les auteurs ont constaté une accumulation des déformations résiduelles, mais aussi une augmentation de la rigidité, avec ces déformations, qui peut atteindre 400% du dernier cycle par rapport au premier. Ces auteurs ont expliqué la hausse de rigidité par le phénomène de « stick-slip » impliquant l'extension, la réorientation des microfibrilles et la cristallisation de la cellulose amorphe.

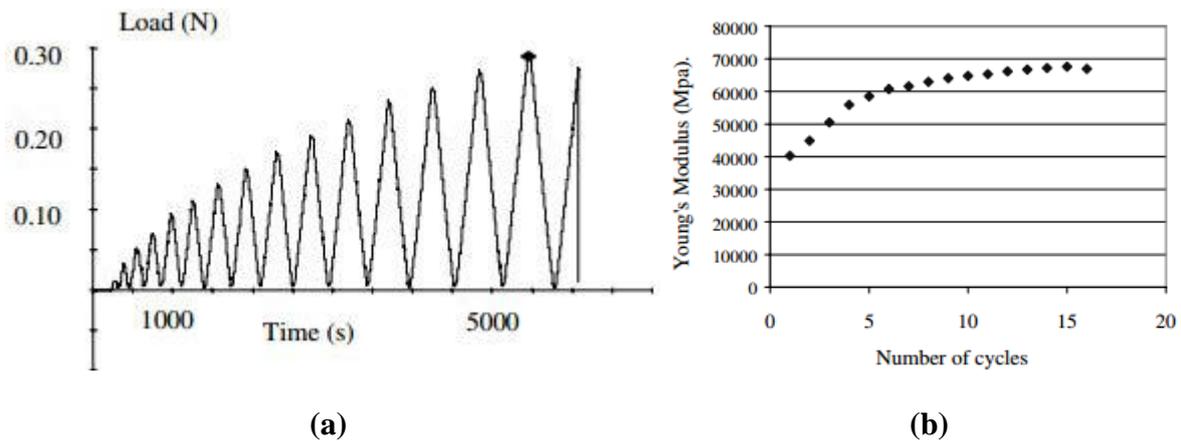


Figure 1.9: (a) Test de charge-décharge en traction sur une fibre de lin et (b) évolution du module d'Young de la fibre de lin en fonction du nombre de cycles [38].

1.3. Les matrices

La matrice représente le second élément indispensable d'un matériau composite. Il s'agit d'une structure légère et déformable. Elle a comme principales fonctions la protection des fibres, la distribution équilibrée des efforts mécaniques sur les renforts et l'homogénéisation du composite. Il existe de nombreux types de matrices, parmi lesquelles nous citons les matrices métalliques, céramiques, organiques ou polymériques. Ces dernières étant concernées par la présente étude doctorale.

1.3.1. Matrices thermoplastiques

Les matrices thermoplastiques présentent des chaînes macromoléculaires linéaires flexibles pouvant être remodelées, ramollies puis durcies à plusieurs reprises, en les soumettant à des cycles de température franchissant des valeurs supérieures à leur température de formage [49]. Les liaisons entre ces chaînes macromoléculaires sont des liaisons faibles de type Van Der Waals, à l'origine du comportement réversible des matrices thermoplastiques, permettant ainsi de les récupérer et de les recycler facilement [50].

Les matrices thermoplastiques sont souvent utilisées dans la mise en œuvre par injection, ou pour l'obtention de films, de plaques, de tubes et d'articles profilés par extrusion [17,51–53].

L'intérêt des thermoplastiques réside principalement dans leur recyclabilité et leur faible coût. Néanmoins, ceci est associé à des propriétés thermomécaniques souvent limitées comme le montre le tableau 1.2.

1.3.2. Matrices thermodurcissables

Les matrices thermodurcissables sont des polymères constitués de longues macromolécules possédant des liaisons pour créer un réseau chimique tridimensionnel [54]. En effet, après polymérisation en présence d'un durcisseur, ces résines conduisent à une structure géométrique qui ne peut pas être détruite. Si elles sont chauffées à une température dépassant la température de transition vitreuse, elles ne fondent pas et conservent leur forme jusqu'à ce qu'elles se décomposent thermiquement à haute température.

Elles sont très utilisées en raison de leurs caractéristiques thermomécaniques élevées en comparaison avec les résines thermoplastiques. Les plus utilisées sont les polyesters insaturés, les résines phénoliques et époxydes. Le tableau 1.3 résume leurs propriétés mécaniques et physiques.

Tableau 1.2: Caractéristiques physiques et mécaniques de quelques polymères thermoplastiques [55].

Polymères	Polypropylène	Polyamide
Masse volumique (kg / m^3)	1200	1140
Contrainte à la rupture (MPa)	20-35	60-85
Module d'élasticité (GPa)	1,1-1,4	1,2-2,5
Température de fléchissement sous charge (C°)	50-60	65-100

Tableau 1.3: Caractéristiques physiques et mécaniques de quelques polymères thermodurcissables [55].

Polymères	Polyesters	Résines phénoliques	Époxyde
Masse volumique (kg / m^3)	1140	1200	1100-1500
Contrainte à la rupture (MPa)	50-80	40	60-80
Module d'élasticité (GPa)	2,8-3,5	3-5	3-5
Température de fléchissement sous charge (C°)	60-100	120	290

Dans cette étude doctorale, nous nous intéressons aux résines époxydes, en raison de leurs divers avantages tels que leurs propriétés mécaniques intéressantes, leur facilité de préparation,

leur faible retrait lors du durcissement et leur bonne adhésion à une grande variété de fibres de renfort. Elles présentent une meilleure résistance à la corrosion, à l'humidité et à la chaleur en comparaison avec les autres matrices polymères.

1.4. Comportement mécanique des composites à fibres de lin

En raison de leur compétitivité par rapport aux fibres de verre, les performances mécaniques de différents types de composites à base de matrices thermodurcissables renforcées par des fibres de lin ont été largement étudiées [10,25,56,57,57–68]. Plusieurs sollicitations ou chargements ont été aussi considérés telles que la traction [10,57,59,62,68], la flexion [60,63,69], le cisaillement [62,65], la fatigue [66,67], la charge décharge [68,69] ou les vibrations [70,71].

Le comportement mécanique en traction d'un composite lin-époxyde unidirectionnel (UD) a été étudié par Assarar et al. [59]. Ces auteurs ont mis en évidence un comportement non linéaire du composite lin-époxyde, avec une courbe de traction présentant deux zones linéaires dont la première est au début de l'essai et une deuxième zone linéaire qui représente 70% de la courbe de traction (figure 1.10). La liaison, ou le raccordement de ces deux parties linéaires, est assurée par une troisième zone non linéaire qui représente le « genou » de la courbe situé en général autour de 0,3% de déformation. Ce comportement est lié à celui des fibres de lin et peut être interprété comme une éventuelle réorientation des microfibrilles de cellulose au sein de ces fibres au cours du chargement. Dans un autre travail effectué par Gning et al. [62], les auteurs ont analysé l'effet de la fraction volumique, la pression de mise en œuvre et la température de l'essai sur le comportement en traction et en cisaillement d'un composite UD lin-époxyde. Ils ont constaté d'une part, que la non-linéarité des courbes est observée quelle que soit la température de l'essai, et d'autre part une perte significative des propriétés mécaniques en traction et en cisaillement au-delà de la température de transition vitreuse de la résine époxyde (figure 1.11).

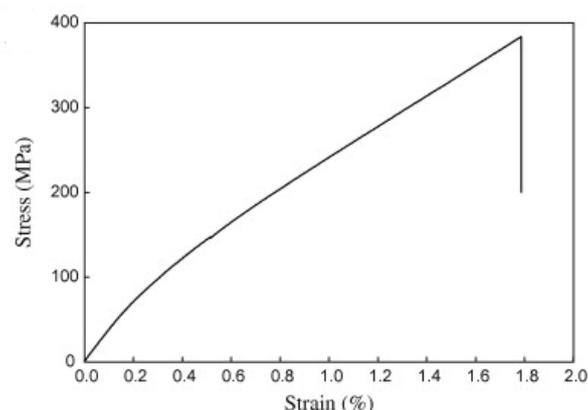


Figure 1.10: Courbe de traction d'un composite UD lin-époxyde [59].

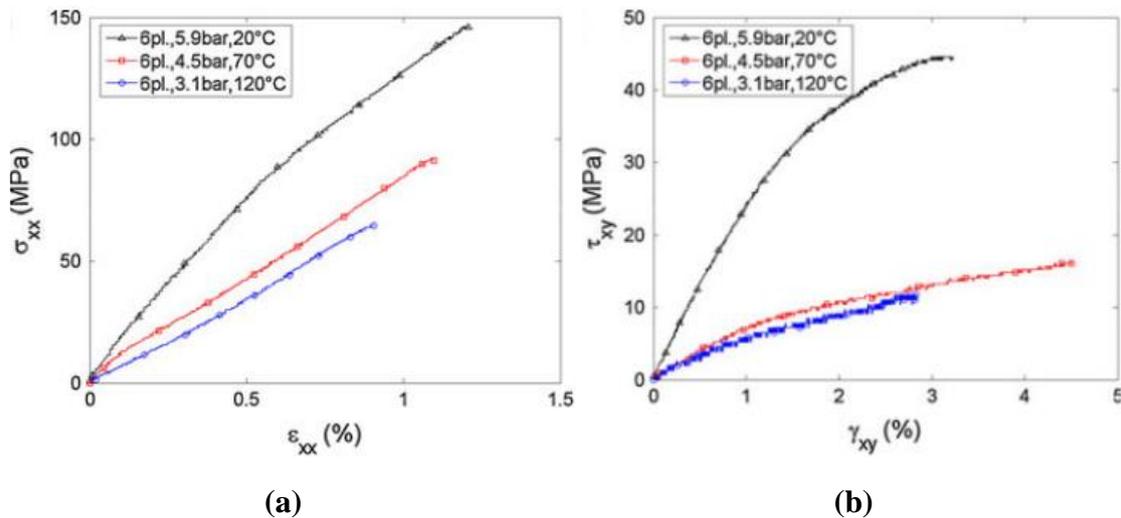


Figure 1.11: (a) courbe de traction et (b) courbe de cisaillement d'un composite UD lin-époxyde sous différentes conditions [62].

L'influence de la fraction volumique des fibres sur les propriétés mécaniques en traction des composites UD lin-époxyde a été aussi analysée dans la littérature [25,72]. Dans le travail de Marrot et al. [72], les auteurs ont constaté, pour différents types de résine époxyde, que les propriétés mécaniques en traction évoluent quasi-linéairement en fonction de la fraction volumique des fibres de lin et que la loi de mélange décrit correctement cette évolution (figure 1.12).

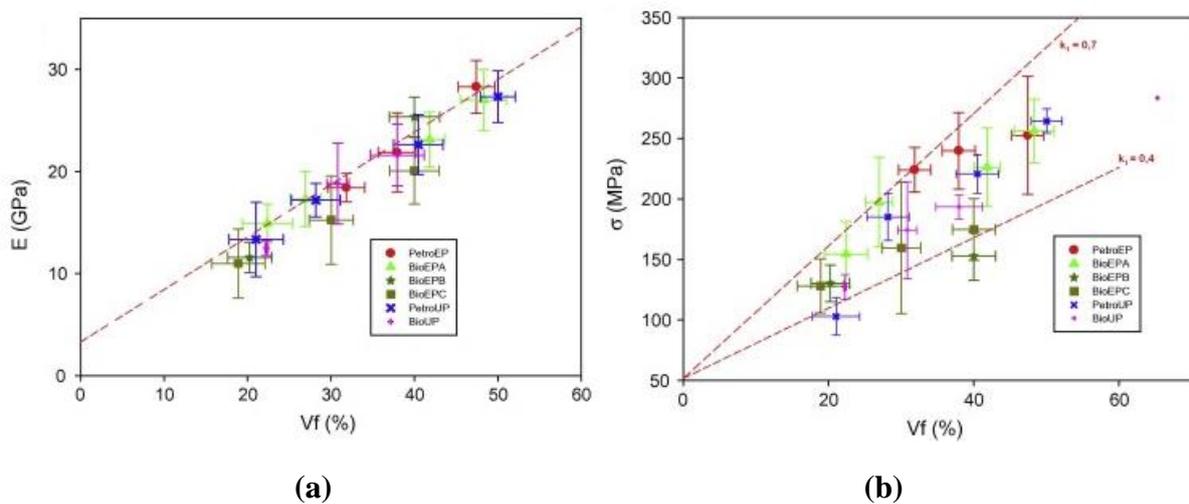


Figure 1.12: Influence de la fraction volumique des fibres lin sur les propriétés mécaniques des composites UD lin-époxyde : a) module d'Young et b) résistance à la traction [72].

Dans une autre étude, Liang et al. [66] ont effectué des essais de fatigue en traction sur des composites lin-époxyde et verre-époxyde avec des séquences d'empilement de types $[0/90]_{3s}$ et $[\pm 45]_{3s}$. Les résultats obtenus montrent que l'endurance en fatigue des composites lin-époxyde $[0/90]_{3s}$ est inférieure à celle du verre-époxyde $[0/90]_{3s}$ (figure 1.13). Contrairement aux

composites à $[0/90]_{3s}$, la perte totale de rigidité des composites lin-époxyde et verre-époxyde $[\pm 45]_{3s}$ est de 15-20% et 50-70%, respectivement. Ceci indique que les composites renforcés par des fibres de lin offrent une performance cyclique plus stable que les composites à fibres de verre.

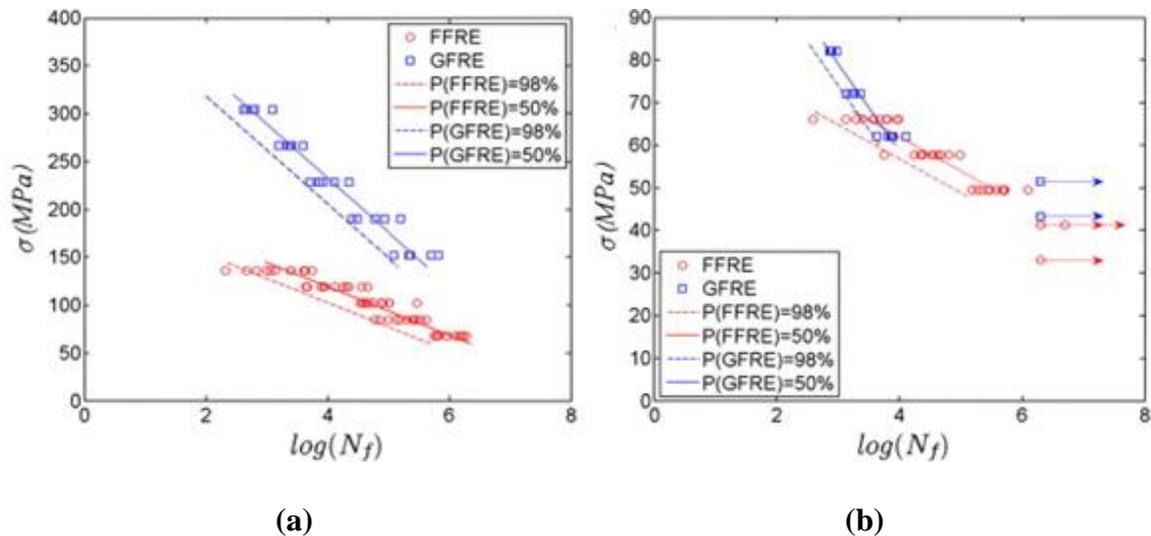


Figure 1.13: Courbes contrainte- nombre de cycles à la rupture (C-N) des composites lin-époxyde et verre-époxyde pour une séquence d'empilement a) $[0/90]_{3s}$ et b) $[\pm 45]_{3s}$ [66].

1.5. Vieillessement

1.5.1. Généralités sur le problème de diffusion

Le vieillissement des matériaux composites est l'évolution de leurs propriétés au cours du temps d'exposition aux facteurs chimiques et physiques. Le vieillissement hydrique ou hygroscopique est induit par la diffusion de particules d'eau à l'intérieur du matériau.

La nature hydrophile des fibres végétales peut engendrer une diminution de leurs propriétés lors de l'exposition à un vieillissement hydrique ou hygrothermique. Ce problème représente ainsi une entrave majeure au développement des matériaux composites renforcés par des fibres végétales, ce qui rend nécessaire l'identification et la maîtrise du phénomène de sorption de l'humidité par ces fibres et leurs composites.

1.5.2. Cinétique de diffusion

La diffusion de l'eau dans les matériaux composites est un phénomène complexe qui est piloté principalement par trois mécanismes différents [73–77]. Le premier mécanisme réside dans la diffusion de particules d'eau à l'intérieur des microcavités qui se trouvent entre les chaînes macromoléculaires. Le deuxième mécanisme est le transfert capillaire dans les porosités et les

défauts au niveau de l'interface fibre/matrice, résultant d'une imprégnation incomplète des fibres par la matrice polymère ainsi qu'à travers le lumen dans le cas des fibres végétales [74]. Enfin, le dernier mécanisme est le transfert des particules à travers les microfissures et les porosités dans la matrice et les fibres créées par le gonflement hygroscopique [77].

1.5.3. Modèles de diffusion

D'une manière générale, le comportement diffusif au sein des polymères et des composites se distingue selon la mobilité relative des particules du solvant et la nature du composite. De ce fait, la cinétique de diffusion peut être décrite sous trois principaux aspects de diffusion [73,78,79] : la diffusion Fickienne, la diffusion non-Fickienne et les anomalies de diffusion. Ces modèles peuvent être distingués selon la forme de la courbe d'absorption d'eau en fonction de la racine carrée du temps. La figure 1.14 présente différents modèles de diffusion d'humidité au sein d'un composite.

La courbe (LF) est associée à un comportement d'absorption de type Fickien[80] indiquant dans la première phase du processus une évolution linéaire de la masse en fonction de la racine carrée du temps, suivie d'un palier d'équilibre atteint après un certain temps. La pente de la première partie linéaire exprime la vitesse de diffusion des particules d'eau exprimée par le tenseur de diffusion D , la masse à la saturation M_{∞} exprime la teneur maximale en eau lorsque le temps tend vers l'infini.

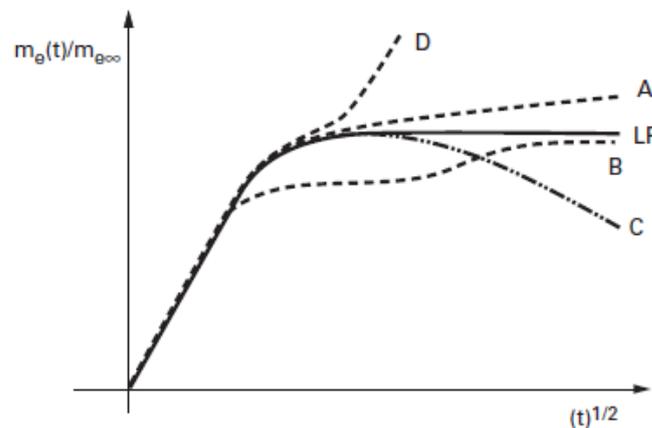


Figure 1.14: Schématisation des courbes de prise de masse à différents comportements d'absorption d'eau [79].

Les courbes A, B, C, et D de la figure 1.14 présentent des anomalies de diffusion comparées à la loi de Fick (LF). Celles-ci peuvent être expliquées comme suit :

- La courbe A est caractérisée par une absence du plateau de saturation. Ce comportement pseudo-Fickien peut être modélisé par une approche à deux phases ou deux populations.

- La courbe B présente deux paliers de saturation : ce comportement selon Weitsman [81] est lié à l'interaction entre le processus de diffusion et le comportement mécanique viscoélastique du réseau polymère.
- La courbe C indique la présence d'un phénomène de perte de masse, qui pourra être lié à une dégradation physique ou chimique irréversible [82,83].
- La courbe D correspond à un cas d'augmentation rapide de la teneur en eau suivie d'un pseudo plateau de saturation. Ce type de comportement est lié souvent à un phénomène d'endommagement et une dégradation chimique sévère, qui s'amplifient au cours du temps [84].

Le comportement des deux courbes A et B peut être décrit en s'appuyant sur un modèle de Langmuir [85] où deux modes de diffusion sont pris en compte. Les détails sur la formulation analytique des deux modèles de Fick et de Langmuir sont reportés dans le chapitre 3.

1.5.4. Phénomènes physico-chimiques générés par la diffusion d'eau

L'absorption d'humidité par les matériaux composites renforcés par des fibres végétales est accompagnée de divers phénomènes physico-chimiques pouvant modifier leurs propriétés. La prédiction et l'identification de ces phénomènes permettent de déterminer et de prédire le comportement des composites à fibres végétales durant leur exposition et assurer ainsi la durabilité des structures utilisant ces matériaux.

➤ **Plastification:** Le phénomène de plastification est dû à une réorganisation morphologique du réseau polymérique et à l'établissement d'interactions secondaires entre les molécules d'eau et le polymère (figure 1.15). Les liaisons ainsi brisées sont de type Van Der Waals [86,87] laissant place à des liaisons hydrogène entre les molécules d'eau et les groupes hydrophiles.

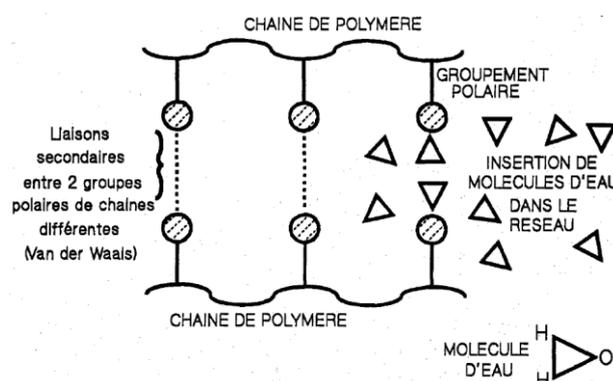


Figure 1.15: Représentation du phénomène de la plastification d'un polymère par l'eau [12,77].

Les liaisons secondaires brisées entraînent la décohésion mécanique du réseau polymérique qui est à l'origine de l'augmentation de la mobilité moléculaire. Cette augmentation de mobilité se traduit par un comportement plus ductile et par une diminution de la température de transition vitreuse T_g du matériau [88,89]. Le phénomène de plastification augmente avec la teneur en eau dans les polymères et les composites à matrices polymériques.

➤ **Gonflement différentiel :** Le gonflement différentiel d'un matériau est caractérisé essentiellement par une variation de son volume au cours de son exposition à un milieu humide (figure 1.16). Il est d'abord causé par l'insertion des molécules entre les chaînes moléculaires remplissant le volume libre qui se présente sous forme de vide entre les mailles du réseau polymérique. Une fois que le volume libre est saturé, les particules d'eau absorbées engendrent un écartement des chaînes macromoléculaires et génèrent ainsi, à l'échelle macroscopique, un gonflement du polymère ou du composite [47].

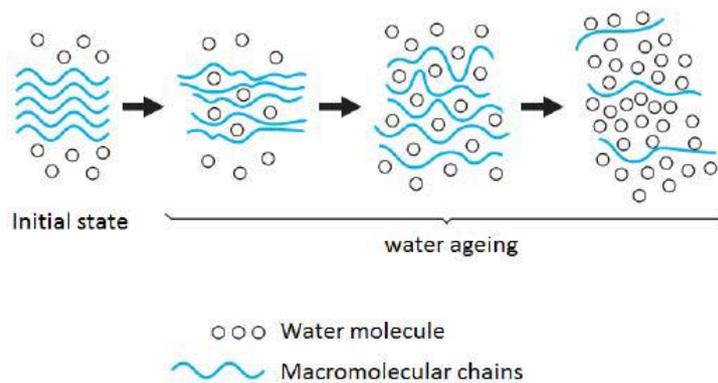


Figure 1.16: Représentation schématique de la pénétration d'eau dans la matrice polymère [47,88].

Il est généralement observé que le gonflement hygroscopique du matériau n'étant pas immédiat lors de l'exposition à l'humidité, et il est inférieur à celui du volume d'eau absorbée [21,30,49,90]. Cette différence mesurée entre le gonflement volumique de l'échantillon et le gonflement théorique permet d'estimer le volume libre dans le matériau (figure 1.17).

Théoriquement le phénomène du gonflement est censé être réversible : une fois que la matrice est desséchée, le gonflement volumique est supposé disparaître en même temps que le mécanisme de plastification. Cependant, le gonflement peut engendrer d'autres mécanismes de vieillissement comme la création de contraintes mécaniques internes d'origine hygroscopique [91–93]. Ces contraintes peuvent engendrer des dégradations du matériau qui conduisent à leur tour à une absorption supplémentaire d'eau et une diminution de ses propriétés mécaniques.

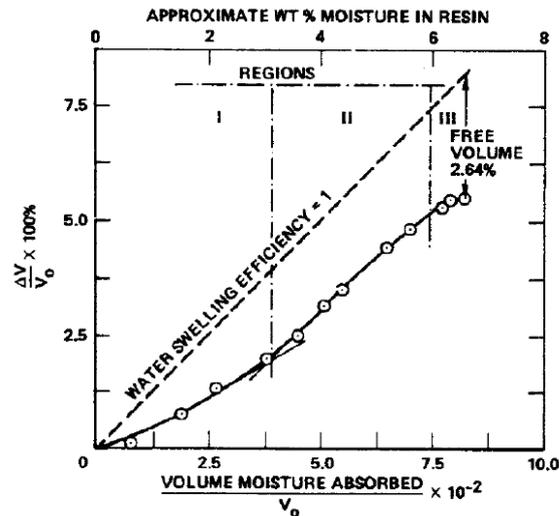
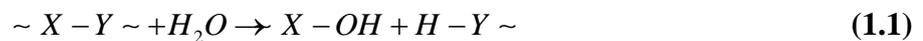


Figure 1.17: Cinétique de gonflement avec seuil d'évolution de la variation du volume de gonflement en fonction du volume de l'eau absorbée [90].

➤ L'hydrolyse : L'hydrolyse est un phénomène chimique lié à la diffusion des particules d'eau dans les matériaux polymériques. Les molécules d'eau vont interagir avec les groupements hydrophiles de forte polarité en décomposant les chaînes déjà présentes en des chaînes plus petites.

La réaction d'hydrolyse peut être décrite par une équation d'une réaction irréversible :



Les principaux groupes chimiques hydrolysables sont les groupes esters, époxydes et amides [86]. Cette réaction est généralement lente à température ambiante et peut devenir très rapide lorsque la température augmente [94].

➤ Le lessivage : La présence de molécules d'eau dans la structure moléculaire du matériau peut provoquer des ruptures de chaînes par hydrolyse. Ce phénomène, appelé « lessivage », conduit à la création de nouveaux produits, susceptibles d'être extraits du matériau par le biais de l'eau. Les produits extraits créent des micropores qui favorisent la réception supplémentaire de molécules d'eau. Ce phénomène de lessivage peut être quantifié en surveillant l'absorption d'eau (figure 1.18) ou en réalisant un séchage de l'échantillon après vieillissement, présentant alors une masse finale inférieure à celle initiale [95,96].

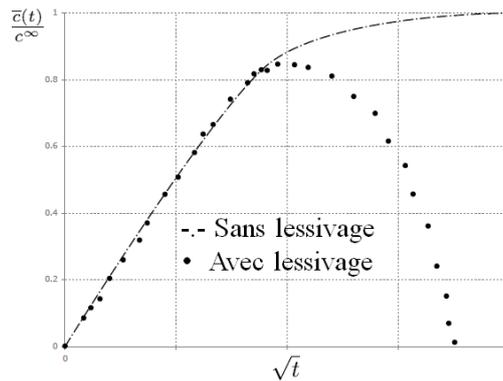


Figure 1.18: Représentation simplifiée du phénomène de lessivage [95,97].

1.6. Vieillessement des matériaux composites renforcés par des fibres végétales

1.6.1. Comportement hygroscopique des fibres végétales

La sensibilité à l'humidité est considérée comme l'un des problèmes majeurs dans l'utilisation des fibres végétales comme renforts de matériaux composites. Les divers constituants de ces fibres se comportent différemment selon leurs caractères hydrophiles liés à la présence des groupements hydrophiles et des groupes oxygènes qui attirent les particules d'eau [31]. La cellulose et la lignine sont considérées moins hydrophiles que l'hémicelluloses et la pectines qui sont les principaux composants responsables de l'absorption d'eau [98]. La morphologie des fibres végétales liée à leurs parties centrales creuses « lumen » diminue leur densité apparente et augmente la circulation des particules d'eau [91]. L'infiltration des particules d'eau agit comme un agent plastifiant de la pectine, considéré comme matrice, et fragilise la cohésion entre les microfibrilles [38,99,100]. Cette infiltration d'eau engendre aussi un gonflement hygroscopique qui se manifeste principalement suivant la direction transversale [21,101]. Dans une étude effectuée par Pucci et al. [102], les auteurs ont constaté une variation de volume de l'ordre de 127% des fibres unitaires de lin immergées partiellement par une de leurs extrémités dans l'eau à température ambiante. Cette variation de volume pourrait générer l'apparition de contraintes internes, au sein de la fibre, entre ses différentes couches, et par conséquent créer des dommages qui causent la chute de ses performances mécaniques [103,104].

Le comportement diffusif ainsi que la nature hydrophile des fibres de lin ont été étudiés dans divers travaux de la littérature [100,101,105–111]. Dans la plupart des cas, l'absorption d'eau par les fibres de lin est souvent décrite par la loi de Fick. Dans une étude effectuée par Zhang et al.[111], les auteurs ont étudié l'impact de l'humidité relative (HR) sur la résistance au cisaillement interfacial d'une fibre de lin. Ils ont constaté que, pour tous les taux d'humidité

relative (HR), les courbes d'absorption présentent une allure Fickienne. Ils ont ainsi remarqué que la teneur maximale en eau varie linéairement avec l'humidité relative (HR) pour des taux allant jusqu'à 70 %. Au-delà de cette valeur, l'évolution de la teneur maximale n'est plus linéaire. Le même comportement a été observé dans une autre étude effectuée par Moudood et al. [112] où les auteurs ont exposé un tissu de lin UD à différents taux d'humidité relative (HR) (figure 1.19). Ils ont aussi noté que toutes les fibres de lin ont atteint la saturation après le 60 minutes de vieillissement, quelle que soit la valeur de l'HR. Dans une autre étude, Roudier et al. [107] ont analysé le comportement diffusif d'un fagot de lin de longueur 20 mm conditionné en HR à 33%, 50% et 75%. Ils ont constaté que la masse à saturation dépend de l'HR, et que le coefficient de diffusion de la fibre de lin, considérée comme un cylindre dont la diffusion est supposée être suivant la direction radiale, évolue d'une manière quasi-linéaire avec l'HR. Les coefficients de diffusion de la fibre de lin identifiées sont $D_{Lin} = 2,06 \times 10^{-4} mm^2 / s$,

$2,79 \times 10^{-4} mm^2 / s$ et $3,69 \times 10^{-4} mm^2 / s$ pour les HR de 33%, 50% et 75%, respectivement.

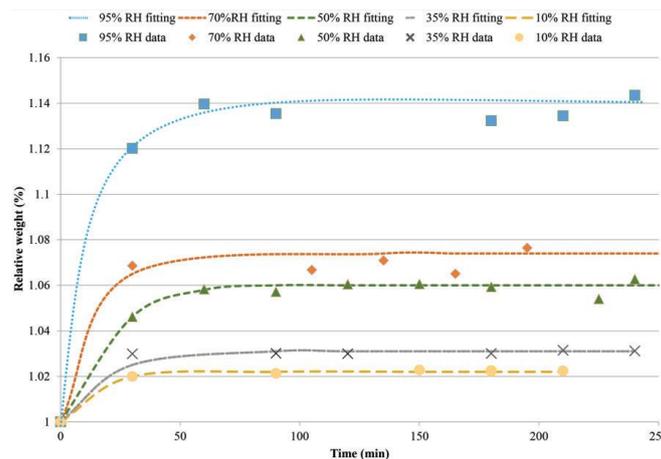


Figure 1.19: Cinétique d'absorption de l'humidité des fibres de lin à différents taux d'humidité relative [112].

Stamboulis et al. [113] ont étudié l'effet du traitement thermique (Duralin) sur un faisceau de lin de 1.5 mm de longueur vieilli à 66 % et 100% d'HR à température ambiante (figure 1.20). Ils ont trouvé que le comportement diffusif des fibres de lin suit la loi de Fick avec un coefficient de diffusion $D_{Lin} = 1,96 \times 10^{-4} mm^2 / s$ pour les fibres non traitées. De plus, le traitement Duralin des fibres de lin induit une diminution de leur coefficient de diffusion de presque 50% par rapport aux fibres non traitées ($D_{Lin-traité} = 1,10 \times 10^{-4} mm^2 / s$).

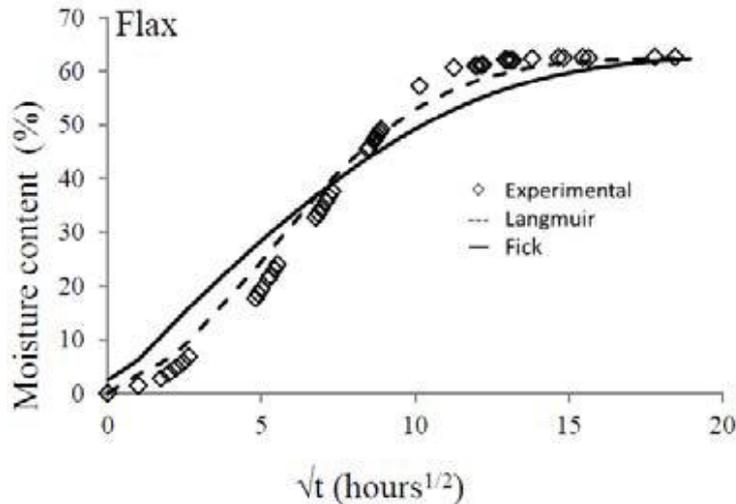


Figure 1.20: Courbes d'absorption des fibres de lin complètement immergées dans l'eau [105].

Contrairement aux travaux cités précédemment, Celino et al. [105] ont utilisés les modèles de Fick et de Langmuir pour décrire le comportement diffusif de quatre fibres végétales (lin, chanvre, sisal et jute) soumises à deux conditions de vieillissement différentes. Les quatre fibres présentaient quasiment le même le comportement diffusif. Les auteurs ont également constaté que le modèle de Langmuir peut être considéré pour mieux décrire le comportement des fibres totalement immergées dans l'eau, tandis que le modèle de Fick est mieux adapté au vieillissement en HR (figure 1.21). Ils ont supposé que la diffusion d'eau s'effectue exclusivement suivant la direction radiale des fibres végétales en immersion totale, le coefficient de diffusion de la fibre de sisal est pratiquement deux fois plus grand que celui de la fibre de lin $D_{Lin} = 1,19 \times 10^{-6} mm^2 / s$. Ce constat est lié à une présence plus importante de constituants amorphes dans la fibre de sisal comparée à la fibre de lin. De plus, le coefficient de diffusion de la fibre de lin vieillie en HR de 80% est 160 fois plus grand que celui calculé en immersion totale. Ceci est dû à la forte mobilité des molécules d'eau à l'état gazeux comparé à celle à l'état liquide. Cette forte mobilité des molécules d'eau à l'état gazeux se traduit aussi par une faible masse à saturation comparée à l'immersion totale.

D'après les travaux déjà cités, il s'avère que la caractérisation expérimentale du comportement diffusif de la fibre de lin est relativement difficile et nous constatons un écart relativement important entre les résultats obtenus. De plus, la majorité des travaux ont supposé que la diffusion d'eau dans les fibres de lin s'effectue principalement suivant leur direction radiale en éliminant ainsi la diffusion longitudinale.

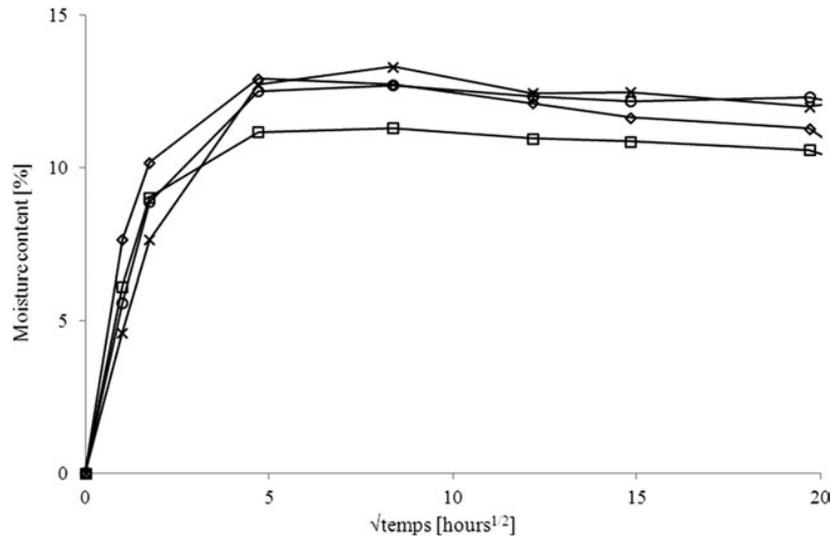


Figure 1.21: Cinétique d'absorption de quatre fibres végétales soumises à une HR de 80% à 23°C (× lin, □ chanvre, ◇ sisal, ○ jute) [105].

L'hypothèse qui consiste à négliger le coefficient de diffusion longitudinale de la fibre de lin semble discutable en raison de sa morphologie tubulaire qui présente une partie creuse, appelée lumen, favorisant la circulation des particules d'eau suivant sa direction longitudinale [109]. Nous constatons aussi que la description du comportement diffusif de la fibre de lin par le modèle de Langmuir reste peu étudiée dans la littérature. À cet effet, une modélisation par éléments finis basée sur le modèle de Langmuir est proposée dans le chapitre 3. En particulier, une démarche inverse est considérée pour estimer les coefficients de diffusion longitudinale et radiale de la fibre de lin.

1.6.2. Impact du vieillissement hygroscopique sur les propriétés mécaniques des composites à fibres végétales

Après avoir décrit les cinétiques de diffusion d'humidité dans les matériaux composites renforcés par des fibres végétales et les mécanismes physico-chimiques mis en jeu au cours du vieillissement, il est également intéressant de connaître les conséquences de ce vieillissement sur leurs propriétés mécaniques.

Plusieurs chercheurs se sont intéressés à l'impact de l'humidité sur les propriétés mécaniques des composites à fibres végétales [21,59,68,70,104,114–125]. Ils ont montré que ces matériaux perdent leurs propriétés mécaniques lorsqu'ils sont exposés à de fortes températures ou à un environnement humide. Cette perte des propriétés mécaniques est due d'une part à la diffusion des particules d'eau à travers l'interface fibre-matrice, les porosités, les microfissures et les microcavités présentes entre les chaînes moléculaires des matrices [37]. D'autre part à la diffusion d'eau dans les fibres végétales [91,99,102,111,113,114] en raison de leur composition

chimique contenant de nombreux groupements hydroxyles, et de leur morphologie tubulaire contenant une partie creuse au milieu (lumen), ce qui facilite le déplacement des particules d'eau [109].

Les molécules d'eau agissent comme agent plastifiant de la matrice et même des fibres végétales [126]. Elles peuvent également engendrer le gonflement des fibres et de la matrice, ce qui induit un changement dimensionnel des composites [91,110,126]. La différence de gonflement entre les fibres et la matrice entraîne une concentration très élevée des contraintes au niveau de l'interface fibre-matrice, ce qui conduit à des microfissurations [59,119,127–129] et une décohésion interfaciale [21,114,116,119,130]. Durant les deux dernières décennies, de nombreux chercheurs ont abordé l'effet des vieillissements sur les propriétés mécaniques des composites renforcés par des fibres végétales. Par exemple, Assarar et al. [120] ont étudié les effets du vieillissement hygrothermique sur les mécanismes d'endommagement de composites en polypropylène (PP) renforcé de fibres de chanvre courtes avec différents teneurs en fibres. Ces auteurs ont montré que la prise d'eau dans les composites PP-chanvre augmente avec la fraction massique des fibres de chanvre. Les mêmes auteurs ont aussi constaté que les propriétés mécaniques élastiques et ultimes des composites étudiés sont affectées par le vieillissement hygrothermique choisi, en particulier à 50°C. La technique d'Emission Acoustique (EA) a été également utilisée pour identifier les mécanismes d'endommagements menant à la rupture des composites. Les résultats de l'EA indiquent que la qualité de l'interface fibre-matrice joue un rôle majeur dans le processus d'endommagement des composites PP-chanvre.

Dans un travail plus récent, Cheour et al. [70] ont analysé l'impact du vieillissement hydrique sur le comportement en vibrations libres de composites hybrides lin-verre. Les auteurs ont montré que le facteur de perte augmente avec la quantité d'eau absorbée et que l'association des couches de lin et de verre réduit l'effet du vieillissement hydrique sur le module de flexion des stratifiés hybrides.

Le tableau 1.4 résume quelques travaux qui ont étudié l'effet de l'humidité sur les caractéristiques mécaniques et dynamiques de composites polymères renforcés par des fibres végétales.

Tableau 1.4: Effet du vieillissement hygrothermique sur les propriétés mécaniques de quelques composites à fibres végétales.

Matériaux	Conditions de vieillissement	Essais mécaniques	Évolution des propriétés mécaniques	Références
Lin-époxyde	Taux d'humidité relative RH%= 90% à des températures de 20° et 40°C	Traction monotone	-Diminution de la résistance à la traction et du module d'Young. - Augmentation de la déformation à la rupture	[118]
Lin-PLLA	Immersion dans de l'eau distillée à 23 °C	Nano-indentation Analyse colorimétrique	-Diminution des modules de rigidité et de la dureté - Dissolution des polysaccharides responsables du transfert de charge dans la seconde couche S2	[104]
Lin-époxyde	Immersion dans l'eau du robinet à température ambiante	Analyse vibratoire en flexion libre	-Diminution du module de flexion et augmentation des facteurs de perte -l'irréversibilité du module de flexion après vieillissement	[70]
Chanvre-Polypropylène	Taux d'humidité relative de 80% à 20 °C	Essai d'arrachement (Pull-out)	- Diminution de la force d'arrachement maximale. - Diminution de la résistance au cisaillement interfacial "IFSS".	[122]
Lin-époxyde Lin-elium	Immersion dans l'eau du robinet à température ambiante	Traction monotone Traction en charge-décharge.	- Diminution de la rigidité d'environ 10% dans les composites vieillis. - Endommagement considérable illustré par l'effet de félicité	[68]
Lin-époxyde verte	Immersion dans l'eau distillée à 40° et 60°C	Traction monotone	- Diminution du module d'Young et de la résistance à la traction.	[124]

		Flexion à trois points.	- Réduction de la résistance à la flexion et du module de flexion.	
		Résistance au cisaillement interlaminaire.	- Diminution de la résistance au cisaillement interfacial "IFSS".	
Lin non tissé - époxyde	Immersion dans l'eau du robinet à 45°	Traction monotone à 23°, 50° et 75°C	- L'augmentation de la température de test favorise la perte des propriétés en traction	[131]
		Fatigue cyclique à 23°, 50° et 75°C	- Le couplage vieillissement et température conserve le comportement global en fatigue à faible température	
			- Diminution de l'énergie de dissipation et augmentation du facteur de perte à 75°C	
Lin-bio époxyde	Immersion dans l'eau distillée à température ambiante	Traction monotone	- Réduction du module d'Young, du module de flexion, de la résistance à la traction et de la résistance à la flexion	[132]
	Taux d'humidité relative de 75% à 45 °C	Flexion à trois points.	- Faible impact des cycles gel/dégel sur les propriétés en traction et en flexion	
	Congélation à -18°C dégel à température ambiante		- Réversibilité des propriétés mécaniques après séchage à l'exclusion de la contrainte à la rupture	

1.7. Matériaux composites à renfort hybride

1.7.1. Généralités

Les fibres végétales en général et les fibres de lin en particulier ont suscité une attention croissante en tant que renfort des matériaux composites, en raison de leur faible impact environnemental par rapport aux fibres de carbone ou de verre [133,134]. Toutefois, certains inconvénients, comme leurs faibles résistances et leur sensibilité à l'humidité [91,135],

restreignent l'application des composites à fibres de lin, notamment dans les composants structurels.

L'hybridation des fibres de lin et des fibres synthétiques est considérée comme une méthode efficace, qui peut combiner les avantages des fibres de lin (faible impact environnemental, faible coût, bonnes performances dynamiques) et des fibres synthétiques (bonne résistance mécanique et hydrothermique).

1.7.2. Effet de l'hybridation sur le comportement mécanique

Dans le but d'améliorer les propriétés mécaniques des composites renforcés par des fibres végétales, l'hybridation « fibres végétales-fibres synthétiques » permet d'améliorer certaines de leurs propriétés mécaniques. De nombreux travaux de recherche ont étudié l'effet de cette hybridation sur divers aspects [70,136–151]. Par exemple, Dhakal et al.[151] ont étudié l'effet de deux hybridations lin-carbone UD et plis croisés de lin-carbone préimprégnés sur les propriétés mécaniques, thermiques et hygroscopiques des composites hybrides. Les auteurs ont constaté que les composites hybride lin-carbone UD présentent un comportement compétitif comparé à celui du composite à fibres de carbone UD.

La valeur du module de flexion des composites de lin à plis croisés et UD a été enregistrée à environ 7 et 20 GPa respectivement. L'hybridation avec les fibres de carbone permet d'augmenter ces deux modules de 43% et 45%, respectivement. De même, les résultats obtenus montrent que la stabilité thermique et le comportement hygroscopique des échantillons hybrides sont nettement améliorés par rapport à ceux sans hybridation.

L'influence de l'hybridation sur des composites à base d'une résine phénolique renforcée par des fibres de lin et de verre UD a été étudiée par Zhang et al [139] en variant la fraction volumique des fibres de verre. Les auteurs ont également étudié l'impact de la séquence d'empilement des plis de lin et de verre. Les résultats obtenus montrent que la séquence d'empilement a une influence évidente sur la résistance à la traction et la déformation de rupture en traction des composites hybrides, mais pas sur les modules de traction. De plus, le composite à fibres de verre présente des propriétés mécaniques élevées comparées à celles du composite à fibres de lin comme le montre la figure 1.22.a. L'allongement à la rupture des composites hybrides s'avérait être proportionnel à la fraction volumique des fibres de verre (1.22.b.). Ils ont aussi montré qu'avec l'augmentation de la fraction volumique des fibres de verre, les propriétés mécaniques, notamment le module d'Young des composites hybrides, s'améliorent.

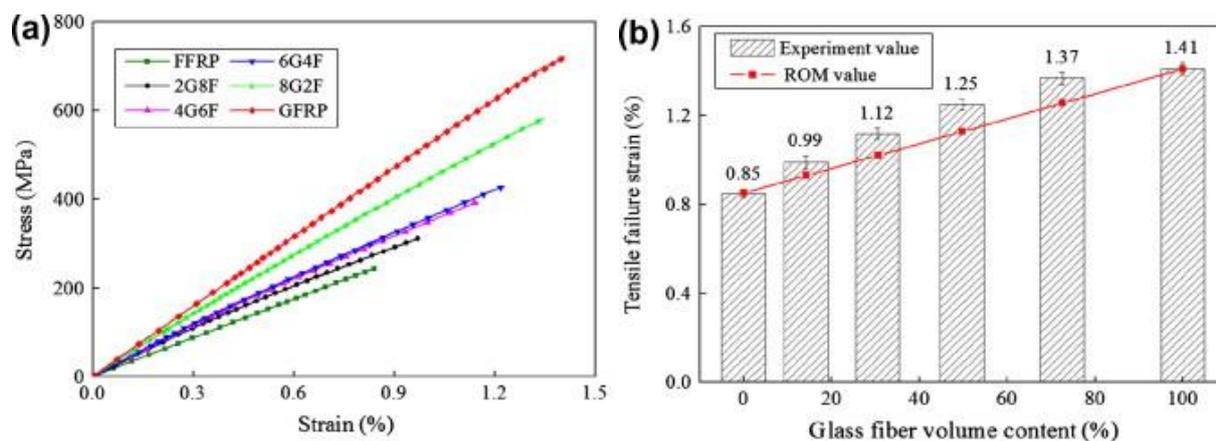


Figure 1.22: (a) Courbes de traction de composites hybrides lin-verre et (b) évolution de leurs déformations à la rupture en fonction de la fraction volumique des fibres de verre [139].

Une approche similaire a été adoptée par Saidane et al. [149] sur des composites hybrides lin-verre/époxyde sollicités en traction monotone. Les auteurs ont utilisé un modèle théorique, basé sur la loi des mélanges (figure 1.23), pour prédire le module de traction de ces composites hybrides. Les résultats obtenus montrent que la séquence d'empilement affecte les propriétés mécaniques des composites hybrides. Le module d'Young et la résistance à la traction spécifique des stratifiés à fibres de lin sont considérablement améliorés par l'incorporation des fibres de verre. Par exemple, l'ajout de 6% de fibres de verre augmente le module et la résistance du stratifié $[V/L_4]_s$ (huit plis de lin et deux de verre) d'environ 8 % et 30 %, respectivement. Cette augmentation du module de traction et de la résistance des stratifiés hybrides est due au fait que la fibre de verre est plus rigide que la fibre de lin. D'autre part, une augmentation de la déformation à la rupture de 8% et de 15% a été observée pour les stratifiés hybrides $[V/L_4]_s$ et $[V_2/L_3]_s$, respectivement, par rapport aux stratifiés en fibres de lin. Ceci peut être expliqué par le fait que le pourcentage d'élongation à la rupture de la fibre de verre (2 % - 4,8 %) est supérieur à celui de la fibre de lin (1,2 % - 1,6 %).

Dans un travail plus récent, Silva et al [150] ont étudié la résistance à l'impact à basse vitesse de composites lin-époxyde verte et l'effet de l'hybridation par l'introduction de fibres de verre (4 et 6 plis) sur ces composites. Les résultats des tests d'impact montrent que la charge d'impact augmente avec l'ajout des couches de verre, contrairement au déplacement des plis qui diminue. Par exemple, la charge d'impact maximale, pour 11 J, augmente de 75,2% et de 178% entre le stratifié non hybride de lin et les hybrides à 4 et 6 plis de verre, respectivement. Un comportement opposé se produit pour le déplacement des plis avec une diminution d'environ

46% et 58,4%, respectivement, pour les stratifiés hybrides. Les auteurs ont également observé que la résistance résiduelle est plus élevée pour les composites

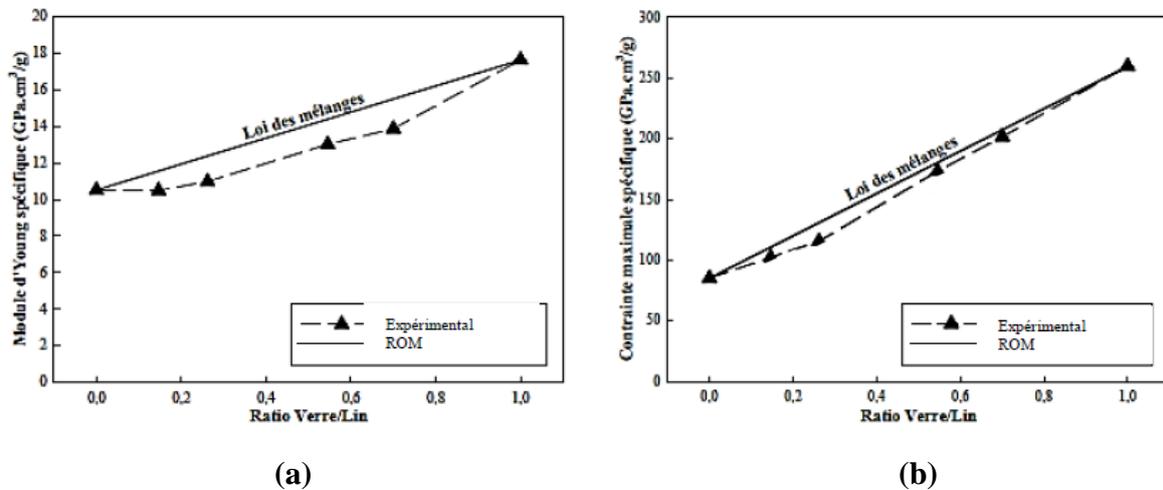


Figure 1.23: Évolution des propriétés mécaniques des composites hybrides lin-verre/époxyde en fonction de la teneur volumique en fibres de verre : (a) module d'Young et (b) résistance à la traction[149].

D'après ces différentes études, l'hybridation modifie considérablement le comportement mécanique des composites renforcés par des fibres végétales. En effet, le composite hybride présente généralement des propriétés intermédiaires entre les composites à fibres synthétiques et les composites à fibres végétales.

1.7.3. Effet de l'hybridation sur l'absorption d'eau.

En raison de la sensibilité des composites à fibres végétales à l'humidité, la caractérisation mécanique seule des composites hybrides reste insuffisante. C'est dans ce contexte que l'effet de l'hybridation sur la cinétique de diffusion de l'humidité et les propriétés mécaniques de composites hybrides lin-verre a été évalué dans divers travaux de la littérature [70,115,138,149,151–162]. Saidane et al [149] ont testé le comportement en traction des stratifiés à renfort sergé de lin et de verre sous environnement humide.

Les résultats montrent que l'hybridation lin-verre améliore la résistance à l'humidité des composites hybrides, en réduisant leur teneur maximale en eau, leurs coefficients de diffusion et leur gonflement suivant l'épaisseur (figure 1.24). De plus, comparée au composite à fibres de lin, l'hybridation lin-verre réduit nettement les pertes des propriétés mécaniques après immersion dans l'eau à 20°C.

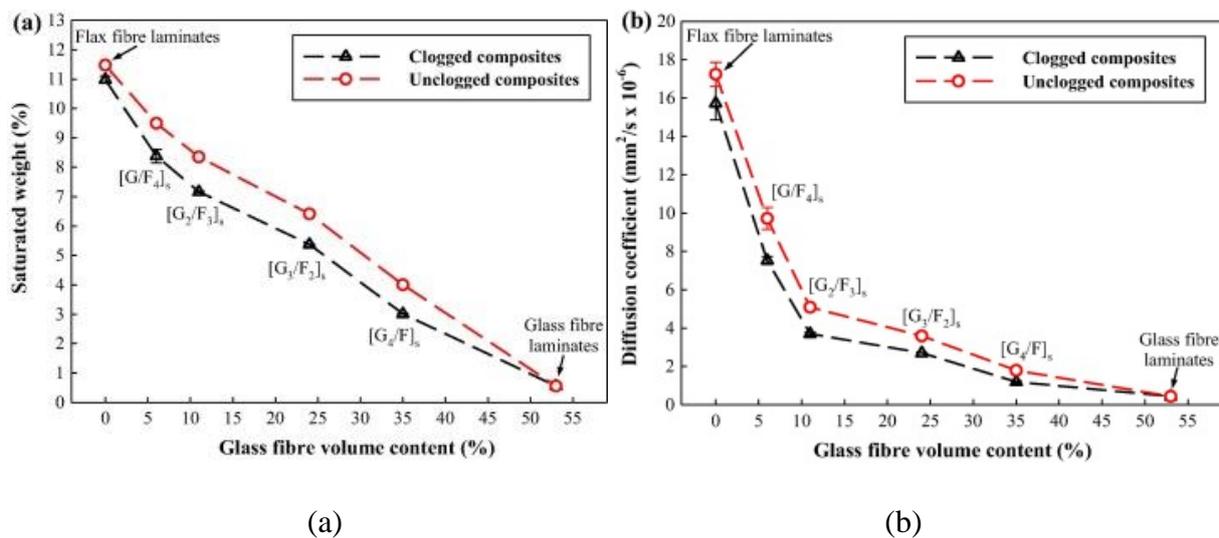


Figure 1.24: Évolution des paramètres de diffusion en fonction de la teneur volumique en fibres de verre : (a) teneur maximale en eau et (b) coefficient de diffusion [149].

Des conclusions similaires ont été émises par Panthapulakkal et al. [152,160] dans le cas de composites hybrides à base de matrice polypropylène, renforcée par des fibres courtes de chanvre et de verre, immergés dans l'eau distillée à différentes températures. Les auteurs ont montré que l'hybridation chanvre-verre augmente significativement la résistance à l'humidité des composites hybrides. En comparaison au composite chanvre-PP, l'ajout de 5% et 15% de fibres de verre entraîne une diminution de la masse à saturation d'environ 10% et 40% respectivement, dans les composites hybrides.

L'impact de l'hybridation et le vieillissement hygrothermique sur le comportement en traction et en flexion de composites hybrides lin-carbone a été étudié par Cheng et al. [162]. Ces auteurs ont élaboré par thermocompression trois configurations en modifiant la position de la couche de carbone. Les résultats obtenus montrent qu'après le vieillissement hygrothermique, les modules de rigidité en traction et en flexion des stratifiés hybrides diminuent tandis que la déformation à la rupture en traction a augmenté, principalement en raison de la plastification et de la détérioration de l'interface fibre/matrice. Les fibres de carbone réduisent la quantité d'eau absorbée dans les composites hybrides et améliorent leurs propriétés mécaniques. Cette amélioration est plus prononcée lorsque les fibres de carbone étaient placées dans les couches extérieures des composites. Cependant, l'interface entre la couche de carbone et la couche de lin est vulnérable aux attaques hygrothermiques et au délaminage.

Dans une autre étude, Calabrese et al. [161] ont évalué la durabilité et la stabilité mécanique de composites hybrides verre-lin/époxyde soumis à un vieillissement par brouillard salin. Les auteurs ont analysé l'effet de l'hybridation sur l'absorption d'eau, le comportement en flexion

et les propriétés mécaniques dynamiques des composites hybrides. Les résultats obtenus montrent que l'ajout de six plis de verre UD permet d'améliorer la résistance à la flexion de 90% et le module d'Young de 128% par rapport au composite non hybride lin-époxyde. L'ajout des fibres de verre à l'extérieur du composite à fibres de lin le rend moins sensible à l'humidité et offre une meilleure stabilité mécanique et dynamique aux composites hybrides.

Dans un travail récent, Cheour et al.[115] ont étudié l'effet de l'immersion à long terme dans l'eau de composites hybrides quasi UD lin-verre/époxyde avec différentes séquences d'empilement sur leurs propriétés mécaniques et d'amortissement. Les résultats obtenus montrent que la masse à saturation et le coefficient de diffusion des composites hybrides dépendent fortement de la séquence d'empilement entre les couches de lin et de verre. Par exemple, la saturation en eau a été atteinte en moins de 25 jours pour une configuration de renforts lin en couches extérieures. En revanche, 10 mois étaient nécessaires pour une saturation avec renforts lin en couches intérieures. Par rapport au composite à fibres de lin, le comportement mécanique du stratifié hybride lin-verre avec deux couches internes de lin et deux couches externes de verre s'avère être le plus satisfaisant en termes d'amortissement et de module de flexion. Cette configuration permet une augmentation significative des modules de flexion et de flexion spécifique (+38 % et +79 %, respectivement, par rapport au stratifié lin-époxyde non vieilli). Elle permet de plus un ralentissement considérable du phénomène de diffusion, tout en limitant la perte des propriétés.

D'après les travaux de la littérature, il s'avère que le nombre d'études sur l'effet de l'hybridation et du vieillissement hygrothermique sur l'endommagement mécanique, dû à la perte de rigidité durant les essais cycliques de charge-décharge, reste limité. À cet effet, nous nous intéressons dans le chapitre 4 de la présente étude à l'analyse de l'impact du vieillissement hydrique sur la perte de rigidité de composites hybrides lin-verre/époxyde soumis à des cycles de charge-décharge.

1.8. Analyse par éléments finis du comportement hygro-mécanique

La caractérisation expérimentale permet d'évaluer la durabilité et les propriétés mécaniques des composites renforcés par des fibres de lin au cours de leur exposition à des environnements humides. Néanmoins, la variabilité des propriétés physiques, diffusives et mécaniques des fibres de lin et leur taille réduite rendent leur caractérisation expérimentale difficile, notamment lorsqu'il s'agit d'analyser leur comportement diffusif ainsi que les différents phénomènes induits par la diffusion d'eau. Pour ces raisons, le recours à la modélisation par la méthode des éléments finis s'imposerait pour une meilleure prédiction du comportement diffusif et hygro-

mécanique des composites à fibres de lin ainsi leurs constituants au plus près des conditions réelles d'utilisation.

1.8.1. Modèles hygroscopiques et hygro-élastiques découplés

Le recours à une modélisation, notamment numérique, peut être considérée comme une alternative pour surmonter certaines difficultés expérimentales. Plusieurs chercheurs se sont intéressés principalement à la modélisation homogène des composites à fibres végétales en utilisant la méthode des éléments finis, basée sur le modèle de Fick [103,163–167]. Par exemple, Regazzi et al. [163] ont modélisé la diffusion de l'humidité, le gonflement hygroscopique et la plastification du poly- acide-lactique (PLA), utilisé comme matrice d'un composite lin-PLA, et du composite lui-même. Pour décrire la cinétique diffusion d'eau au sein des matériaux étudiés, le modèle de Fick est adopté. Le gonflement et la déformation hygroscopique sont considérés comme étant proportionnels à la teneur en eau locale. Enfin, pour modéliser la plastification, les fonctions polynomiales du troisième degré sont implémentées dans le modèle numérique pour fournir des modules locaux dépendant de la teneur en eau locale. Les résultats des simulations se sont avérés être en adéquation avec les résultats expérimentaux, étant donné qu'aucun mécanisme irréversible ne se produisait comme la relaxation ou l'hydrolyse du polymère pouvant apparaître à température élevée (proche de 50°C). De même, Jain et al. [164] ont étudié la diffusion d'humidité dans des composites agave-époxyde en considérant une modélisation homogène utilisant des éléments finis 3D (figure 1.25). Les fibres ont une longueur moyenne de 2,8 m et un diamètre compris entre 100 et 150 μm . L'effet du traitement préalable des fibres d'agave par maturation alcaline sur le comportement hygroscopique des composites est analysé. Les résultats expérimentaux ont révélé une forte influence de la maturation alcaline sur l'amélioration de la durabilité des fibres d'agave. Les coefficients de diffusion effectifs sont déduits en utilisant le facteur de correction du bord et en appliquant la loi de Fick pour le calcul inverse. Les résultats des simulations éléments finis utilisant les coefficients de diffusion effectifs ont permis une bonne prédiction de l'absorption d'humidité dans les composites agave-époxyde.

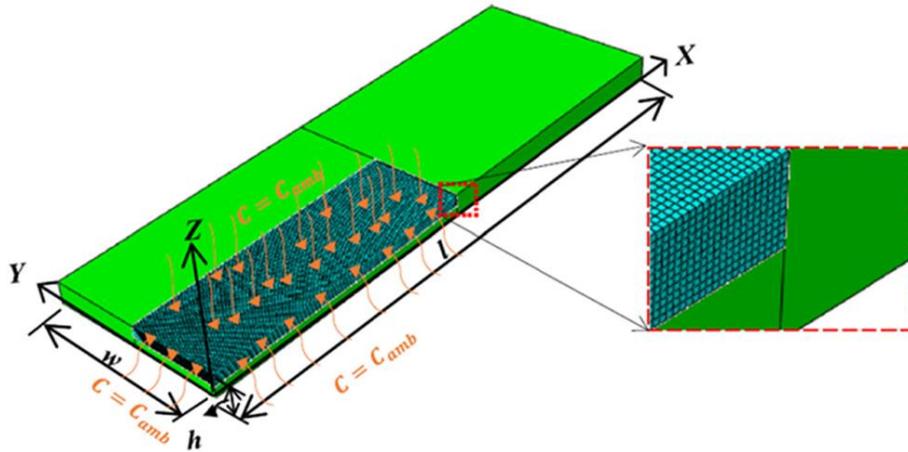


Figure 1.25: Modèle homogène de diffusion de l'humidité au sein d'un composite agave-époxyde [164].

Contrairement à ces modèles éléments finis homogènes, les travaux qui traitent de la modélisation hétérogène de diffusion d'humidité au sein des composites renforcés par des fibres végétales restent limités [127,168–171]. Par exemple, Chilali et al. [127] ont considéré l'hétérogénéité de composites à matrice époxyde renforcés de tissu sergé de lin en utilisant deux modèles géométriques [0/90] et elliptique pour décrire l'ondulation des tissus. Les simulations numériques, basées sur l'analyse « **MASS DIFFUSION** » du logiciel de calcul par EF ABAQUS, ont permis d'estimer le coefficient de diffusion radial et le coefficient d'expansion hygroscopique de la fibre de lin à l'aide d'une approche inverse exploitant les données expérimentales. Les résultats des simulations ont montré que le coefficient de diffusion de la résine époxyde doit être adapté afin de décrire correctement la courbe expérimentale d'absorption d'eau. Ceci indique que les comportements de diffusion de la résine époxyde pure et de la fibre de lin sont modifiés lorsqu'ils sont associés ensemble au sein d'un même composite.

Dans une autre étude, Zouari et al. [168] ont développé un élément fini triangulaire de membrane à trois nœuds pour analyser le comportement hygroscopique d'un composite à matrice époxyde renforcée par un tissu de lin sergé 2/2, vieilli par immersion totale dans de l'eau de robinet à température ambiante. Pour tenir compte de l'hétérogénéité du composite lin-époxyde dans le modèle éléments finis, ils ont considéré une description sinusoïdale de l'ondulation du tissu de lin (figure 1.26). L'étude numérique de l'effet de l'épaisseur sur le comportement hygroscopique du composite lin-époxyde a permis de montrer que les coefficients de diffusion de la matrice époxyde et de la fibre de lin suivent une évolution exponentielle en fonction de l'épaisseur du composite.

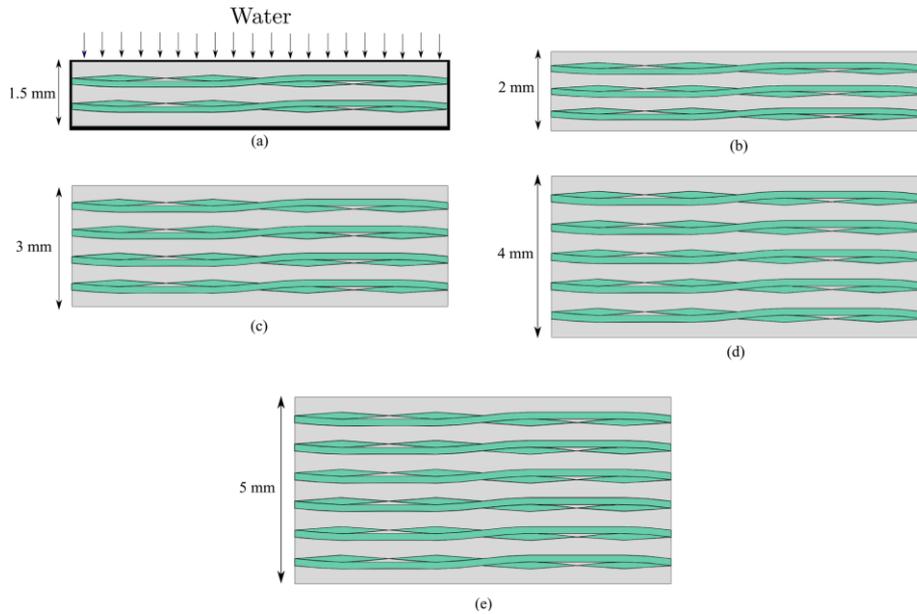


Figure 1.26: Modélisation plane de la diffusion d'eau au sein d'échantillons composites de lin-époxyde : (a) échantillon de 3 mm d'épaisseur (4 couches) (b) échantillon de 4 mm d'épaisseur (6 couches) (c) échantillon de 6 mm d'épaisseur (8 couches) et (d) échantillon de 10 mm d'épaisseur (12 couches) [168].

D'après cette recherche bibliographique non exhaustive sur la modélisation du comportement hygroscopique, il s'avère que le nombre de travaux concernant la modélisation éléments finis basés sur le modèle de Langmuir est limité. À cet effet, nous nous sommes intéressés (chapitre 3 de la présente étude) à la modélisation et à l'implémentation d'un nouvel élément hygroscopique basé sur le modèle de Langmuir afin de décrire le phénomène de diffusion d'eau dans les matériaux composites renforcés par des fibres de lin.

D'autre part, l'absorption d'eau dans les composites à fibres végétales engendre un gonflement différentiel entre le renfort, fortement hydrophile, et la matrice, faiblement hydrophile. Ce gonflement est à l'origine des contraintes mécaniques internes dites contraintes hygroscopiques. En effet, dans le cas des composites à fibres synthétiques, les renforts sont souvent hydrophobes et empêchent la résine de gonfler, ce qui crée également des contraintes internes [172]. Dans le cas des composites à fibres végétales, les renforts possèdent généralement un coefficient d'expansion hygroscopique plus important que la matrice [173–175], ce qui peut générer des contraintes internes plus accentuées que celles engendrées dans le cas des composites à fibres synthétiques. À cet effet, la modélisation numérique par éléments finis est considérée pour estimer les contraintes internes induites par l'absorption d'humidité, notamment dans les composites à fibres synthétiques [176–182]. Contrairement aux études relatives aux composites à fibres synthétiques, le nombre de contributions traitant de la

modélisation numérique du comportement hydroélastique des composites à fibres végétales reste relativement limité dans la littérature [121,127,165,166].

Par exemple, Perón et al. [165] ont développé un modèle hygromécanique basé sur la méthode des différences finies, dans lequel le problème de diffusion est d'abord résolu, ce qui permet de déterminer la distribution de la teneur en eau dans des stratifiés UD lin-polypropylène. Ensuite, le problème mécanique est résolu en prenant en compte le gonflement hygroscopique dû à la teneur en eau précédemment calculée. Ils ont constaté que la plupart des plis sont soumis à une contrainte de compression dans la direction transversale des fibres de lin. Dans un autre travail, Chilali et al. [127] ont considéré l'analogie température-déplacement dans leur modèle éléments finis pour estimer la contrainte interne induite par le gonflement hygroscopique dans des échantillons lin-époxyde vieilliss par immersion dans l'eau de robinet. En particulier, ils ont montré la forte concentration de contraintes à l'interface fibre/matrice induite par le gonflement différentiel entre les fibres de lin et la matrice époxyde. Des pics de concentration de contraintes atteignant 300 MPa ont été estimés (figure 1.27), dépassant largement la résistance ultime à la traction des échantillons lin-époxyde.

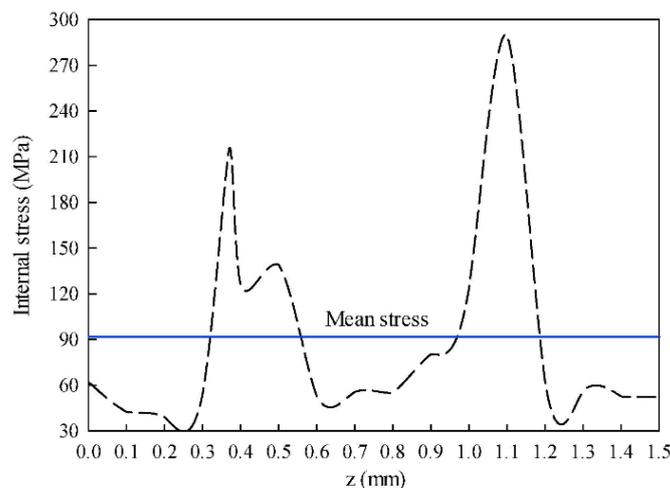


Figure 1.27: Distribution de la contrainte moyenne de von Mises à saturation au milieu d'échantillons lin-époxyde soumis à un vieillissement hydrique [127].

1.8.2. Modélisation du couplage Mécanique-Diffusion

Le modèle de Fick, qui suppose que les paramètres diffusifs des composites sont constants, est largement utilisé dans les calculs numériques, principalement en raison de la simplicité de sa formulation similaire au problème de conduction thermique de Fourier. Ce modèle est déjà implémenté dans la plupart des codes d'éléments finis industriels. Cependant, plusieurs travaux expérimentaux ont mis en évidence une dépendance du phénomène de diffusion de l'humidité vis-à-vis du champ mécanique, tant pour la résine pure que pour les échantillons composites

[129–133]. Ce couplage entre la cinétique de diffusion et les états mécaniques a été mis en exergue par le biais de tests de vieillissement sous sollicitations mécaniques. Il permet ainsi de mettre en évidence une relation non linéaire entre les contraintes appliquées et la diffusivité globale (ou macroscopique) des échantillons étudiés.

Dans cette partie, nous présentons brièvement deux approches pour modéliser le couplage hygro-mécanique. La première s'inscrit dans le cadre de la thermodynamique à travers le potentiel chimique de l'eau, et la seconde, empirique, est issue de la théorie du volume libre.

➤ Approches thermodynamiques

La notion du couplage entre le phénomène de diffusion et l'état mécanique fut introduite par Weismann [81,183] qui suppose que le comportement mécanique, en particulier viscoélastique du polymère, génère un couplage avec le problème de diffusion. Plus récemment, des chercheurs ont essayé de formaliser ce couplage, à l'aide de la thermodynamique des processus irréversibles [184–186]. Celui-ci est exprimé à travers le potentiel chimique de l'eau μ_e^0 :

$$\mu_e^0 = \frac{\partial F}{\partial n_e} \quad (1.2)$$

Ce potentiel chimique dérive de l'énergie libre de Helmholtz, notée F , par rapport à la quantité d'eau n_e .

L'écriture de l'énergie libre comporte un terme dépendant de la teneur en eau et un autre dépendant des propriétés du matériau afin d'assurer le couplage entre les deux phénomènes physiques :

$$F = F_0 + n_p f_e(c) + V_p W \quad (1.3)$$

où F_0 est l'énergie libre de Helmotz du polymère sec et n_p est le nombre de moles de polymère contenues dans le volume V_p . De plus, $f_e(c)$ est la variation d'énergie libre due à l'absorption de l'eau et w l'énergie élastique par unité de volume ($W = \frac{1}{2} \sigma \cdot \varepsilon$). La contrainte mécanique est liée à la déformation en utilisant la relation suivante :

$$\sigma = H \cdot (\varepsilon - \beta_{hyg} \cdot c) \quad (1.4)$$

où H est la matrice d'élasticité, c la teneur en humidité et β_{hyg} le vecteur d'expansion hygroscopique.

Cette approche a été appliquée par Sar et al. [184]. Ces derniers ont utilisé l'approche thermodynamique pour décrire le comportement hygroscopique d'échantillons d'époxyde pure soumis à des pressions variables. Les résultats de leurs simulations numériques ont montré que lorsque la pression appliquée augmente le phénomène de diffusion est ralenti (figure 1.28).

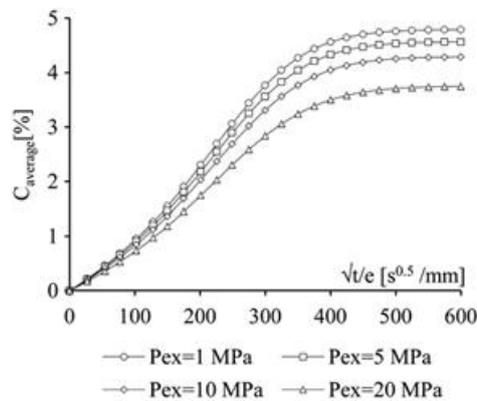


Figure 1.28: Effet de la pression appliquée sur la teneur moyenne en humidité au sein d'échantillons d'époxyde pure [184].

L'approche thermodynamique implique généralement de nombreuses variables d'état internes qui sont parfois difficiles à caractériser expérimentalement surtout pour les composites renforcés par des fibres végétales. Actuellement, l'approche thermodynamique hygromécanique est formalisée uniquement pour des polymères purs [184–186].

➤ Approche du volume libre

L'approche du volume libre suppose que, le couplage entre le coefficient de diffusion et le champ mécanique soit exprimé principalement en utilisant le tenseur des déformations [187]. Ce choix suppose que la mobilité des molécules d'eau dans le réseau polymérique est physiquement liée à l'espace disponible incarné par le volume libre V^l . Ce volume est défini comme la différence entre le volume observable macroscopique V et le volume réel occupé par les molécules de polymère V_p coloré en rouge sur la figure 1.29.

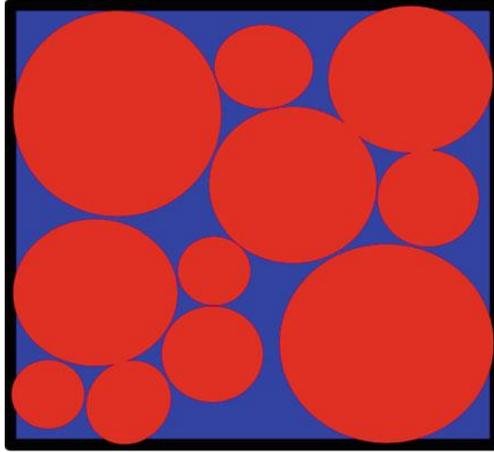


Figure 1.29: Le volume libre dans un échantillon de résine pure. Les zones rouges représentent les régions occupées par le polymère et les zones bleues le volume libre existant entre les molécules de polymère[182].

En supposant que la diffusivité est liée au volume libre par l'équation de Doolittle modifiée [187,188], le rapport entre la diffusivité du polymère dans un état de déformation donné $D(\varepsilon, t)$ et la valeur de référence correspondante à l'état sans déformation D^0 est exprimé par l'équation suivante:

$$\ln\left(\frac{D(\varepsilon, t)}{D^0}\right) = a\left(\frac{1}{V_0^l} - \frac{1}{V^l(\varepsilon, t)}\right) \quad (1.5)$$

Où V_0^l et $V^l(\varepsilon, t)$ sont respectivement les fractions volumiques libres du polymère sans déformation et du polymère déformé, et a est un paramètre lié au matériau déterminé à partir de résultats expérimentaux.

Il est possible de relier $V^l(\varepsilon, t)$ et V_0^l dans le cadre de l'hypothèse des petites déformations par la relation suivante :

$$V^l(\varepsilon, t) = V_0^l + \frac{\Delta V(\varepsilon, t)}{V_0} \quad (1.6)$$

où $\Delta V(\varepsilon, t)$ est la variation de volume induite par la charge mécanique et V_0 le volume dans un état libre de toute contrainte.

En considérant des déplacements faibles, le rapport $\frac{\Delta V(\varepsilon, t)}{V_0}$ peut être approché par la trace du tenseur des déformations noté $tr\varepsilon$. De ce fait, l'équation (1.6) peut être écrite sous la forme suivante :

$$D(\varepsilon, t) = D_0 \exp\left(\frac{a \, tr\varepsilon}{V_0^l (V_0^l + tr\varepsilon)}\right) \quad (1.7)$$

Nous pouvons déjà remarquer que lorsque l'échantillon est en traction ($tr\varepsilon > 0$), le coefficient de diffusion $D(\varepsilon, t)$ augmente. Inversement, en compression, $D(\varepsilon, t)$ diminue, ce qui est conforme à quelques résultats expérimentaux [182,184].

Dans la littérature, l'approche du volume libre était utilisée exclusivement pour décrire le couplage hygro-mécanique dans les résines pures et les composites à fibres synthétiques [182,187,189]. Par exemple, dans le travail de Pert et al. [182], les auteurs ont comparé les résultats de deux modèles hygro-élastiques basés sur la loi de Fick classique en supposant une diffusivité constante et une diffusivité dépendant de la déformation pour une résine époxyde pure et un composite verre-époxyde. Les résultats sur les contraintes et la teneur en humidité ont montré une différence entre les deux modèles pendant la phase transitoire du processus de diffusion de l'humidité.

D'après les résultats de cette recherche bibliographique non exhaustive sur la modélisation des comportements hygroélastique des matériaux composites, il s'avère que le nombre de travaux concernant la modélisation par éléments finis du comportement hygroélastique des matériaux composites à fibres végétales est limité. Dans cette optique, nous nous sommes intéressés dans le chapitre 5 de la présente étude à la modélisation et l'implémentation d'éléments finis hygroélastiques à diffusivité constante basée sur les modèles de Fick et de Langmuir.

1.9. Conclusion

Ce chapitre a consisté en une synthèse bibliographique sur des matériaux composites biosourcés, à matrices polymériques renforcées par des fibres végétales, notamment la fibre de lin. Après une présentation des fibres végétales (composition, structure, comportement mécanique) et de la fibre de lin en particulier, réputée pour ses bonnes propriétés spécifiques, comparables à celles de la fibre de verre, une attention particulière s'est portée sur la sensibilité des composites à fibres végétales à l'humidité et à la température qui constituerait une entrave majeure à leur développement.

Les travaux présentés dans ce chapitre ont montré que l'hybridation entre des fibres de lin et des fibres synthétiques, telles que le verre, peut améliorer les propriétés mécaniques et la résistance à l'absorption d'eau des composites hybrides. D'autre part, les études relatives à la modélisation numérique par éléments finis de la diffusion d'eau dans les composites à fibres de lin, basées sur le modèle de Fick et de Langmuir découplés, mettent l'accent sur le niveau de

contraintes d'origine hygroscopique. Ces contraintes peuvent induire des endommagements microstructuraux et conduire à des variations des propriétés mécaniques.

Chapitre 2

Caractérisation mécanique des matériaux de l'étude

2.1. Introduction

Le présent chapitre est consacré à la présentation des matériaux, du procédé de leur mise en œuvre et des méthodes expérimentales utilisées dans le cadre de ce travail doctoral. Dans un premier temps, les constituants choisis pour élaborer les composites non hybrides et hybrides lin-verre sont présentés. Ensuite, l'analyse de leur comportement en traction est présentée dans le but de mettre en évidence l'effet de l'ajout des fibres de verre aux composites renforcés par des fibres de lin. Cette hybridation procure aux composites lin-époxyde plus de rigidité et des propriétés mécaniques plus élevées.

2.2. Présentation des constituants

2.2.1. La résine époxyde

Dans ce projet doctoral, nous nous intéressons aux résines époxydes, en raison de leurs propriétés mécaniques intéressantes, leur facilité de préparation, leur faible retrait lors du durcissement et leur bonne adhésion à une grande variété de renforts. Notre choix s'est porté sur une résine époxyde de type SR 8100 commercialisée par la société SICOMIN. Elle est développée dans différents domaines, tels que la construction navale et l'aéronautique, et permet la production de pièces de petite et de grandes tailles, en offrant un temps de cycle réduit. La résine SR 8100 présente les caractéristiques suivantes :

- Hautes performances mécaniques ;
- Très faible viscosité ;
- Développée spécialement pour l'injection à basse pression et l'infusion ;
- Résistance à la température.

Le durcisseur utilisé est fourni par la même société SICOMIN sous l'appellation SD 8823. Il permet d'obtenir d'excellentes propriétés mécaniques à température ambiante. Le système SR 8100 /SD 8823 offre une résistance à la température jusqu'à 80°C.

Les cycles de polymérisation proposés par le fournisseur consistent d'abord à effectuer une réticulation de 24 heures à température ambiante, suivie d'une deuxième de 24 heures à 40°C ou de 16 heures à 60°C à un taux d'humidité de 10%.

Ces cycles de polymérisation permettent d'obtenir une réticulation complète du mélange-résine-durcisseur. Le tableau 2.1 résume les propriétés physiques et mécaniques de la résine époxyde utilisée pour un cycle de 24 heures à température ambiante suivi de 24 heures à 40°C à un taux d'humidité de 10%.

Tableau 2.1: Propriétés de la résine époxyde (données du fabricant).

Propriétés	Epoxyde SR 8100/ SD	Normes
	8823	
Masse volumique (kg/m ³)	1158	NF EN ISO 2811-1
Viscosité à 20° (M.Pa.s)	340	NF EN ISO 2811-1
Température de Transition vitreuse (°C)	64	ISO 11357-2 : 1900
Module d'Young (MPa)	3200	
Résistance maximale en traction (MPa)	66	NF T51-034
Résistance à la rupture en traction (MPa)	66	
Allongement à la rupture en traction (%)	2,6	

2.2.2. Le FlaxTape

Dans cette étude, le renfort en fibres de lin choisi se présente sous forme d'un voile de fibres unidirectionnelles (UD), commercialisé par la société LINEO sous le nom de FlaxTape200 (figure 2.1). Le maintien des fibres de lin au sein du voile est assuré par une étape supplémentaire lors du procédé de mise en forme des rouleaux. Celle-ci consiste à pulvériser de la vapeur d'eau au niveau de la surface des fibres de lin, puis à appliquer une légère compression afin de maintenir le rouleau [56,190]. Ceci entraîne la réactivation des couches externes de pectine qui agissent comme un ciment naturel permettant ainsi de coller légèrement les fibres les unes aux autres [190]. Ce traitement facilite également l'extraction et la manipulation des fibres sans perturber leur positionnement dans le voile [190]. Le tableau 2.2 résume les propriétés physiques et mécaniques de ce renfort utilisé.



Figure 2.1: Rouleau de renfort UD de Flaxtape 200.

Tableau 2.2 : Les principales propriétés physiques et mécaniques du renfort Flaxtape 200.

Caractéristiques physiques			
Masse surfacique (g/m ²)	Masse volumique (kg/m ³)	Référence	
200	1450	Fabricant	
Caractéristiques mécaniques			
Module d'Young (GPa)	Contrainte à la rupture (MPa)	Allongement à la rupture (%)	Référence
35-75	450-1035	1,35-3,5	[29,190]

2.2.3. Les fibres de verre

Les fibres de verre offrent un excellent rapport performance-prix, une haute résistance aux agressions de produits chimiques, une bonne résistance en traction et d'excellentes propriétés d'isolation.

Dans ce cette étude, nous considérons un tissu quasi-unidirectionnel de fibres de verre, fourni par l'entreprise SICOMIN. Ces fibres sont compatibles avec les résines époxydes et conviennent pour toutes applications composites. Tout comme le renfort Flaxtape 200, ces fibres sont livrées sous forme de rouleaux de tissu (figure 2.2). Le tableau 2.3 résume les propriétés physiques et mécaniques des fibres de verre.

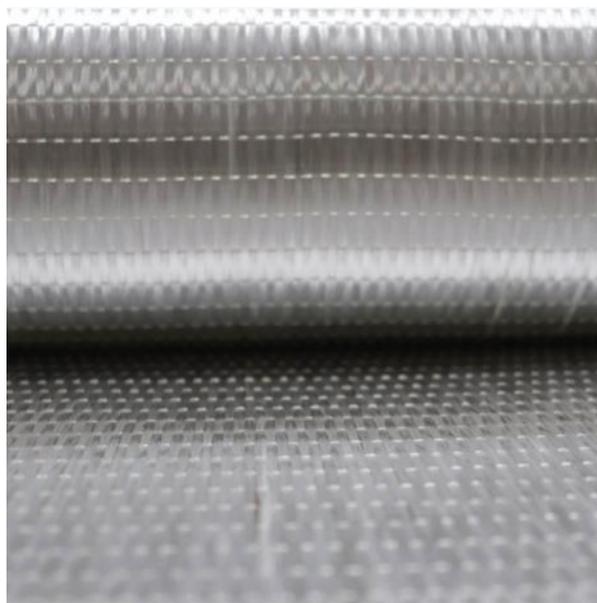


Figure 2.2 : Renfort quasi-UD aux fibres de verre utilisé pour l'élaboration des composites de l'étude.

Tableau 2.3: Les propriétés physiques et mécaniques principales des fibres de verre.

Caractéristiques physiques			
Masse surfacique (g/m ²)	Masse volumique (kg/m ³)	Référence	
300	2540	Fabricant	
Caractéristiques mécaniques			
Module d'Young (GPa)	Contrainte à la rupture (MPa)	Allongement à la rupture (%)	Référence
74	2500	4,8	Fabricant

2.3. Mise en œuvre des composites non hybrides et hybrides

Plusieurs techniques existent pour la mise en œuvre des matériaux composites telles que les procédés de moulage par injection, le moulage au contact, la thermocompression et l'infusion sous vide. La mise en œuvre des matériaux composites utilisés dans ce travail a été effectuée à l'aide de la technique d'infusion sous vide. Cette technique présente de nombreux avantages comme son coût réduit, son taux volumique de fibres relativement important obtenu pour les fibres de lin (35%) et pour les fibres synthétiques (50%). La technique de l'infusion sous vide permet également d'obtenir un taux porosité faible en comparaison aux composites obtenus par moulage en contact en raison de l'évacuation des bulles d'air résiduelles dans la préforme due à la technique du tirage de vide.

L'infusion d'une résine consiste à faire passer celle-ci à travers l'épaisseur d'un empilement de tissus secs. L'écoulement de la résine est engendré par une dépression créée à l'aide d'une pompe à vide. La préforme est disposée sur un moule rigide, préalablement ciré avec un agent démoulant. Ensuite, un tissu d'arrachage est placé sur cette préforme pour faciliter son démoulage après durcissement. Enfin, un tissu drainant et un tissu micro-perforé sont déposés au-dessus du tissu d'arrachage afin d'améliorer la répartition de la résine et favoriser son écoulement. L'étanchéité de la préforme est assurée par une bâche à vide qui recouvre l'ensemble (figure 2.3). L'aspiration de la résine est également assurée par d'autres matériels (raccords, robinets d'arrêt en plastique, serpent flexible, gaine pour recouvrement du serpent et tuyaux de différents diamètres).

Les principaux paramètres utilisés lors de l'infusion des composites de l'étude lin-époxyde, verre-époxyde et lin-verre-époxyde sont résumés dans le tableau 2.4 **Tableau 2.4.**

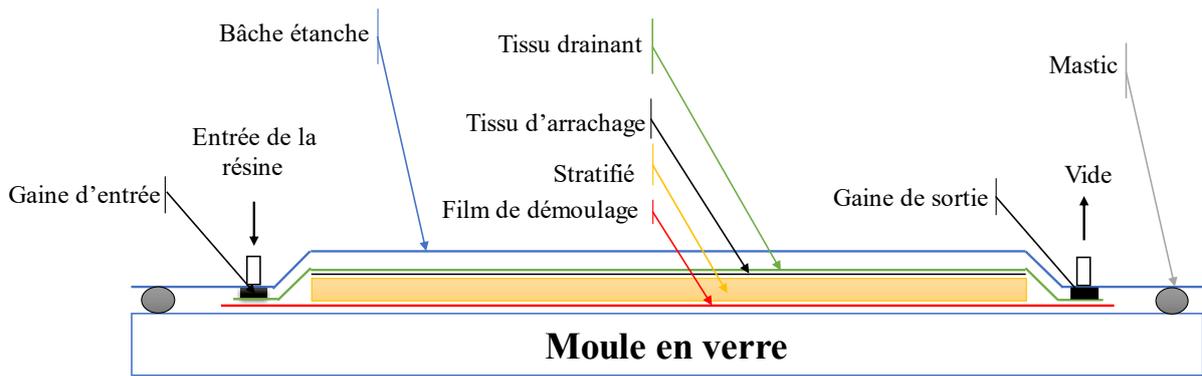


Figure 2.3 : Procédé de mise en forme par infusion sous vide

Tableau 2.4 : Paramètres du procédé d'infusion utilisé dans ce travail

Nature de la préforme	08 plis de fibres unidirectionnelles (lin/verre)
Dimensions des plaques infusées	300×400 mm ²
Pression d'aspiration	0,7 bar
Nombre de points d'aspiration	01
Nombre de points d'injection	01
Température du procédé	Température ambiante

Dans le but d'étudier l'impact de l'hybridation lin-verre sur le comportement mécanique en traction des composites lin-époxyde, différents stratifiés non hybrides et hybrides lin-verre ont été élaborés, comme le montre la figure 2.4.

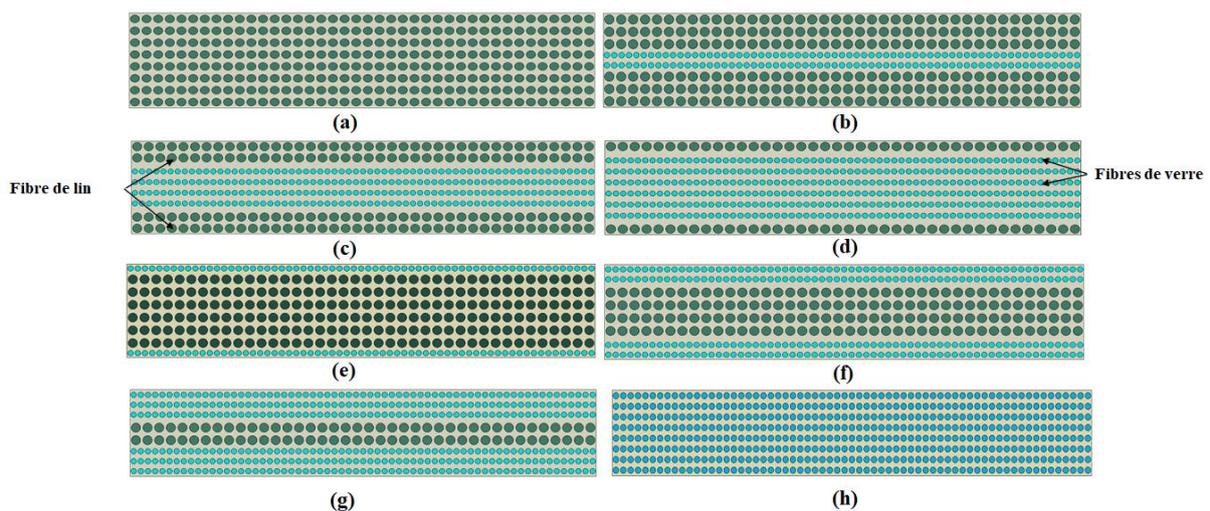


Figure 2.4 : Séquences d'empilement des stratifiés hybrides et non hybrides.

Afin de déterminer la fraction volumique des fibres et le taux de porosités des composites étudiés, des échantillons de forme carrée de côté 25mm ont été découpés en utilisant une machine à découper au laser.

Le taux de fibres total V_f des matériaux hybrides est déterminé par l'équation suivante [118] :

$$V_f = \frac{1}{1 + \left(\frac{m_c - m_{f_1} - m_{f_2}}{m_{f_1} \times \rho_{f_2} + m_{f_2} \times \rho_{f_1}} \right) \left(\frac{\rho_{f_2} \times \rho_{f_1}}{\rho_m} \right)} \quad (2.1)$$

où m_c est la masse de l'échantillon, m_i et ρ_i sont respectivement la masse et la masse volumique des fibres i ($i=1,2$), et ρ_m la masse volumique de la matrice.

Les fractions volumiques des fibres de verre V_{f_1} et de lin V_{f_2} sont données par les équations suivantes :

$$V_{f_i} = \frac{V_{f_i}}{V_c} = \frac{m_{f_i}}{\rho_{f_i} \times V_c}, \quad i (i=1,2) \quad (2.2)$$

où $V_c = L \times l \times h$ est le volume de échantillons.

Les taux de porosités dans les composites non hybrides V_p sont déterminés à partir de l'expression suivante [118]:

$$V_p = 1 - \frac{m_c}{L \times l \times h \times \rho_m} + \frac{n^p \times \rho_{fs}}{h} \left(\frac{1}{\rho_m} - \frac{1}{\rho_f} \right) \quad (2.3)$$

où ρ_{fs} est la densité surfacique du renfort et n^p est le nombre total de plis.

Les taux de porosités V_p dans les composites hybrides sont estimés par la loi de mélange:

$$V_p = V_{p_1} + V_{p_2} \quad (2.4)$$

où V_{p_i} est les taux porosités des fibres i ($i=1,2$), dans les composites hybrides donnés par l'expression suivantes :

$$V_{p_i} = \frac{V_{f_i}}{V_{f_i}^0} \times V_{p_i}^0 \quad (2.5)$$

où $V_{f_i}^0$ et $V_{p_i}^0$ sont respectivement les fractions volumique et les taux porosités des fibres des composites non hybrides i ($i=1,2$).

Les tableaux 2.5 et 2.6 résument les caractéristiques principales des stratifiés non hybrides et hybrides ainsi que leurs désignations.

Tableau 2.5: Fractions volumiques des fibres et des porosités des composites lin-époxyde et verre-époxyde.

Matériaux	Épaisseur (mm)	V_f^0 (%)	V_p^0 (%)
Lin-époxyde	2,93±0,06	37,86±0,36	4,46 ±0,02
Verre-époxyde	2,05±0,07	48,44±0,64	1,81±1,20

Tableau 2.6: Désignation des stratifiés hybrides lin-verre.

Désignation	Nombre de plis (Lin/Verre)	Séquence d'empilement	Épaisseur (mm)	Fraction volumique (Lin/Verre) (%)
[L ₄] _s	8/0	L-L-L-L-L-L-L-L	2,93±0,06	37,86±0,36/0
[L ₃ /V] _s	6/2	L-L-L-V-V-L-L-L	2,75±0,04	30,99±0,44/8,60±0,12
[L ₂ /V ₂] _s	4/4	L-L-V-V-V-V-L-L	2,54±0,03	22,61±0,25/18,10±0,21
[L/V ₃] _s	2/6	L-V-V-V-V-V-V-L	2,22±0,07	13,95±0,64/32,59±0,96
[V/L ₃] _s	6/2	V-L-L-L-L-L-L-V	2,73±0,06	30,26±0, 47/9,76±0, 82
[V ₂ /L ₂] _s	4/4	V-V-L-L-L-L-V-V	2,45±0,09	22,16±0,71/19,20±0,75
[V ₃ /L] _s	2/6	V-V-V-L-L-V-V-V	2,19±0,02	12,69±0,07/32,60±0,19
[V ₄] _s	0/8	V-V-V-V-V-V-V-V	2,05±0,07	0/48,88±0,64

Nous remarquons que la fraction volumique des fibres de verre dans le composite verre-époxyde est supérieure à celle du composite lin-époxyde avec également un taux de porosités moins élevé (tableau 2.5). Ceci est probablement lié à la faible mouillabilité à la résine époxyde des fibres de lin de nature végétale en comparaison avec les fibres de verre [191,192]. Cette variation de mouillabilité conduit à des fractions volumiques des fibres et des vitesses d'infusion différentes. En effet, la résine époxyde présente une grande vitesse d'écoulement et un faible délai d'infusion dans le composite verre-époxyde en comparaison avec le composite lin-époxyde. D'autre part, la vitesse d'écoulement de la résine lors de la mise œuvre est inversement proportionnel à la taille des porosités [193,194]. Dans le cas des échantillons hybrides la présence des fibres de verre réduit le taux de porosité dans le composite, elle présente des valeurs variantes entre 3,87±0,54 % pour [L₃/V]_s et 2,34±0,13 % pour [V₃/L]_s. Le tableau 2.6 montre que l'ajout des fibres de verre au composite non hybride lin-époxyde réduit l'épaisseur du composite et augmente le taux de fibre des composites hybrides.

2.4. Analyse des microstructures par microscopie électronique à balayage (MEB)

L'étude de la microstructure des matériaux composites est la première étape avant leur caractérisation mécanique. En effet, elle renseigne sur la distribution des renforts dans la matrice, la présence de porosité ou encore d'éventuels problèmes d'interface fibre/matrice.

Dans cette optique, des observations microscopiques ont été effectuées sur des échantillons de section carrée (10 mm x 10 mm) des composites lin-époxyde, verre-époxyde et hybrides lin-verre. Ces échantillons ont été enrobés à froid dans une résine époxyde à afin de faciliter leur manipulation pendant la phase de polissage. Ensuite, ils ont été polis jusqu'à la disparition des rayures visibles au microscope optique. Enfin, ils ont été analysés à l'aide du microscope électronique à balayage (MEB) "JEOL JSM-7900F" du laboratoire de Recherche en Nanosciences (LRN) à l'Université de Reims Champagne Ardenne (figure 2.5). Ce microscope utilise la technique du bas vide pour l'isolation des échantillons.

Les images obtenues par MEB sont présentées dans les figures 2.6, 2.7 et 2.8 . L'analyse a été effectuée sur un champ large des composites verre-époxyde et lin-époxyde comme le montre la figure 2.6. Cette dernière montre que les fibres de verre ont une forme circulaire ayant un diamètre relativement identique et qu'elles sont réparties d'une façon aléatoire dans la matrice époxyde (figure 2.6.a, étiquette 1)



Figure 2.5: Microscope électronique à balayage "JEOL JSM-7900F" .

La figure 2.6.b montre une répartition quasi-uniforme des fibres de lin dans la matrice époxyde malgré quelques zones locales de forte concentration de fibres et d'autres moins denses. Elle

montre également la présence de faisceaux de fibres (figure 2.6.b, étiquette 2) appelés fibres techniques de diamètres variant de 100 μm à 300 μm , ainsi que des fibres élémentaires bien séparées et entourées de résines de diamètres $D_{lin} \approx 25 \mu\text{m}$ (figure 2.6.b, étiquette 3). Des observations équivalentes ont été rapportés dans le travail de Monti [56] sur des composites FlaxTape 200-Elium ont révélé la présence de fibres élémentaires qui présentent différents diamètres dans l'intervalle [15-50 μm] et la présence faisceaux de fibres unitaires possédant un diamètre pouvant atteindre 250 μm .

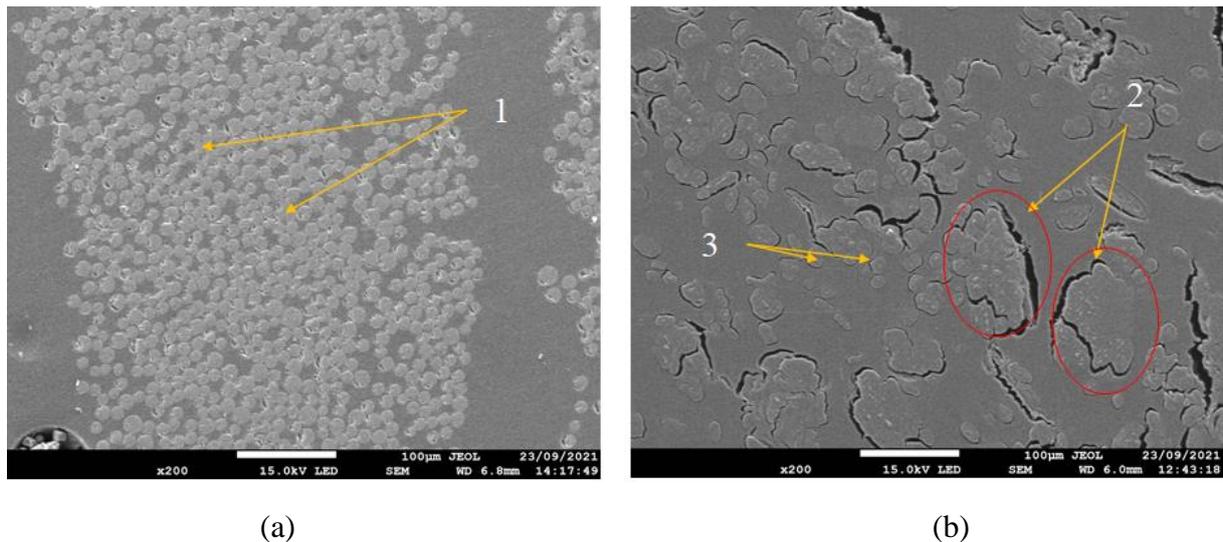


Figure 2.6: Vue globale des composites stratifiés avec un agrandissement de $\times 200$ (a) verre-époxyde et (b) lin-époxyde.

La figure 2.7 présente un agrandissement plus important des composites lin-époxyde et verre-époxyde afin d'analyser leurs microstructures d'une façon plus fine. La figure 2.7.a montre que les fibres de verre présentent une bonne adhérence avec la résine époxyde, et que leur diamètre varie de 10 μm à 15 μm . Sur la figure 2.7.b, nous pouvons clairement distinguer les faisceaux de fibres de lin ainsi que les fibres élémentaires qui semblent mieux adhérer à la matrice (figure 2.7.b, étiquette 4) que les fibres techniques en faisceaux (figure 2.7.b, étiquette 5). On remarque aussi que les fissures semblent être localisées à l'interface entre certaines fibres techniques et la matrice, ceci peut être expliqué par la présence d'une couche de matière organique entourant les faisceaux de lin due au procédé d'extraction des fibres FlaxTape200 [190]. Il convient de noter qu'il est difficile de savoir si ces fissures sont dues à l'absence d'interface ou à la décohésion induite par la découpe et/ou le polissage des échantillons.

La figure 2.8 présente des images obtenues à partir du composite hybride Lin-Verre-époxyde $[\text{L}_2\text{V}_2]_s$. La figure 2.8.a montre un champ large de ce composite hybride et que l'hybridation est de type intercouche avec des plis de lin et de verre bien distincts. Elle présente également

les mêmes observations déduites précédemment pour les fibres de lin et de verre avec une bonne adhérence avec la matrice de ces dernières. Ce constat est confirmé par l'agrandissement plus important (figure 2.8.b, étiquette 6). Contrairement aux fibres de verre, les fibres unitaires de lin présentent des décollements au niveau de l'interface avec la résine figure 8.b étiquette 7, nous constatons aussi que lors de la mise en œuvre des composites, le lumen des fibres de lin ne peut parfois être intégralement rempli de résine comme le montre l'étiquette 8 de la figure 2.8.b.

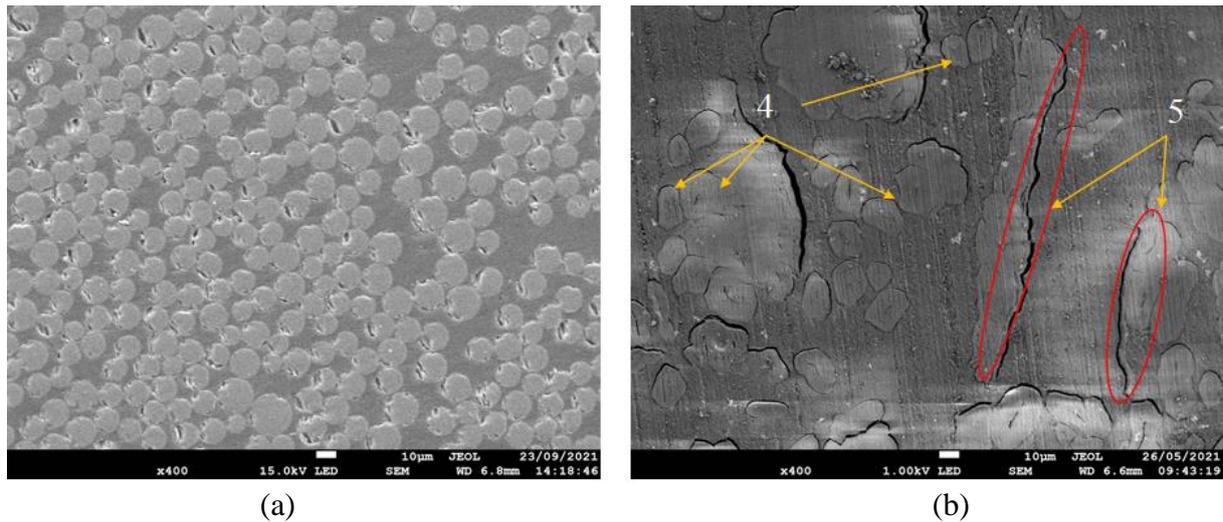


Figure 2.7: Observations microscopiques des composites avec un agrandissement de $\times 400$ (a) verre-époxyde et (b) lin-époxyde.

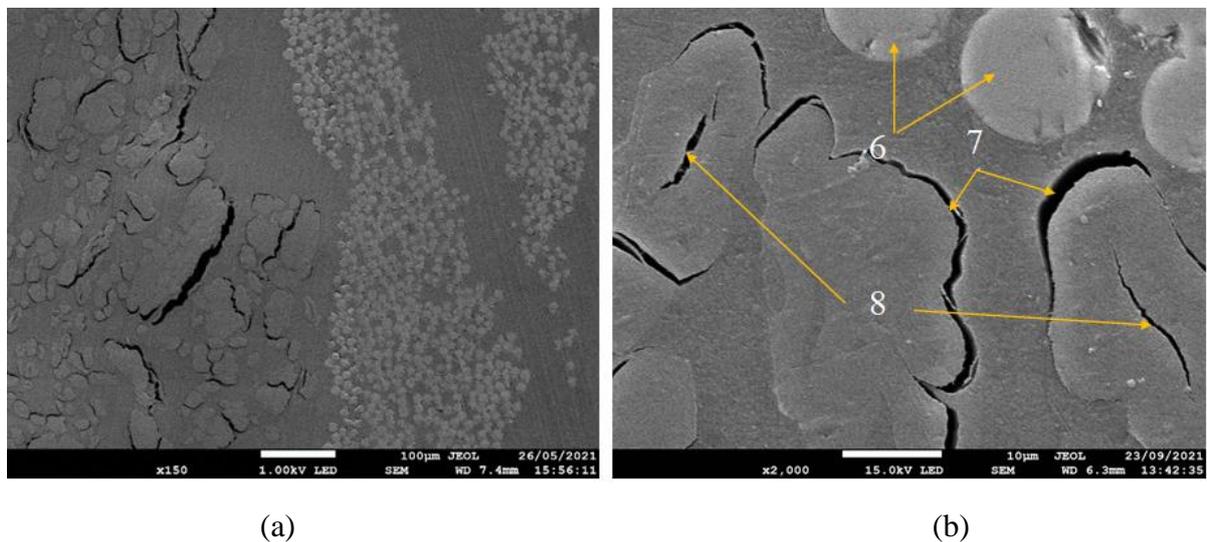


Figure 2.8: Observations microscopiques du composite lin-verre-époxyde $[L_2V_2]_s$ avec un agrandissement de : (a) $\times 150$, (b) $\times 2000$.

2.5. Caractérisation mécanique en traction des matériaux étudiés

2.5.1. Présentation des éprouvettes et du dispositif expérimental

Les essais de traction monotone ont été effectués à l'aide d'une machine de traction de type INSTRON modèle 3382 (figure 2.9.a). Cette machine est dotée d'une cellule de charge de 100 kN et pilotée par le logiciel Bluehill. Cette machine est également dotée de deux extensomètres pour mesurer les déformations longitudinale et transversale. Les essais de traction ont été réalisés en utilisant une vitesse de 2 mm/min.

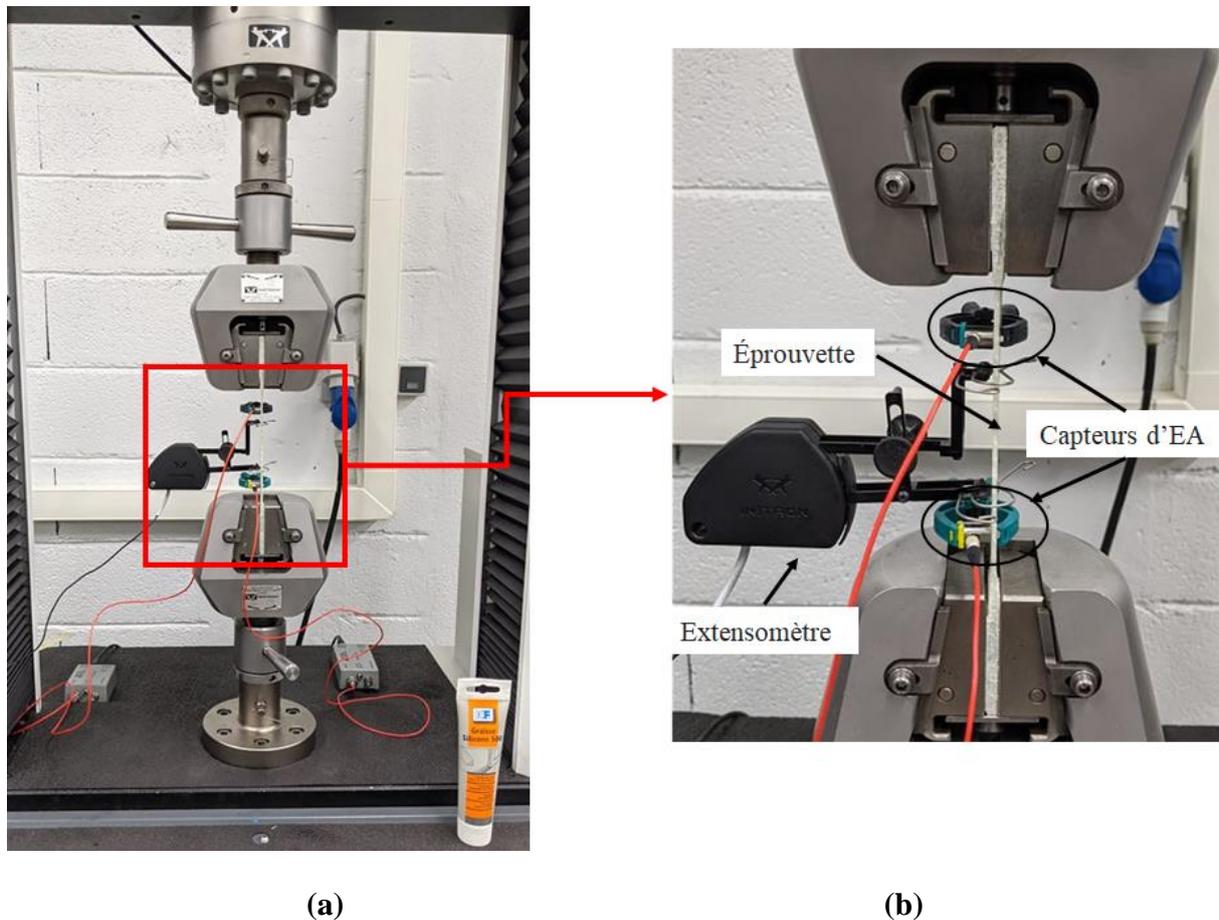


Figure 2.9: (a) Machine de traction et (b) du dispositif de mesure.

Afin de caractériser la résine époxyde, la technique de "resin-casting " a été utilisée pour élaborer des échantillons en forme haltère conformément à la désignation ASTM D638-10, préconisée par l'ASTM (figure 2.10.b). Pour les composites stratifiés, les essais de traction ont été réalisés à température ambiante sur des éprouvettes de forme rectangulaire découpées selon la norme à la norme ISO 527-4 (figure 2.10.a).

Pour chaque matériau, au minimum cinq éprouvettes ont été testées. Les valeurs du module d'élasticité, de la contrainte maximale et de la déformation à la rupture sont déterminées pour chaque éprouvette.

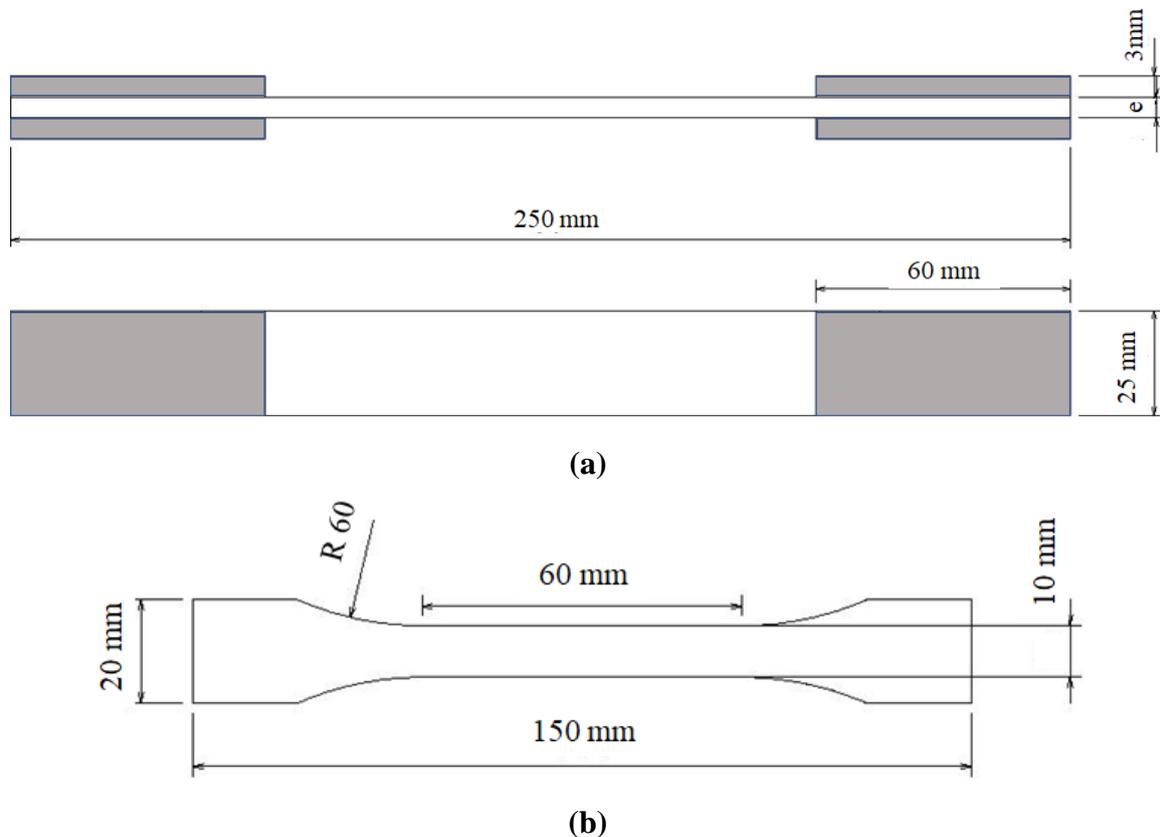


Figure 2.10 : Géométries et dimensions des éprouvettes de traction pour caractériser: a) les composites, et (b) la résine époxyde.

2.5.2. Comportement mécanique en charge-décharge

Afin d'apporter un complément d'information sur le comportement mécanique des composites de l'étude, nous avons effectué dans ce travail doctoral des essais de traction en charge-décharge. L'objectif de ces essais est d'identifier et d'évaluer les différentes phases du comportement mécanique des composites (élasticité, plasticité, viscosité, endommagement, etc.) et leur impact sur le comportement mécanique des composites de l'étude.

En raison de l'absence d'une méthode standard ce type d'essai, un nombre suffisant de cycles doit être choisi pour couvrir les différentes étapes du comportement des matériaux [12,195]. Ainsi, les essais de charge-décharge ont été effectués sur les composites de l'étude, suivant la direction longitudinale, avec une vitesse de 2 mm/min. Ces essais consistent à effectuer des chargements à des niveaux de contrainte croissants. Ensuite, chaque cycle de chargement est suivi d'une décharge à la même vitesse (figure 2.11). Les boucles de décharge sont réalisées de manière à éviter d'imposer des sollicitations en compression au matériau.

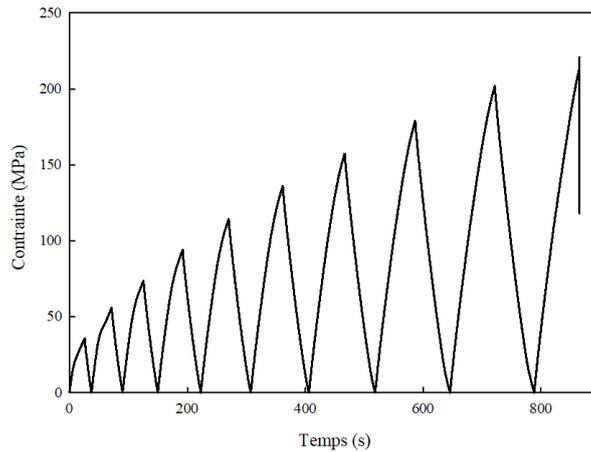


Figure 2.11: : exemple d'évolution d'un comportement mécanique en charge-décharge .

Afin de suivre l'évolution de la rigidité et distinguer les différentes parties du comportement mécanique des composites de l'étude au cours des essais de charge-décharge, leur perte de rigidité P_r est suivie en calculant, pour chaque cycle de charge-décharge, le rapport suivant :

$$P_r = \frac{E_{11}^i}{E_{11}^0} \quad (2.6)$$

Où E_{11}^i est le module longitudinal après le $i^{\text{ème}}$ cycle et E_{11}^0 est le module initial. E_{11}^i est calculé comme étant le rapport entre la contrainte σ_{11}^i et la déformation ε_{11}^i équivalente, comme illustré sur la figure 2.12.

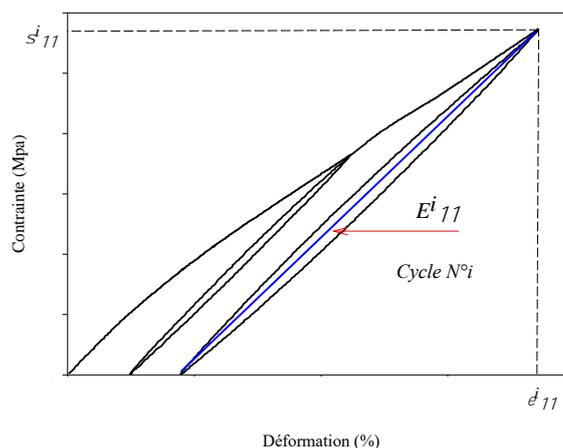


Figure 2.12: Calcul du module longitudinal du $i^{\text{ème}}$ cycle.

2.5.3. Caractérisation de l'endommagement

Le suivi et l'identification de l'endommagement des matériaux composites qui peut apparaître lors des sollicitations mécaniques sont importants pour la maîtrise de la fiabilité et la durabilité des structures en service. Dans cette optique, la technique d'Emission Acoustique (EA) a été

choisie comme méthode non destructive dans le but d'identifier l'endommagement des matériaux de l'étude en temps réel au cours des essais.

Généralement, les sollicitations mécaniques provoquent des endommagements dans les composites ceci crée ainsi des ondes élastiques transitoires de nature et de fréquence diverses

Dans la technique de EA, ces ondes générées sont détectées au moyen de capteurs piézoélectriques en contact direct avec la surface du composite. Le capteur convertit l'énergie libérée en signaux électriques, qui sont transféré à un ordinateur pour le transformer sous forme de signaux d'émission acoustique ou de salves d'allure sinusoïdale amortie (figure 2.13).

Les paramètres caractérisant un signal peuvent être regroupé en deux familles de variables, temporelles et fréquentielle.

Le tableaux 2.7 résumant les principaux paramètres temporels et fréquentiels enregistrés en temps réel. Les tableaux montrent que la Fréquence Moyenne (FM), la Fréquence de Réverbération (FR) et la Fréquence d'Initiation (FI) dépendent principalement des paramètres temporels.

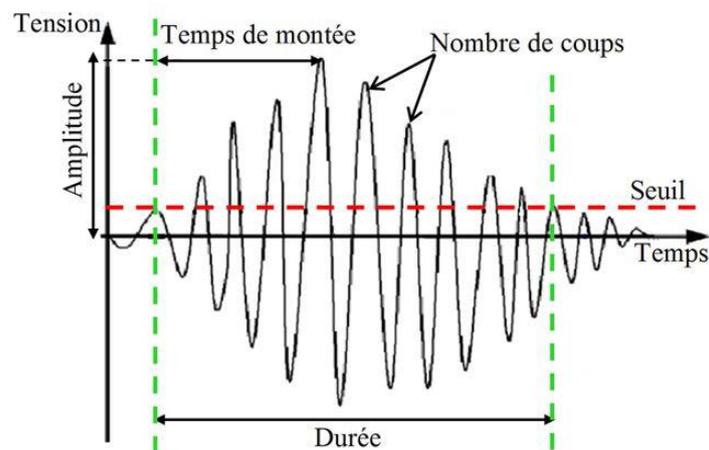


Figure 2.13: Principaux paramètres temporels mesurés en temps réel sur une salve d'émission acoustique [12].

Tableau 2.7: Les paramètres temporels et fréquentiels définissant une salve d'EA.

Paramètre	Définition
Amplitude	Amplitude maximale de la salve ,son unité est le décibel (dB)
Nombre de Coups (NC)	Correspond au nombre de pics dépassant le seuil sur la durée de la salve
Energie Absolue (ENA)	Correspond au contenu spectral du signal, ENA(atto Joules)

Durée	Correspond au temps entre le premier dépassement et le dernier dépassement de seuil. Son unité est la microseconde (μs)
Temps de Montée (TM)	Correspond au temps entre le premier dépassement de seuil et le temps jusqu'à l'amplitude maximale du signal. Son unité est la microseconde (μs)
Nombre de Coups Au Pic (NCAP)	Correspond au nombre de pics entre le premier dépassement de seuil et l'amplitude maximale
Fréquence Moyenne (FM)	$FM = \frac{NC}{Durée}$
Fréquence de Réverbération (FR)	$FR = \frac{NC - NCAP}{Durée}$
Fréquence d'Initiation (FI)	$FI = \frac{NCAP}{TM}$
Fréquence de Pic (FP)	Correspond à la fréquence ou l'amplitude maximale survient
Fréquence Centroïde (FC)	Le centre de masse du spectre de fréquence du signal

Dans ce travail doctoral, un système d'acquisition de la société Euro Physical Acoustics (EPA) comprenant 2 voies est utilisé. Les signaux d'EA sont collectés par 2 capteurs Différentiels piézoélectriques de type Micro-80, de bande passante 100 kHz – 1 MHz et de 10 mm de diamètre, (figure 2.9.b) positionnés sur la surface de l'éprouvette avec une graisse silicone. Ces signaux sont amplifiés par un préamplificateur avec un gain de 40 dB. Le seuil de détection des signaux acoustiques a été fixé à 36 dB pour éliminer les signaux dus au bruit environnant.

D'autre part, les paramètres d'acquisition de save sont ajustés. Ces paramètres sont : les PDT (Peak Definition Time), HDT (Hit Definition Time) et HLT (Hit Lockout Time). Ces paramètres constituent des fenêtres temporelles qui contrôlent la manière dont les paramètres des signaux sont calculés, ils dépendent principalement des propriétés du matériaux [196]. Les valeurs de ces trois paramètres utilisés dans notre étude sont : 30, 200 et 300, respectivement.

Les résultats des essais en charge-décharge et celles de l'analyse par EA seront présentés en détails dans le chapitre 4.

2.5.4. Analyse des propriétés mécaniques en traction

2.5.4.1. Résine époxyde

La figure 2.14 présente la courbe contrainte-déformation déduite des essais de traction sur la résine époxyde. De manière générale, la résine époxyde présente un comportement ductile caractérisé par deux zones distinctes :

- Zone 1 : la contrainte varie linéairement avec la déformation jusqu'à la limite élastique au voisinage de 22 MPa. Cette zone linéaire permet de déterminer le module d'élasticité de la résine.
- Zone 2 : elle, représente le comportement non linéaire de la résine jusqu'à la rupture, avec une contrainte maximale d'environ 58 MPa. Cette zone représente environ 70% du comportement global de la résine.

Les propriétés mécaniques en traction de la résine sont résumées dans le tableau 2.8.

Tableau 2.8: Caractéristiques mécaniques de la résine époxyde

Matériau	$E(GPa)$	$\sigma_{max} (MPa)$	$\varepsilon_r (%)$
Résine époxyde	$3,16 \pm 0,18$	$58,12 \pm 2,37$	$2,73 \pm 0,23$

Les propriétés élastiques obtenues pour la résine époxyde sont très proches de celles annoncées par le fabricant. En revanche, les propriétés à la rupture sont inférieures de l'ordre de 12 %. Cette différence peut s'expliquer par le mode d'obtention des éprouvettes. D'autre part, une partie de la variabilité à la rupture observée peut s'expliquer par la présence de petites bulles et pores présents dans les éprouvettes et par d'éventuelles irrégularités géométriques dues à la coulée «resin-casting ».

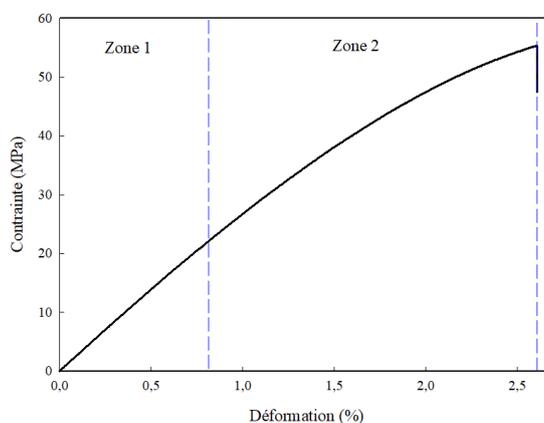


Figure 2.14 : Courbe de traction de la résine époxyde.

2.5.4.2. Matériaux composites non hybrides

La figure 2.15 présente les courbes contrainte-déformation des composites lin-époxyde et verre-époxyde sollicités dans la direction des fibres (0°). La courbe de traction du composite lin-époxyde fait apparaître deux zones linéaires ([OA] et [AB]) distinguées par deux pentes différentes, séparées par une zone de transition intermédiaire (figure 2.15.a). Ce comportement

est bien connu dans la littérature dans le cas des composites renforcés par des fibres végétales [12,57,197].

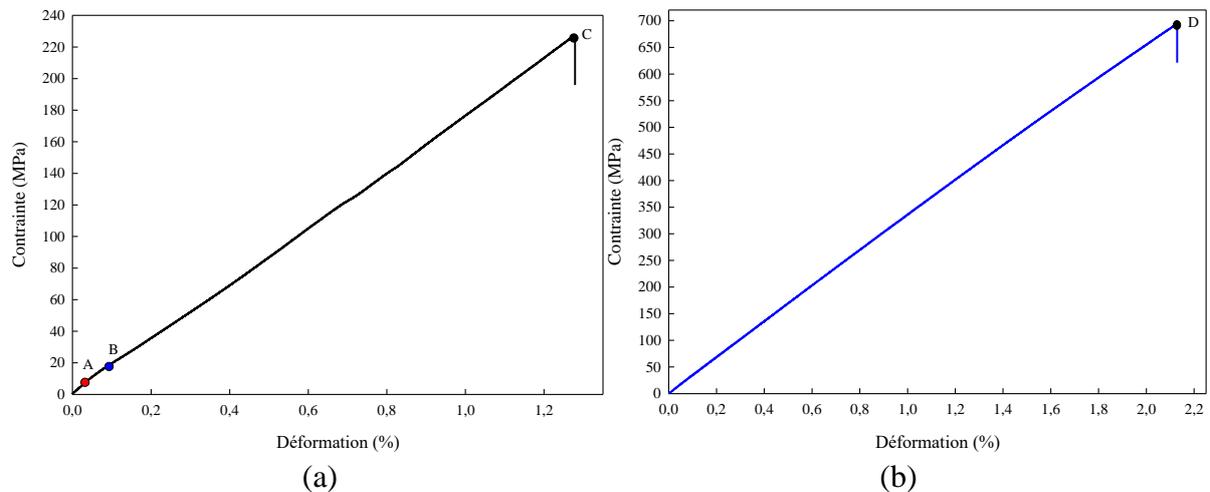


Figure 2.15: Courbes contrainte-déformation des matériaux composites non hybrides : (a) lin-époxyde et (b) verre-époxyde.

La première zone linéaire [OA], souvent associée au domaine élastique du composite, permet de déterminer son module d'Young [118,198]. Ensuite, les courbes contrainte-déformation s'incurvent d'une manière légèrement non linéaire (partie[AB]) pour finir sur une troisième partie [BC], globalement linéaire, qui s'étend jusqu'à la rupture du composite.

Le comportement observé au niveau des zones [AB] et [BC] est souvent attribué aux différents mécanismes qui se produisent à l'échelle de la fibre unitaire de lin [57,59,68,199–201]. Les phénomènes relatifs à l'apparition de l'endommagement dans la matrice [202] et à l'alignement des microfibrilles avec l'axe de la fibre unitaire lors d'un chargement axial, au réarrangement des parties amorphes dans les parois cellulaires ou à la réponse élastique des microfibrilles alignées [201] peuvent expliquer les deux comportements. La deuxième partie linéaire [BC] est caractérisée par une pente plus faible que celle de la zone [OA]. Elle s'étend jusqu'à la rupture du composite, et elle correspond à la réponse élastique des microfibrilles une fois alignées avec l'axe de sollicitation de traction [25].

Contrairement au comportement du composite lin-époxyde, le comportement du stratifié verre-époxyde est globalement linéaire jusqu'à la rupture qui est de type fragile (figure 2.15.b).

Afin de déterminer les coefficients élastiques E_L , E_T , G_{LT} , et ν_{LT} rapportés aux axes du stratifié, des essais de traction monotone ont été réalisés sur des éprouvettes lin-époxyde et verre-époxyde dans les directions 45° et 90° . À partir de ces données, les modules de cisaillement G_{LT} ont été estimés en utilisant la relation (2.7), qui exprime le module d'Young d'un

composite UD dont les fibres sont orientées d'un angle θ par rapport à l'axe de traction en fonction des grandeurs caractéristiques du pli [205]:

$$\frac{1}{E_\theta} = \frac{\cos(\theta)^4}{E_L} + \frac{\sin(\theta)^4}{E_T} + \left(\frac{1}{G_{LT}} - \frac{2\nu_{LT}}{E_L} \right) \sin(\theta)^2 \cos(\theta)^2 \quad (2.7)$$

Les caractéristiques élastiques des composites lin-époxyde et verre-époxyde sont présentées dans le tableau 2.8. Les résultats obtenus mettent en évidence les faibles performances des composites orientés à 90° et 45°. Les valeurs du module dans la direction 90° sont environ six fois inférieures à celles du module dans la direction 0°, pour les composites lin-époxyde et environ 4 fois pour le composite verre-époxyde.

Ces résultats montrent clairement que le composite à fibres de verre présente des propriétés élastiques plus importantes comparées à celles du composite lin-époxyde.

Tableau 2.9: Propriétés élastiques des composites UD lin-époxyde et verre-époxyde.

	E_L (GPa)	E_T (GPa)	G_{LT} (GPa)	ν_{LT}
Lin-époxyde	21,88±0,85	3,73±0,11	1,48±0,14	0,35±0,02
Verre-époxyde	38,08±1,96	9,95±0,77	3,63±0,18	0,3±0,02

En raison de la différence des masses volumiques des fibres de verre et des fibres de lin, il est de ce fait plus judicieux de comparer les propriétés élastiques spécifiques des composites de l'étude. Les grandeurs spécifiques sont calculées par rapport aux masses volumiques des composites obtenus par la loi de mélange équation suivante :

$$\rho_c = \rho_f V_f + \rho_m (1 - V_f - V_p) \quad (2.8)$$

Les résultats des propriétés spécifiques présentés dans la figure 2.16, montrent clairement que les modules d'élasticité spécifiques du composite lin-époxyde sont comparables à ceux du composite verre-époxyde, principalement dans la direction des fibres. Ceci justifie l'intérêt d'utiliser les fibres de lin comme renfort dans des applications semi-structurelles tel que l'automobile [71], offrant à la fois une légèreté et une rigidité relatives avec le respect de l'environnement. En outre, nous remarquons que la contrainte maximale spécifique du composite verre-époxyde dans la direction des fibres reste nettement supérieures à celle du composite lin-époxyde.

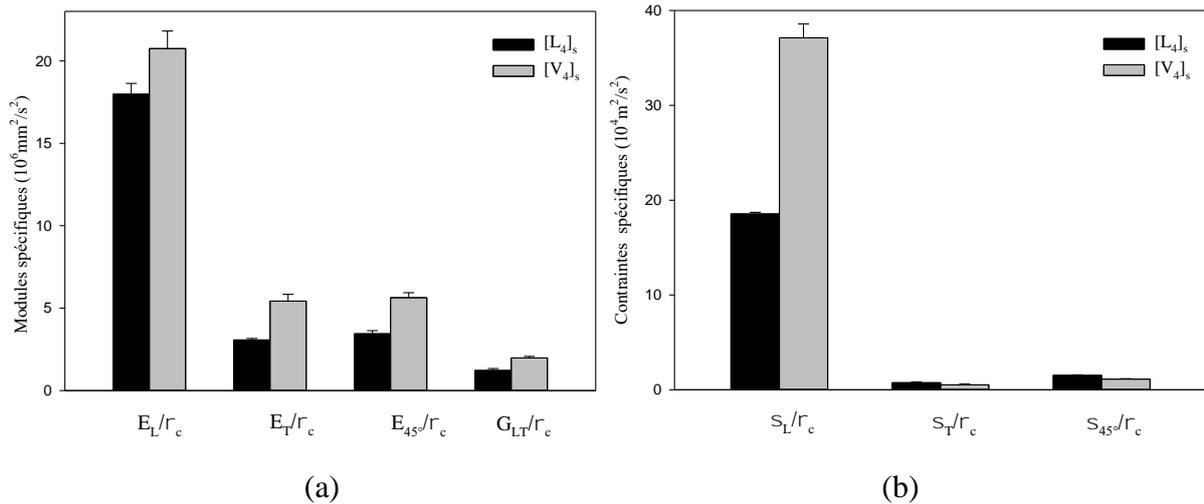


Figure 2.16: Propriétés mécaniques spécifiques des composites lin-époxyde et verre-époxyde: (a) module de traction et cisaillement et (b) contrainte maximale de traction.

2.5.4.3. Matériaux hybrides lin-verre

Dans cette partie, des essais quasi-statiques ont été réalisés sur des composites hybrides afin d'évaluer la pertinence de l'association verre-lin. Les courbes traction des composites hybrides sont montrées sur la figure 2.17.

Elles présentent un comportement relativement similaire à celui du composite non hybride lin-époxyde.

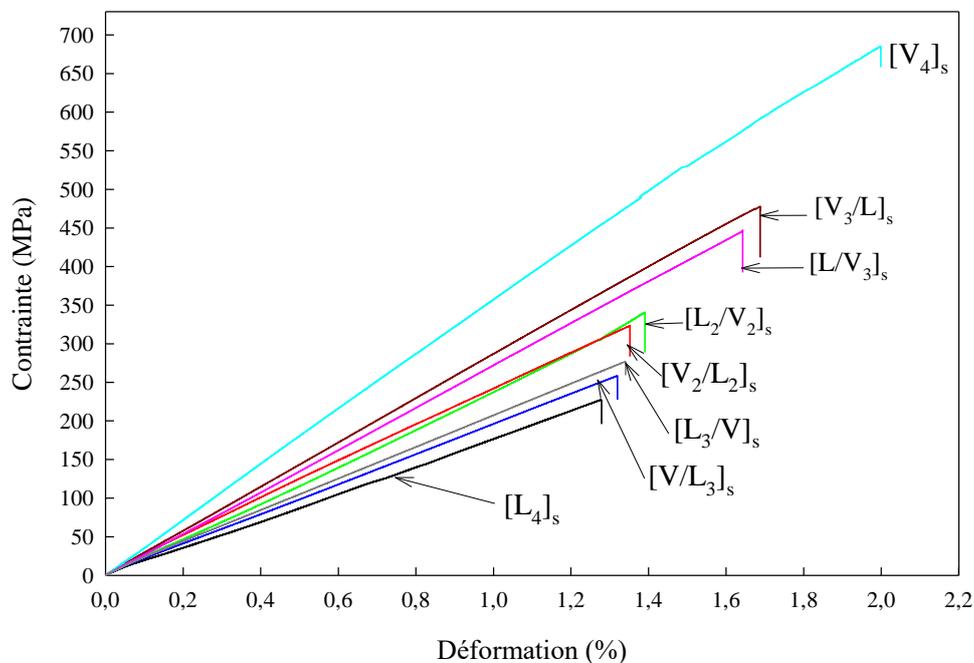


Figure 2.17: Courbes contrainte-déformation des matériaux hybrides et non hybrides.

Nous constatons que l'ajout des fibres de verre améliore la rigidité du composite à fibres de lin en augmentant la pente de la première partie linéaire des courbes de traction. Cette hybridation réduit également la taille la zone incurvée de la courbe de traction du composite lin-époxyde.

Les propriétés mécaniques en traction des composites hybrides sont regroupées dans le tableau 2.9.

Tableau 2.10: Caractéristiques mécaniques des matériaux hybrides.

	$E(GPa)$	$\sigma_{max}(MPa)$	$\varepsilon_r(\%)$
$[L_4]_s$	21,10±0,85	215,51±13,28	1,27±0,03
$[L_3/V]_s$	23,66±0,66	266,39±25,47	1,31±0,02
$[L_2/V_2]_s$	28,76±0,61	346,94±15,56	1,42±0,14
$[L/V_3]_s$	32,33±1,62	446,67±24,68	1,60±0,19
$[V/L_3]_s$	24,02±1,46	244,31±27,15	1,32±0,09
$[V_2/L_2]_s$	29,27±2,05	314,23±27,90	1,35±0,13
$[V_3/L]_s$	33,04±0,69	463,88±36,93	1,64±0,07
$[V_4]_s$	38,08±1,96	681,52±26,86	2,00±0,16

Afin de mieux analyser l'effet de l'hybridation sur les propriétés mécaniques des matériaux de l'étude, nous présentons sur la figure 2.18 leurs propriétés mécaniques et spécifiques.

Les résultats indiquent que l'ajout de 8,6 % de fibres de verre (composite $[L_3/V]_s$) entraîne une augmentation de 12% du module d'Young et de 20% de la contrainte maximale en comparaison avec le composite non hybride $[L_4]_s$. Dans le cas du composite hybride $[L_2/V_2]_s$ (18,1% de fibres de verre), cette augmentation est respectivement d'environ 36% et 67%, respectivement. Cette augmentation est attribuée au fait que les fibres de verre plus rigides que les fibres de lin. Des conclusions similaires ont été établies dans la littérature sur l'effet de l'ajout des fibres de verre dans différents composites ([204] pour les composites à base de fibres de lin, [152] de chanvre, [205] de sisal et [206] de jute).

En termes de propriétés spécifiques, le composite de lin-époxyde présente des caractéristiques comparables aux composites hybrides.

En outre, la comparaison entre les propriétés mécaniques spécifiques de toutes les configurations hybrides montre qu'un équilibre intéressant est obtenu pour la séquence d'empilement $[L_2/V_2]_s$ par rapport aux autres stratifiés hybrides. En effet, le composite $[L_2/V_2]_s$

présente un module élastique absolu très proche de ceux de $[V_2/L_2]_s$ et $[V_3/L]_s$ et supérieur à celui de $[L_3/V]_s$ (figure 2.18.a). Sa résistance à la traction est environ 30% et 15% supérieure à celle de $[L_3/V]_s$ et de $[V_2/L_2]_s$, respectivement, et 10 % inférieure à celle de $[V_3/L]_s$ (figure 2.18.b).

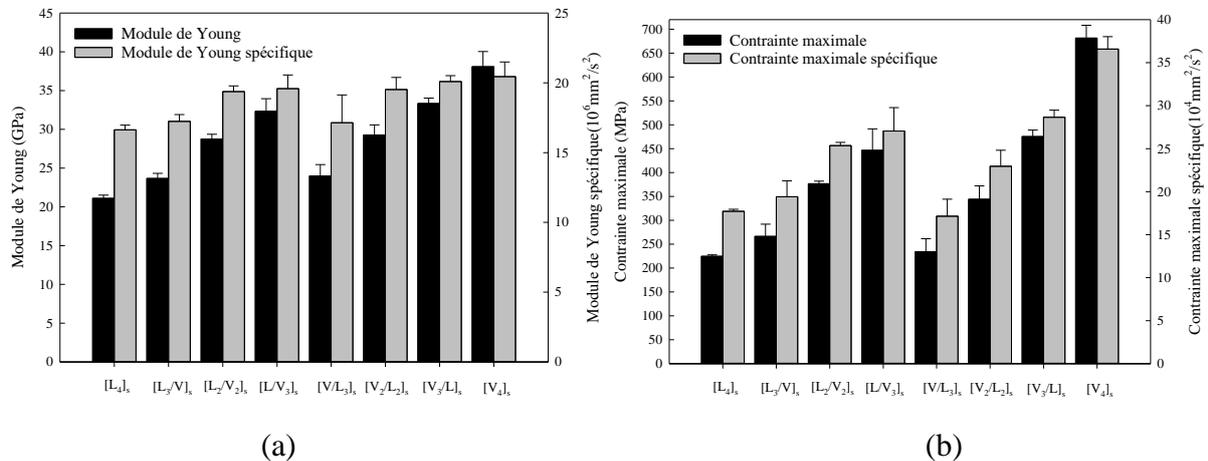


Figure 2.18: Propriétés mécaniques spécifiques et absolues des matériaux composites étudiés: (a) module d'Young et (b) résistance ultime à la traction.

A la lumière de ces résultats montrant les performances mécaniques intéressantes du composite $[L_2/V_2]_s$ et son symétrique $[V_2/L_2]_s$, il s'avère d'abord qu'en plus de son caractère écologique ($V_f^{Verre} (\%) \approx 18\%$), le composite $[L_2/V_2]_s$ présente des propriétés mécaniques spécifiques en traction intéressantes et très proches de celles du composite $[V_3/L]_s$ ($V_f^{Verre} (\%) \approx 32\%$). Pour poursuivre notre étude sur l'effet du vieillissement hydrique sur les propriétés mécaniques des composites hybrides et non hybrides, notre choix s'est porté sur les composites $[L_2/V_2]_s$ et son symétrique $[V_2/L_2]_s$ qui présentent des propriétés mécaniques en traction très proches.

2.6. Conclusion

Ce chapitre a été dédié à la caractérisation mécanique d'un ensemble de matériaux composites non hybrides et hybrides lin-verre afin d'évaluer l'impact de l'hybridation sur leur comportement. De ce fait différentes configurations ont été réalisées à l'aide du procédé d'infusion sous vide.

Les résultats expérimentaux obtenus nous amènent aux conclusions suivantes :

- L'analyse microscopique des composites à fibres de lin et de verre a montré que les deux fibres présentent des microstructures différentes, et que la variation de taille des fibres de lin entraîne une faible mouillabilité de ces fibres comparées aux fibres de verre.

- De plus de son aspect écologique, le composite lin-époxyde présente des propriétés mécaniques spécifiques comparables avec celles du composite à fibres de verre.
- L'ajout par hybridation de couches de verre aux plis de lin entraîne une augmentation des propriétés mécaniques des matériaux composites hybrides, du fait que les fibres de verre sont plus rigides que les fibres de lin.

Cette étude a également montré que le composite $[L_2/V_2]_s$ présente un comportement en traction monotone équivalent à celui de son symétrique $[V_2/L_2]_s$ avec des propriétés mécaniques spécifiques intéressantes, et un faible taux volumique des fibres de verre. Par conséquent, nous avons choisi d'étudier la durabilité des composites lin-époxyde, verre-époxyde, $[L_2/V_2]_s$ et $[V_2/L_2]$ après un vieillissement hydrique. Les composites non hybrides lin-époxyde, verre-époxyde sont pris comme matériaux de référence pour leurs propriétés mécaniques relativement connues.

Dans les chapitres suivants, nous étudions en particulier la cinétique de diffusion d'eau au sein de ces matériaux et l'influence du vieillissement hydrique sur leurs propriétés mécaniques.

Chapitre 3

Etude expérimentale et de modélisation de la cinétique de diffusion d'eau dans les composites de l'étude

3.1. Introduction

Malgré les propriétés mécaniques spécifiques intéressantes des composites à fibres végétales et leur faible impact sur l'environnement, plusieurs études ont soulevé la problématique de leur durabilité, notamment en milieu humide, ce qui peut freiner leur développement dans certaines applications industrielles [132,136,207–211]. En effet, la présence de molécules d'eau au sein des composites à fibres végétales affecte principalement l'interface fibres/matrice, ce qui entraîne une variation parfois importante de leurs propriétés mécaniques. Pour décrire le comportement hygroscopique des composites à fibres végétales, le modèle de Fick 1D a souvent été considéré dans la littérature pour identifier leurs coefficients de diffusion d'humidité [70,110,115,123,131,132,212–214]. Toutefois, plusieurs études liées à la durabilité des composites à fibres végétales ont montré que la diffusion d'humidité dans ces matériaux est un phénomène assez complexe qui ne peut être décrit uniquement par le modèle de Fick 1D [75,212,215–217]. Dans ce cas, il est nécessaire d'utiliser une analyse tridimensionnelle (3D) ou/et un modèle de diffusion dont la physique est plus riche. Le modèle de Langmuir, adapté par Carter et Kibler [85], est un candidat de choix. C'est un modèle plus général qui prend en compte des phénomènes, induits par la diffusion, qui ne sont pas considérés par le modèle de Fick tel que l'hydrolyse ou la plastification. C'est dans ce contexte que le présent chapitre se situe.

L'objectif principal de ce chapitre est d'évaluer dans un premier temps les coefficients de diffusion 3D, selon les modèles de Fick et de Langmuir, des composites lin-époxyde et verre-époxyde vieillis dans l'eau du robinet. A ce propos, des échantillons colmatés et non colmatés ont été immergés dans l'eau afin de déterminer, via une démarche d'optimisation, leurs paramètres de diffusion. En particulier, l'effet de la nature des fibres et de la direction de la diffusion sur leurs paramètres de diffusion sont examinés. L'évaluation de l'effet de l'hybridation lin-verre sur la cinétique d'absorption d'eau et les paramètres de diffusion des composites hybrides constitue le second objectif. La dernière partie est consacrée à l'approximation par éléments finis du problème hygroscopique et présente la formulation de deux éléments finis hygroscopiques de membrane à trois nœuds basés sur le modèle de Fick et de Langmuir, respectivement. L'objectif principal de cette partie est d'estimer les coefficients de diffusion longitudinal et radial de la fibre de lin en considérant l'aspect hétérogène du composite lin-époxyde en utilisant une approche inverse basée sur les résultats expérimentaux.

3.2. Procédure expérimentale

Dans cette étude doctorale, un vieillissement hydrique a été considéré. Il consiste à immerger totalement les échantillons composites dans l'eau du robinet à température ambiante jusqu'à leur saturation. Les résultats des essais d'immersion permettent d'identifier les paramètres de diffusion des échantillons vieillis et leur évolution en fonction de divers paramètres.

3.2.1. Préparation des échantillons

Comme évoqué précédemment, plusieurs plaques composites lin-époxyde et verre-époxyde ont été réalisées en utilisant la technique de l'infusion sous vide. Les plaques composites ont été ensuite découpées afin d'obtenir des échantillons carrés de côté de 25 mm. Les échantillons lin-époxyde sont composés de six plis de lin UD, tandis que les échantillons verre-époxyde sont composés de huit plis de verre UD. Le nombre de plis a été choisi afin d'obtenir des plaques avec le même ordre d'épaisseur ($2,68 \pm 0,20$ mm pour le lin-époxyde et $2,05 \pm 0,07$ mm pour le verre-époxyde. Le taux de porosités dans les échantillons lin-époxyde et verre-époxyde est de $4,64 \pm 0,6$ % et $1,28 \pm 0,74$ %, respectivement. Quant au taux de fibres, il est de $33,05 \pm 1,78$ % pour le composite lin-époxyde et $48,88 \pm 0,64$ % pour le composite verre-époxyde. Les échantillons de forme parallélépipède ont été polis à l'aide d'une polisseuse en utilisant des papiers abrasifs de taille granulométrique 600 μm afin d'obtenir des surfaces planes et lisses.

Pour identifier les coefficients de diffusion de l'humidité suivant les directions principales des échantillons vieillis, notées x , y et z , une partie des échantillons a été colmatée à l'aide d'une peinture étanche comme le montre la figure 3.1. La direction x est la direction des fibres, y est la direction transversale et z est la direction de l'épaisseur. Le colmatage par la peinture étanche permet ainsi de favoriser la diffusion d'eau dans une direction privilégiée.

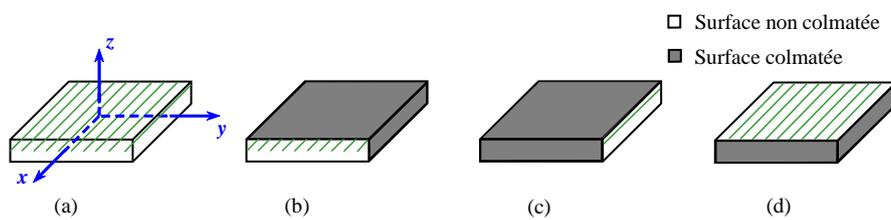


Figure 3.1 : Conditionnement des échantillons lin-époxyde et verre-époxyde : (a) échantillons non colmatés, (b), (c) et (d) échantillons colmatés.

En plus des échantillons lin-époxyde et verre-époxyde, nous nous sommes intéressés aussi à l'impact de l'hybridation par les fibres de verre sur la cinétique de diffusion d'eau au sein des composites à fibres de lin. Pour cela des éprouvettes de traction (figure 2.10.a) non colmatées

ont été complètement immergées dans l'eau du robinet à température ambiante jusqu'à leur saturation.

3.2.2. Évolution de l'absorption d'eau

Avant d'être immergés dans l'eau, tous les échantillons carrés non hybrides et les éprouvettes de traction hybrides ont été préalablement séchés à 40°C pendant 96 h pour éliminer toute trace d'eau. Lors des essais de vieillissement, l'évolution de la masse des échantillons au cours du temps a été mesurée à intervalles réguliers jusqu'à la saturation complète. Au moment de la prise de masse, les échantillons ont été essuyés avec un papier absorbant pour éliminer les pellicules d'eau présentes en surface. Les échantillons ont été ensuite pesés et à nouveau remis en immersion totale afin de poursuivre le processus d'absorption. L'intervalle de temps entre les mesures augmente au cours du processus de diffusion, en raison de la diminution de la vitesse d'absorption d'humidité. Les masses des échantillons ont été mesurées à l'aide d'une balance (Ohaus Pioneer) dotée d'une précision de 1 mg. Le pourcentage d'eau absorbée par chaque échantillon, noté $M_t(\%)$, a été déterminé à l'aide de la formule suivante :

$$M_t(\%) = \frac{W_t - W_0}{W_0} \times 100 \quad (3.1)$$

où W_0 est la masse de l'échantillon à l'état sec à $t=0$ et W_t est sa masse à un instant t du vieillissement.

3.3. Cinétique de diffusion d'eau

Plusieurs modèles analytiques, en particulier les modèles de Fick et de Langmuir [80,85], ont été considérés dans la littérature pour décrire la cinétique de diffusion d'eau au sein des matériaux composites à matrice polymère. Le modèle de Fick a été souvent utilisé pour décrire la cinétique de diffusion d'humidité au sein des composites à fibres naturelles [70,110,115,123,131,132,212–214], contrairement au modèle de Langmuir qui a été considéré principalement pour décrire les anomalies de diffusion d'eau des composites à renforts synthétiques [179,230–233]. Dans le cadre de ce travail, les modèles de Fick et de Langmuir ont été adoptés pour décrire la cinétique de diffusion d'eau au sein des composites non hybrides et hybrides vieillis.

3.3.1. Modèle de Fick

Fick [80] suppose que toutes les molécules d'eau sont mobiles et libres de diffuser dans le matériau. Le modèle de Fick relie le flux de matière ϕ à la teneur en eau dans le matériau, noté c , par la relation suivante :

$$\phi = D \cdot \nabla c \quad (3.2)$$

où D est le tenseur de diffusion d'humidité supposé symétrique.

L'équation différentielle de la diffusion permettant de prédire la teneur d'humidité en fonction du temps et de l'espace est donnée par la 2^{ème} loi de Fick [80] :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \text{div}(\phi) = \text{div}(D \cdot \nabla c) \quad (3.3)$$

Dans notre cas, les directions, x , y et z sont les directions principales des échantillons vieillis et la loi de Fick peut s'écrire comme suit si nous supposons que le tenseur de diffusion est constant :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D_x \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 c}{\partial y^2} + D_z \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \quad (3.4)$$

où D_x , D_y et D_z sont les coefficients de diffusion suivant les directions x , y et z .

La solution de l'équation (3.4) est donnée par l'expression suivante [222,223]:

$$\frac{M_t}{M_\infty} = 1 - \left(\frac{8}{\pi^2} \right)^3 \sum_{i=0}^{\infty} \sum_{j=0}^{\infty} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\exp \left(-\pi^2 t \left(D_x \left(\frac{2i+1}{L} \right)^2 + D_y \left(\frac{2j+1}{l} \right)^2 + D_z \left(\frac{2k+1}{h} \right)^2 \right) \right)}{\left((2i+1)(2j+1)(2k+1) \right)^2} \quad (3.5)$$

où M_t et M_∞ sont, respectivement, les masses à l'instant t et à saturation de l'échantillon ; L , l et h sont les dimensions de l'échantillon vieilli (longueur, largeur et épaisseur).

Dans le cas d'une plaque de dimensions infinies [12] et des échantillons carrés non hybrides colmatés où la diffusion d'eau se produit principalement perpendiculairement aux faces non colmatées, la solution de l'équation (3.4) se présente comme suit pour les trois directions :

$$\frac{M_t}{M_\infty} = 1 - \left(\frac{8}{\pi^2} \right)^3 \sum_{i=0}^{\infty} \frac{\exp \left(-\pi^2 t D_l \left(\frac{2i+1}{l} \right)^2 \right)}{\left((2i+1) \right)^2} \quad (3.6)$$

ou $D_l = D_x, D_y$ ou D_z et $l = L$ ou h .

En raison de la complexité de l'équation (3.6), Shen et Springer [224] ont proposé deux approximations afin d'identifier les paramètres de diffusion du modèle de Fick. Cette approche

considère la relation suivante pour décrire la première partie de la courbe de sorption

$\left(\frac{M_t}{M_\infty} < 60\%\right)$:

$$\frac{M_t}{M_\infty} = \frac{4}{l} \sqrt{\frac{D_l t}{\pi}} \quad (3.7)$$

Dans cette partie, la quantité d'eau absorbée est proportionnelle à la racine carrée du temps.

Pour la deuxième partie de la courbe d'absorption $\left(\frac{M_t}{M_\infty} \geq 60\%\right)$, l'approximation de la teneur en eau absorbée en fonction du temps est donnée par la formule suivante :

$$\frac{M_t}{M_\infty} = 1 - \exp\left(-7,3 \left(\frac{D_l t}{l^2}\right)^{0,75}\right) \quad (3.8)$$

De ce fait, le coefficient de diffusion D_l est calculé à partir de la première partie linéaire de la courbe gravimétrique d'absorption d'eau en utilisant l'expression suivante :

$$D_l = \pi \left(\frac{l}{4M_\infty}\right)^2 \left(\frac{M_2 - M_1}{\sqrt{t_2} - \sqrt{t_1}}\right)^2 = \pi \left(\frac{l \times k}{4M_\infty}\right)^2 \quad (3.9)$$

où k est la pente de la partie linéaire de la courbe $M_t = f(\sqrt{t}/l)$, et les indices 1 et 2 se rapportent à deux points distincts de la partie linéaire.

3.3.2. Modèle de Langmuir

Les interactions entre les molécules d'eau et les composants hydrophiles des matériaux composites sont complexes. Le modèle de Fick [80], où toutes les molécules d'eau sont supposées être mobiles et participent au phénomène de diffusion, a été largement considéré dans la littérature pour décrire la diffusion d'eau dans les matériaux composites à renforts végétaux. Toutefois, les résultats rapportés dans quelques travaux [105,225] montrent que la diffusion d'eau dans ces composites ne peut pas toujours être décrite par le modèle de Fick.

Le modèle de Langmuir utilisé pour modéliser la migration des neutrons [226] a été adapté par Carter et Kibler [85] pour décrire la cinétique de diffusion d'eau dans une résine époxyde. Dans ce modèle, l'ensemble des molécules d'eau, représenté par la teneur en eau c , est divisé en deux sous-populations. La première, représente les molécules d'eau libres de diffuser, notée

n , et la seconde représente les molécules qui sont liées au réseau polymère notée N . Ces dernières ne participent pas au phénomène de diffusion.

Selon Carter et Kibler [85], la teneur en eau $c = N + n$ peut être prédite par le système suivant basé sur le modèle de Langmuir :

$$\begin{aligned}\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial N}{\partial t} &= \text{div}(\mathbf{D}^\gamma \cdot \nabla n) \\ \frac{\partial N}{\partial t} &= \gamma n - \beta N \\ c &= n + N \\ \gamma n_\infty &= \beta N_\infty\end{aligned}\tag{3.10}$$

Où \mathbf{D}^γ représente le tenseur de diffusion des particules libres, γ représente la probabilité que les molécules d'eau libres deviennent liées et β représente la probabilité que les molécules liées deviennent libres.

La solution du système (3.10) est donnée par la relation suivante [85] :

$$\frac{M_a(t)}{M_\infty} = \frac{\beta}{\beta + \gamma} e^{-\gamma t} f(t) + \frac{\beta}{\beta + \gamma} (e^{-\beta t} - e^{-\gamma t}) + (1 - e^{-\beta t})\tag{3.11}$$

où $f(t)$ désigne la solution analytique de l'équation de Fick donnée par l'expression (3.5) .

3.4. Démarche d'optimisation en vue de l'identification des paramètres de diffusion

L'identification des différents paramètres liés aux modèles de Fick et de Langmuir a été considérée en minimisant la fonction objectif q qui représente les écarts entre la teneur en humidité prédite par les modèles analytiques de Fick ou de Langmuir et les résultats expérimentaux :

$$q = \sum_{i=1}^n (M_a(t_k) - M_{\text{exp}}(t_k))^2\tag{3.12}$$

où $M_a(t_k)$ est la teneur en humidité à l'instant t_k évaluée à partir des solutions analytiques des modèles de Fick ou de Langmuir, et $M_{\text{exp}}(t_k)$ est la teneur en humidité expérimentale au même instant.

A partir des équations (3.5) et (3.12), les variables d'optimisation pour le modèle de Fick sont les coefficients de diffusion D_x , D_y et D_z , ajoutées à ces variables les deux probabilités γ et β dans le cas du modèle de Langmuir.

Dans la présente étude, la méthode globalisée de l'algorithme de simplex de Nelder-Mead [227,228] a été adoptée, en utilisant la fonction "*fminsearch*" du logiciel MATLAB

3.5. Résultats et discussion

3.5.1. Identification des paramètres de diffusion des échantillons colmatés

Les figures 3.2 et 3.3 montrent l'évolution de l'absorption d'eau des échantillons lin-époxyde et verre-époxyde colmatés suivants les trois directions principales x , y et z . Ces deux figures montrent également la description quasi-parfaite de ces courbes expérimentales par les modèles de Fick et de Langmuir 1D. La figure 3.2 montre que toutes les courbes d'absorption des échantillons lin-époxyde présentent deux zones distinctes d'absorption. Dans la première phase, l'augmentation de la masse d'eau absorbée est proportionnelle à la racine carrée du temps de vieillissement \sqrt{t} . Cette partie linéaire s'étend jusqu'à des valeurs de M_t inférieures à 70%-85% de la valeur de la masse à saturation M_∞ . La deuxième zone est non-linéaire et elle est caractérisée par une prise de masse progressive jusqu'à l'apparition d'un plateau d'équilibre correspondant à la masse à saturation M_∞ . Ces deux zones d'absorption sont caractéristiques d'un comportement de type Fickien [80].

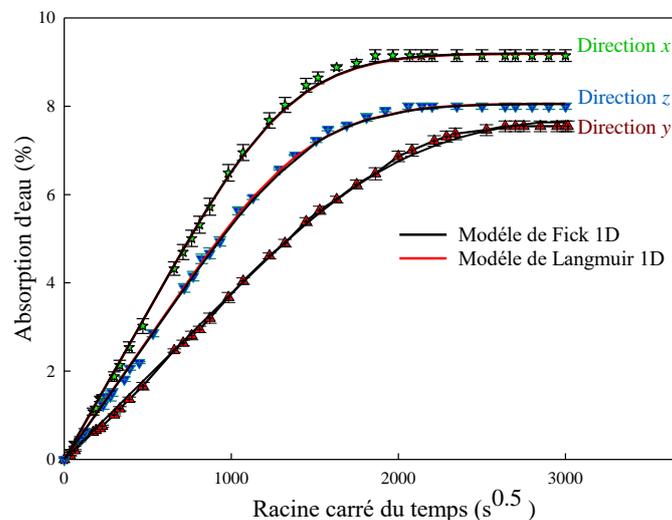


Figure 3.2 : Courbes expérimentales d'absorption d'eau des échantillons lin-époxyde colmatés comparées aux solutions des modèles de Fick et de Langmuir 1D.

La figure 3.3 relative aux échantillons verre-époxyde colmatés montre que seuls les échantillons colmatés dont la diffusion s'effectue suivant l'épaisseur atteignent le plateau d'équilibre et présentent un comportement Fickien. La diffusion suivant la direction des fibres de verre et suivant la largeur présente un comportement diffusif très lent défini par des pentes faibles des courbes d'absorption et l'absence de plateaux d'équilibre.

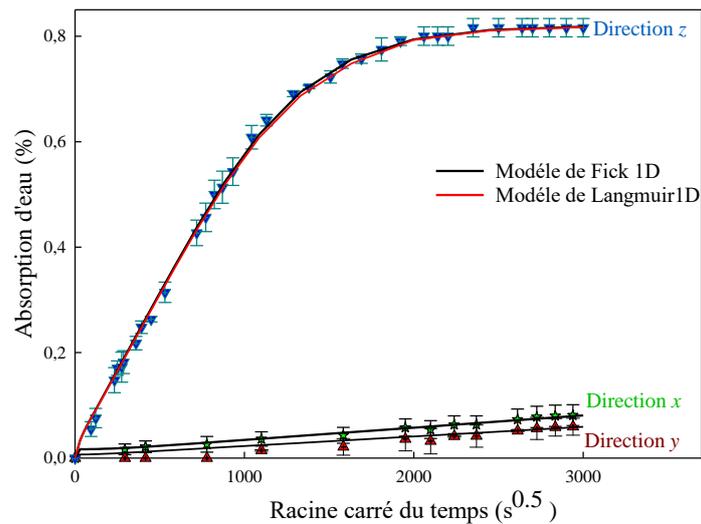


Figure 3.3 : Courbes expérimentales d’absorption d’eau des échantillons verre-époxyde colmatés comparées aux solutions des modèles de Fick et de Langmuir 1D.

Pour chaque direction privilégiée x , y ou z , seulement deux paramètres peuvent être identifiés dans le cas du modèle de Fick (D_i, M_∞^i), et quatre paramètres pour le modèle de Langmuir ($D_i, M_\infty^i, \gamma_i$ et β_i avec $i = 1, 2, 3$) en utilisant les équations (3.6) et (3.11). L’approximation de Sheng et Springer (3.9) a été aussi considérée pour identifier les paramètres de Fick 1D.

Les paramètres de diffusion des modèles de Fick et de Langmuir 1D déterminés à partir de la procédure d’optimisation ainsi que les résultats obtenus par l’approximation de Shen et Springer sont reportés dans les tableaux 3.1 et 3.2. Les tableaux montrent que la diffusion d’eau se fait principalement suivant l’épaisseur des échantillons verre-époxyde colmatés et ceci a été déjà rapporté dans quelques travaux de la littérature comme celui de Post et al. [229] sur des échantillons verre-polyester.

Ce comportement peut être expliqué par l’effet barrière induit par les fibres de verre de nature hydrophobe. En effet, la disposition des fibres de verre influe sur la diffusion des particules d’eau dans la matrice époxyde [220] en les ralentissant et réduisant leur teneur maximale en eau [230].

Pour les échantillons lin-époxyde colmatés, nous constatons que leur coefficient de diffusion suivant la direction des fibres D_x est 100 fois plus grand que celui suivant la direction de l’épaisseur D_z et environ 2,3 fois supérieur à celui suivant la largeur D_y . Cette différence est directement liée à la composition et la morphologie de la fibre de lin qui peut favoriser le transport de l’eau le long de sa partie centrale creuse appelée lumen [231–234]. En outre, la masse à saturation dans le sens des fibres de lin M_∞^x s’avère plus importante que celle dans les

sens transversal M_{∞}^y et de l'épaisseur M_{∞}^z . Ceci peut s'expliquer par l'augmentation du taux de diffusion (défini comme la pente de la courbe d'absorption) qui favorise davantage le gonflement des fibres de lin et de la matrice, provoquant une propagation plus rapide des microfissures à l'interface fibre-matrice. Ce processus fragilise davantage les échantillons lin-époxyde vieilliss et augmente ainsi leur capacité d'absorber l'eau. Ces explications sont confirmées par les observations MEB de la figure 3.4 sur des échantillons lin-époxyde vieilliss jusqu'à saturation. En particulier, la figure 3.4.a montre des microfissures à l'interface fibre-matrice qui peuvent être induites par la formation de liaisons entre les composants hydrophiles de la paroi primaire des fibres de lin (pectines, hémicelluloses) et les molécules d'eau [235]. La figure 3.4.b montre des microfissures dans le faisceau de fibres de lin, principalement causées par le gonflement hygroscopique différentiel entre les interfaces fibre-fibre et fibre-matrice. La présence de ces microfissures augmente par capillarité la diffusion d'eau dans ces échantillons composites. La figure 3.4.c montre la formation de micro-porosités avec une taille moyenne de $0,2 \mu\text{m}$ qui s'avèrent plus petites que la taille du lumen ($D_{lumen} = 5-10 \mu\text{m}$) [236]. Ceci peut s'expliquer par la dissolution dans l'eau de certains composants de la fibre de lin comme les pectines. Ces vides augmentent la masse à saturation des échantillons lin-époxyde. La figure 3.4.d montre un arrachement partiel d'une fibre de lin dû probablement à une rupture liée au gonflement hygroscopique différentiel des fibres de lin.

Pour la diffusion d'eau dans les sens transversaux et de l'épaisseur (directions y et z), la masse à saturation M_{∞}^y est inférieure à M_{∞}^z alors que D_y est 44 fois supérieur à D_z (tableau 3.1). Ces variations sont principalement liées aux dimensions de l'échantillon où la largeur (direction y) est presque 10 fois supérieure à l'épaisseur (direction z) [12]. En effet, lorsque les dimensions augmentent, la masse à saturation diminue et les coefficients de diffusion augmentent comme rapporté dans d'autres travaux [12,216,232,237]. Par exemple, Bunsell et al. [237] ont attribué cette variation au réarrangement moléculaire du réseau polymérique lorsque les échantillons sont plus épais, ce qui ralentirait la diffusion d'eau dans le composite. Pour les échantillons lin-époxyde étudiés, la variation des masses à saturation avec les dimensions pourrait également être accentuée par l'augmentation de la cinétique de diffusion de l'humidité, qui provoque un gonflement plus important des fibres de lin et de la matrice époxyde, comme expliqué précédemment.

Tableau 3.1 : Paramètres de diffusion des échantillons lin-époxyde et verre-époxyde colmatés déterminés par le modèle de Fick 1D et l'approximation de Shen et Springer dans les directions principales x , y et z .

Matériaux	Solution analytique	Coefficients de diffusion ($10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$)			Masse à saturation M_{∞} (%)			$R_x = \frac{D_x}{D_z}$	$R_y = \frac{D_y}{D_z}$
		D_x	D_y	D_z	M_{∞}^x (%)	M_{∞}^y (%)	M_{∞}^z (%)		
Lin-époxyde	Modèle de Fick 1D	648,65± 0,74	285,79±0,81	6,45±0,08	9,14±0,13	7,55±0,12	8,01±0,07	100,56	44,30
	Approximation de Shen et Springer	640,46±0,63	263,85±0,05	6,42±0,05	9,14±0,13	7,55±0,12	8,01±0,07	99,76	41,09
Verre-époxyde	Modèle de Fick 1D	0,56±0,03	0,34±0,06	4,53±0,15	0,9±0,02	0,9±0,04	0,83±0,03	0,12	0,07
	Approximation de Shen et Springer	-	-	4,56±0,27	-	-	0,83±0,03	-	-

Tableau 3.2 : Paramètres de diffusion des échantillons lin-époxyde et verre-époxyde colmatés déterminés par le modèle de Langmuir 1D dans les directions principales x , y et z .

Matériaux	Coefficients de diffusion ($10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$)			Masse à saturation M_{∞} (%)			Probabilités (10^{-8} s^{-1})						$R_x = \frac{D_x}{D_z}$	$R_y = \frac{D_y}{D_z}$
	D_x	D_y	D_z	M_{∞}^x (%)	M_{∞}^y (%)	M_{∞}^z (%)	γ_x	γ_y	γ_z	β_x	β_y	β_z		
Lin-époxyde	689,7	309,89	6,98	9,14	7,55	8,01	0,85	0,83	0,86	42,4	45,23	38,51	98,81	44,39
	± 0,27	± 0,27	± 0,27	± 0,13	± 0,12	± 0,07	± 0,03	± 0,07	± 0,01	± 0,73	± 0,27	± 2,82		
Verre-époxyde	-	-	4,64	-	-	0,83	-	-	1,84	-	-	30,22	-	-
	-	-	± 0,27	-	-	± 0,03	-	-	± 0,04	-	-	± 1,42		

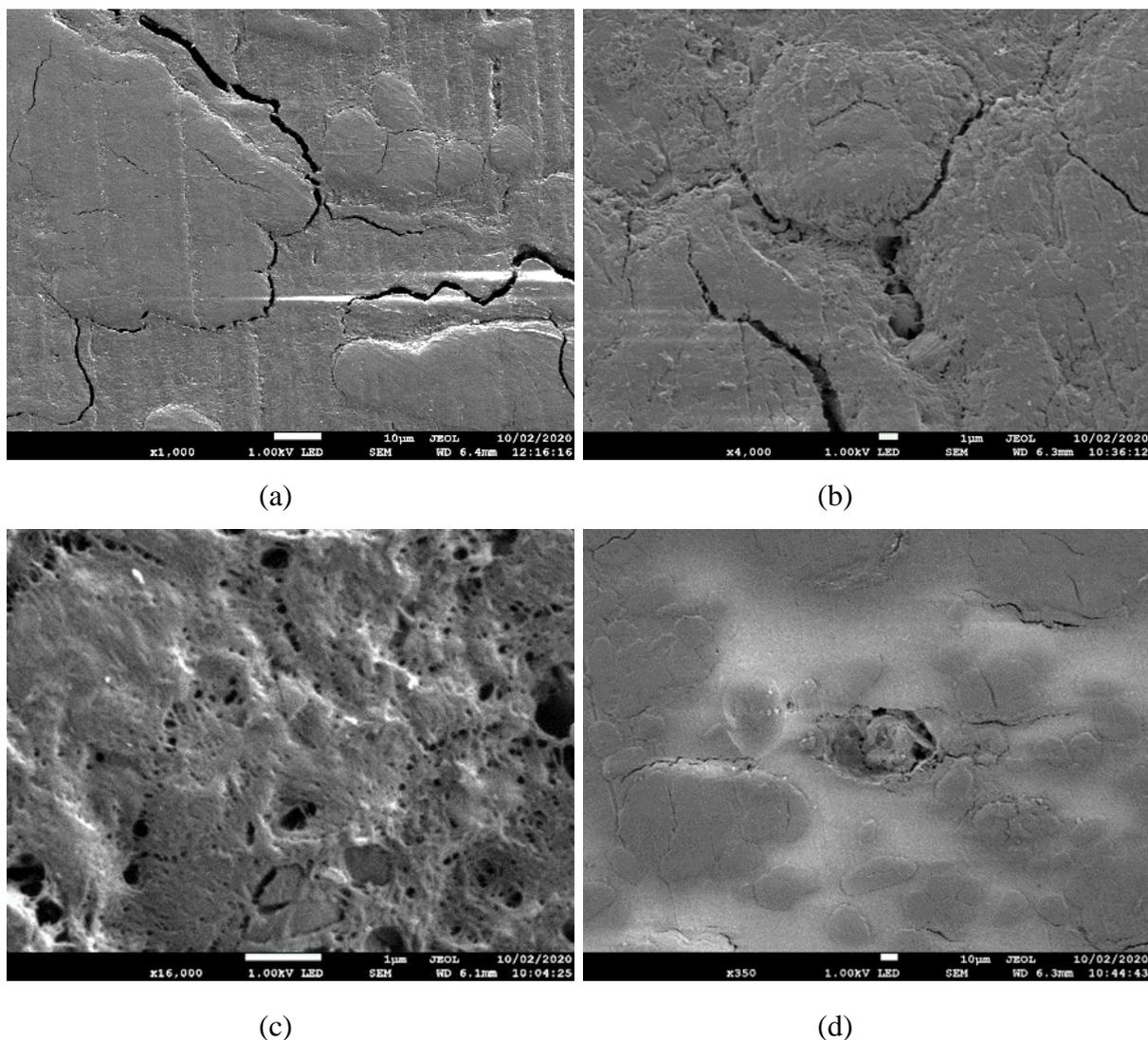


Figure 3.4 : Observations microscopiques de sections transversales d'échantillons lin-époxyde après 70 jours de vieillissement (diffusion dans la direction x).

Au sujet de la comparaison entre les modèles de Fick et de Langmuir 1D, nous constatons que les coefficients de diffusion obtenus à partir du modèle de Langmuir sont supérieurs à ceux déterminés par le modèle de Fick. Certains travaux de la littérature [105,221,238–240] expliquent cette différence par le fait que le coefficient de diffusion dans le modèle de Langmuir reflète exclusivement la vitesse de diffusion des particules d'eau libres et ne prend pas en considération les particules liées supposées immobiles, contrairement au modèle de Fick. En effet, ce dernier considère une seule population de particules libres et le coefficient de diffusion reflète la vitesse moyenne des deux populations considérées par le modèle de Langmuir.

De plus, le tableau 3.2 montre que les valeurs de la probabilité γ sont plus faibles que celles de β , ce qui semble typique d'un comportement Fickien. Carter et Kibller [85] expliquent ces valeurs faibles de γ par la répartition uniforme des particules libres au niveau de l'échantillon,

ce qui tend vers un comportement Fickien. Ces auteurs n'ont pas spécifié les sites de liaison des particules d'eau et ils ont introduit un rapport exprimant la relation entre les deux probabilités $\left(\chi = \frac{\beta}{\beta + \gamma} = 0,85\right)$. Dans un autre travail de Grace et al. [221], les auteurs expliquent l'allure Fickienne des courbes d'absorption de leurs échantillons verre-époxyde par le fait que les molécules libres qui deviennent liées restent liées suffisamment longtemps, ce qui ralentit le processus de diffusion des particules d'eau dans le composite. Par conséquent, le comportement d'absorption de leurs matériaux semble être uniforme et de nature Fickienne et le rapport déterminé est $\chi = 0,93$. Grace et al. [221] n'ont pas spécifié la nature des liaisons des particules d'eau avec le réseau polymérique.

Les résultats du tableau 3.2 montrent que les rapports définissant les probabilités γ et β des échantillons lin-époxyde colmatés sont quasiment identiques ($\chi_{lin}^x = 0,981, \chi_{lin}^y = 0,981$ et $\chi_{lin}^z = 0,978$). Ces rapports sont supérieurs à ceux des échantillons verre-époxyde colmatés ($\chi_{verre}^z = 0,940$). Ce dernier rapport semble très proche de celui donné par Grace et al. [221] ($\chi = 0,93$). Cette variation peut être expliquée par la nature hydrophile des fibres de lin qui favorise le phénomène de plastification en comparaison avec le composite verre-époxyde. En effet, les molécules d'eau s'insèrent entre les chaînes moléculaires des pectines affectant ainsi leurs interactions avec les fibrilles de cellulose [100]. Les liaisons entre les particules d'eau et les matrices pectines sont supposées être de type Van Der Waals [241], caractérisées par un niveau d'énergie relativement faible par rapport à la liaison hydrogène [242]. Ce niveau d'énergie faible peut expliquer la forte mobilité des particules d'eau dans les échantillons lin-époxyde qui se traduit par des rapports χ_{lin} plus importants que celui des échantillons verre-époxyde suivant l'épaisseur χ_{verre}^z .

Nous constatons également que l'approximation de Shen et Springer donne des valeurs très proches de celles obtenues par la procédure d'optimisation 1D sauf dans les directions x et y des échantillons verre-époxyde colmatés car le plateau d'équilibre n'est pas atteint. Contrairement à la méthode de Shen et Springer, la procédure d'optimisation développée dans ce travail permet d'estimer les coefficients de diffusion et les masses à saturation des échantillons colmatés, en considérant ces dernières comme variables d'optimisation. De ce fait, nous considérons dans la suite de cette étude doctorale les valeurs obtenues par notre procédure d'optimisation.

3.5.2. Identification des coefficients de diffusion des échantillons non colmatés

Nous nous intéressons maintenant aux coefficients de diffusion des échantillons lin-époxyde et verre-époxyde non colmatés. Nous vérifions d'abord si les coefficients de diffusion des échantillons colmatés permettent de prédire la cinétique de diffusion d'eau dans les échantillons non colmatés. De ce fait, les paramètres résumés dans les tableaux 3.1 et 3.2 ont été introduits dans les équations (3.5) et (3.11) pour prédire la cinétique de diffusion d'eau au sein des échantillons non colmatés et les résultats sont montrés sur la figure 3.5.

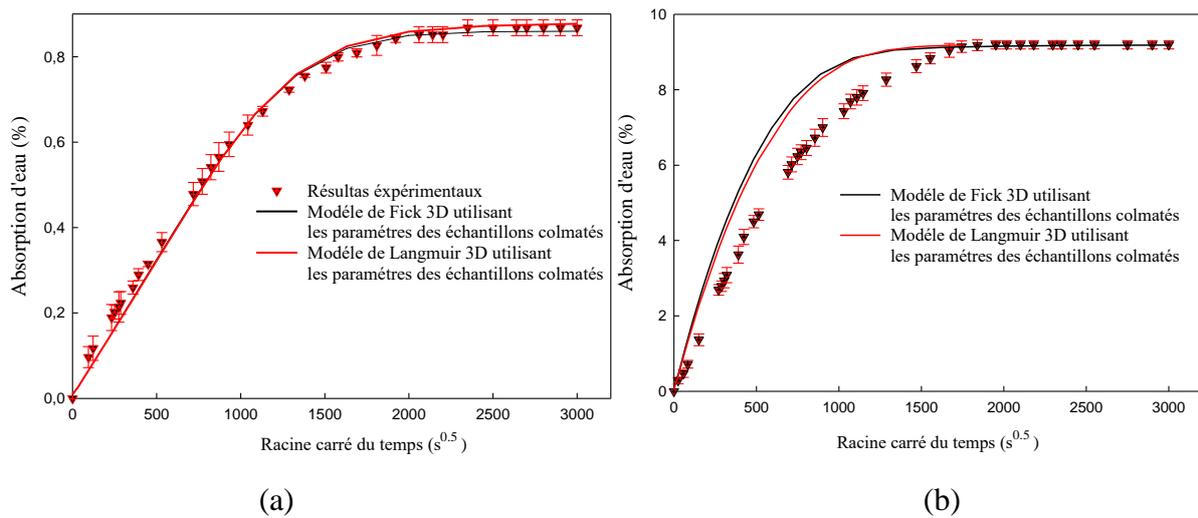


Figure 3.5 : Courbes d'absorption d'eau expérimentales des échantillons non colmatés comparées aux solutions des modèles de Fick et de Langmuir 3D en utilisant les paramètres de diffusion des échantillons colmatés : (a) verre-époxyde et (b) lin-époxyde.

La figure 3.5.a montre que les coefficients de diffusion des échantillons verre-époxyde colmatés décrivent correctement le comportement diffusif des échantillons non colmatés. Ceci est dû au fait que la diffusion dans les échantillons verre-époxyde se fait principalement suivant l'épaisseur [229]. Contrairement aux échantillons verre-époxyde, les coefficients des échantillons lin-époxyde colmatés ne permettent pas de décrire le comportement diffusif des échantillons non colmatés comme le montre la figure 3.5.b. Cette différence montre que la diffusion d'humidité dans les composites à fibres de lin est un phénomène complexe [216,217] et que les paramètres de diffusion 1D identifiés à partir des échantillons colmatés ne permettent pas de décrire le comportement diffusif 3D. Par conséquent, les paramètres de diffusion des échantillons lin-époxyde non colmatés doivent être identifiés en même temps par la procédure d'optimisation avec deux contraintes supplémentaires sur les principaux paramètres de diffusion ($D_y < D_x$ et $D_z < D_y$). Ces deux contraintes sont déduites de l'identification des paramètres de diffusion des échantillons colmatés lin-époxyde (tableaux 3.1 et 3.2). Les tableaux 3.3 et 3.4

résumant les coefficients de diffusion ainsi identifiés en utilisant respectivement les modèles de Fick et de Langmuir 3D. La figure 3.6 montre une comparaison entre les courbes d'absorption d'eau expérimentales et analytiques en utilisant les paramètres de diffusion des tableaux 3.3 et 3.4.

Tableau 3.3 : Paramètres de diffusion des composites lin-époxyde et verre-époxyde non-colmatés déterminés par le modèle de Fick 3D.

Matériaux	D_x ($10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$)	D_y ($10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$)	D_z ($10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$)	M_∞^x (%)	$R_x = \frac{D_x}{D_z}$	$R_y = \frac{D_y}{D_z}$
Lin-époxyde	213,09±0,01	107,38±0,08	3,55±0,01	9,15±0,10	60,00	30,22
Verre-époxyde	0,42±0,06	0,34±0,03	4,41±0,10	0,86±0,02	0,09	0,07

Tableau 3.4 : Paramètres de diffusion des composites lin-époxyde et verre-époxyde non-colmatés déterminés par le modèle de Langmuir 3D.

Matériaux	D_x ($10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$)	D_y ($10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$)	D_z ($10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$)	γ (10^{-7} s^{-1})	β (10^{-7} s^{-1})	R_x	R_y
Lin-époxyde	225,38±7,71	124,31±4,25	3,58±0,13	0,09±0,01	3,95±0,13	62,84	34,36
Verre-époxyde	0,52±0,02	0,39±0,01	4,78±0,23	0,21±0,06	2,97±0,29	0,10	0,08

Nous remarquons que ces paramètres de diffusion permettent de décrire correctement le comportement hygroscopique des échantillons non colmatés, en particulier, celui du lin-époxyde. Il convient également de noter que les paramètres de diffusion d'eau des échantillons lin-époxyde non colmatés sont différents de ceux des échantillons colmatés pour les deux modèles de Fick et de Langmuir.

De plus, nous remarquons que les rapports $\left(R_x = \frac{D_x}{D_z} \right)$ et $\left(R_y = \frac{D_y}{D_z} \right)$ des échantillons non colmatés (tableau 3.3) montrent une diminution de 41% et 32% respectivement par rapport à ceux des échantillons colmatés (tableau 3.1). Cette diminution est probablement liée au mouvement des particules d'eau que nous forçons à suivre l'une des trois directions principales dans le cas des échantillons colmatés, en particulier dans la direction des fibres de lin, ce qui explique la valeur importante de R_x pour les échantillons colmatés. Pour les échantillons non colmatés, la direction privilégiée est moins prononcée que dans le cas des échantillons colmatés, et nous obtenons ainsi une sorte d'équilibre hygroscopique entre les trois directions principales, ce qui pourrait expliquer la diminution relativement importante des rapports R_x et R_y .

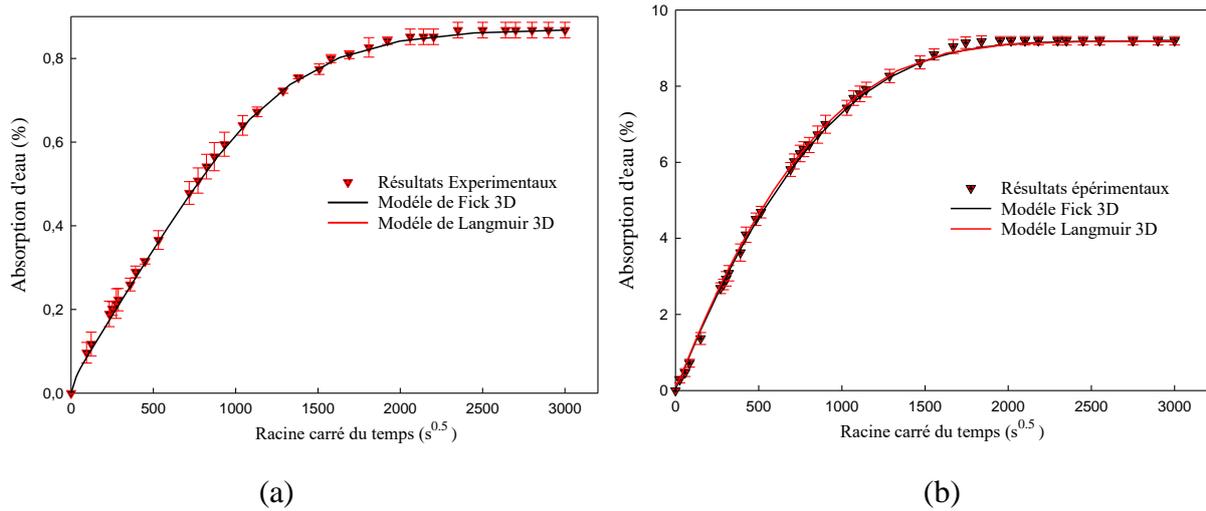


Figure 3.6: Courbes d'absorption d'eau expérimentales des échantillons non colmatés comparées aux solutions des modèle de Fick et de Langmuir 3D en utilisant les paramètres de diffusion des tableaux 3.3 et 3.4 : (a) verre-époxyde et (b) lin-époxyde.

À l'issue de cette étude, en émettant l'hypothèse que le processus de diffusion de l'humidité est principalement contrôlé par les fibres de lin UD, nous pouvons en déduire des rapports entre leurs coefficients de diffusion longitudinal et radial (notés D_f^L et D_f^R) équivalents à ceux résultant de la procédure d'optimisation sur les échantillons lin-époxyde non colmatés ($R_x^F = D_x / D_z = 60$) et ($R_x^L = D_x / D_z = 62,84$) basée sur les modèles de Fick et de Langmuir 3D, respectivement. Ces rapports sont considérés dans la section (3.7) pour estimer les coefficients de diffusion longitudinal et radial de la fibre de lin selon les modèles de Fick et de Langmuir, respectivement, avec l'hypothèse suivante $D_f^L = R_x^i D_f^R$, $i = F, L$.

3.5.3. Effet de l'hybridation

La figure 3.7 montre l'évolution de la masse d'eau absorbée des éprouvettes de traction des composites non hybrides et hybrides après 70 jours de vieillissement hydrique. Toutes les courbes montrent un comportement diffusif de type Fickien [80] avec des pentes et des plateaux de saturation qui varient en fonction de la configuration. La courbe du composite lin-époxyde présente le plateau le plus élevé et ceci est clairement attribué au caractère hydrophile des fibres de lin. La pente et le plateau des courbes associées aux composites hybrides $[L_2/V_2]_s$ et $[V_2/L_2]_s$ décroissent avec l'ajout des couches de verre, en particulier quand ces dernières sont placées à l'extérieur des éprouvettes.

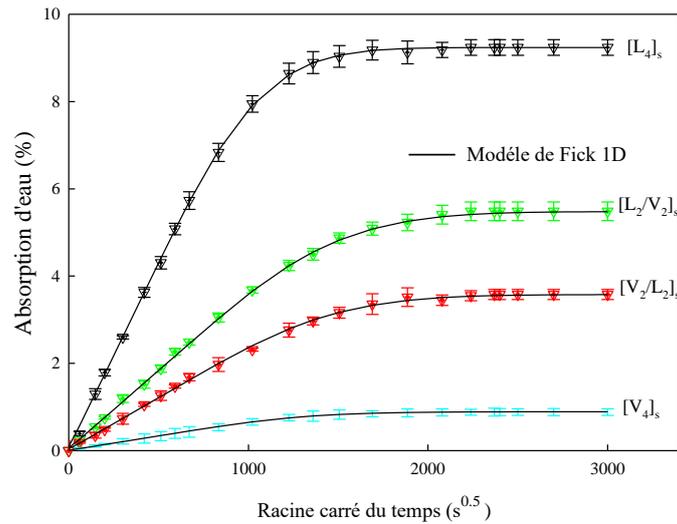


Figure 3.7: Evolution de l'absorption d'eau des éprouvettes de traction des composites hybrides et non hybrides.

Dans la section précédente, nous avons constaté que la diffusion d'eau dans le composite verre-époxyde se fait principalement suivant son épaisseur. Des conclusions similaires ont été faites dans le cas d'éprouvettes de traction hybrides lin-verre-époxyde par Saidane et al. [149], en comparant des éprouvettes colmatées sur les bords et non colmatées. Pour cela, nous avons considéré le modèle de diffusion de Fick 1D afin de décrire les courbes de la figure 3.7.

Les résultats de la procédure d'optimisation, résumés dans le tableau 3.5, montrent que l'ajout des fibres de verre affecte fortement le comportement diffusif du composite lin-époxyde. Par exemple, l'ajout de 18% de fibres de verre (configuration $[L_2/V_2]_s$) réduit respectivement de 40% et de 50% la masse à saturation et le coefficient de diffusion D_z du composite lin-époxyde.

Tableau 3.5 : Paramètres de diffusion des éprouvettes de traction des composites non hybrides et hybrides selon le modèle de Fick 1D.

	Taux volumique des fibres de verre (V_f (%))	D_z ($10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$)	M_∞ (%)
$[L_4]_s$	0	$14,59 \pm 0,19$	$9,24 \pm 0,17$
$[L_2V_2]_s$	$18,10 \pm 0,21$	$7,73 \pm 0,24$	$5,48 \pm 0,21$
$[V_2L_2]_s$	$19,20 \pm 0,75$	$6,68 \pm 0,16$	$3,57 \pm 0,11$
$[V_4]_s$	$48,88 \pm 0,64$	$4,54 \pm 0,20$	$0,88 \pm 0,07$

Le tableau 3.5 montre aussi que malgré les taux de fibres de verre proches des deux configurations $[L_2/V_2]_s$ et $[V_2/L_2]_s$, ces deux composites présentent un comportement diffusif différent. Ceci peut être expliqué par la position des fibres de verre, plus rigides que les fibres de lin, dans le composite $[V_2/L_2]_s$. Ces fibres limitent le gonflement hygroscopique des fibres

de lin et réduisent ainsi la masse à saturation de ce composite en comparaison avec la configuration $[L_2/V_2]_s$. De plus, l'effet barrière causé par les fibres de verre expliqué dans la section 3.5.1 ralentit la diffusion des particules d'eau, ce qui se traduit par une baisse du coefficient de diffusion D_z .

3.6. Modélisation par éléments finis du comportement hygroscopique des composites de l'étude

Nous rappelons que le problème de diffusion d'eau dans les composites renforcés par des fibres végétales est souvent décrit dans la littérature par le modèle de diffusion de Fick [80] en raison de sa formulation disponible dans plusieurs logiciels de calcul par éléments finis comme ABAQUS. Dans ce travail, nous proposons une piste d'amélioration du modèle de Fick qui consiste à formuler et implémenter dans ABAQUS le modèle de diffusion de Langmuir [85]. En effet, le modèle de Langmuir peut être considéré comme une généralisation du modèle de Fick et permet ainsi de décrire une classe de phénomènes plus large que le modèle de Fick comme la plastification et l'hydrolyse.

3.6.1. Formulation variationnelle faible de l'équilibre hygroscopique

Nous considérons un solide composite bidimensionnel B_0 comme le montre la figure 3.8. Pour décrire son comportement hygroscopique, nous introduisons la variable $c(\mathbf{x}, t)$ qui représente la concentration d'humidité à un instant t du vieillissement en un point P de B_0 caractérisé par son vecteur de position \mathbf{x} .

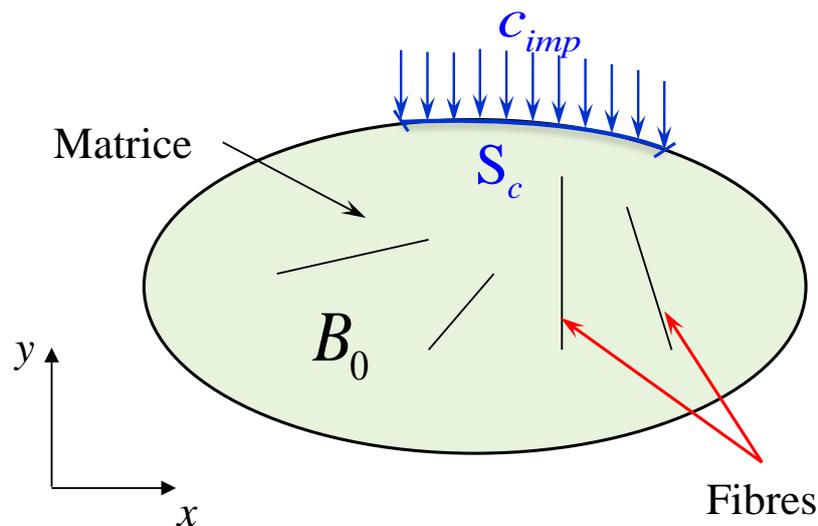


Figure 3.8 : Un solide composite 2D avec des conditions aux limites en humidité.

3.6.1.1. Problème de Fick

Dans un premier temps, nous considérons le modèle de Fick pour décrire la cinétique de diffusion de l'humidité au sein des échantillons de l'étude. Les molécules d'eau supposées libres de se déplacer dans le composite, sont décrites par la teneur locale c . Le problème de diffusion des molécules d'eau suivant le modèle de Fick est décrit par l'équation suivante :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \text{div}(\mathbf{D} \cdot \nabla c) \text{ avec } c = c_{imp} \text{ sur } S_c \quad (3.13)$$

Pour un problème plan, \mathbf{D} (supposé symétrique) et ∇c sont définis par les expressions suivantes :

$$\mathbf{D} = \begin{pmatrix} D_x & D_{xy} \\ D_{xy} & D_y \end{pmatrix} \text{ et } \nabla c = \begin{pmatrix} \frac{\partial c}{\partial x} \\ \frac{\partial c}{\partial y} \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

La forme variationnelle faible de l'équation de diffusion (3.13) est obtenue en introduisant la fonction test c^* qui vérifie $c^* = 0$ sur S_c :

$$w_1(c, c^*) = \int_{B_0} (\dot{c} - \text{div}(\mathbf{D} \cdot \nabla c)) c^* dV = 0 \quad \forall c^* \text{ avec } \dot{c} = \frac{\partial c}{\partial t} \quad (3.15)$$

La forme variationnelle faible de l'équation de Fick peut être réécrite sous la forme suivante :

$$w_1(c, c^*) = \int_{B_0} \dot{c} c^* dV + \int_{B_0} \nabla c^* \cdot \mathbf{D} \cdot \nabla c dV + \int_{\partial B_0} c^* \phi_n dS = 0 \quad \forall c^* \quad (3.16)$$

où ϕ_n est le flux de diffusion normal à la frontière ∂B_0 du solide composite B_0 .

3.6.1.2. Problème de Langmuir

Contrairement au modèle de Fick, pour lequel toutes les molécules d'eau sont supposées libres de diffuser dans le composite, le modèle de Langmuir sépare les molécules d'eau en deux populations ou phases. La première, notée n , est constituée des molécules d'eau libres ou mobiles, tandis que la seconde, notée N , est composée des molécules liées qui ont réagi avec les sites polaires du réseau polymère et les groupements hydroxyles. Par ailleurs, le modèle de Langmuir suppose que les molécules d'eau puissent changer de population. Ces migrations d'une population à l'autre sont alors gérées par des fréquences (ou probabilités) caractérisées par les paramètres γ et β . Le problème de diffusion d'eau dans le matériau selon le modèle de Langmuir s'écrit [85] :

$$\begin{aligned}
\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial N}{\partial t} &= \text{div}(\mathbf{D}^\gamma \cdot \nabla n) \\
\frac{\partial N}{\partial t} &= \gamma n - \beta N \\
c &= n + N \\
c &= c_{imp} \text{ sur } S_c \\
\gamma n_\infty &= \beta N_\infty
\end{aligned} \tag{3.17}$$

De même que pour le modèle de Fick, le tenseur de diffusion des particules libres \mathbf{D}^γ , supposé symétrique, et ∇n sont donnés par :

$$\mathbf{D}^\gamma = \begin{pmatrix} D_{xx}^\gamma & D_{xy}^\gamma \\ D_{xy}^\gamma & D_{yy}^\gamma \end{pmatrix} \text{ et } \nabla n = \begin{pmatrix} \frac{\partial n}{\partial x} \\ \frac{\partial n}{\partial y} \end{pmatrix} \tag{3.18}$$

La forme variationnelle faible de la première équation de Langmuir est obtenue en introduisant la fonction test n^* qui vérifie $n^* = 0$ sur S_c :

$$w_2(c, n^*) = \int_{B_0} (\dot{c} - \text{div}(\mathbf{D}^\gamma \cdot \nabla n)) n^* dV = 0 \quad \forall n^* \text{ avec } \dot{c} = \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial N}{\partial t} = \dot{n} + \dot{N} \tag{3.19}$$

L'équation (3.19) peut être réécrite sous cette forme :

$$w_2(c, n^*) = \int_{B_0} \dot{c} n^* dV + \int_{B_0} \nabla n^* \cdot \mathbf{D}^\gamma \cdot \nabla n dV + \int_{\partial B_0} n^* \phi_n dS = 0 \tag{3.20}$$

La forme faible de la deuxième équation de Langmuir est obtenue en introduisant la fonction test N^* qui vérifie $N^* = 0$ sur S_c :

$$w_3(c, N^*) = \int_{B_0} (\dot{N} - \gamma n + \beta N) N^* dV = 0, \quad \forall N^* \tag{3.21}$$

La forme faible de l'équilibre hygroscopique selon le modèle de Langmuir est obtenue en combinant les formes faibles (3.20) et (3.21) :

$$\begin{aligned}
w_4(c, n^*, N^*) &= \int_{B_0} \dot{n} n^* dV + \int_{B_0} \dot{N} N^* dV + \int_{B_0} \nabla n^* \cdot \mathbf{D}^\gamma \cdot \nabla n dV + \int_{\partial B_0} n^* \phi_n dS + \int_{B_0} \dot{N} N^* dV \\
&\quad + \int_{B_0} \beta N N^* dV - \int_{B_0} \gamma n N^* dV = 0, \quad \forall n^* \text{ et } \forall N^*
\end{aligned} \tag{3.22}$$

3.6.2. Approximation par éléments finis

L'approximation par éléments finis des formes variationnelles faibles (3.16) et (3.22) nécessite une première discrétisation spatiale et une deuxième temporelle. Dans ce qui suit, nous présentons les formulations de deux éléments finis de membrane triangulaires à trois nœuds basés sur les modèles de Fick et de Langmuir.

3.6.2.1. Élément hygrosopique de membrane basé sur le modèle de Fick

Pour la discrétisation spatiale de l'équation (3.16), un élément fini hygrosopique de membrane triangulaire à trois nœuds est développé (figure 3.9). Les fonctions d'interpolation suivantes $N_1 = 1 - \xi - \eta$, $N_2 = \xi$ et $N_3 = \eta$ ($0 \leq \xi, \eta \leq 1$) sont utilisées pour approcher la concentration d'humidité au sein de l'élément hygrosopique en fonction des concentrations d'humidité nodales :

$$c = \sum_{i=1}^3 N_i(\xi, \eta) c_i \quad (3.23)$$

où c_i représentent les concentrations d'humidité nodales.

L'approximation (3.23) permet d'exprimer la concentration d'humidité et son gradient en fonction des variables nodales :

$$c = {}^t N_c \cdot \mathbf{c}_n ; \quad \nabla c = \mathbf{B}_c \cdot \mathbf{c}_n \text{ avec } \mathbf{c}_n = \{c_1 \ c_2 \ c_3\}^T \quad (3.24)$$

où \mathbf{c}_n est le vecteur des degrés de liberté (DDL) de l'élément de Fick.

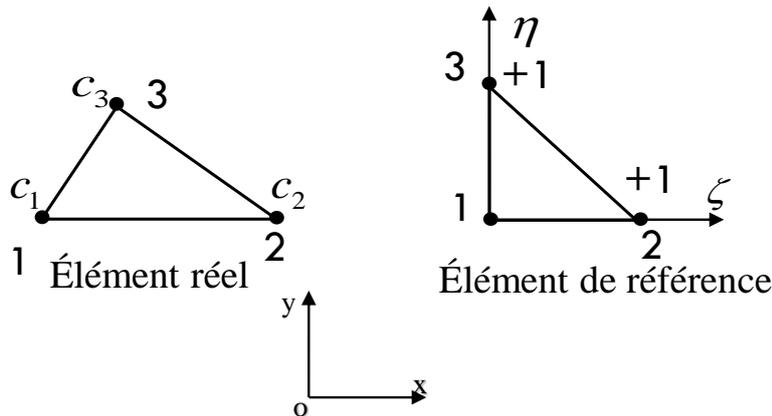


Figure 3.9 : L'élément hygrosopique de membrane triangulaire à trois nœuds basé sur le modèle de Fick.

Au niveau élémentaire, l'approximation par éléments finis de la forme faible (3.16) s'écrit :

$$w_1^e(c_n, c_n^*) = {}^t \mathbf{c}_n^* \cdot \left[\int_{B_0} N_c \cdot {}^t N_c dV \cdot \dot{\mathbf{c}}_n + \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_c \cdot \mathbf{D} \cdot \mathbf{B}_c dV \cdot \mathbf{c}_n + \int_{\partial B_0} N_c \cdot \boldsymbol{\phi}_n dS \right] = 0, \forall \mathbf{c}_n^* \quad (3.25)$$

Après simplification par \mathbf{c}_n^* , l'équation d'équilibre hygroscopique selon le modèle de Fick s'écrit au niveau élémentaire :

$$\mathbf{K}_c \cdot \mathbf{c}_n + \mathbf{C} \cdot \dot{\mathbf{c}}_n - \mathbf{F}_c = 0 \text{ avec } \mathbf{F}_c = - \int_{\partial B_0} N_c \cdot \boldsymbol{\phi}_n dS \quad (3.26)$$

où $\mathbf{C} = \int_{B_0} N_c \cdot {}^t N_c dV$ est la matrice de vitesse de diffusion (moisture velocity matrix) et

$\mathbf{K}_c = \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_c \cdot \mathbf{D} \cdot \mathbf{B}_c dV$ est la matrice de diffusivité de l'humidité (moisture diffusivity matrix).

Pour la discrétisation temporelle de l'équation (3.26), nous avons adopté un schéma d'intégration implicite. Pour cela, nous considérons un intervalle de temps $[t, t + \Delta t]$ et nous supposons que la solution est connue au début de l'incrément (à l'instant t). L'intégration implicite de l'équation (3.26) donne alors le vecteur résidu élémentaire à la fin de l'incrément à $t + \Delta t$:

$$\mathbf{R}^{t+\Delta t} = \mathbf{K}_c \cdot \mathbf{c}_n^{t+\Delta t} + \mathbf{C} \cdot \frac{\Delta \mathbf{c}_n}{\Delta t} - \mathbf{F}_c^{t+\Delta t} \text{ avec } \Delta \mathbf{c}_n = \mathbf{c}_n^{t+\Delta t} - \mathbf{c}_n^t \quad (3.27)$$

La matrice tangente élémentaire de l'élément fini triangulaire est obtenue en dérivant le vecteur résidu élémentaire $\mathbf{R}^{t+\Delta t}$ par rapport à l'incrément des concentrations d'humidité nodales $\Delta \mathbf{c}_n$:

$$\mathbf{K}_T = - \frac{\partial \mathbf{R}^{t+\Delta t}}{\partial \Delta \mathbf{c}_n} = -\mathbf{K}_c - \frac{\mathbf{C}}{\Delta t} \quad (3.28)$$

3.6.2.2. Élément fini hygroscopique de membrane basé sur le modèle de Langmuir

Pour la première discrétisation spatiale, nous restons avec un élément triangulaire de membrane à trois nœuds avec deux degrés de liberté par nœud qui représentent la teneur des particules libre n_i et la teneur des particules liées N_i (figure 3.10). Les trois fonctions de forme associées à l'élément triangulaire de membrane à trois nœuds permettent d'approcher les teneurs des particules libres et liées au sein de l'élément hygroscopique :

$$n = \sum_{i=1}^3 N_i(\xi, \eta) n_i ; N = \sum_{i=1}^3 N_i(\xi, \eta) N_i \quad (3.29)$$

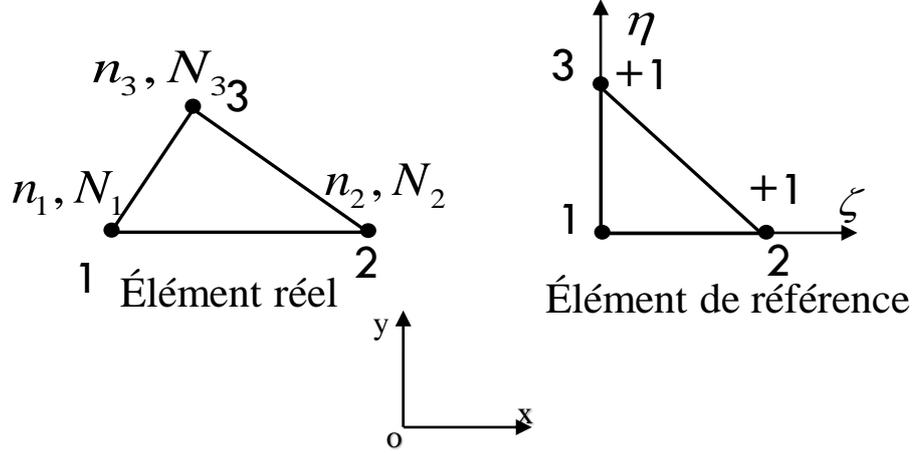


Figure 3.10 : L'élément hygroscopique de membrane triangulaire à trois nœuds basé sur le modèle de Langmuir.

Nous définissons le vecteur DDL de l'élément triangulaire hygroscopique de Langmuir par $u_n = \{n_1 \ N_1 \ n_2 \ N_2 \ n_3 \ N_3\}^T$. En utilisant l'approximation (3.29), il est possible d'exprimer les teneurs des particules d'eau libres et liées ainsi que le gradient des particules libres :

$$n = N_n^t \cdot u_n ; N = N_N^t \cdot u_n ; \nabla n = B_{nc} \cdot u_n \quad (3.30)$$

Au niveau élémentaire, l'approximation par éléments finis de la forme variationnelle faible (3.22) s'écrit :

$$w_2^e(u_n, u_n^*) = {}^t u_n^* \cdot \left(\left(\int_{B_0} N_n \cdot {}^t N_n dV + \int_{B_0} N_n \cdot {}^t N_N dV + \int_{B_0} N_N \cdot {}^t N_N dV \right) \cdot \dot{u}_n + \left(\int_{B_0} B_c \cdot D^\gamma \cdot {}^t B_c dV - \int_{B_0} \gamma N_N \cdot {}^t N_n dV + \int_{B_0} \beta N_N \cdot {}^t N_N dV \right) \cdot u_n + \int_{\partial B} N_n \phi_n dS \right) = 0 \quad (3.31)$$

Nous définissons les matrices suivantes :

$$C_L = \int_{B_0} N_n \cdot {}^t N_n dV + \int_{B_0} N_n \cdot {}^t N_N dV + \int_{B_0} N_N \cdot {}^t N_N dV \quad (3.32)$$

$$K_{CL} = \int_{B_0} B_c \cdot D^\gamma \cdot {}^t B_c dV - \int_{B_0} \gamma N_N \cdot {}^t N_n dV + \int_{B_0} \beta N_N \cdot {}^t N_N dV \quad (3.32)$$

Après simplification par u_n^* , l'équation (3.31) s'écrit :

$$\mathbf{C}_L \cdot \dot{\mathbf{u}}_n + \mathbf{K}_{CL} \cdot \mathbf{u}_n - \mathbf{F}_{CL} = 0 \text{ avec } \mathbf{F}_{CL} = - \int_{\partial B} \mathbf{N}_n \phi_n dS \quad (3.33)$$

Pour la discrétisation temporelle de l'équation (3.34), nous avons adopté un schéma d'intégration implicite comme considéré dans la formulation de l'élément triangulaire basé sur le modèle de Fick. Le vecteur résidu de l'élément de Langmuir s'écrit alors à la fin de l'incrément :

$$\mathbf{R}^{t+\Delta t} = \mathbf{K}_{CL} \cdot \mathbf{u}_n^{t+\Delta t} + \mathbf{C}_L \cdot \frac{\Delta \mathbf{u}_n}{\Delta t} - \mathbf{F}_{CL}^{t+\Delta t} \text{ avec } \Delta \mathbf{u}_n = \mathbf{u}_n^{t+\Delta t} - \mathbf{u}_n^t \quad (3.34)$$

La matrice tangente élémentaire de l'élément fini triangulaire de Langmuir est obtenue en dérivant le vecteur résidu élémentaire $\mathbf{R}^{t+\Delta t}$ par rapport à l'incrément des concentrations d'humidité nodales $\Delta \mathbf{u}_n$:

$$\mathbf{K}_T = - \frac{\partial \mathbf{R}^{t+\Delta t}}{\partial \Delta \mathbf{u}_n} = -\mathbf{K}_{CL} - \frac{\mathbf{C}_L}{\Delta t} \quad (3.35)$$

3.7. Résultats de la modélisation par éléments finis

Comme application du développement des éléments finis hygroscopiques de membrane, nous les utilisons dans cette partie pour étudier le comportement hygroscopique des matériaux de l'étude. Dans un premier temps, cette analyse par éléments finis permettra d'obtenir une estimation des paramètres de diffusion des fibres de lin UD.

3.7.1. Estimation des coefficients de diffusion des fibres de lin

Pour simplifier, une modélisation plane de la diffusion d'eau au sein des échantillons lin-époxyde carrés est adoptée comme le décrit la figure 3.11. La modélisation par éléments finis sera faite dans le plan xz (figure 3.11.c) car elle fait appel aux coefficients de diffusion D_{lin}^l et D_{lin}^r des fibres de lin UD. En effet, une modélisation dans le plan yz (figure 3.11.b) ne permet de considérer que le coefficient diffusion radial des fibres de lin, ce qui pourrait biaiser son estimation. Il convient de rappeler que les échantillons lin-époxyde carrés sont constitués de six couches de fibres de lin UD, ce qui conduit à une épaisseur totale de 2,68 mm. Grâce à la symétrie du problème, un-quart du plan xz est modélisé comme le montre la figure 3.11. c. Les trois couches de lin sont modélisées dans ce plan par trois rectangles d'épaisseur 0,147 mm pour respecter la fraction volumique du renfort ($V_f \approx 33\%$). La figure 3.12 montre le maillage

du quart du plan xz constitué de 56232 éléments triangulaires, fixé après une étude de convergence.

Pour alimenter ce modèle éléments finis, nous avons besoin des paramètres de diffusion d'humidité de la matrice époxyde et des fibres de lin UD. Les paramètres de diffusion de la résine époxyde ont été déduits de sa courbe d'absorption d'eau expérimentale obtenue en faisant vieillir des échantillons de résine pure. Cette courbe d'absorption présente une allure fickienne à partir de laquelle nous obtenons les paramètres de diffusion suivant le modèle de Fick et de Langmuir : $D_{\text{époxyde}}^F = 5,42 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$, $D_{\text{époxyde}}^L = 5,84 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$, $\gamma = 0,13 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$, $\beta = 2,54 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$. Pour les fibres de lin UD, il convient de préciser que leur comportement hygroscopique est anisotrope et doit être décrit par deux coefficients de diffusion radial et longitudinal comme expliqué précédemment. Bien que quelques travaux de la littérature se soient intéressés à la détermination du coefficient de diffusion radial de la fibre de lin comme le travail de Céline et al. [105], la détermination de son coefficient de diffusion longitudinal reste peu étudiée dans la littérature. Par conséquent, nous proposons dans cette partie une estimation des coefficients de diffusion radial et longitudinal de la fibre de lin selon les modèles de Fick et de Langmuir.

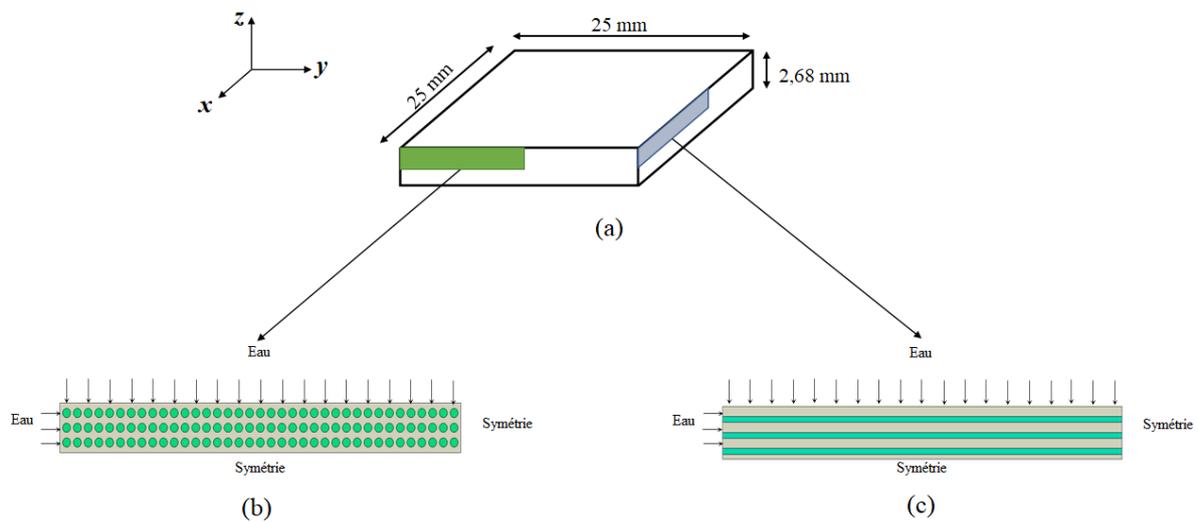


Figure 3.11 : (a) Échantillon lin-époxyde UD de dimensions 25x25x2,68 mm³. Modélisations plane de la diffusion d'eau au sein de l'échantillon dans les plans : (b) yz et (c) xz.

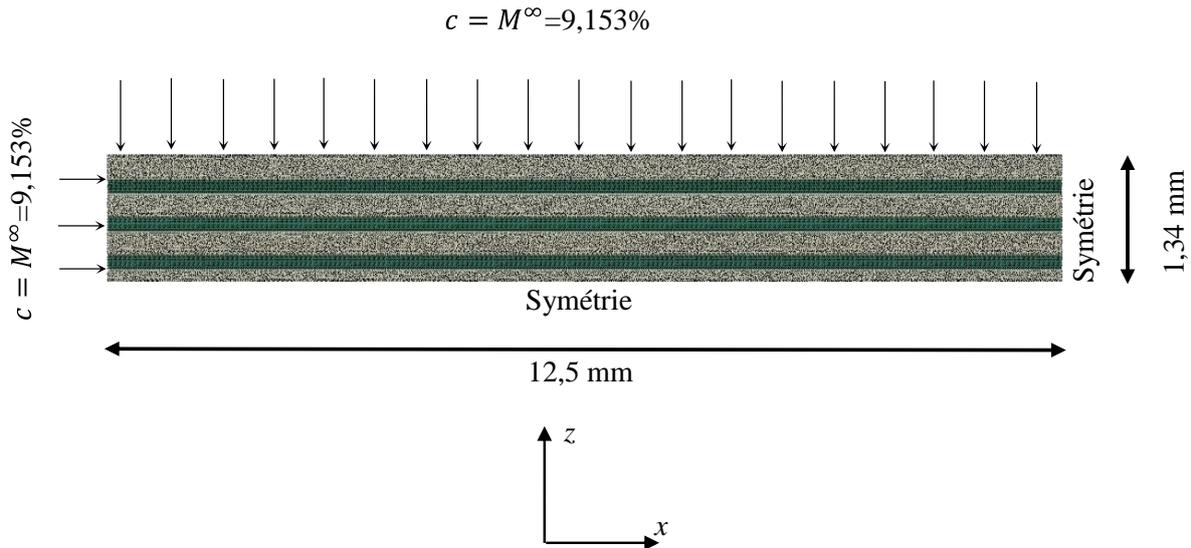


Figure 3.12: Modélisation plane par éléments finis de la diffusion d'humidité au sein des échantillons lin-époxyde UD dans le plan xz utilisant un maillage de 56232 éléments triangulaires.

Pour commencer, nous avons considéré les résultats des tableaux 3.3 et 3.4, comme une première approximation des paramètres de diffusion de la fibre de lin en supposant que le phénomène de diffusion est principalement gouverné par le comportement de la fibre de lin. De ce fait, les paramètres de diffusion suivant le modèle de Fick ($D_{lin}^{l,F} = 213,09 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$, $D_{lin}^{r,F} = 3,55 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$) et le modèle de Langmuir ($D_{lin}^{l,L} = 229,89 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$, $D_{lin}^{r,L} = 3,66 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$, $\gamma = 0,10 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$, $\beta = 4,03 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$) ont été utilisés pour alimenter le modèle éléments finis de la figure 3.12. Les conditions aux limites ($c^F = M^\infty = 9,15\%$ pour l'élément de Fick et $n^\infty = 8,77\%$ pour l'élément de Langmuir) ont été appliquées sur le côté supérieur et le côté gauche du modèle 2D. La figure 3.13 montre une comparaison entre les courbes d'absorption d'eau expérimentale et numériques des échantillons lin-époxyde non colmatés en utilisant l'élément fini de Fick (courbe rouge) et l'élément fini de Langmuir (courbe noire). Il convient de préciser que les courbes numériques ont été obtenues en effectuant une moyenne arithmétique de toutes les concentrations d'humidité nodales des modèles éléments finis. Nous remarquons que les courbes numériques ne permettent pas de décrire précisément la courbe expérimentale. La différence entre ces courbes reflète la difficulté de prédire le comportement hygroscopique des composites lin-époxyde UD en utilisant un modèle hétérogène.

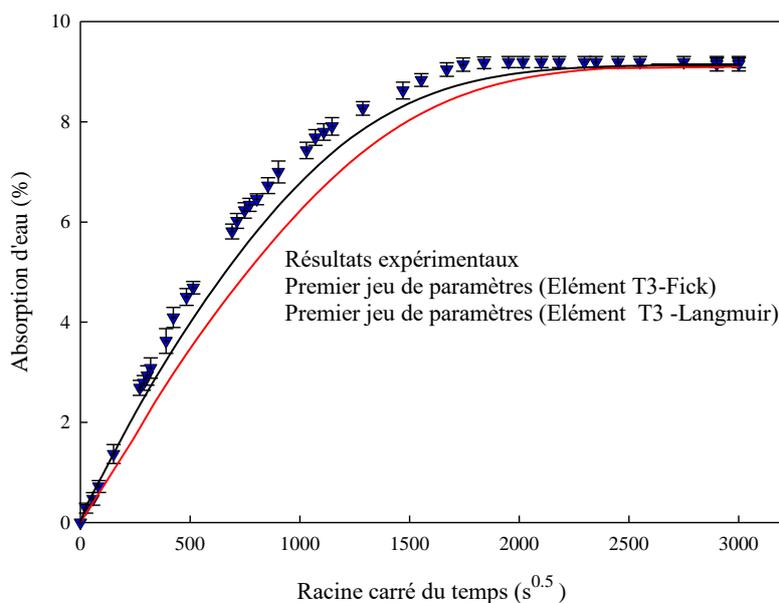


Figure 3.13 : Comparaison entre les courbes d'absorption d'eau expérimentale et numériques des échantillons lin-époxyde UD non colmatées en utilisant l'élément de Fick (courbe rouge) et l'élément de Langmuir (courbe noire).

Afin de mieux décrire la courbe expérimentale des échantillons lin-époxyde non colmatés, nous avons fait varier les coefficients de diffusion $D_{epoxyde}$ et D_{lin}^r en utilisant les relations suivantes issues de la section 3.5.2 : pour le modèle de Fick : $D_{lin}^{l,F} = 60 D_{lin}^{r,F}$ et pour le modèle de Langmuir : $D_{lin}^{l,L} = 62 D_{lin}^{r,L}$, $\gamma_{lin} = 0,10 \times 10^{-7} s^{-1}$, $\beta_{lin} = 4,03 \times 10^{-7} s^{-1}$. Nous avons ainsi obtenu les paramètres de diffusion optimaux de la matrice et de la fibre de lin, résumés dans le tableau 3.6, qui permettent de décrire correctement la courbe expérimentale des échantillons lin-époxyde non colmatés comme le montre la figure 3.14.

Tableau 3.6 : Paramètres de diffusion de la matrice époxyde et de la fibre de lin.

	Modèle de diffusion	D^l ($10^{-7} mm^2 / s$)	D^r ($10^{-7} mm^2 / s$)	γ ($10^{-7} s^{-1}$)	β ($10^{-7} s^{-1}$)
Epoxyde	Fick	5,66	5,66	-	-
	Langmuir	5,94	5,94	0,13	2,54
Fibre de lin	Fick	979,44	16,32	-	-
	Langmuir	983,40	15,65	0,10	4,03

En particulier, nous remarquons que les coefficients de diffusion d'humidité de la matrice époxyde ($D_{epoxyde}^F = 5,66 \times 10^{-7} mm^2 / s$ et $D_{epoxyde}^L = 5,94 \times 10^{-7} mm^2 / s$) sont légèrement supérieurs à ceux de la matrice pure $D_{epoxyde}^F = 5,42 \times 10^{-7} mm^2 / s$ et

$D_{\text{époxyde}}^L = 5,84 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$). Cette augmentation peut s'expliquer par la présence de décohésion entre les fibres de lin et la matrice époxyde dans le composite lin-époxyde, comparé à la résine pure, et l'apparition de microfissures dues au gonflement différentiel entre les fibres de lin, très hydrophiles, et la matrice époxyde, plutôt hydrophobe comparée au renfort. Ces défauts peuvent rendre la matrice époxyde plus fragile à la diffusion d'humidité et peuvent expliquer en partie l'augmentation de son coefficient de diffusion.

Quant aux coefficients de diffusion des fibres de lin UD selon le modèle de Fick, ils semblent globalement en accord avec quelques travaux de la littérature. Par exemple, Stamboulis et al. [113] ont proposé une valeur du coefficient de diffusion longitudinal de la fibre de lin égale à $1 \times 10^{-4} \text{ mm}^2 / \text{s}$ pour un faisceau de fibres de lin de longueur 1,5 mm vieilli à 100% d'humidité relative à température ambiante. Cette valeur de D_{lin}^l est très proche de celle estimée dans ce travail. Dans un autre travail de Célineo et al. [105], ces auteurs ont étudié la cinétique de diffusion au sein d'échantillons à fibres de lin UD vieillis par immersion totale dans l'eau à température ambiante. Ils ont supposé que la diffusion d'humidité se fait principalement suivant la direction radiale des fibres et ont proposé un coefficient de diffusion radial égal à $11,9 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$. Cette valeur semble également en adéquation avec D_{lin}^r estimée dans cette étude.

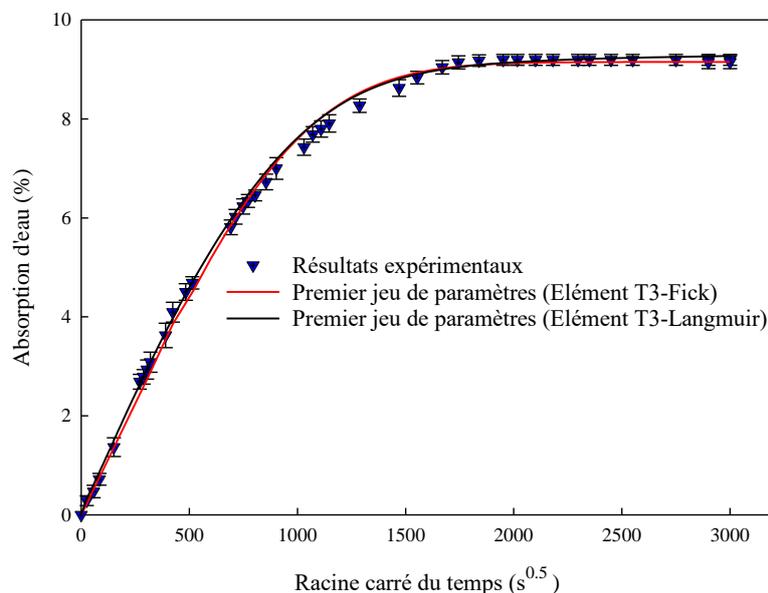


Figure 3.14 : Comparaison entre les courbes d'absorption d'eau expérimentale et numériques des échantillons lin-époxyde UD non colmatés en utilisant les paramètres de diffusion optimaux du tableau 3.6.

À notre connaissance, la seule estimation des paramètres de diffusion de la fibre de lin selon le modèle de Langmuir a été rapportée dans le travail de Céline et al. [105]. Ces auteurs ont trouvé le coefficient de diffusion radial de la fibre de lin égal à $68 \times 10^{-7} \text{ mm}^2/\text{s}$ et une probabilité β équivalente à $5,75 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$.

3.7.2. Effet de l'hybridation lin-verre

Dans cette partie, nous cherchons à mettre en évidence l'effet hydrophile des fibres de lin et l'effet barrière des fibres de verre, vis-à-vis de la diffusion d'eau. Pour ce faire, nous considérons le modèle éléments finis de la figure 3.15 de la diffusion d'eau dans le composite hybride $[\text{L}_2/\text{V}_2]_s$. Pour des raisons de symétrie, nous considérons un quart de la section du plan yz . Les fibres de lin et de verre sont modélisées par des cercles de diamètre $\phi_{lin} = 250 \mu\text{m}$ $\phi_{verre} = 75 \mu\text{m}$, respectivement, répartis aléatoirement comme le montre la figure 3.15. Cette figure montre aussi le maillage considéré et constitué de 53797 éléments triangulaires, fixé après une étude de convergence.

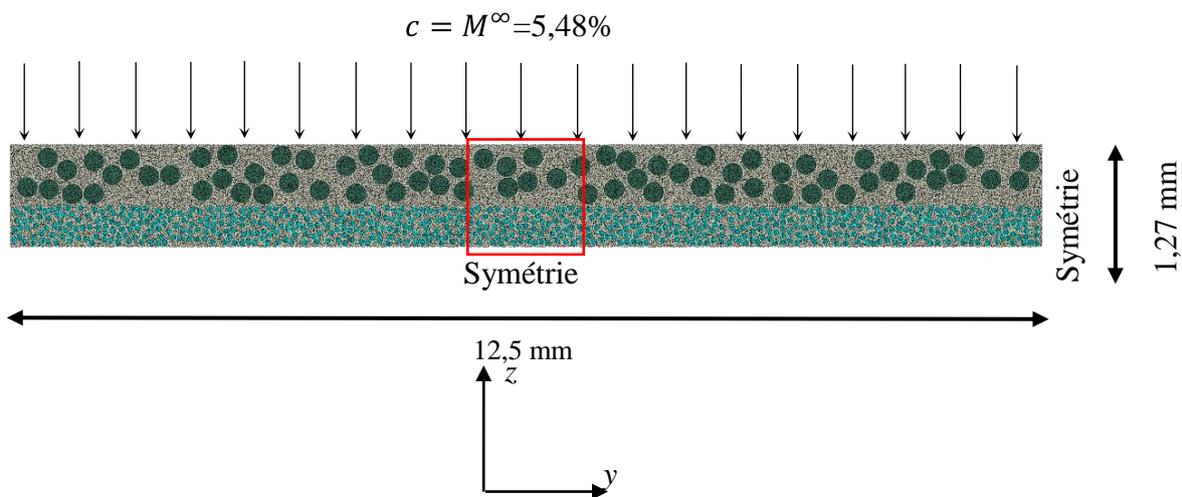


Figure 3.15 : Modélisation plane par éléments finis de la diffusion d'humidité suivant l'épaisseur au sein des échantillons hybrides $[\text{L}_2/\text{V}_2]_s$ utilisant un maillage de 53797 éléments triangulaires.

La figure 3.16 montre une comparaison entre la distribution de la concentration d'humidité à différentes durées du vieillissement hydrique au sein du composite hybride $[\text{L}_2/\text{V}_2]_s$, prédite par un modèle homogène (figure 3.16.a) et le modèle hétérogène (figure 3.16.b). Il convient de préciser que les coefficients de diffusion $D_{[\text{L}_2/\text{V}_2]_s}^y = D_{[\text{L}_2/\text{V}_2]_s}^z = 7,73 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$ ont été utilisés avec le modèle homogène, et les paramètres de diffusion issus de la section 3.7.1 ont été considérés avec le modèle hétérogène avec $D_{verre} = 0$ pour la fibre de verre.

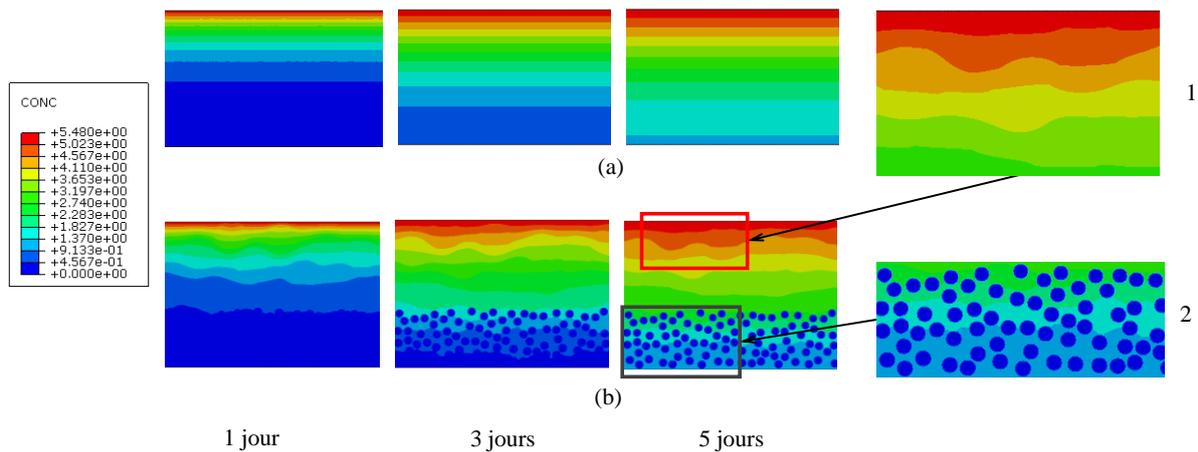


Figure 3.16 : Distribution de la concentration d’humidité à différentes durées du vieillissement hydrique au sein du composite hybride $[L_2/V_2]_s$ prédite par l’élément fini de Fick : (a) modélisation homogène et (b) modélisation hétérogène.

Nous remarquons que l’évolution de la diffusion d’humidité dans le modèle homogène est parfaitement uniforme suivant la largeur de l’échantillon (figure 3.16.a), contrairement au modèle hétérogène qui est fortement affecté par la présence des fibres de lin et de verre. En effet, les fibres de lin, de nature hydrophile, jouent le rôle d’accélérateur de la diffusion d’eau (figure 3.16.b, étiquette 1), et les fibres de verre, de nature hydrophobe, présentent un effet barrière (figure 3.16.b, étiquette 2). L’effet barrière causé par les fibres de verre confirme les résultats obtenus dans la section 3.5.1 de la diffusion d’eau dans les échantillons verre-époxyde colmatés.

3.8. Conclusion

Dans ce troisième chapitre, nous avons présenté une étude expérimentale de la cinétique d’absorption d’eau des composites non hybrides et hybrides lin-verre-époxyde vieillis par immersion totale dans l’eau du robinet à température ambiante. Nous avons ensuite effectué une modélisation par éléments finis de leur comportement hygroscopique en utilisant les modèles de Fick et de Langmuir.

La première partie de ce chapitre nous a permis d’identifier les coefficients de diffusion 1D et 3D des échantillons composites lin-époxyde et verre-époxyde non colmatés et colmatés à travers une procédure d’optimisation qui exploite les résultats expérimentaux. De plus, l’effet de l’hybridation des fibres de lin avec des fibres de verre sur l’absorption d’eau des composites hybrides a été étudié. Les résultats montrent que les fibres de verre présentent un effet barrière sur le phénomène de diffusion .

Le développement des deux éléments finis hygroscopiques de membrane dans la deuxième partie de ce chapitre nous a permis d'estimer les paramètres de diffusion radial et longitudinal de la fibre de lin selon les modèles de Fick et de Langmuir.

Chapitre 4

Modélisation par éléments finis du comportement hygro-élastique des composites de l'étude

4.1. Introduction

Dans ce chapitre 4, nous étendons les formulations des deux éléments finis hygroscopiques triangulaires de membrane, présentés dans le chapitre 3, au problème hygro-élastique. L'objectif principal est de prédire les contraintes mécaniques internes qui apparaissent au sein des échantillons composites de l'étude après leur vieillissement hydrique. Pour simplifier, nous considérons deux modèles hygro-élastiques découplés basés sur les lois de Fick et de Langmuir. Le terme « découplé » signifie que les variables mécaniques n'ont aucun effet sur les variables hygroscopiques (la concentration d'humidité et le tenseur de diffusion).

4.2. Formulation variationnelle faible de l'équilibre hygro-élastique

Notre point de départ est l'équilibre hygroscopique décrit par les modèles de Fick ou de Langmuir introduits dans le chapitre 3. En plus de l'équilibre hygroscopique, nous considérons l'équilibre mécanique quasi-statique qui, en l'absence de force volumique, s'écrit localement pour un solide composite plan B_0 (figure 4.1) :

$$\operatorname{div}(\sigma) = 0 \rightarrow \begin{cases} \sigma_{xx,x}(\mathbf{x},t) + \tau_{xy,x}(\mathbf{x},t) = 0 \\ \tau_{xy,x}(\mathbf{x},t) + \sigma_{yy,y}(\mathbf{x},t) = 0 \end{cases} \quad \forall \mathbf{x} \in B_0 \quad (4.1)$$

où σ_{xx} , σ_{yy} et τ_{xy} sont les composantes planes du tenseur des contraintes mécaniques

$$\left(\sigma_{xx,x} = \frac{\partial \sigma_{xx}}{\partial x} \right).$$

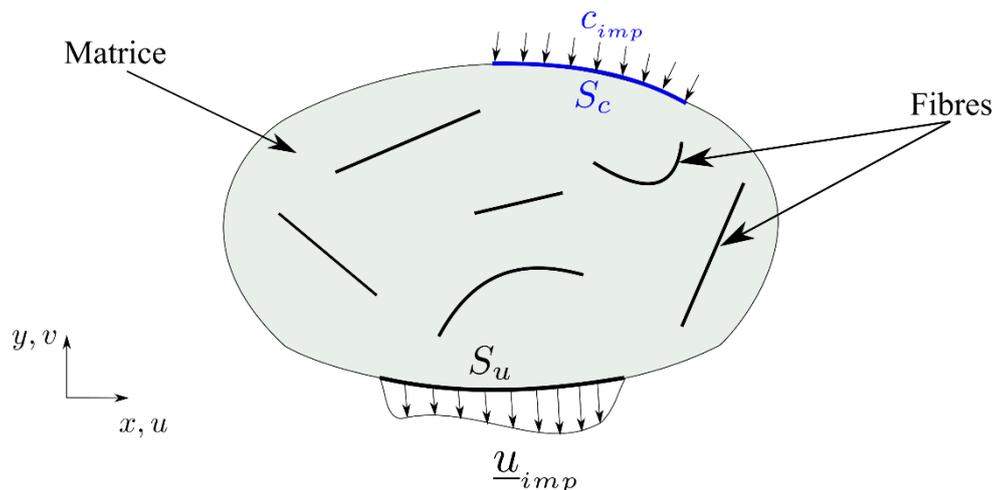


Figure 4.1 : Un solide composite 2D avec des conditions aux limites en humidité et en déplacement.

En introduisant le vecteur des déplacements virtuels \mathbf{u}^* vérifiant $\mathbf{u}^* = 0$ sur S_u , la partie de la frontière de B_0 sur laquelle est appliquée des conditions aux limites en déplacement (figure 4.1), la forme variationnelle faible de l'équilibre mécanique s'écrit :

$$w_{E-M}(\mathbf{u}, \mathbf{u}^*) = \int_{B_0} {}^t \boldsymbol{\varepsilon}^* \cdot \boldsymbol{\sigma} dV - \int_{\partial B_0} {}^t \mathbf{u}^* \cdot \mathbf{T} dS = 0 \quad \forall \mathbf{u}^* \quad (4.2)$$

où $\boldsymbol{\sigma}$ est le vecteur des contraintes planes, $\boldsymbol{\varepsilon}^*$ est le vecteur des déformations planes virtuelles et \mathbf{T} est le vecteur des forces surfaciques extérieures appliquées sur ∂B_0 .

En plus du phénomène de diffusion de l'humidité au sein des composites de l'étude caractérisé par la teneur $c(\mathbf{x}, t)$, nous avons observé une variation de leur volume, principalement suivant la direction de l'épaisseur. Cette variation du volume est due au gonflement de la résine et surtout des fibres de lin UD à la suite de l'absorption d'eau. Les fibres de verre quant à elles sont de nature hydrophobe et donc insensibles à l'eau. Ce gonflement est caractérisé par une déformation volumique dite hygroscopique, notée $\boldsymbol{\varepsilon}^{Hyg}$. Sous forme vectorielle, $\boldsymbol{\varepsilon}^{Hyg}$ s'écrit linéairement sous cette forme :

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{Hyg} = \boldsymbol{\beta}^{Hyg} c(\mathbf{x}, t) \quad \text{avec} \quad \boldsymbol{\beta}^{Hyg} = \begin{Bmatrix} \beta_x^h \\ \beta_y^h \\ 0 \end{Bmatrix} \quad (4.3)$$

β_x^h et β_y^h sont les coefficients d'expansion hygroscopique dans les directions x et y , respectivement. Pour simplifier, nous supposons dans cette étude que le vecteur des coefficients d'expansion hygroscopique $\boldsymbol{\beta}^{Hyg}$ est indépendant du temps de vieillissement.

Le vecteur des déformations planes $\boldsymbol{\varepsilon}$ peut ainsi se décomposer en une partie élastique, notée $\boldsymbol{\varepsilon}^{el}$, et une autre hygroscopique donnée par la relation (4.3). Par conséquent, le vecteur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ s'écrit en fonction de $\boldsymbol{\varepsilon}$ et $\boldsymbol{\varepsilon}^{Hyg}$ à travers la matrice d'élasticité plane \mathbf{H} :

$$\boldsymbol{\sigma} = \mathbf{H} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}^{el} \rightarrow \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{H} \cdot (\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^{Hyg}) \quad \text{avec} \quad \boldsymbol{\varepsilon}^{Hyg} = \boldsymbol{\beta}^{Hyg} c(\mathbf{x}, t) \quad (4.4)$$

Il convient de préciser que l'hypothèse des déformations planes est considérée dans ce travail.

4.2.1 Problème de Fick

Nous rappelons à ce niveau que l'équilibre hygro-élastique suivant le modèle de Fick nécessite la résolution des équations différentielles du système suivant :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \frac{\partial c}{\partial t} = \text{div}(\mathbf{D} \cdot \nabla c) & \text{sur } B_0 \\ c = c_{imp} & \text{sur } S_c \\ \text{div}(\boldsymbol{\sigma}) = 0 & \text{sur } B_0 \\ \boldsymbol{\sigma} = \mathbf{H} \cdot (\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^{Hyg}) \text{ avec } \boldsymbol{\varepsilon}^{Hyg} = \boldsymbol{\beta}^{Hyg} c & \text{sur } B_0 \\ \mathbf{u} = \mathbf{u}_{imp} & \text{sur } S_u \end{array} \right. \quad (4.5)$$

La forme variationnelle faible de l'équilibre hygro-élastique selon le modèle de Fick est ainsi obtenue en combinant les formes faibles de l'équilibre hygroscopique (3.16) et de l'équilibre mécanique (4.2) :

$$\begin{aligned} w^F(c, c^*, \mathbf{u}, \mathbf{u}^*) = & \int_{B_0} \dot{c} c^* dV + \int_{B_0} {}^t \nabla c^* \cdot \mathbf{D} \cdot \nabla c dV + \int_{\partial B_0} c^* \phi_n dS + \int_{B_0} {}^t \boldsymbol{\varepsilon}^* \cdot \boldsymbol{\sigma} dV \\ & - \int_{\partial B_0} {}^t \mathbf{u}^* \cdot \mathbf{T} dS = 0 \quad \forall c^*, \mathbf{u}^* \end{aligned} \quad (4.6)$$

4.2.2 Problème de Langmuir

Comme expliqué dans le chapitre 3, contrairement au modèle de Fick qui suppose que toutes les molécules d'eau sont libres de diffuser au sein du composite, le modèle de Langmuir sépare les molécules d'eau en deux populations ou phases. La première n représente les molécules d'eau libres ou mobiles, tandis que la seconde N décrit la teneur des molécules liées qui ont réagi avec les sites polaires du réseau polymérique et les groupements hydroxyles. Dans cette étude doctorale, la concentration d'humidité N est supposée responsable du gonflement hygroscopique comme considéré dans plusieurs travaux de la littérature [219,243–247]. En effet, la liaison des particules d'eau se traduit par un écartement des chaînes macromoléculaires et génère ainsi, à l'échelle macroscopique, un gonflement des fibres et du composite. De ce fait, l'équilibre hygro-élastique selon le modèle de Langmuir peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial n}{\partial t} + \frac{\partial N}{\partial t} &= \text{div}(\mathbf{D}' \cdot \nabla n) && \text{sur } B_0 \\ \frac{\partial N}{\partial t} &= \gamma n - \beta N && \text{sur } B_0 \\ c &= c_{imp} \text{ avec } c_{imp} = n_\infty + N_\infty && \text{sur } S_c \\ \gamma n_\infty &= \beta N_\infty && \text{sur } B_0 \\ \text{div}(\boldsymbol{\sigma}) &= 0 && \text{sur } B_0 \\ \boldsymbol{\sigma} &= \mathbf{H} \cdot (\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon}^{Hyg}) \text{ avec } \boldsymbol{\varepsilon}^{Hyg} = \boldsymbol{\beta}^{Hyg} N && \text{sur } B_0 \\ \mathbf{u} &= \mathbf{u}_{imp} && \text{sur } S_u \end{aligned} \quad (4.7)$$

En combinant les formes variationnelles faibles de l'équilibre hygroscopique selon le modèle de Langmuir (3.22) et de l'équilibre mécanique (4.2), nous obtenons ainsi la forme faible de l'équilibre hygro-élastique selon le modèle de Langmuir du composite B_0 :

$$\begin{aligned}
w^L(n, n^*, N, N^*, \mathbf{u}, \mathbf{u}^*) &= \int_{B_0} \dot{n} n^* dV + \int_{B_0} \dot{N} N^* dV + \int_{B_0} {}^t \nabla n^* \cdot \mathbf{D}^\gamma \cdot \nabla n dV + \int_{\partial B_0} n^* \phi_n dS + \\
&\int_{B_0} \dot{N} N^* dV + \int_{B_0} \beta N N^* dV - \int_{B_0} \gamma n N^* dV + \int_{B_0} {}^t \boldsymbol{\varepsilon}^* \cdot \boldsymbol{\sigma} dV \\
&- \int_{\partial B_0} {}^t \mathbf{u}^* \cdot \mathbf{T} dS = 0, \quad \forall n^*, N^*, \mathbf{u}^*
\end{aligned} \tag{4.8}$$

La résolution des équations (4.6) et (4.8) est obtenue dans ce travail en utilisant la méthode des éléments finis. Ainsi, nous développons dans la section 4.3 les formulations de deux éléments finis hygro-élastiques triangulaires de membrane à trois nœuds basés sur les modèles de Fick et de Langmuir.

4.3. Approximation par éléments finis

Comme expliqué précédemment dans le chapitre 3, la résolution des formes faibles (4.6) et (4.8) nécessite une discrétisation spatiale et une autre temporelle. Pour la discrétisation spatiale, nous restons avec les éléments hygroscopiques triangulaires de membrane introduits dans le chapitre 3 et nous leur ajoutons des degrés de liberté en déplacement pour estimer les déformations mécaniques. Les trois fonctions de forme associées à l'élément triangulaire de membrane à trois nœuds permettent maintenant d'approcher les déplacements suivant x et y , notés u et v , ainsi que la concentration d'humidité dans le modèle de Fick et les teneurs des particules d'eau libres et liées dans le modèle de Langmuir :

$$u = \sum_{i=1}^3 N_i^{T_3}(\xi, \eta) u_i, \quad v = \sum_{i=1}^3 N_i^{T_3}(\xi, \eta) v_i, \quad c = \sum_{i=1}^3 N_i^{T_3}(\xi, \eta) c_i \tag{4.9}$$

$$u = \sum_{i=1}^3 N_i^{T_3}(\xi, \eta) u_i, \quad v = \sum_{i=1}^3 N_i^{T_3}(\xi, \eta) v_i, \quad n = \sum_{i=1}^3 N_i^{T_3}(\xi, \eta) n_i, \quad N = \sum_{i=1}^3 N_i^{T_3}(\xi, \eta) N_i \tag{4.10}$$

Nous définissons ainsi le 1^{er} vecteur DDL $\mathbf{u}_n^F = \{\dots u_i v_i c_i \dots i = 1, 3\}$ relatif à l'élément hygro-élastique de membrane de Fick (figure 4.2.a) et le 2^{ème} $\mathbf{u}_n^L = \{\dots u_i v_i n_i N_i \dots i = 1, 3\}$ relatif à l'élément basé sur le modèle de Langmuir (figure 4.2.b).

Dans ce qui suit, nous présentons la formulation des deux éléments finis hygro-élastiques.

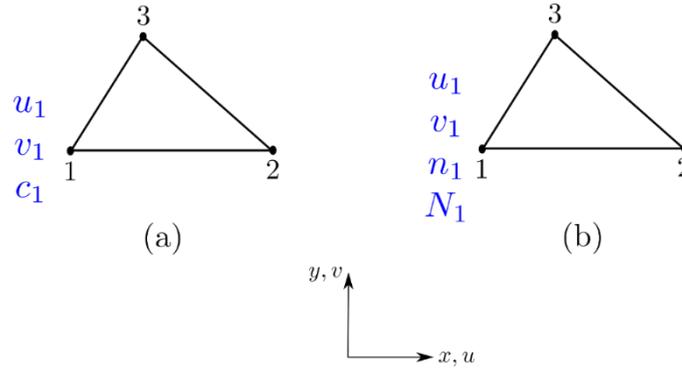


Figure 4.2 : Éléments finis hygro-élastiques de membrane triangulaires à trois nœuds basés sur : (a) le modèle de Fick et (b) le modèle Langmuir.

4.3.1 Élément hygro-élastique de Fick

En utilisant les approximations (4.9), il est possible de montrer que c , ∇c , \mathbf{u} et $\boldsymbol{\varepsilon}$ sont liés au vecteur DDL \mathbf{u}_n^F comme suit :

$$c = {}^t N_c \cdot \mathbf{u}_n^F ; \quad \mathbf{u} = N_u \cdot \mathbf{u}_n^F ; \quad \nabla c = \mathbf{B}_c \cdot \mathbf{u}_n^F ; \quad \boldsymbol{\varepsilon} = \mathbf{B}_m \cdot \mathbf{u}_n^F \quad (4.11)$$

Au niveau élémentaire, l'approximation éléments finis de la forme faible (4.6) s'écrit :

$$w^{F,e}(\mathbf{u}_n^{*F}, \mathbf{u}_n^F) = {}^t \mathbf{u}_n^{*F} \cdot \left[\int_{B_0} N_c \cdot {}^t N_c dV \cdot \dot{\mathbf{u}}_n^F + \left(\int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_c \cdot \mathbf{D} \cdot \mathbf{B}_c dV + \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_m \cdot \mathbf{H} \cdot \mathbf{B}_m dV - \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_m \cdot \mathbf{H} \cdot \boldsymbol{\beta}^{Hyg} \cdot {}^t N_c dV \right) \cdot \mathbf{u}_n^F + \int_{\partial B_0} N_c \cdot \phi_n dS - \int_{\partial B_0} {}^t N_u \cdot \mathbf{T} dS \right] = 0 \quad (4.12)$$

Les matrices $\mathbf{C}^F = \int_{B_0} N_c \cdot {}^t N_c dV$ et $\mathbf{K}_c^F = \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_c \cdot \mathbf{D} \cdot \mathbf{B}_c dV$ ont été déjà introduites dans le chapitre 3. $\mathbf{K}_m = \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_m \cdot \mathbf{H} \cdot \mathbf{B}_m dV$ et $\mathbf{K}_{mc} = \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_m \cdot \mathbf{H} \cdot \boldsymbol{\beta}^{Hyg} \cdot {}^t N_c dV$ sont respectivement la matrice de rigidité mécanique et la matrice de couplage hygro-mécanique.

En simplifiant par \mathbf{u}_n^{*F} , l'équation d'équilibre hygro-élastique s'écrit au niveau élémentaire :

$$\mathbf{K}_{eq}^F \cdot \mathbf{u}_n^F + \mathbf{C}^F \cdot \dot{\mathbf{u}}_n^F - \mathbf{F}_{eq}^F = 0 \quad (4.13)$$

où $\mathbf{K}_{eq}^F = \mathbf{K}_c + \mathbf{K}_m - \mathbf{K}_{mc}$ et $\mathbf{F}_{eq}^F = \int_{\partial B_0} {}^t N_u \cdot \mathbf{T} dS - \int_{\partial B_0} N_c \phi_n dS$.

4.3.2 Élément hygro-élastique de Langmuir

En utilisant les approximations (4.10), il est possible de montrer que n , ∇n , N , \mathbf{u} et $\boldsymbol{\varepsilon}$ sont liés au vecteur DDL \mathbf{u}_n^L comme suit :

$$n = {}^t N_n \cdot \mathbf{u}_n^L ; \quad N = {}^t N_N \cdot \mathbf{u}_n^L ; \quad \mathbf{u} = N_u \cdot \mathbf{u}_n^L ; \quad \nabla n = \mathbf{B}_c^n \cdot \mathbf{u}_n^L ; \quad \boldsymbol{\varepsilon} = \mathbf{B}_m^L \cdot \mathbf{u}_n^L \quad (4.14)$$

Au niveau élémentaire, l'approximation éléments finis de la forme faible (4.8) s'écrit :

$$\begin{aligned}
w^{L,e}(\mathbf{u}_n^{*L}, \mathbf{u}_n^L) = & \mathbf{u}_n^{*L} \cdot \left[\left(\int_{B_0} \mathbf{N}_n \cdot {}^t \mathbf{N}_n dV + \int_{B_0} \mathbf{N}_n \cdot {}^t \mathbf{N}_N dV + \int_{B_0} \mathbf{N}_N \cdot {}^t \mathbf{N}_N dV \right) \cdot \dot{\mathbf{u}}_n^L \right. \\
& + \left(\int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_c^n \cdot \mathbf{D}^\gamma \cdot \mathbf{B}_c^n dV - \int_{B_0} \gamma \mathbf{N}_N \cdot {}^t \mathbf{N}_n dV + \int_{B_0} \beta \mathbf{N}_N \cdot {}^t \mathbf{N}_N dV \right. \\
& + \left. \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_m^L \cdot \mathbf{H} \cdot \mathbf{B}_m^L dV + \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_m^L \cdot \mathbf{H} \cdot \boldsymbol{\beta}^{Hyg} \cdot {}^t \mathbf{N}_N dV \right) \cdot \mathbf{u}_n^L \\
& \left. + \int_{\partial B_0} \mathbf{N}_n \phi_n dS - \int_{\partial B_0} {}^t \mathbf{N}_u \cdot \mathbf{T} dS \right] = 0
\end{aligned} \tag{4.15}$$

Nous définissons la matrice de vitesse de diffusion \mathbf{C}^L et la matrice de rigidité équivalente hygro-élastique \mathbf{K}_{eq}^L par les expressions suivantes :

$$\mathbf{C}^L = \int_{B_0} \mathbf{N}_n \cdot {}^t \mathbf{N}_n dV + \int_{B_0} \mathbf{N}_n \cdot {}^t \mathbf{N}_N dV + \int_{B_0} \mathbf{N}_N \cdot {}^t \mathbf{N}_N dV \tag{4.16}$$

$$\begin{aligned}
\mathbf{K}_{eq}^L = & \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_c^n \cdot \mathbf{D}^\gamma \cdot \mathbf{B}_c^n dV - \int_{B_0} \gamma \mathbf{N}_N \cdot {}^t \mathbf{N}_n dV + \int_{B_0} \beta \mathbf{N}_N \cdot {}^t \mathbf{N}_N dV \\
& + \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_m^L \cdot \mathbf{H} \cdot \mathbf{B}_m^L dV + \int_{B_0} {}^t \mathbf{B}_m^L \cdot \mathbf{H} \cdot \boldsymbol{\beta}^{Hyg} \cdot {}^t \mathbf{N}_N dV
\end{aligned} \tag{4.17}$$

En simplifiant par \mathbf{u}_n^{*L} , l'équation d'équilibre hygro-élastique de Langmuir s'écrit au niveau élémentaire :

$$\mathbf{K}_{eq}^L \cdot \mathbf{u}_n^L + \mathbf{C}^L \cdot \dot{\mathbf{u}}_n^L - \mathbf{F}_{eq}^L = 0 \tag{4.18}$$

$$\text{où } \mathbf{F}_{eq}^L = \int_{\partial B_0} {}^t \mathbf{N}_u \cdot \mathbf{T} dS - \int_{\partial B_0} \mathbf{N}_n \phi_n dS.$$

Pour l'intégration temporelle des équations (4.13) et (4.18), un schéma d'intégration implicite est considéré. Pour cela, nous nous plaçons dans un intervalle de temps $[t, t + \Delta t]$ et nous supposons que la solution est connue au début de l'incrément. Ainsi, les vecteurs résidus à la fin de l'incrément s'écrivent :

$$\mathbf{R}_i^{t+\Delta t} = \mathbf{K}_{eq}^i \cdot \mathbf{u}_n^{i^{t+\Delta t}} + \mathbf{C}^i \cdot \frac{\Delta \mathbf{u}_n^i}{\Delta t} - \mathbf{F}_{eq}^{i^{t+\Delta t}} \text{ avec } \Delta \mathbf{u}_n^i = \mathbf{u}_n^{i^{t+\Delta t}} - \mathbf{u}_n^{i^t} \text{ et } i = F, L \tag{4.19}$$

Les matrices tangentes élémentaires sont obtenues en dérivant les vecteurs résidus par les incréments des vecteurs DDLs :

$$\mathbf{K}_T^{i,t+\Delta t} = -\frac{\partial \mathbf{R}_i^{t+\Delta t}}{\partial \Delta \mathbf{u}_n^i} = -\mathbf{K}_{eq}^i - \frac{\mathbf{C}^i}{\Delta t} \quad \text{avec } i = F, L \quad (4.20)$$

Les éléments finis hygro-élastiques de Fick et de Langmuir ont été implémentés dans le code de calcul par éléments finis ABAQUS en utilisant deux routines utilisateur UEL.

4.4. Résultats de l'analyse par éléments finis

4.4.1. Estimation des contraintes mécaniques internes au sein des échantillons lin-époxyde vieillis

4.4.1.1. Comparaison entre le modèle de Fick et l'analogie température-déplacement

Comme application du développement de l'élément fini hygro-élastique de Fick, nous le considérons dans cette partie pour estimer les contraintes mécaniques internes d'origine hygroscopique qui apparaissent au sein des échantillons composites lin-époxyde vieillis. Pour cela, nous considérons le modèle éléments finis de la figure 4.3.a avec des conditions aux limites de déplacement et d'humidité.

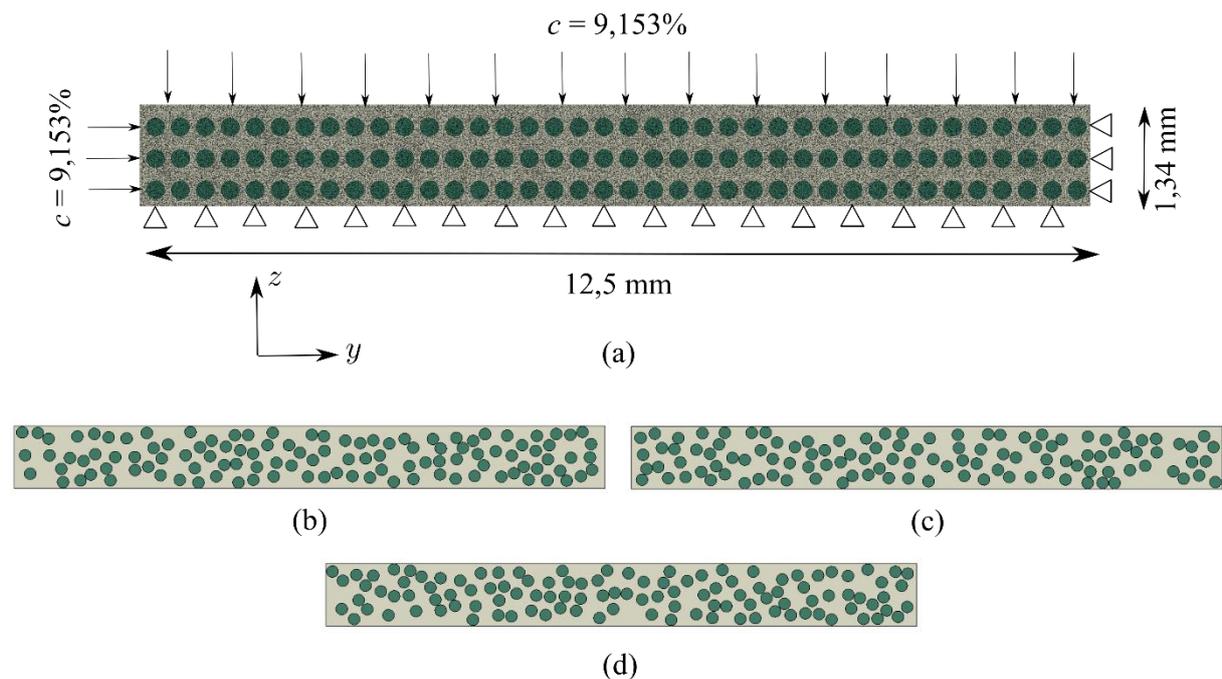


Figure 4.3 : (a) Modélisation plane par éléments finis du comportement hygro-élastique des échantillons lin-époxyde UD non colmatés utilisant un maillage de 294572 éléments triangulaires. (b)-(d) Modélisations planes avec trois distributions aléatoires des fibres de lin UD.

Il convient de noter que cette modélisation est réalisée dans le plan yz où les sections des fibres de lin UD sont modélisées en première approximation par des cercles de 0,25 mm de diamètre. L'objectif principal est d'estimer plus précisément la contrainte mécanique due au vieillissement hydrique en comparaison avec une modélisation dans le plan xz (figure 3.11). Nous étudions

également l'influence de la distribution des fibres de lin UD dans les échantillons lin-époxyde en considérant les distributions aléatoires des figures 4.3.b, 4.3.c et 4.3.d en plus de la distribution régulière de la figure 4.3.a.

En plus de l'élément fini hygro-élastique de Fick, nous considérons l'analogie température-déplacement qu'offre le logiciel de calcul par EF ABAQUS. En effet, plusieurs travaux de la littérature [121,127,248] ont proposé de remplacer la concentration d'humidité par la température, faute de procédure de calcul mécanique-diffusion dans ABAQUS, ce qui facilite l'utilisation de la loi de conduction de Fourier à la place de la loi de diffusion de Fick. Nous rappelons que la loi de Fourier est donnée par l'expression suivante :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{\rho \times c_p} \text{div}(\mathbf{k} \cdot \nabla T) \quad (4.21)$$

où T est la température, \mathbf{k} est le tenseur de conductivité thermique, ρ est la densité du matériau et c_p est la chaleur spécifique massique à pression constante.

Par analogie entre l'équation de la chaleur et la loi de diffusion de Fick, le tenseur de diffusion \mathbf{D} doit être ajusté en fonction des trois paramètres ρ , c_p et \mathbf{k} :

$$\mathbf{D} = \frac{\mathbf{k}}{\rho \times c_p} \quad (4.22)$$

Ainsi, l'analogie thermo-mécanique est possible en remplaçant la concentration d'humidité par la température, le tenseur de diffusion en fonction de ρ, c_p et \mathbf{k} (équation (4.22)) et enfin le vecteur d'expansion hygroscopique $\boldsymbol{\beta}^{Hyg}$ par le vecteur d'expansion thermique $\boldsymbol{\alpha}^{Ther}$ vérifiant $\boldsymbol{\beta}^{Hyg} = \boldsymbol{\alpha}^{Ther}$. Pour simuler le comportement hygro-élastique des échantillons lin-époxyde vieillis, l'élément triangulaire à trois nœuds CPE3T d'ABAQUS est considéré (CPE3T : 3-node plane strain thermally coupled triangle, linear displacement and temperature). Un maillage équivalent à celui de l'élément hygro-élastique de Fick, composé de 294572 éléments, a été utilisé.

Afin d'alimenter les modèles éléments finis hétérogènes de la figure 4.3, les propriétés hygroscopiques et élastiques de la matrice époxyde et des fibres de lin UD doivent être renseignées. Pour les coefficients de diffusion d'humidité, nous considérons ceux issus de l'étude faite dans le chapitre 3 en relation avec les échantillons lin-époxyde UD non colmatés ($D_{epoxy} = 5,667 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$ et $D_{lin}^r = 16,324 \times 10^{-7} \text{ mm}^2 / \text{s}$). Pour les coefficients d'expansion

hygroscopique, nous utilisons pour la résine époxyde un coefficient égal à 0,24 qui constitue une moyenne de quelques coefficients donnés dans la littérature comme celui de Jang et al. [249]. De plus, l'expansion hygroscopique de la matrice époxyde est supposée isotrope ($\beta_{epoxy} = 0,24$). Pour les fibres de lin UD, nous nous intéressons plus particulièrement à leur coefficient d'expansion hygroscopique radial vu la modélisation de la figure 4.3. Le Duigou et al. [173] ont mesuré le coefficient d'expansion radial de fibres de lin unitaires soumises à une humidité relative de 50% et une température de 23°C pendant 7200 minutes. Une valeur de β_{lin}^r égale à 1,14 a été ainsi rapportée par Le Duigou et al. [173]. Cette valeur de β_{lin}^r semble en adéquation avec d'autres travaux récents comme celui de Péron et al. [250] ($\beta_{lin}^r = 0,974$) et le travail de Garat et al. [249] ($\beta_{lin}^r = 1,67$). Pour le coefficient d'expansion hygroscopique longitudinal des fibres de lin, Le Duigou et al. [173] ont expliqué qu'il est très négligeable devant β_{lin}^r et qu'il est proche de zéro comme celui des fibres de bois. Pour la suite de l'étude, nous avons considéré $\beta_{lin}^r = 0,974$.

Au sujet des propriétés mécaniques, nous supposons que le comportement de la matrice époxyde et des fibres de lin est élastique isotrope dans le plan yz. Nous considérons pour cela $E_{epoxy} = 3,6$ GPa et $\nu_{epoxy} = 0,4$, pour la matrice époxyde, et pour les fibres de lin les propriétés transversales suivantes : $E_{lin} = 4,8$ GPa et $\nu_{lin} = 0,39$ [38]. Le tableau 4.1 résume les propriétés de la résine époxyde et des fibres de lin et de verre utilisées pour simuler le comportement hygro-élastique des composites de l'étude.

Tableau 4.1 : Propriétés de la résine époxyde et des fibres de lin et de verre [12,251].

	E_z (GPa)	G_{yz} (GPa)	ν_{yz}	$\beta_y = \beta_z$	ρ (kg / m ³)	D (10 ⁻⁷ mm ² / s)
Fibre de lin	4,8	1,70	0,39	0,974	1450	16,32
Fibre de verre	9,72	2,8	0,42	0	2540	0
Résine époxyde	3,6	1,38	0,4	0.25	1158	5,66

La figure 4.4 montre une comparaison entre les distributions de la température et de la concentration d'humidité à saturation obtenue par l'élément CPET3 (couplage température-déplacement, figure 4.4.a) et l'élément hygro-élastique de Fick (figure 4.4.b), respectivement. Nous constatons que la température présente une distribution identique à celle de la teneur en

humidité, ce qui valide la similarité entre l'équation de la chaleur de Fourier et la loi de diffusion de Fick.

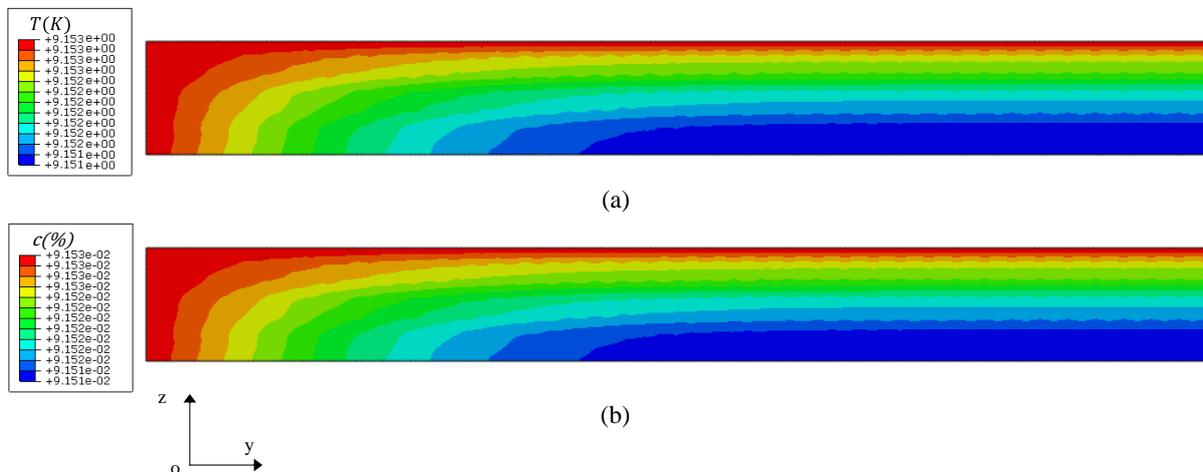


Figure 4.4 : Distribution (a) de la température et (b) de la concentration d'humidité à saturation (après 70 jours de vieillissement) des échantillons lin-époxyde non colmatés modélisés avec une distribution régulière des fibres de lin.

La figure 4.5 montre une comparaison entre les distributions de la contrainte mécanique suivant l'épaisseur σ_{zz} au sein des échantillons lin-époxyde prédites par l'élément CPE3T d'ABAQUS (figure 4.5.a) et l'élément hygro-élastique de Fick (figure 4.5.b). Il convient de préciser que ce résultat a été obtenu en considérant une distribution régulière des fibres de lin comme le montre la figure 4.3.a. Il convient également de noter que le phénomène de gonflement hygroscopique se fait principalement suivant l'épaisseur des échantillons vieillis et c'est pour cette raison que nous nous intéressons plus particulièrement aux contraintes σ_{zz} . Notre élément hygro-élastique reproduit exactement la même distribution de la contrainte mécanique que l'élément CPE3T. Cependant, nous remarquons que l'élément hygro-élastique de Fick permet d'avoir des estimations de la contrainte mécanique largement inférieures à celles de l'élément CPE3T (moins 46% pour la contrainte de traction maximale et moins 41% pour la contrainte de compression maximale). Les valeurs de σ_{zz} largement surestimées par l'élément CPE3T peuvent être liées au fait que l'analogie thermo-mécanique impose un ajustement des trois paramètres ρ, c_p et k pour obtenir une matrice $k / \rho \times c_p$ équivalente à D . La surestimation s'affiche aussi dans la distribution du déplacement transversal comme le montre la figure 4.6. En effet, le déplacement transversal maximal prédit par CPE3T est $\sim 41\%$ supérieur à celui de l'élément hygro-élastique de Fick.

Dans la suite de ce chapitre, nous ne ferons plus référence à l'élément CPE3T d'ABAQUS vu la difficulté d'ajuster les paramètres thermiques.

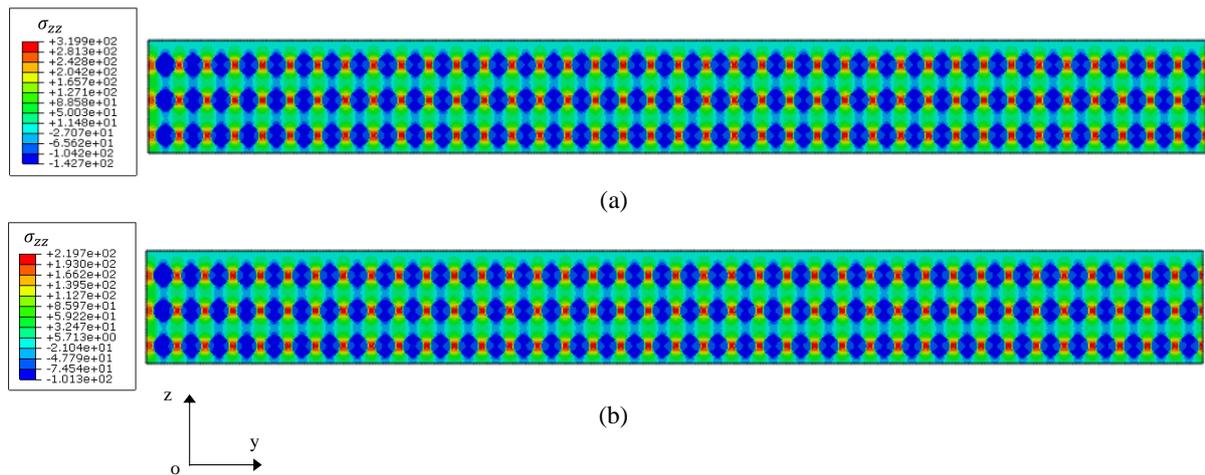


Figure 4.5 : Distribution de la contrainte mécanique suivant l'épaisseur σ_{zz} sein des échantillons lin-époxyde après 70 jours de vieillissement hydrique en utilisant une distribution régulière des fibres : (a) distribution prédite par l'élément CPE3T d'ABAQUS et (b) distribution prédite par l'élément hydro-élastique de Fick.

4.4.1.2. Influence de la distribution des fibres de lin

Après la comparaison avec l'élément CPE3T d'ABAQUS en considérant la distribution régulière des fibres de lin, nous étudions dans cette partie l'impact de la microstructure sur le comportement hydro-élastique des échantillons composites lin-époxyde vieillis. De plus de la répartition régulière de la figure 4.3.a, nous considérons les trois configurations aléatoires des figures 4.3.a, 4.3.b et 4.3.c. Ce choix de considérer des configurations aléatoires est motivé par la répartition aléatoire des fibres de lin identifiée sur plusieurs observations microscopiques comme celles présentées dans le chapitre 2. Pour ces trois modèles aléatoires, nous avons utilisé des maillages équivalents à celui du modèle avec distribution régulière : 295972 éléments pour le premier, 295022 éléments pour le deuxième et 293948 pour le troisième.

La figure 4.7 montre la distribution de la contrainte mécanique suivant l'épaisseur au sein des échantillons lin-époxyde UD vieillis en utilisant les distributions régulières et aléatoires des fibres de lin. Les résultats obtenus montrent que globalement, les fibres de lin sont soumises à des contraintes de compression d'origine hygroscopique alors que la matrice époxyde est soumise à des contraintes de traction. Les contraintes de compression qui apparaissent dans le renfort peuvent être expliquées par le fait que les fibres de lin et la matrice époxyde ne gonflent pas de la même façon, bien qu'ils aient la même concentration d'humidité à la saturation ($c = 9,153\%$). Ceci est dû à la différence entre leurs coefficients de gonflement hygroscopique ($\beta_{lin} \approx 4 \times \beta_{epoxyde}$). Ainsi, les fibres de lin ont tendance à gonfler d'une façon plus importante que la matrice époxyde et se trouvent en conséquence contraintes par cette dernière.

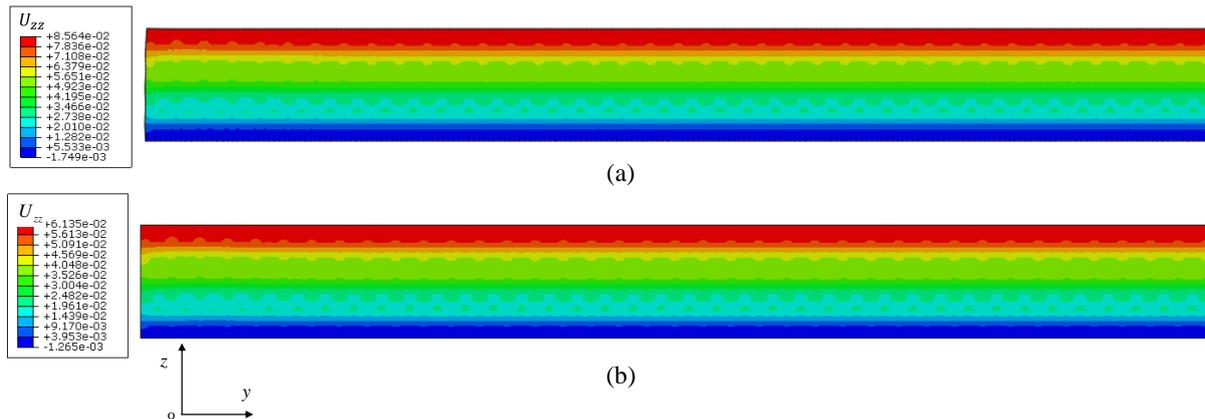


Figure 4.6 : Distribution du déplacement transversal des échantillons lin-époxyde après 70 jours de vieillissement hydrique en utilisant une distribution régulière des fibres : (a) la distribution prédite par l'élément CPE3T d'ABAQUS et (b) la distribution prédite par l'élément hygro-élastique de Fick.

De plus, nous remarquons que la distribution des fibres de lin peut influencer d'une façon importante la distribution de la contrainte σ_{zz} au sein de l'échantillon lin-époxyde UD comme l'illustre la figure 4.7. En effet, des pics de contrainte très importants sont obtenus avec la 2^{ème} et la 3^{ème} distribution aléatoires des fibres de lin en comparaison avec les autres modélisations (-290,565 MPa pour la 2^{ème} et 488 MPa pour la 3^{ème}). Malgré cette différence relativement importante dans la prédiction de σ_{zz} , la valeur moyenne de cette contrainte semble varier entre 40 et 50 MPa dans la matrice époxyde et entre 80 et 100 MPa au sein du renfort comme le montre les courbes de la figure 4.8. Ces niveaux relativement importants, et certes surestimés par le modèle actuel de Fick, dépassent la résistance à la traction en particulier de la matrice époxyde (autour de 58 MPa), ce qui peut conduire à l'amorçage de l'endommagement par fissuration matricielle, par délaminage et par dégradation des fibres de lin.

La distribution aléatoire des fibres de lin affecte également la distribution du déplacement transversal des échantillons lin-époxyde vieillis. En effet, le déplacement est plus important dans les zones où les fibres de lin sont plus proches de la surface supérieure de l'échantillon comme le montre la figure 4.9. Cette irrégularité des surfaces rend de ce fait la mesure du gonflement hygroscopique une tâche relativement difficile.

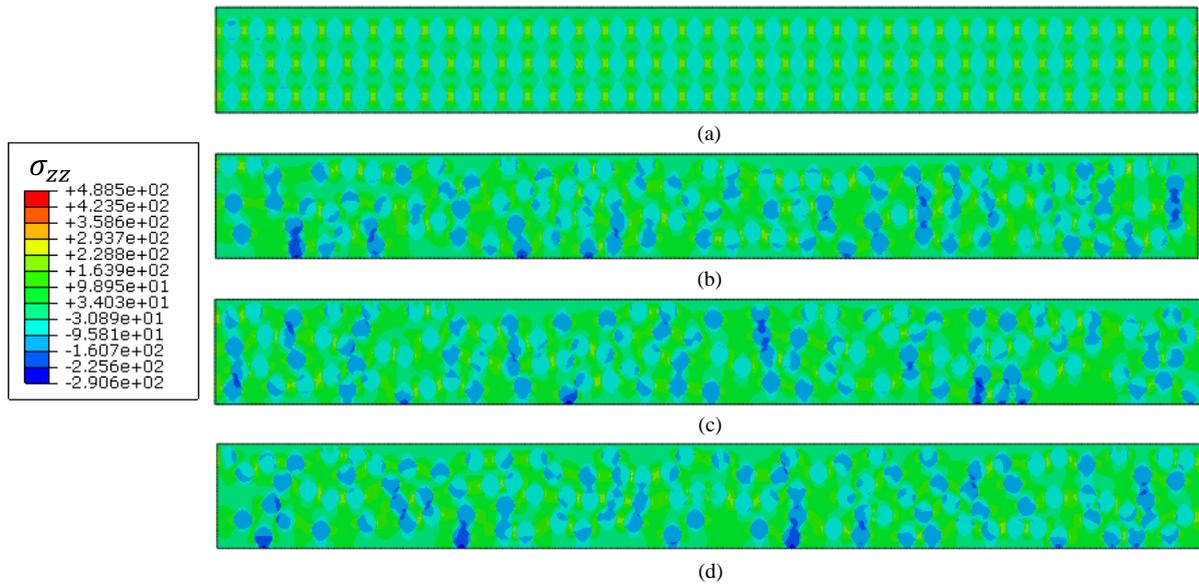


Figure 4.7 : Distribution de la contrainte mécanique suivant l'épaisseur σ_{zz} au sein des échantillons lin-époxyde après 70 jours de vieillissement hydrique : (a) distribution régulière des fibres et (b)-(d) distributions aléatoires des fibres.

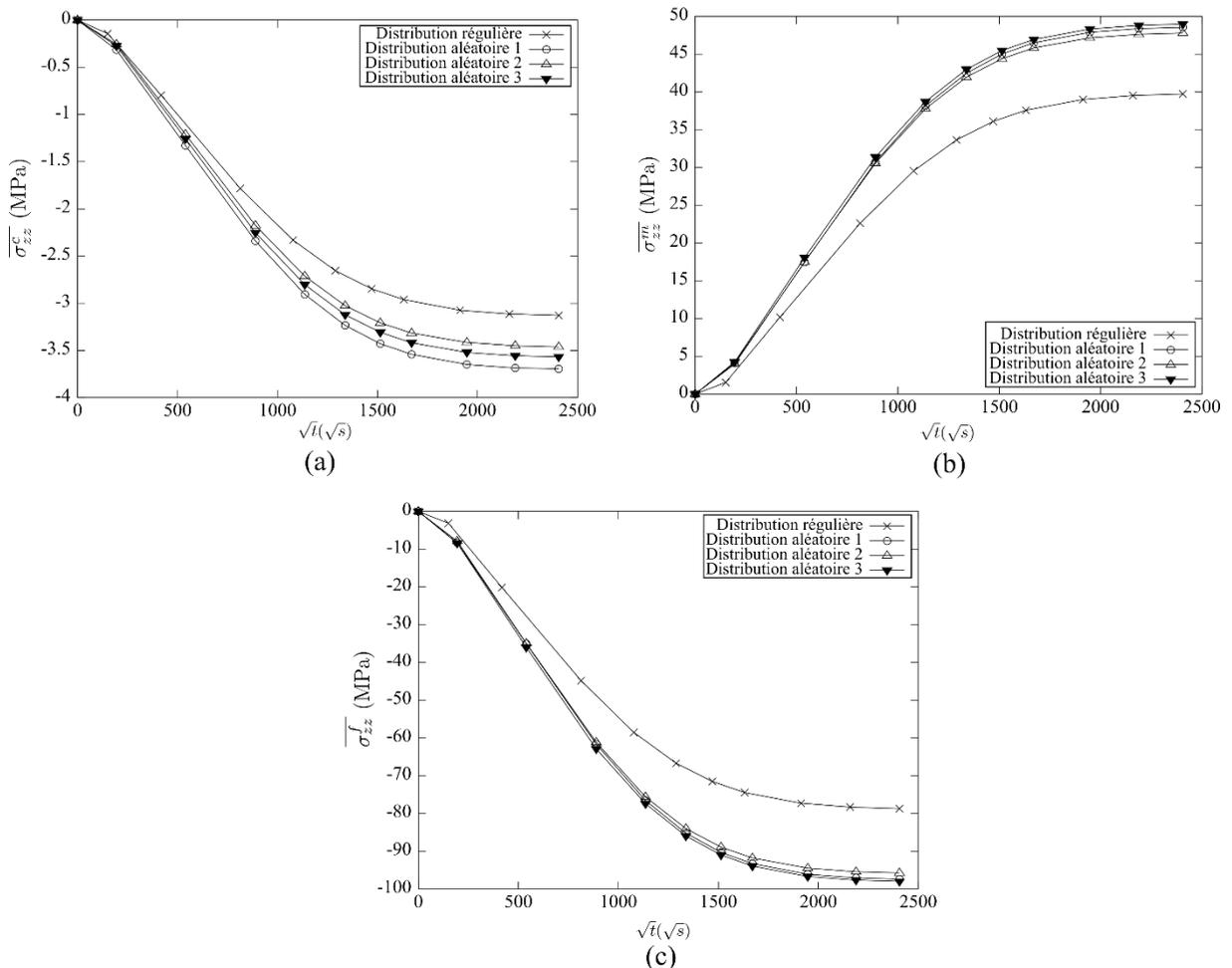


Figure 4.8 : Evolution de la contrainte mécanique moyenne suivant l'épaisseur au cours du vieillissement dans : (a) l'échantillon composite lin-époxyde, (b) la matrice époxyde et (c) le renfort.

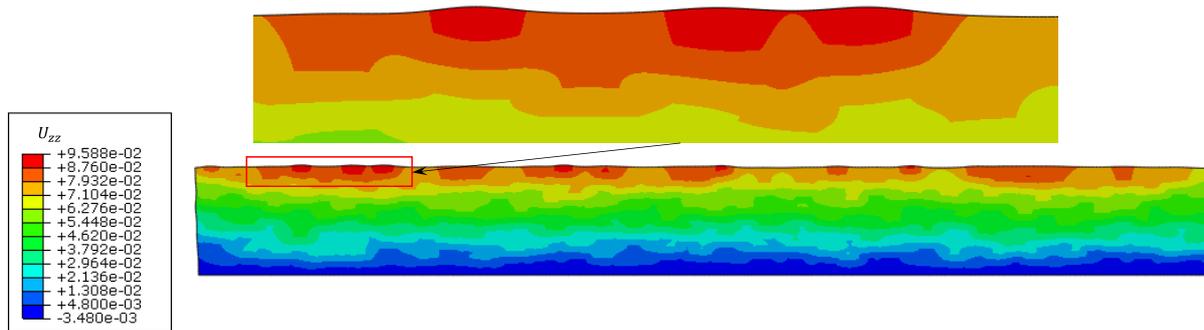


Figure 4.9 : Distribution du déplacement transversal des échantillons lin-époxyde après 70 jours de vieillissement hydrique en utilisant la 1^{ère} distribution aléatoire des fibres de lin.

4.4.1.3 Modélisation du comportement hygro-élastique des échantillons lin-époxyde en utilisant le modèle de Langmuir

Comme nous l'avons décrit dans la section 3.3.2, Le modèle de Langmuir adapté par Carter et Kibler [85] est un modèle plus général que le modèle de Fick, en considérant que la teneur en humidité ($c = n + N$) est divisée en deux sous-populations n libre et N liée. Cette dernière est supposée être responsable du phénomène de gonflement hygroscopique [219,243–247]. En effet, la présence des particules liées engendre un écartement des chaînes macromoléculaires générant ainsi, à l'échelle macroscopique, un gonflement des fibres de lin et de la matrice époxyde. Nous avons ainsi considéré l'élément fini triangulaire de Langmuir pour modéliser le comportement hygro-élastique des échantillons lin-époxyde non colmatés vieillis en utilisant la 1^{ère} distribution aléatoire des fibres de lin (figure 4.3.b).

La figure 4.10 montre la distribution de la contrainte mécanique suivant l'épaisseur σ_{zz} au sein des échantillons lin-époxyde, après 70 jours de vieillissement hydrique, obtenue avec le modèle de Langmuir. Nous obtenons une tendance similaire à celle trouvée avec l'élément fini de Fick (figure 4.7.b) où la matrice époxyde est globalement soumise à des contraintes de traction et les fibres de lin sont soumises à des contraintes de compression. Nous remarquons aussi une chute importante des niveaux des contraintes internes d'origine hygroscopique avec des contraintes de traction et de compression maximales équivalentes à $\sim 5,5$ et -8 MPa, respectivement. Ces résultats montrent que le modèle de Langmuir permet d'obtenir des niveaux de contrainte beaucoup plus précis que le modèle de Fick avec lequel nous avons trouvé des contraintes de traction et de compression trop élevées. Nous obtenons également la même distribution du déplacement transversal entre les modèles de Fick et de Langmuir, comme le montre la figure 4.11, avec des niveaux moins élevés estimés par l'élément fini de Langmuir.

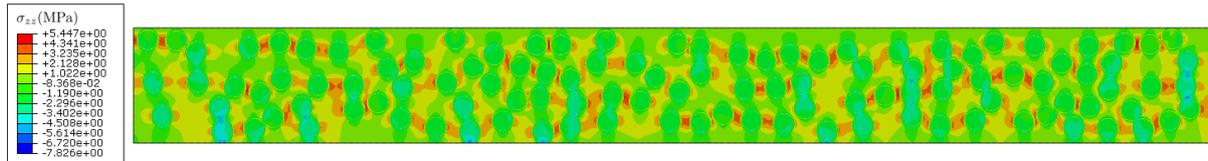


Figure 4.10 : Distribution de la contrainte mécanique suivant l'épaisseur σ_{zz} au sein des échantillons lin-époxyde après 70 jours de vieillissement hydrique en utilisant la 1^{ère} distribution aléatoire des fibres de lin et le modèle hygro-élastique de Langmuir.

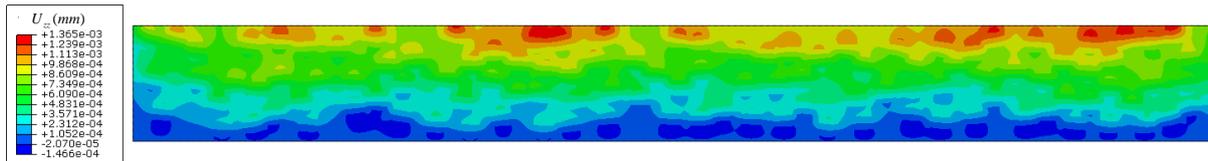


Figure 4.11 : Distribution du déplacement transversal des échantillons lin-époxyde après 70 jours de vieillissement hydrique en utilisant la 1^{ère} distribution aléatoire des fibres de lin.

La différence enregistrée dans les niveaux des contraintes mécaniques et des déplacements transversaux, entre les modèles de Fick et de Langmuir, est liée à la distribution de la concentration d'humidité comme l'illustre la figure 4.12. Malgré les valeurs équivalentes entre les teneurs en humidité calculées par les deux modèles, nous observons une répartition non-uniforme de la concentration d'humidité prédite par le modèle de Langmuir. Cette différence est due principalement aux phénomènes physicochimiques accompagnant la diffusion d'eau dans les composites lin-époxyde, tels que la plastification de la matrice époxyde, qui peuvent être décrits par le modèle Langmuir. Cependant, le modèle de Fick suppose que la répartition des particules d'eau libres est uniforme et n'interagit pas avec les fibres de lin ou la matrice époxyde.

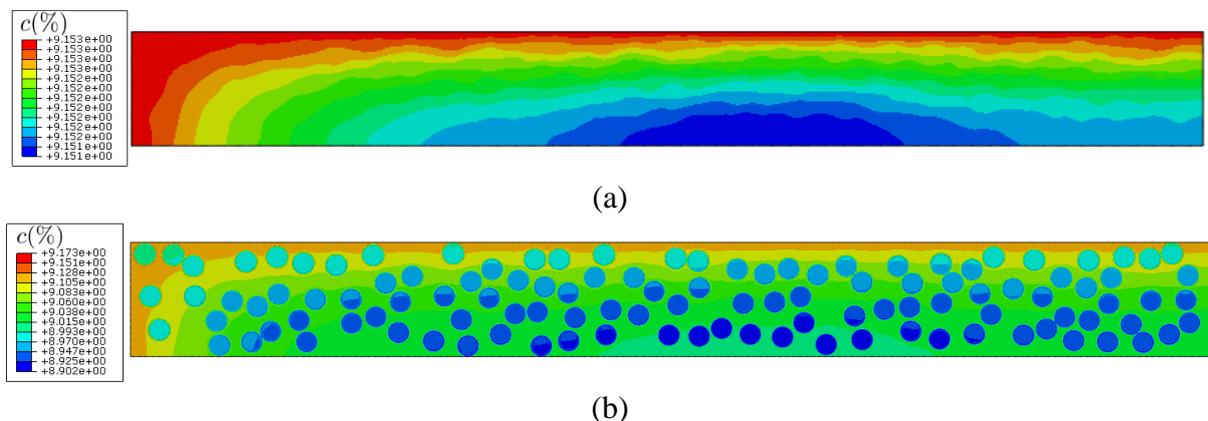


Figure 4.12 : Distribution de la concentration d'humidité c au sein des échantillons lin-époxyde après 70 jours de vieillissement hydrique en utilisant la 1^{ère} distribution aléatoire des fibres de lin et (a) le modèle de Fick, (b) le modèle de Langmuir.

4.4.2. Estimation des contraintes mécaniques internes au sein des échantillons verre-époxyde vieillis

Nous étudions dans cette partie le comportement hygro-élastique des échantillons verre-époxyde vieillis en utilisant le modèle éléments finis de la figure 4.13. Il convient de rappeler que les fibres de verre sont considérées comme hydrophobes avec des propriétés de diffusion nulles. Pour garantir l'unicité de la solution, elles sont modélisées par des « vides » (trous en modélisation plane) et seule la matrice époxyde participe à la diffusion de l'humidité au sein du composite verre-époxyde.

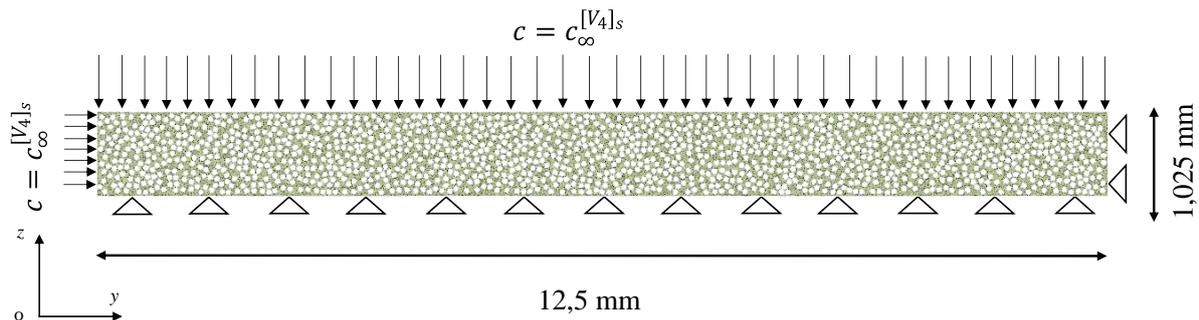
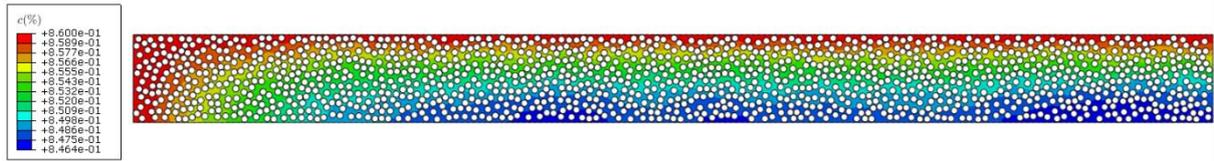


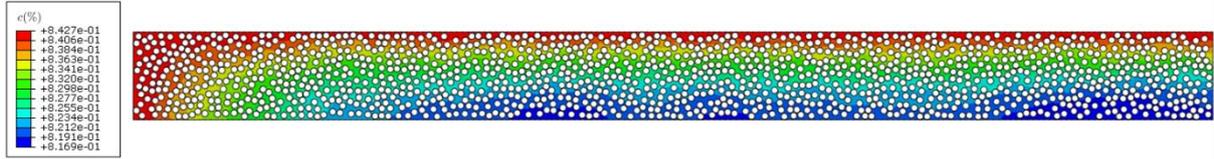
Figure 4.13 : Modélisation plane par éléments finis du comportement hygro-élastique des échantillons verre-époxyde UD non colmatés utilisant un maillage de 116573 éléments triangulaires.

La figure 4.14 montre la distribution de la concentration d'humidité au sein des échantillons verre-époxyde en utilisant les modèles de Fick (figure 4.14.a) et de Langmuir (figure 4.14.b). Les résultats obtenus montrent qu'une distribution similaire est prédite par les deux modèles. Cette similitude est due au fait que le phénomène de diffusion d'humidité dans le composite verre-époxyde est gouverné par la matrice époxyde et cette dernière présente un comportement Fickien caractérisé par un facteur $\chi = \beta / \beta + \gamma = 0,94$.

La figure 4.15 montre la distribution de la contrainte mécanique suivant l'épaisseur estimée toujours par les éléments finis de Fick et de Langmuir. Nous remarquons que la contrainte mécanique d'origine hygroscopique, principalement de traction, est globalement uniformément distribuée au sein des échantillons verre-époxyde. Son niveau reste très faible en comparaison avec le composite lin-époxyde. Ceci pourrait expliquer la quasi-insensibilité des propriétés élastiques, en particulier le module d'Young, du composite verre-époxyde vis-à-vis du vieillissement hydrique. Enfin, la figure 4.16 montre également une distribution similaire du déplacement transversal prédite par les deux modèles éléments finis hygro-élastiques avec des niveaux plus faibles prédits par le modèle de Langmuir.

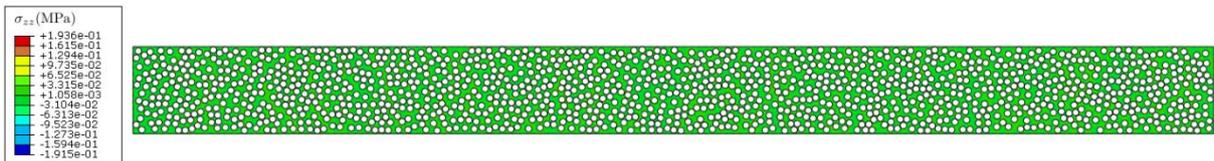


(a)

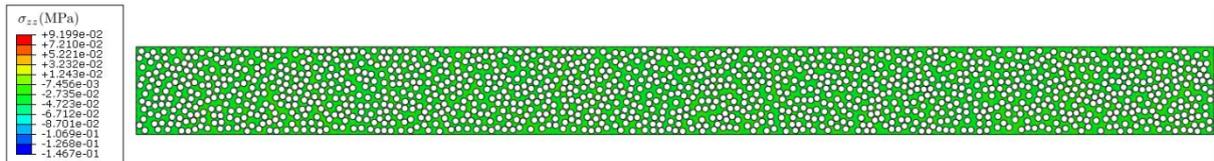


(b)

Figure 4.14 : Distribution de la concentration de l'humidité c au sein des échantillons verre-époxyde après 70 jours de vieillissement hydrique selon (a) le modèle de Fick et (b) le modèle de Langmuir.

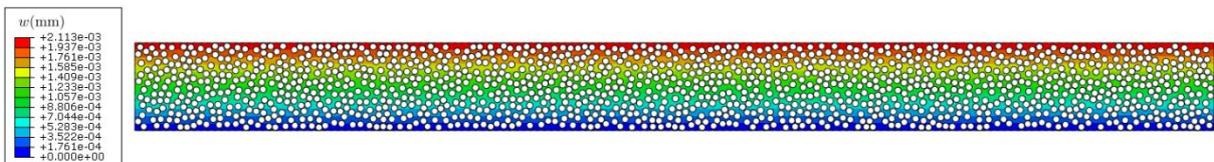


(a)

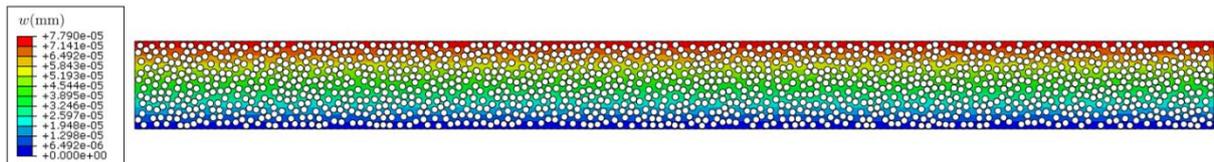


(b)

Figure 4.15 : Distribution de la contrainte mécanique suivant l'épaisseur σ_{zz} au sein des échantillons verre-époxyde après 70 jours de vieillissement hydrique selon (a) le modèle de Fick et (b) le modèle de Langmuir.



(a)



(b)

Figure 4.16 : Distribution du déplacement transversal des échantillons verre-époxyde après 70 jours de vieillissement hydrique selon (a) le modèle de Fick et (b) le modèle de Langmuir.

4.4.3. Estimation des contraintes mécaniques internes au sein des échantillons hybrides $[L_2V_2]_s$ vieillis

Nous étudions dans cette dernière partie le comportement hygro-élastique des échantillons hybrides $[L_2V_2]_s$ vieillis en utilisant le modèle éléments finis de la figure 4.17. Les figures 4.18, 4.19 et 4.20 montrent les distributions de la concentration d'humidité, de la contrainte mécanique suivant l'épaisseur et du déplacement transversal à saturation, prédites par les éléments finis hygro-élastiques de Fick et de Langmuir.

En particulier, la figure 4.19.a montre que l'hybridation des fibres de lin par des fibres de verre entraîne une baisse importante des contraintes mécaniques internes d'origine hygroscopique qui peut atteindre 45% en comparaison avec celles des échantillons lin-époxyde vieillis (figure 4.7), si nous considérons l'élément fini de Fick. Les résultats issus du modèle hygro-élastique de Langmuir enregistre également une baisse de l'ordre de 30% par rapport au composite lin-époxyde, ce qui montre encore une fois l'impact de l'hybridation sur le comportement hygroscopique et hygro-élastique de ce dernier matériau.

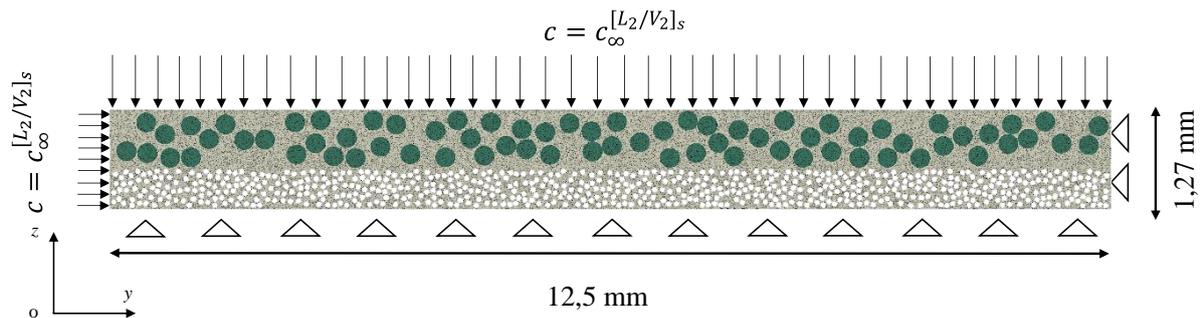


Figure 4.17 : Modélisation plane par éléments finis du comportement hygro-élastique des échantillons hybrides $[L_2/V_2]_s$ non colmatés utilisant un maillage de 225148 éléments triangulaires.

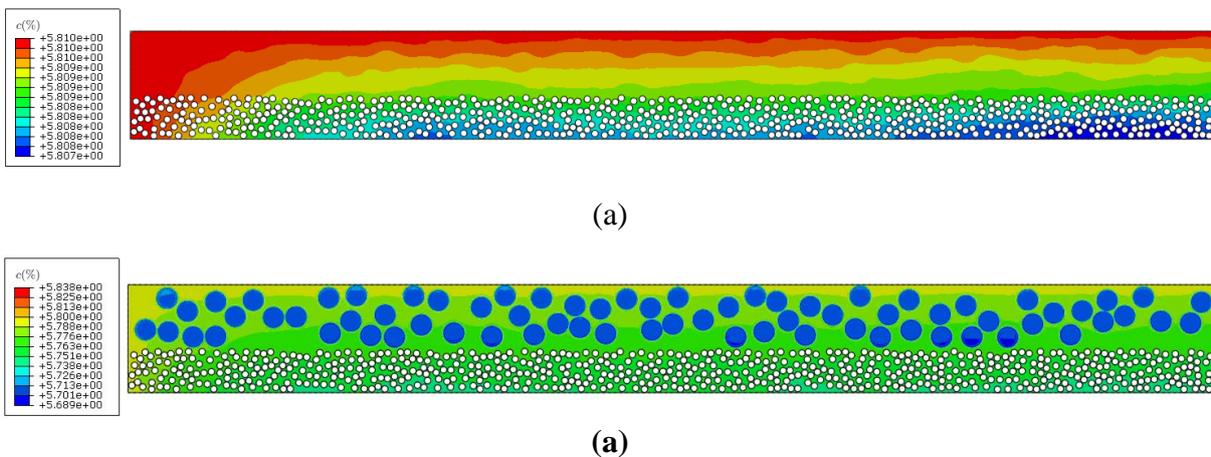
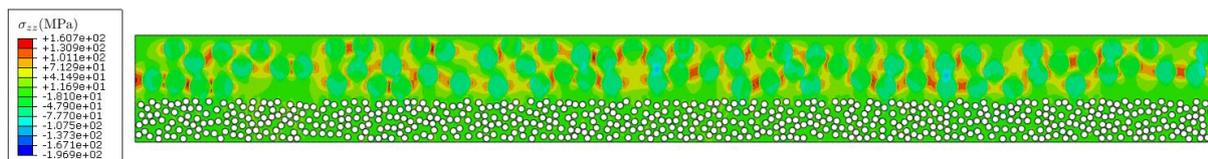
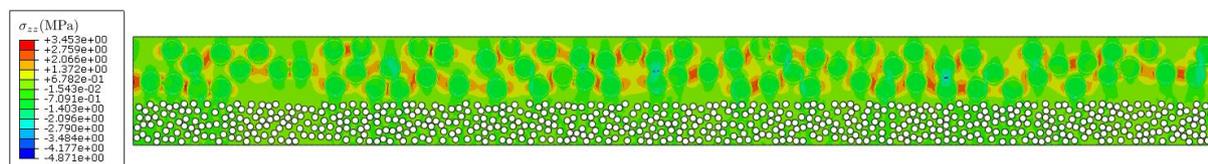


Figure 4.18 : Distribution de la concentration de l'humidité c au sein du stratifié $[L_2/V_2]_s$ après 70 jours de vieillissement hydrique selon (a) le modèle de Fick et (b) le modèle de Langmuir.

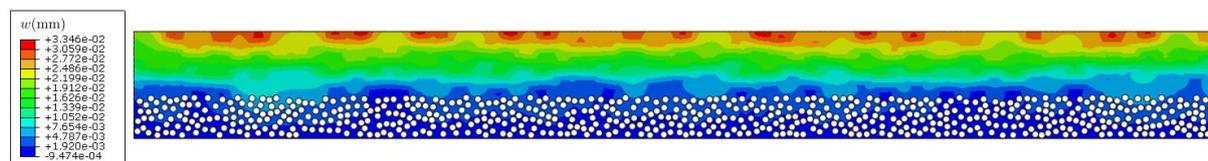


(a)

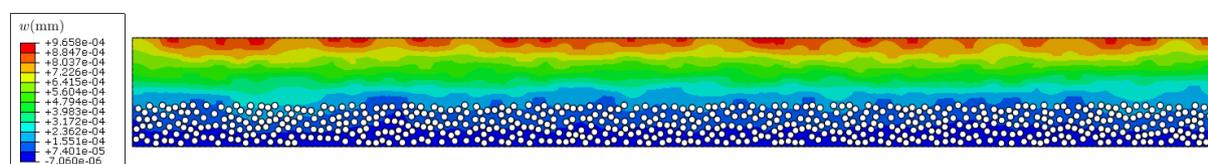


(b)

Figure 4.19 : Distribution de la contrainte mécanique suivant l'épaisseur σ_{zz} au sein du stratifié $[L_2/V_2]_s$ après 70 jours de vieillissement hydrique selon (a) le modèle de Fick et (b) le modèle de Langmuir.



(a)



(b)

Figure 4.20 : Distribution du déplacement transversal du stratifié $[L_2/V_2]_s$ après 70 jours de vieillissement hydrique selon (a) le modèle de Fick et (b) le modèle de Langmuir.

4.5. Conclusion

Dans ce 4^{ème} chapitre, nous avons présenté les formulations de deux éléments finis hygro-élastiques, de membrane triangulaire à trois nœuds, basés sur les modèles de Fick et de Langmuir. Le but est d'estimer les contraintes mécaniques internes liées au vieillissement hydrique, en particulier dans les échantillons composites lin-époxyde et hybrides lin-verre-époxyde. En particulier, nous avons pu remarquer que le modèle de Langmuir permet d'obtenir une estimation des contraintes mécaniques beaucoup plus précise que le modèle de Fick. Bien que le modèle de Langmuir améliore notablement la description du comportement hygro-

élastique des composites de l'étude, quelques pistes d'amélioration de cette modélisation sont à considérer dans les travaux futurs.

En particulier, les modèles hygro-élastiques de Fick et de Langmuir actuels sont des modèles « découplés ». L'objectif principal était de tester la faisabilité de développer et implémenter ces modèles éléments finis dans ABAQUS qui, à notre connaissance, n'en dispose pas jusqu'à présent. Pour contourner ce manque de modèles hygro-mécaniques dans ABAQUS, plusieurs auteurs ont considéré l'analogie thermo-mécanique de ce logiciel, en utilisant l'analogie entre la loi de Fourier et le modèle de Fick. Malheureusement, cette analogie thermo-mécanique peut parfois conduire à des surestimations de la contrainte mécanique comme montré dans la section 4.4.1.1. Bien évidemment, ces modèles sont amenés à évoluer pour décrire l'effet des variables mécaniques sur les paramètres de diffusion.

Chapitre 5

Influence du vieillissement hydrique sur le comportement mécanique des composites à fibres de lin

5.1. Introduction

Les résultats obtenus dans les chapitres précédents montrent que les composites à fibres naturelles sont fortement sensibles à l'humidité. Ceux-ci montrent aussi que l'hybridation « fibres de verre-fibres de lin » peut être considérée comme une solution intéressante pour améliorer les propriétés mécaniques et la résistance à l'humidité des composites à fibres de lin. Ceci rend nécessaire la compréhension du comportement mécanique de ces matériaux composites en milieux humides.

Dans la littérature, l'évaluation de l'impact de l'humidité sur les propriétés mécaniques des composites hybrides a été principalement étudiée en analysant leur comportement mécanique en traction monotone [151,152,204,252–255]. Par ailleurs, l'effet de l'humidité sur le comportement en traction charge-décharge de ces matériaux reste peu étudié [252,256]. C'est dans ce contexte que s'inscrit l'objectif principal de ce chapitre. Celui-ci vise à analyser en traction monotone et en charge-décharge, sous l'effet d'un vieillissement hydrique, l'influence de l'hybridation sur le comportement mécanique de ces matériaux en présence d'endommagement. Dans un premier temps, nous analysons la corrélation entre la durée de leur immersion dans l'eau et l'évolution de leurs propriétés mécaniques. Ensuite, des essais de charge-décharge en traction sont effectués à différentes périodes d'immersion pour évaluer l'évolution de l'endommagement au sein des composites de l'étude. En parallèle, un suivi des mécanismes d'endommagement est également réalisé à l'aide de la technique d'émission acoustique.

5.2. Vieillissement hydrique des éprouvettes de traction

Nous présentons dans ce chapitre une étude de vieillissement hydrique, conduite sur quatre différents composites stratifiés que nous avons mis en œuvre. Il s'agit des composites lin-époxyde [L₄], verre-époxyde [V₄] et hybrides lin-verre-époxyde [L₂/V₂]_s et [V₂/L₂]_s. Les deux stratifiés hybrides ont été choisis sur la base résultats obtenus dans la section 2.5.4. Pour analyser l'effet du vieillissement hydrique sur leurs propriétés mécaniques, des essais de traction ont été effectués après 2, 7, 15, 30, 45 et 70 jours d'immersion en eau douce. Ces périodes ont été choisies pour étudier le comportement mécanique à différentes phases de leur cinétique de diffusion d'eau (figure 5.1). Il convient également de noter que les éprouvettes de traction n'ont pas été colmatées durant leur processus de vieillissement, afin d'accélérer la cinétique d'absorption d'eau. La démarche expliquée dans la section 2.5.1 a été adoptée pour les essais de traction sur les éprouvettes vieilles.

Le suivi de l'endommagement est réalisé à l'aide de la technique de l'Emission Acoustique (EA). Un système d'acquisition commercialisé par la société Mistras Groupe, comprenant deux voies avec une fréquence d'échantillonnage de 5 MHz, est utilisé. Il est composé d'une carte d'acquisition PCI reliée à un micro-ordinateur. Les signaux d'EA sont ensuite enregistrés par deux capteurs piézoélectriques de type Micro-80, de bande passante 100 kHz–1 MHz et de 10 mm de diamètre, positionnés sur les éprouvettes avec une graisse silicone. Ces signaux sont amplifiés par un préamplificateur, avec un gain de 40 dB. Ils sont ensuite convertis par la carte PCI, qui les numérise et procède à l'extraction des divers paramètres temporels et fréquentiels (figure 5.2). Les données d'EA sont ensuite transmises au micro-ordinateur pour afficher en temps réel le stockage et le post-traitement des données. Le seuil de détection des signaux acoustiques a été fixé à 32 dB pour éliminer les signaux dus au bruit environnant. De plus, des tests de "cassé de mine" ont été effectués avant les essais pour s'assurer à la fois du bon fonctionnement de la chaîne d'acquisition et de la bonne définition des paramètres d'acquisition.

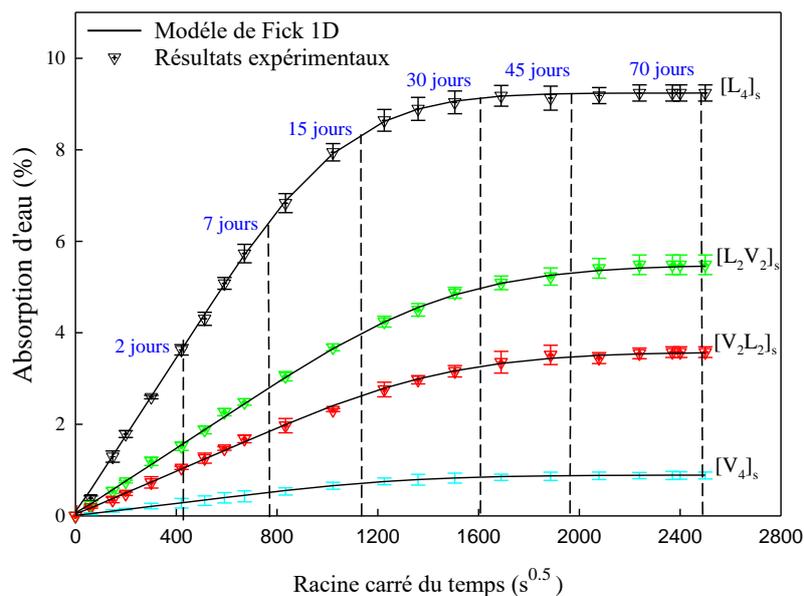


Figure 5.1: Évolution de l'absorption d'eau des éprouvettes de traction des composites hybrides et non hybrides.

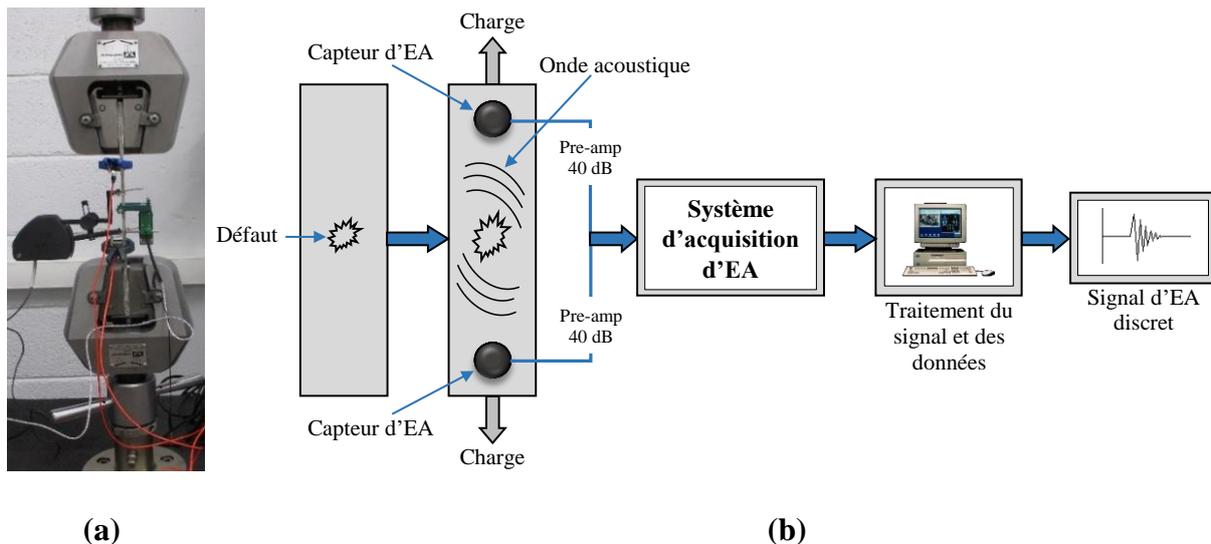


Figure 5.2: Dispositif expérimental : (a) essai de traction, (b) éprouvette instrumentée

5.3. Comportement mécanique en traction monotone des éprouvettes vieilles

Les figures 5.3 et 5.4 représentent les courbes contrainte-déformation des matériaux non vieillis et vieillis jusqu'à la saturation, soit 70 jours d'immersion dans l'eau. La figure 5.4 indique que les courbes de traction des composites vieillis ont globalement des allures quasi similaires à celles identifiées dans le cas des composites non vieillis. D'autre part, il apparaît que l'absorption d'eau affecte sensiblement la rigidité des composites vieillis. Contrairement au composite vieilli verre-époxyde, qui ne montre pas de variation visible de son module d'élasticité, le composite lin-époxyde est plus impacté par le vieillissement après 70 jours d'immersion dans l'eau. Ce dernier montre une chute considérable du module d'Young et de sa contrainte maximale ainsi qu'une augmentation de sa déformation maximale. Ce comportement a été aussi constaté dans le cas de la résine époxyde (figure.5.3)

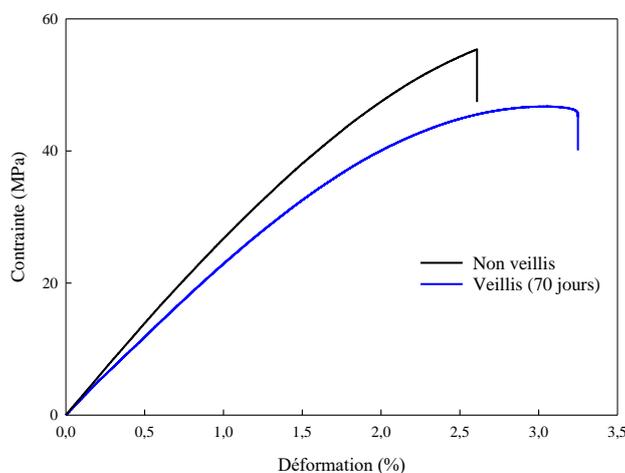


Figure 5.3: Courbes contrainte-déformation déduites des essais de traction effectués sur des échantillons de résine époxyde pure.

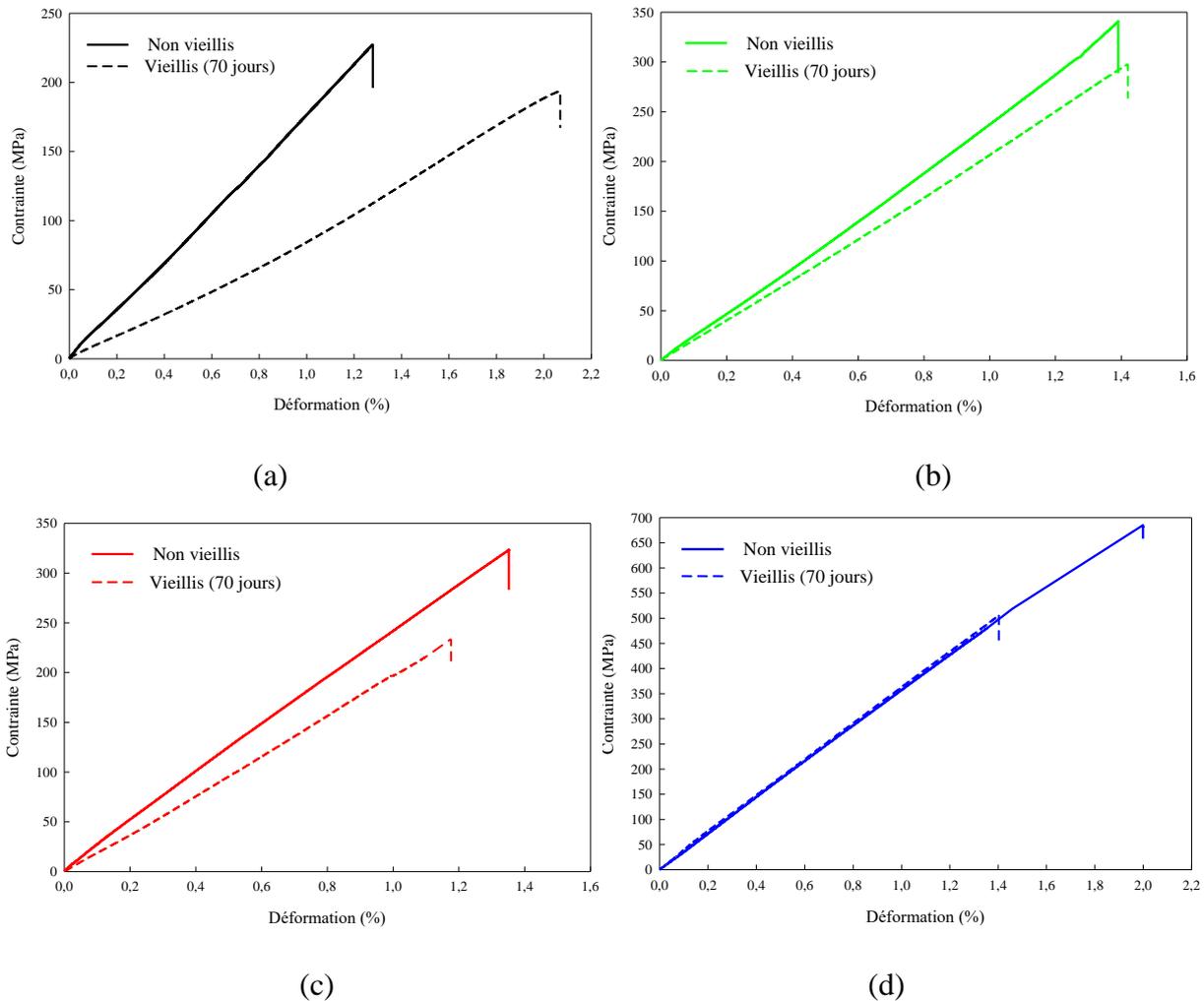


Figure 5.4: Courbes contrainte-déformation des matériaux vieillis et non vieillis : (a) $[L_4]_s$, (b) $[L_2/V_2]_s$, (c) $[V_2/L_2]_s$, (d) $[V_4]_s$.

Les composites hybrides $[L_2/V_2]_s$ et $[V_2/L_2]_s$ montrent que l'association lin-verre réduit l'impact du vieillissement sur le comportement mécanique, notamment sur le module d'Young.

Afin de comparer l'effet du vieillissement et de l'hybridation sur les propriétés mécaniques des différents composites considérés dans ce chapitre, nous illustrons dans la figure 5.5 leurs propriétés mécaniques spécifiques. Cette figure montre qu'après 70 jours de vieillissement, les propriétés en traction de tous les échantillons sont affectées par l'effet de vieillissement. Cette influence marquée du vieillissement sur les propriétés en traction est due aux molécules d'eau qui affectent la structure et les propriétés des fibres, de la matrice et de l'interface fibre/matrice [210,257–261].

On notera qu'après 70 jours d'immersion dans l'eau, le composite lin-époxyde, le plus sensible à l'immersion dans l'eau, enregistre une chute de 46% de son module d'Young et une augmentation d'environ 60% de sa déformation à la rupture. D'autre part, le composite verre-

époxyde enregistre une diminution d'environ 2% et 15% de son module d'Young et de sa déformation à la rupture, respectivement, après 70 jours d'immersion.

Les composites hybrides $[L_2/V_2]_s$ et $[V_2/L_2]_s$ sont moins sensibles au vieillissement hydrique que le composite lin-époxyde, montrant que la présence des fibres de verre réduit la perte des propriétés mécaniques, notamment le module et la contrainte à la rupture. Par exemple, nous constatons que le stratifié $[L_2/V_2]_s$ présente une diminution d'environ 20% pour son module d'Young et sa résistance à la traction, et 3% pour sa déformation à la rupture.

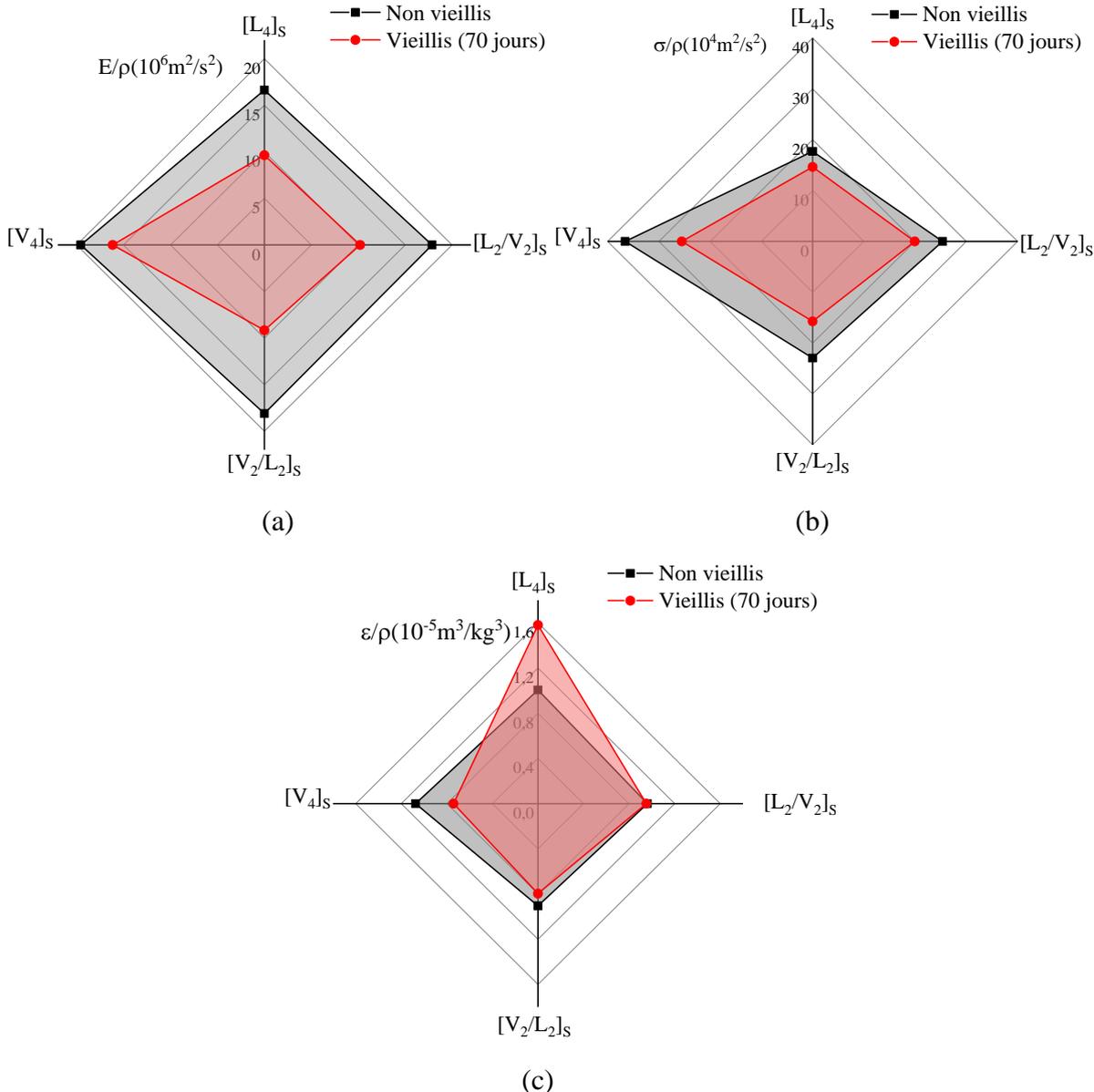
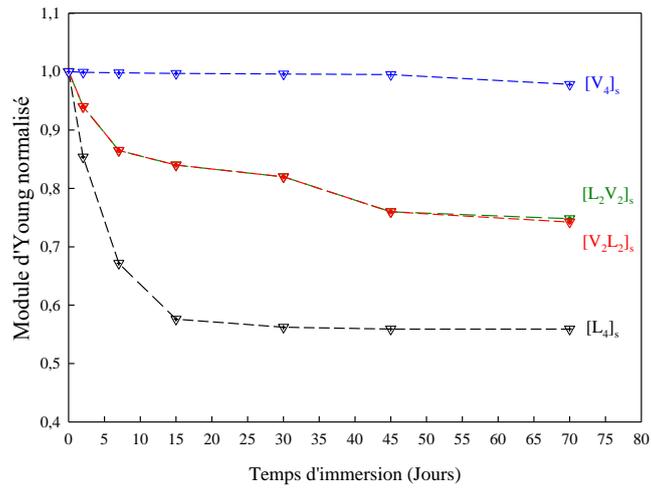
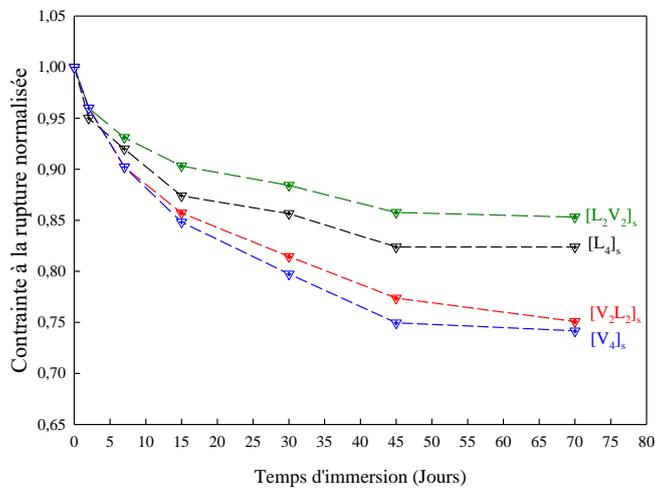


Figure 5.5: Propriétés mécaniques spécifiques des matériaux composites non vieillis et vieillis : (a) module de traction, (b) résistance ultime à la traction, (c) déformation à la rupture.

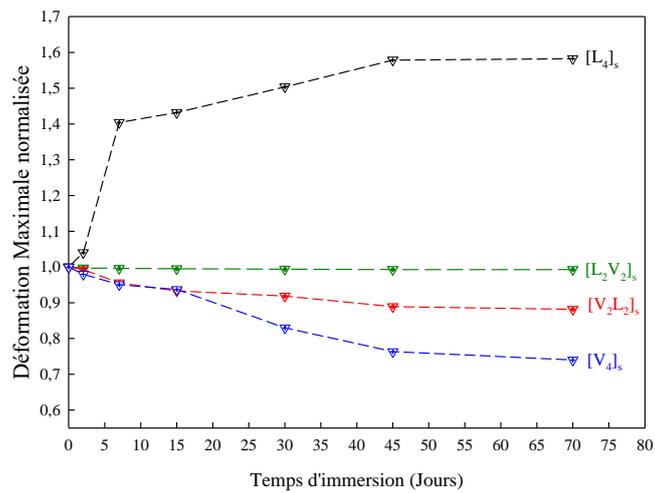
Afin d'apporter un complément d'information sur l'effet du vieillissement sur la dégradation des propriétés mécaniques de nos composites, nous présentons sur la figure 5.6 l'évolution de leurs propriétés mécaniques de traction en fonction de la durée d'immersion dans l'eau. Il apparaît clairement que l'absorption d'eau entraîne des variations considérables des propriétés élastiques et à la rupture du composite lin-époxyde. En effet, après seulement sept jours de vieillissement, soit presque 6 % d'absorption d'eau, le module d'Young chute d'environ 35 % par rapport aux composites non-vieillis (figure 5.6.a). Ensuite, il décroît progressivement pour atteindre 45 % du module initial après 30 jours d'immersion dans l'eau où il reste constant. La contrainte maximale suit la même tendance que celle du module d'Young, en enregistrant une baisse de l'ordre de 20 % au bout de 30 jours d'immersion. D'autre part, la déformation maximale du composite lin-époxyde croît avec le temps de vieillissement jusqu'à atteindre presque 60 % d'augmentation par rapport au même composite non-vieilli. Il est à noter que certains travaux de recherche ont observé la même évolution sur d'autres matériaux composites à fibres végétales comme le lin, le chanvre, le jute, le sisal et le bambou [60, 69, 116, 118, 133, 266, 268]. Par exemple, Chilali et al. [68] ont constaté une baisse d'environ 45 % du module d'Young et de la contrainte maximale des composites à matrices époxyde et Elium (thermoplastique) renforcées par des tissus sergés de lin, dès les premiers jours d'immersion dans l'eau de mer à 20°C. D'autre part, les propriétés mécaniques du composite verre-époxyde semble moins impactées par le vieillissement, notamment pour le module d'Young qui reste quasi-constant après 70 jours de vieillissement. Quant à la contrainte et la déformation à la rupture, leurs variations sont de l'ordre de 25% de 15%, respectivement. Le même constat a été fait par Assarar et al. [59] sur les composite verre-époxyde, après seulement 20 jours d'immersion. Ils ont enregistré une chute de 25% de la contrainte maximale par rapport au composite non vieillis. Les courbes de sorption d'eau relatives aux composites hybrides montrent que malgré la différence des masses à saturation $M_{\infty}^{[L_2/V_2]_s} = 5,48 \pm 0,21\%$, $M_{\infty}^{[V_2/L_2]_s} = 3,57 \pm 0,11\%$ et la position des couches de verre, à l'intérieur ou à l'extérieur, les stratifiés $[L_2/V_2]_s$ et $[V_2/L_2]_s$ présentent des évolutions des propriétés assez similaires, montrant que l'ajout des fibres de verre réduit l'impact du vieillissement sur l'évolution des propriétés mécaniques. Par exemple, nous constatons qu'après 30 jours d'exposition, le stratifié $[L_2/V_2]_s$ présente une diminution d'environ 15%. Cette diminution atteint, après 70 jours de vieillissement, un taux d'environ 25%. Ce dernier taux, enregistré après 70 jours de vieillissement, est inférieur à la diminution constatée dans le composite lin-époxyde, à savoir 35 % par rapport aux composites non-vieillis, après seulement 7 jours.



(a)



(b)



(d)

Figure 5.6 : Evolution des propriétés élastiques et à la rupture normalisées des composites hybrides et non hybrides en fonction du temps d'immersion dans l'eau : (a) module d'Young, (b) contrainte maximale et (c) déformation maximale.

La diminution des modules d'Young et des contraintes à la rupture en fonction du vieillissement est due d'une part, à la dégradation de la fibre de lin et d'autre part, à l'affaiblissement de l'interface, à l'échelle de la fibre élémentaire dans les faisceaux de fibres de lin, et du composite (interface fibre-matrice).

En effet, la structure multicouche des fibres de lin offre de multiples interfaces et zones de transition entre ses constituants. Par conséquent, l'eau peut affecter directement les composants hydrophiles et affaiblir les diverses interfaces internes des fibres [114,262–264].

De plus, l'eau absorbée par la pectine et le lumen peut affaiblir d'avantage l'interface entre les fibres unitaires, en générant des microfissures au niveau des lamelles mitoyennes [105]. Ce qui affecte les propriétés mécaniques du renfort et en conséquence celles des composites.

Comme nous l'avons mentionné en conclusion du chapitre 4, le gonflement hygroscopique génère des concentrations de contraintes au niveau de l'interface fibre-matrice (figure 5.7), à l'origine de l'apparition de microfissures [91,127,257]. Cette dégradation engendre ainsi un mauvais transfert de charge entre la fibre et la matrice, et par conséquent une baisse des propriétés mécaniques du composite [265]. D'autre part, l'augmentation de la déformation à la rupture avec le temps d'immersion est essentiellement engendrée par la plastification, qui reste liée à la présence des particules d'eau, et la ductilité des fibres de lin résultant de la dégradation de la structure de la cellulose après le processus de vieillissement [68,126].

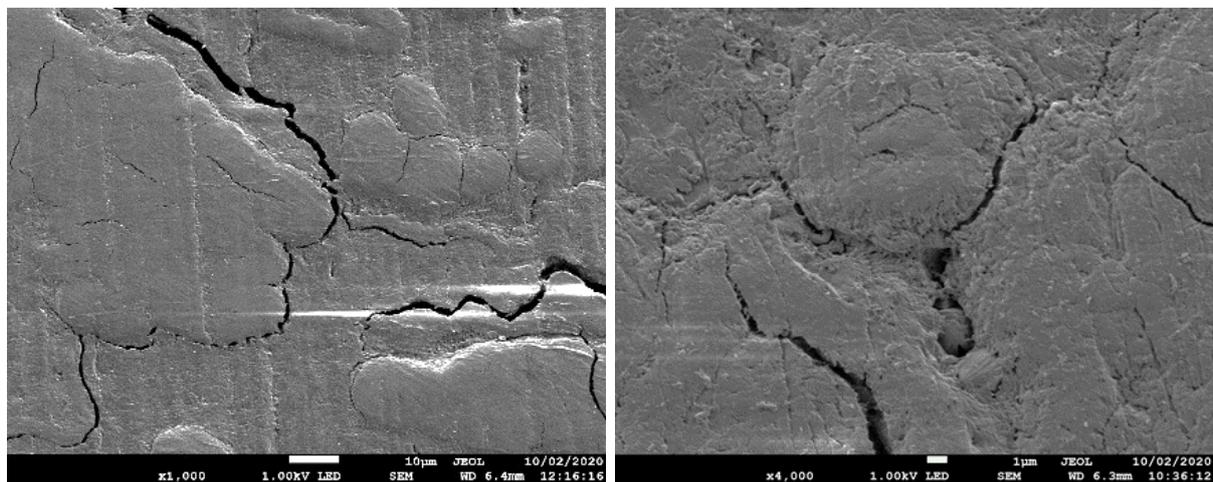


Figure 5.7 : Image des échantillons lin-époxyde vieillis après 70 jours : (a) fissuration matricielle , (b) fissuration dans le faisceau.

La diminution de la déformation à la rupture dans le composite à fibres de verre peut être expliquée par les endommagements précoces, induits lors de la diffusion des molécules d'eau dans le matériau préalablement la charge de traction [68]. Ces endommagements sont souvent

liés aux microfissures à l'interface fibre-matrice et à la dégradation de l'interface, affectant ainsi la qualité de l'adhérence entre la résine époxyde et les fibres de verre, et réduisant par voie de conséquence la déformation maximale du composite à fibres de verre une fois chargé (figure 5.8).

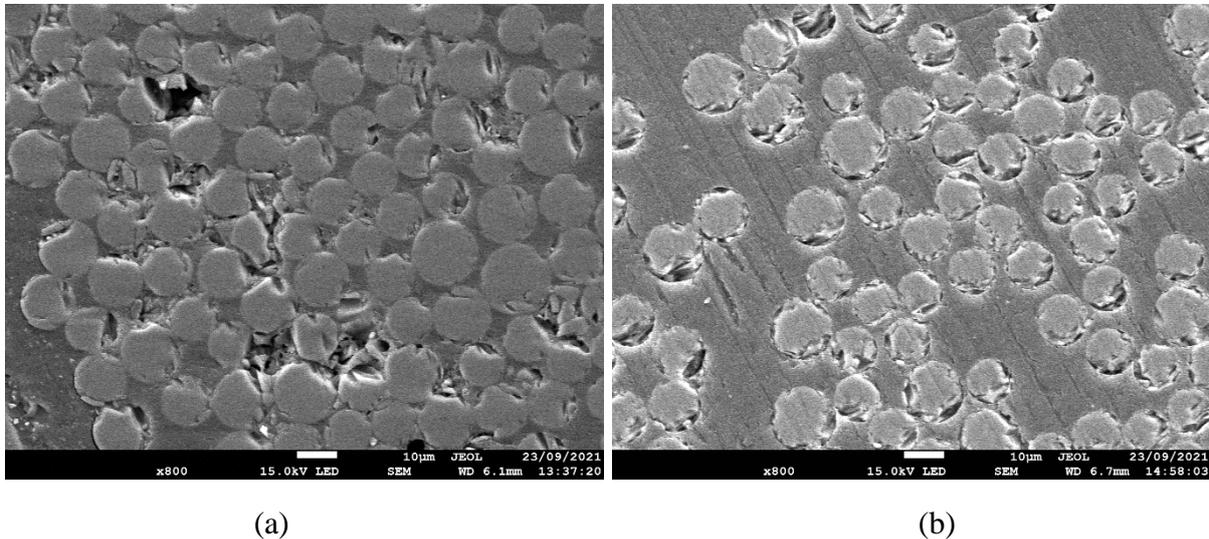


Figure 5.8: Micrographies des échantillons verre-époxyde: (a) non vieillis , (b) vieillis après 70 jours.

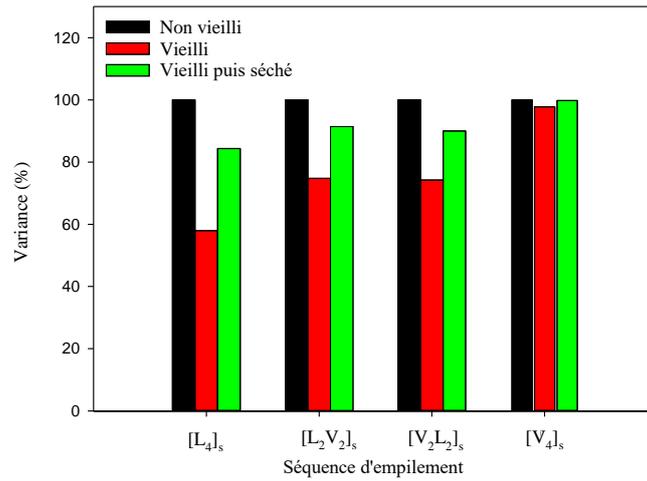
5.3.1. Réversibilité des propriétés mécaniques

Afin d'étudier la réversibilité des propriétés mécaniques des composites vieillis puis séchés, les éprouvettes de traction ont été vieillis jusqu'à la saturation puis séchées et testées en traction monotone suivant la direction longitudinale. Pour éliminer la quantité d'eau absorbée durant le processus de vieillissement, l'opération de séchage a été effectuée à l'air libre, à la même température que celle du vieillissement, jusqu'à atteindre la masse initiale des éprouvettes (masse avant vieillissement). Les résultats obtenus sont reportés dans le tableau 5.1 et sur la figure 5.9. Après séchage, les matériaux récupèrent une grande partie de leurs propriétés initiales. La perte des propriétés après séchage est plus prononcée dans le composite lin-époxyde. En effet, le module et la contrainte maximale du composite lin-époxyde vieilli puis séché est d'environ 16 à 17 % inférieurs à ceux des matériaux non vieillis. S'agissant de la déformation maximale, ce composite enregistre, après séchage, une diminution d'environ 14 % par rapport au composite non vieilli. Contrairement au composite lin-époxyde, le composite verre-époxyde vieillis puis séché ne présente pas de perte au niveau de son module d'Young. En revanche, sa contrainte et sa déformation à la rupture sont d'environ 12% et 15% inférieurs à celles du matériau non vieilli, respectivement. Quant aux stratifiés $[L_2/V_2]_s$ et $[V_2/L_2]_s$, la perte de leurs modules d'Young après séchage est quasi identique. Elle est d'environ 10%,

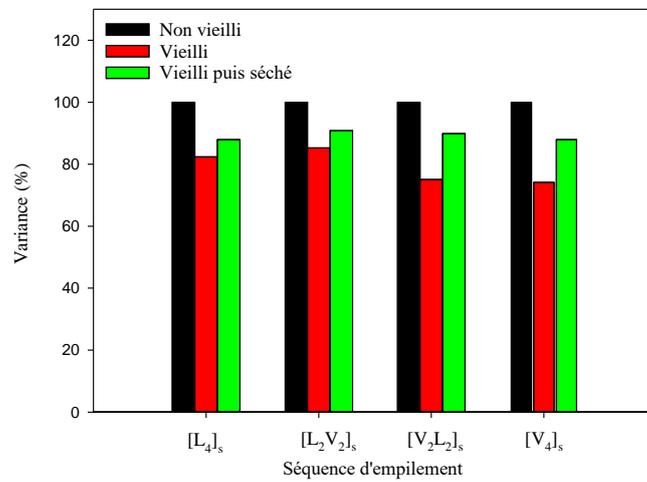
contrairement aux propriétés à la rupture où le stratifié $[L_2/V_2]_s$ répond bien au processus de séchage, en récupérant 91% et 96 % de sa contrainte et sa déformation maximales, respectivement, par rapport au stratifié non vieilli. Cette irréversibilité des propriétés mécaniques a été aussi observée dans divers travaux de la littérature sur des composites à fibres végétales [12,114,117,130]. La réversibilité partielle des propriétés mécaniques montre qu'en plus des phénomènes de plastification, supposés être réversibles [114,266], le gonflement des fibres, responsable de l'apparition des microfissures, notamment au niveau de la matrice, et des interfaces fibre-matrice et intra-fibres, peut engendrer des endommagements irréversibles [68,91,93,119]. Le caractère hydrophile de la fibre de lin peut favoriser d'autres endommagements irréversibles tels que l'hydrolyse et le lessivage au niveau de ses constituants [95,96,264].

Tableau 5.1: Propriétés élastiques et à la rupture des matériaux non vieillis et vieillis puis séchés.

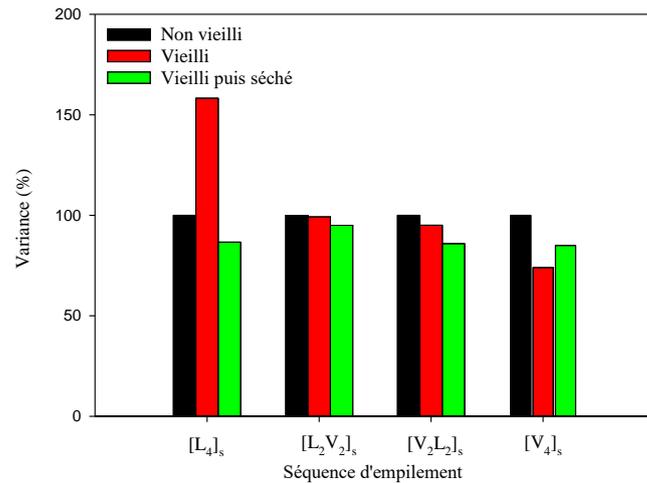
	Conditionnement	$E(GPa)$	$\sigma_{max}(MPa)$	$\varepsilon_r(\%)$
[L ₄] _s	Non vieilli	21,10±0,85	225,51±13,28	1,27±0,03
	Vieilli	12,23±1,05	185,77±23,54	2,01±0,19
	Vieilli puis séché	17,80±2,12	198,35±18,67	1,11±0,21
[L ₂ V ₂] _s	Non vieilli	28,76±0,61	346,94±15,56	1,42±0,14
	Vieilli	21,52±1,79	296,04±15,20	1,41±0,08
	Vieilli puis séché	26,30±0,84	315,32±17,43	1,35±0,17
[V ₂ L ₂] _s	Non vieilli	29,27±0,94	314,23±27,90	1,35±0,13
	Vieilli	21,73±1,74	235,90±10,66	1,19±0,14
	Vieilli puis séché	26,35±0,47	282,52±16,65	1,22±0,21
[V ₄] _s	Non vieilli	38,08±0,96	681,52±26,86	2,00±0,16
	Vieilli	37,25±1,94	505,42±31,78	1,48±0,28
	Vieilli puis séché	38,00±0,88	599,44±24,12	1,71±0,31



(a)



(b)



(c)

Figure 5.9: Variations des propriétés mécaniques des composites non vieillis, vieillis et vieillis puis séchés : (a) Module d'Young, (b) contrainte maximale, (c) déformation maximale.

5.3.2. Analyse microscopique de l'endommagement

Dans cette partie nous analysons la microstructure des composites de l'étude à des niveaux de chargement différents. Le choix de ces niveaux de chargement est basé sur l'allure des courbes de traction.

Nous présentons dans la figure 5.10 les images des sections transversales de certains échantillons, réalisées à 10% de la contrainte maximale de traction. Les résultats obtenus révèlent de nombreuses microfissures au sein de la matrice époxyde (Figure 5.10.a étiquette 1). Les observations microscopiques ont également indiqué la présence de microfissures, incluant des fissures transversales et longitudinales dans les faisceaux de fibres de lin (figure 5.10.b étiquette 2 et 5.10.c étiquette 2), et des microfissures initiées à l'interface fibre/matrice (figure 5.10.c étiquette 3). De ce fait, on peut conclure que le premier mécanisme d'endommagement pouvant se produire est le phénomène de fissuration matricielle.

Les observations microscopiques effectuées à 80% de la contrainte maximale de traction, sur des composites non vieillis et vieillis, montrent la présence de divers mécanismes d'endommagements tels que le délaminage (figure 5.11.a étiquette 4) et la décohésion fibre-matrice (figure 5.11.b étiquette 5). Elles illustrent également le détachement des fibres élémentaires de lin au sein des mêmes faisceaux, en raison de la rupture de la lamelle mitoyenne (figure 5.11.c étiquette 6)). A cela s'ajoute l'arrachement des faisceaux de lin (figure 5.11.d) et la rupture des fibres de lin (figure 5.11.e étiquette 7) et de verre (figure 5.11. f étiquette 8).

Les images des figures 5.10 et 5.11 permettent d'apporter un complément d'information sur le comportement mécanique des composites hybrides. En effet, les microfissures qui apparaissent pour des faibles niveaux de contrainte ne peuvent généralement pas réduire de manière significative la rigidité du matériau composite, contrairement au délaminage, à l'arrachement et à la rupture des fibres qui diminuent considérablement la résistance à la traction des matériaux composites [267]. Ces derniers mécanismes sont plus prononcés dans les composites à fibres de lin en raison du gonflement hygroscopique de ces dernières qui entraîne de fortes concentrations de contraintes [68]. De plus, le délaminage peut impliquer d'autres mécanismes d'endommagement tels que le décollement interfacial fibre-matrice et la rupture des fibres [268], réduisant ainsi la résistance de la structure composite.

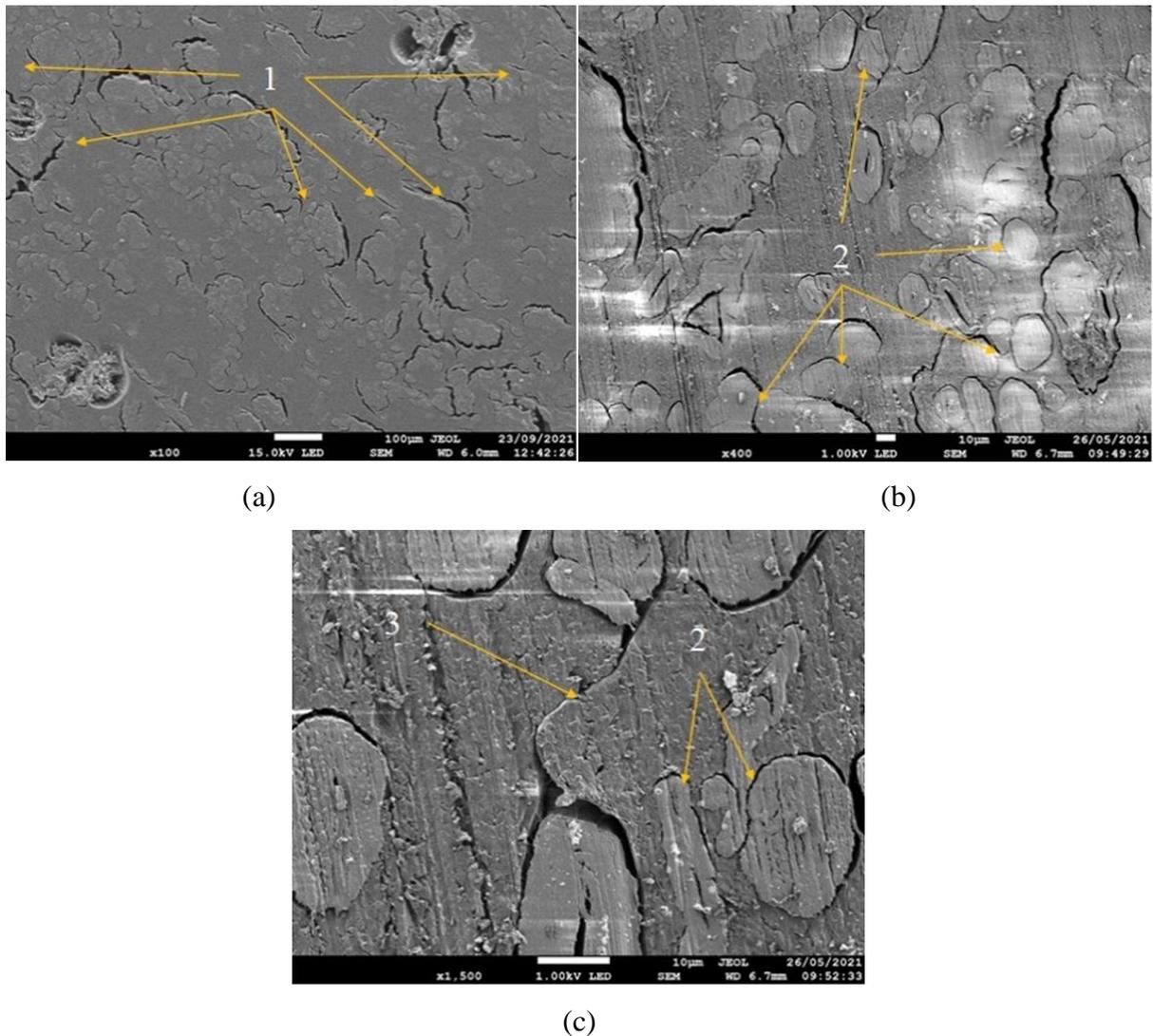


Figure 5.10: Mécanismes d'endommagements associés au premier niveau de chargement : (a) fissuration de la matrice, (b) fissuration au niveau des faisceaux de lin, (c) microfissures au niveau des faisceaux de lin et à l'interface fibre-matrice.

Pour conclure, les résultats des essais de traction montrent que le composite hybride $[L_2/V_2]_s$ est moins affecté par le vieillissement que l'hybride $[V_2/L_2]_s$. Ceci peut être expliqué par le gonflement hygroscopique qui reste plus important dans le $[L_2/V_2]_s$ qui pouvant parfois contribuer à l'amélioration de l'interface fibre de lin/ matrice, assurant ainsi un bon transfert de charge [269].

Ce résultat indique clairement que pour les mêmes constituants de base, la même fraction volumique de fibres et le même nombre de couches, la séquence d'empilement jouent un rôle clé dans le comportement mécanique des composites stratifiés hybrides.

Dans ce qui suit, en raison de ces propriétés mécaniques élevées, le composite hybride $[L_2/V_2]_s$ est choisi pour une analyse de son comportement cyclique en traction.

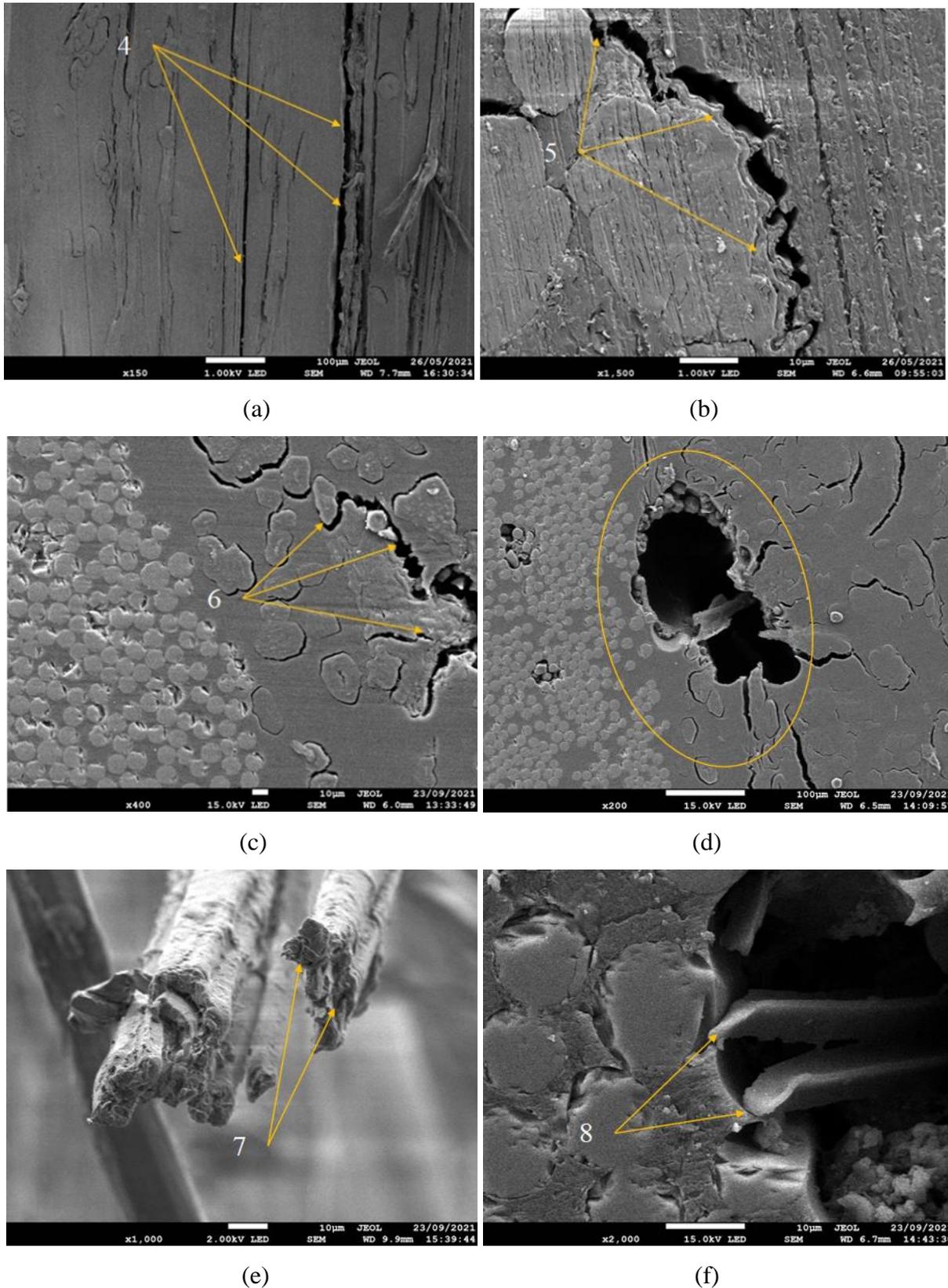


Figure 5.11 : Mécanismes d'endommagements associés au deuxième niveau de chargement: (a) délaminage, (b) décohésion de l'interface fibre-matrice, (c) détachement des fibres de lin élémentaires du faisceau, (d) arrachement de faisceaux de lin, (e) rupture d'une fibre unitaire, (f) rupture des fibres de verre.

5.4. Caractérisation en traction charge-décharge des matériaux composites

L'objectif de cette section est d'analyser l'effet du vieillissement à l'eau sur le comportement en charge-décharge des composites lin-époxyde, verre-époxyde et $[L_2/V_2]_s$. A cette fin, des cycles de traction ont été considérés pour couvrir suffisamment les différentes phases qui décrivent leur comportement mécanique. Les essais de chargement-déchargement ont été réalisés avec des niveaux de contrainte croissants. La figure 5.12 illustre les courbes de traction en charge-décharge des composites non vieillis et vieillis ($[L_4]_s$, $[L_2/V_2]_s$ et $[V_4]_s$) avec une superposition des essais de traction statique.

Les essais montrent qu'une courbe enveloppe cyclique est formée après les boucles de charge-décharge. L'écart entre les courbes enveloppes cycliques et statiques du stratifié lin-époxyde non vieillis est important. Il est caractérisé par une perte de linéarité de la courbe d'enveloppe cyclique plus apparente que celle de la courbe statique, en particulier à la fin de l'essai de traction, conduisant à une légère baisse (moins de 2%) de la résistance à la traction cyclique (figures 5.12.a).

La même remarque s'applique au stratifié $[L_2/V_2]_s$ non vieilli, avec une diminution plus significative (~12%) de la résistance à la traction en charge-décharge par rapport à la résistance à la traction monotone (figure 5.9.b). D'autre part, il apparaît également que les aires des boucles d'hystérésis sont proportionnelles à la charge imposée, en particulier pour le stratifié lin-époxyde qui présente des cycles d'hystérésis nettement larges (figure 5.12.a). Cependant, la courbe d'enveloppe cyclique et la courbe statique composite verre-époxyde sont parfaitement superposées, ce qui montre le caractère élastique de ce matériau (figure 5.12.c).

Les aires des boucles d'hystérésis sont aussi proportionnelles à la charge imposée pour les stratifiés $[L_4]_s$ et $[L_2/V_2]_s$, en particulier pour le composite $[L_4]_s$ qui présente des cycles d'hystérésis très larges (figure 5.12.a).

Ceci est probablement dû à l'accumulation des endommagements pendant les cycles de chargement-déchargement, en particulier pendant la phase post-élastique.

La forme apparente des boucles d'hystérésis est décrite par une phase initiale parabolique suivie d'une phase linéaire. Généralement, ces boucles apparaissent lorsque la fibre glisse par rapport à la matrice dans la région de décollement de l'interface [270–272]. Ce qui entraîne une augmentation de l'énergie dissipée. Les boucles d'hystérésis sont moins larges et complètement fermées pour les stratifiés $[L_2/V_2]_s$ et $[V_4]_s$ (figures 5.12.b et 5.12.c), indiquant qu'il y a moins de décollement interfacial et de glissement, avec moins d'énergie dissipée.

De plus, on observe une augmentation progressive de la déformation résiduelle à la fin de chaque phase de déchargement. Cette déformation plastique croît avec les cycles de chargement en engendrant une déformation supplémentaire supérieure à la déformation maximale obtenue en statiques. Cette déformation supplémentaire est généralement connue dans le domaine des alliages métalliques sous le nom de déformation "anélastique" ou "quasi-plastique-élastique" [273–275].

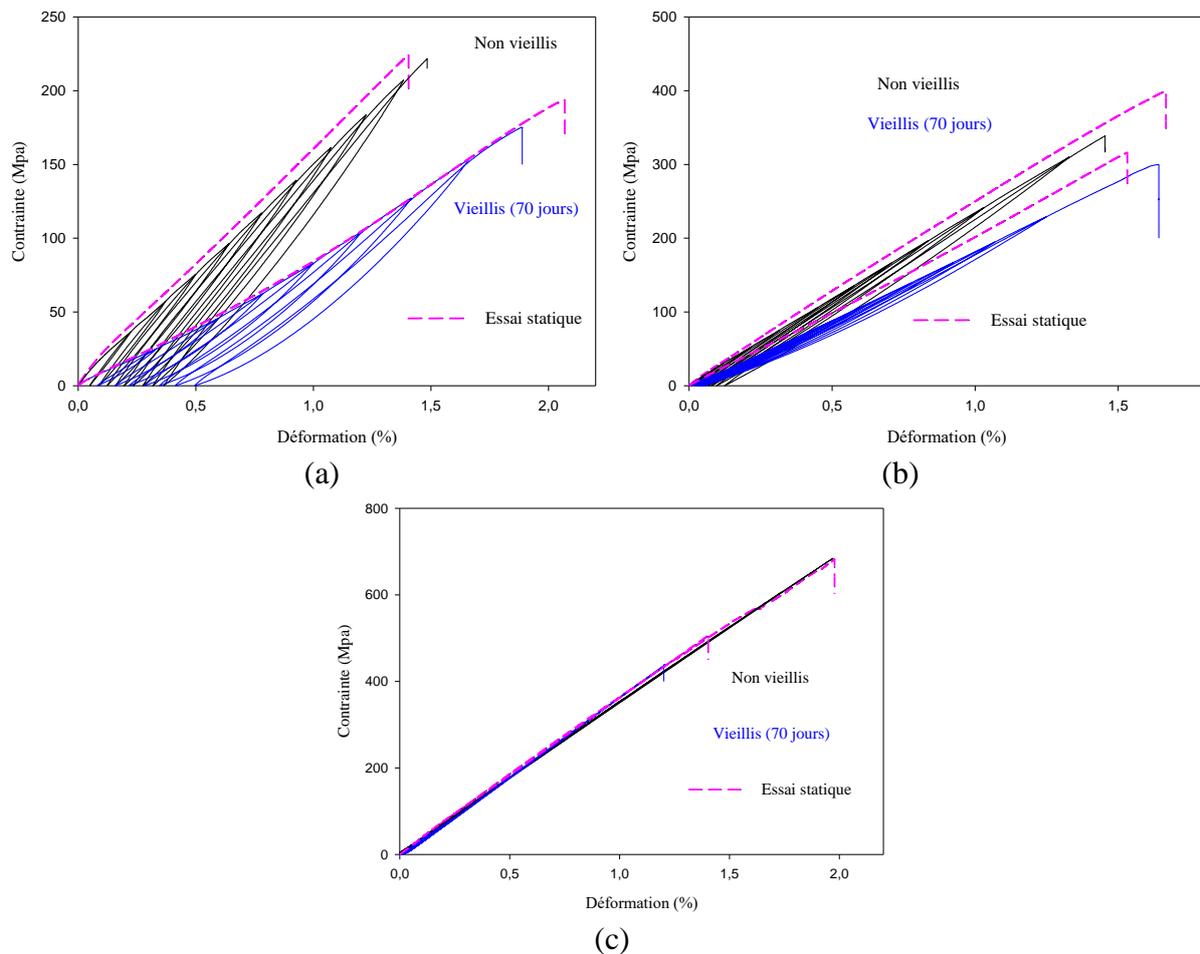


Figure 5.12: Courbes de traction en charge-décharge des échantillons non vieillis et vieillis à 70 jours : (a) [L4]_s, (b) [L2/V2]_s et (c) [V4]_s.

Dans le cas du composite verre-époxyde, la déformation plastique est proche de zéro durant les cycles charge-décharge, ce qui montre un comportement linéaire, de type fragile, jusqu'à la rupture. Par conséquent, on peut conclure que la contrainte de chargement-déchargement des composites renforcés de fibres de lin a induit non seulement un flux plastique, mais aussi une composante de déformation anélastique supplémentaire. Les déformations inélastiques (déformations plastiques et anélastiques) sont généralement dues à des endommagements tels la fissuration matricielle, le décollement de l'interface et/ou la plasticité de la matrice [276].

On peut constater sur la figure 5.12 que le vieillissement à l'eau affecte considérablement le comportement cyclique charge-décharge des trois composites. En effet, bien que l'écart entre la courbe de traction statique et la courbe en charge décharge des composites lin-époxyde et verre-époxyde ne soit pas très apparent, leurs résistances maximales à la traction en charge-décharge sont, respectivement, inférieures de 9% et 13%, respectivement, à celles obtenues lors des essais statiques (figure 5.12.a et 5.12.c). L'effet du vieillissement à l'eau sur le stratifié hybride $[L_2/V_2]_s$ est caractérisé par un écart accru entre les courbes enveloppes cycliques et statiques (figure 5.12.b). Ceci engendre un déplacement de la déformation maximale en charge-décharge vers une déformation plus élevée (un déplacement d'environ 7%), et conduit également à une légère diminution (environ 4%) de la résistance à la traction en charge décharge.

Ces résultats peuvent être attribués à l'effet des types de chargement en traction sur le mécanisme de déformation [273]. A cela s'ajoute l'effet de l'eau absorbée qui peut affaiblir l'interface entre les fibres et la matrice, en particulier pendant les cycles de chargement-déchargement, diminuant le transfert de charge par friction entre les fibres et la matrice et influençant la capacité de charge-décharge des composites stratifiés étudiés. En outre, il a été constaté qu'après 70 jours de vieillissement, la déformation plastique obtenue à partir d'essais de charge-décharge tend vers des valeurs plus élevées par rapport aux matériaux non vieillis, notamment pour le stratifié lin-époxyde. Cette tendance peut être principalement justifiée par la plastification des constituants du composite (matrice et fibres) causée par l'infiltration de molécules d'eau en leur sein rendant alors le matériau plus ductile [68,114,126].

Pour une analyse plus approfondie du comportement cyclique des trois stratifiés considérés, les courbes contrainte-déformation en charge-décharge ont été étudiées en suivant l'évolution de la perte de rigidité pendant les cycles de traction. La perte de rigidité est une information vitale pour mesurer les endommagements et indiquer l'aptitude des matériaux à supporter une charge [197]. La figure 5.13 montre l'évolution de la perte de rigidité d'éprouvettes composites non vieilles et vieilles à 70 jours. L'axe des abscisses représente le pourcentage du niveau de contrainte obtenu dans chaque cycle avant le début de la phase de déchargement. Il est intéressant de noter que le niveau de contrainte est défini par rapport à la contrainte maximale des essais de charge-décharge. En outre, les valeurs associées à la perte de rigidité ont été normalisées par rapport à celles obtenues lors d'essais de traction monotone. La figure 5.13.a montre que la diminution de la rigidité du composite lin-époxyde non vieilli augmente progressivement avec l'augmentation de la contrainte, avant de se stabiliser autour de 8% pour des niveaux de contrainte supérieurs à 40%. Cette perte de rigidité reflète l'accumulation des

endommagements internes qui dépendent des forces thermodynamiques associées. Globalement, la perte en rigidité des composites peut être liée à l'apparition de plusieurs mécanismes d'endommagement pendant les essais de charge-décharge, tels que la fissuration de la matrice, le décollement interfacial fibre-matrice et la rupture des fibres [68]. En outre, l'augmentation des endommagements dans les premiers cycles est probablement associée au comportement viscoélastique des composites à fibres de lin [195]. En effet, en raison de la différence de viscosité entre la fibre de lin et la matrice époxyde, la contrainte et la déformation dans les fibres de lin et la matrice époxyde sont partiellement découplées, ce qui induit une accumulation de contraintes de cisaillement dans les régions où se produit le décollement de l'interface, entraînant davantage de fissuration [195].

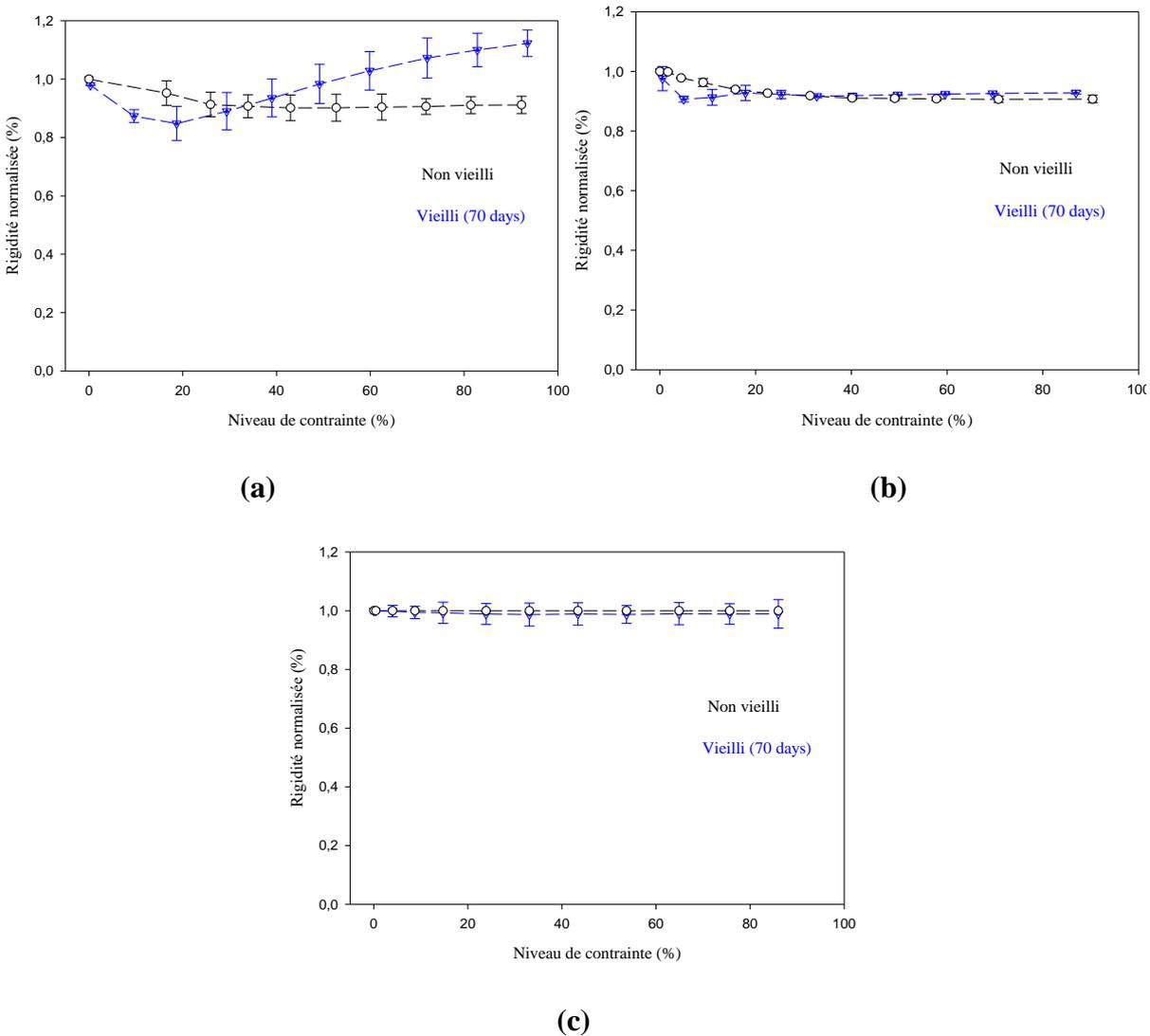


Figure 5.6: Évolution de la perte de rigidité en fonction du niveau de contrainte des échantillons non vieillis et vieillis 70 jours : (a) [L4]s, (b) [L2/V2]s et (c) [V4]s.

Pour le composite $[L_2/V_2]_s$, une diminution rapide de la rigidité d'environ 10% par rapport à sa rigidité initiale a été observée jusqu'à un niveau de contrainte appliquée d'environ 60% (figure 5.13.b). Par la suite, cette rigidité demeure globalement constante jusqu'à la rupture finale du composite. La diminution plus prononcée de la rigidité du stratifié $[L_2/V_2]_s$ par rapport à celle du composite lin-époxyde peut s'expliquer par sa fraction volumique, plus importante (environ 3 % de plus que celle du $[L_4]_s$). Cette différence importante peut engendrer plus d'endommagements, de type décollement interfacial fibre-matrice, détachement et rupture de fibres. À cela s'ajoute la probabilité d'un délaminage plus important entre les couches de verre et de lin. En effet, le délaminage est connu comme l'un des mécanismes d'endommagement potentiels induisant une diminution de la rigidité [276]. Contrairement aux deux composites $[L_4]_s$ et $[L_2/V_2]_s$, le composite stratifié $[V_4]_s$ n'a montré pratiquement aucune perte de rigidité avec un comportement linéaire jusqu'à la rupture (figure 5.13.c).

S'agissant des composites vieillis, une perte de rigidité très rapide est observée pour des niveaux de charge inférieurs à 20 %, allant de 16% à 10 % pour les stratifiés $[L_4]_s$ et $[L_2/V_2]_s$, respectivement (Figures 5.13.a et 5.13.b). Le composite verre-époxyde a montré une sensibilité moindre aux molécules d'eau avec une réduction de la rigidité stabilisée de l'ordre de 2% de sa rigidité initiale (figure 5.13.c). La dégradation rapide de la rigidité enregistrée pendant les premiers cycles de chargement/déchargement des matériaux composites vieillis (70 jours d'immersion dans l'eau) peut être expliquée par l'absorption d'eau et la présence de molécules d'eau à différentes échelles, en particulier pour les composites contenant des fibres de lin [68,114,257]. Néanmoins, alors que la rigidité restant assez stable dans le $[V_4]_s$, celle des stratifiés $[L_4]_s$ et $[L_2/V_2]_s$ se rétablit et dépasse même, cas de la séquence d'empilement $[L_4]_s$, la rigidité initiale au voisinage de la rupture (jusqu'à 12%) (figure 5.13.a). Ce phénomène de rigidification n'a été observé que dans les composites à fibres de lin vieillis. Cette rigidification est plus accentuée dans le composite lin non-hybride. Pour cette raison, l'augmentation de la rigidité peut être attribuée à la réorientation considérable irréversible des microfibrilles de cellulose en glissant les unes sur les autres au sein de la matrice lignine-hémicellulose [197]. Le rétablissement de la rigidité peut également s'expliquer par l'extension en forme de ressort spiralé des microfibrilles de cellulose et la cristallisation de la cellulose amorphe induite par la contrainte de cisaillement [48,197].

5.4.1. Analyse des signaux d'émission acoustique sur des essais charge-décharge

Afin d'étudier les mécanismes d'endommagement des composites lin-époxyde, verre-époxyde et hybride $[L_2/V_2]_s$, l'émission acoustique a été utilisée pour la détection en temps réel des mécanismes d'endommagements pendant les essais de traction en charge-décharge.

Les figures 5.14 et 5.15 illustrent la chronologie de l'apparition des évènements acoustiques pendant les essais cycliques de charge-décharge sur les composites non vieillis et vieillis.

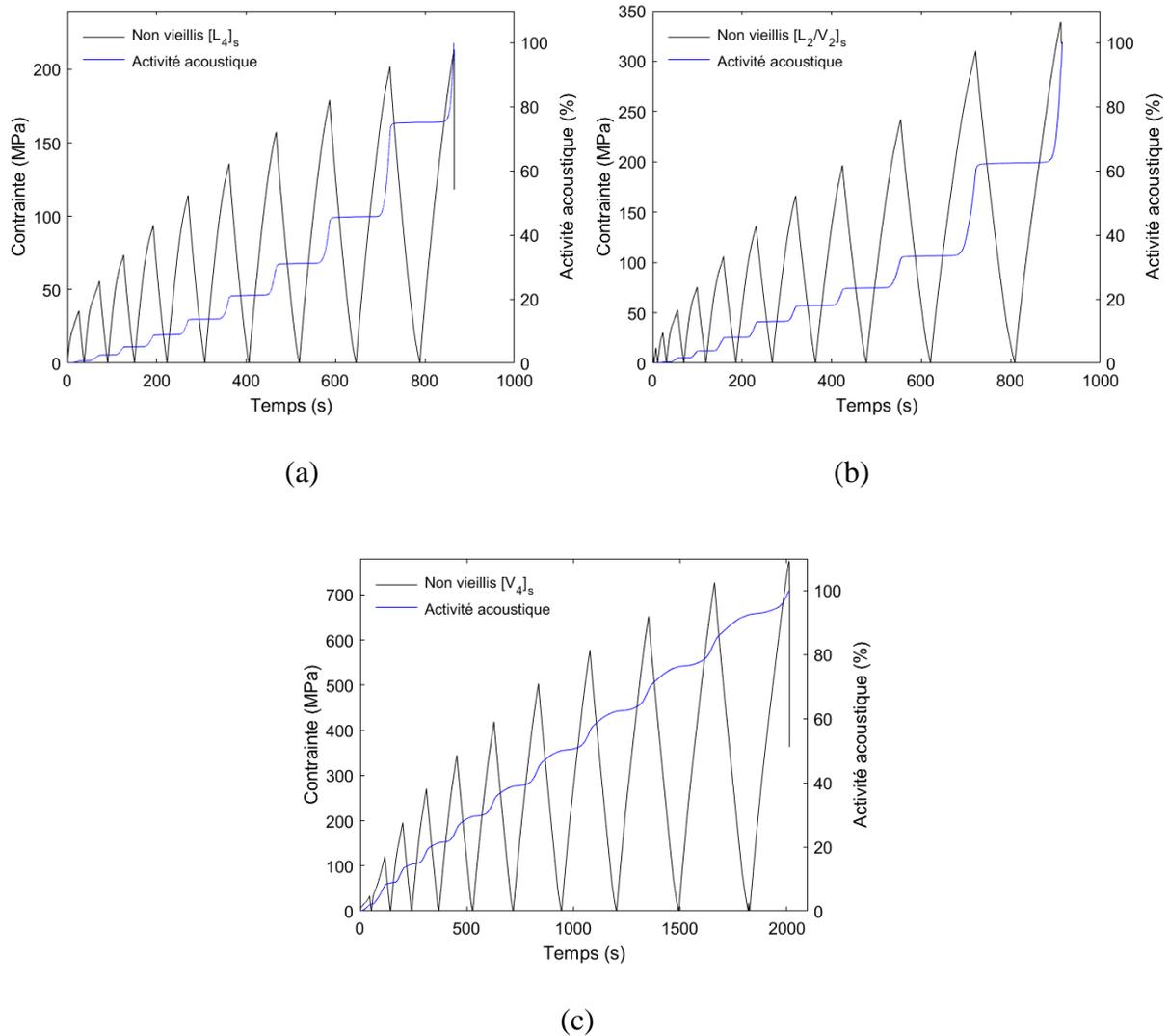


Figure 5.14: Chronologie de l'apparition des évènements acoustiques pendant les essais de traction charge-décharge des échantillons non vieillis: (a) $[L_4]_s$, (b) $[L_2/V_2]_s$ et (c) $[V_4]_s$.

D'après la figure 5.14, l'activité acoustique des stratifiés $[L_4]_s$ et $[L_2/V_2]_s$ apparait initialement à la fin de la phase élastique et augmente continuellement durant le processus de chargement des échantillons non vieillis, jusqu'à la rupture finale. Nous constatons aussi que l'activité acoustique enregistrée durant les deux derniers cycles représentent 45% à 55% de l'activité

globale des stratifiés $[L_4]_s$ et $[L_2/V_2]_s$, montrant une accélération significative des endommagements, avec la rupture des stratifiés en ligne de mire. Pour le composite verre-époxyde non vieilli (figures 5.14.c), l'activité acoustique apparaît dès le début de l'essai et continue à progresser jusqu'à la rupture, sans présenter de plateau d'équilibre. Cela illustre une présence d'activité même en phase de déchargement.

Une évolution similaire a été observée dans le cas des composites vieillis, mais avec une variation dans la contribution des activités acoustiques par cycle de charge-décharge. Par exemple, les deux derniers cycles des stratifiés vieillis $[L_4]_s$ et $[L_2/V_2]_s$ représentent 55% à 70% de l'activité acoustique globale, montrant une hausse de 10% à 15% par rapport aux stratifiés non vieillis.

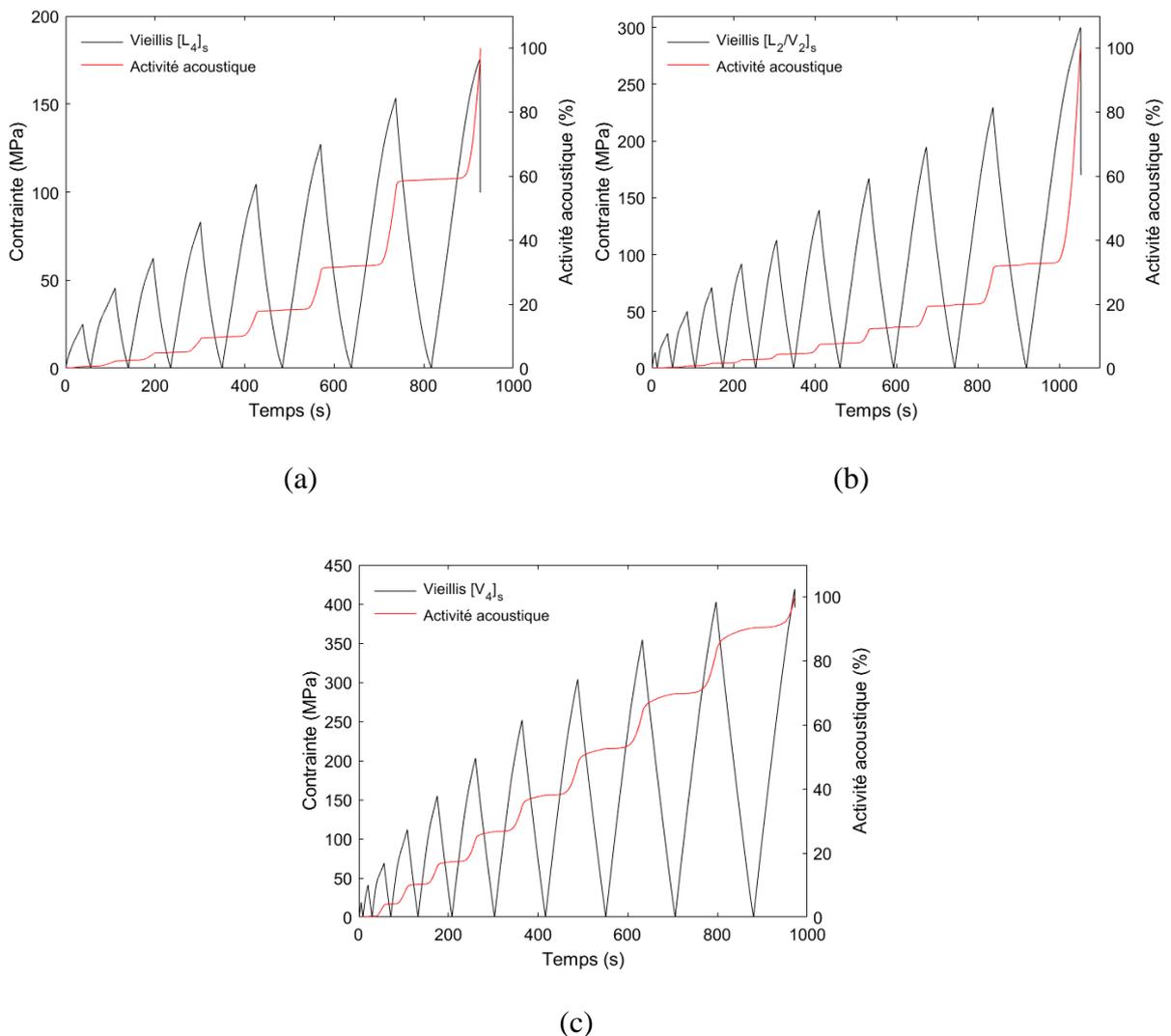


Figure 5.15 : Chronologie de l'apparition des événements acoustiques pendant les essais de traction charge-décharge des échantillons vieillis (70 jours) : (a) $[L_4]_s$, (b) $[L_2/V_2]_s$ et (c) $[V_4]_s$.

Pour une description plus approfondie de l'endommagement en charge décharge des composites non vieillis et vieillis, l'évolution de leur activité acoustique a été caractérisée par le rapport de Felicity, comme le montre la figure 5.16. Ce rapport traduit la détection de l'activité acoustique entre deux niveaux de chargement successifs P_1 et P_2 lors des cycles de charge-décharge [253,256,277]. Il peut être quantifié de rapport entre la contrainte actuelle, lorsque les événements AE commencent à augmenter de manière significative, et le niveau de contrainte maximum précédent. Une valeur du rapport de Felicity inférieure à 1 indiquerait une accumulation significative des endommagements dans le composite. En revanche, l'effet Kaiser apparaît lorsque le niveau de contrainte appliquée précédemment ne produit pas d'activité acoustique. Il est souvent associé à des matériaux présentant des dommages insignifiants [68,253,256].

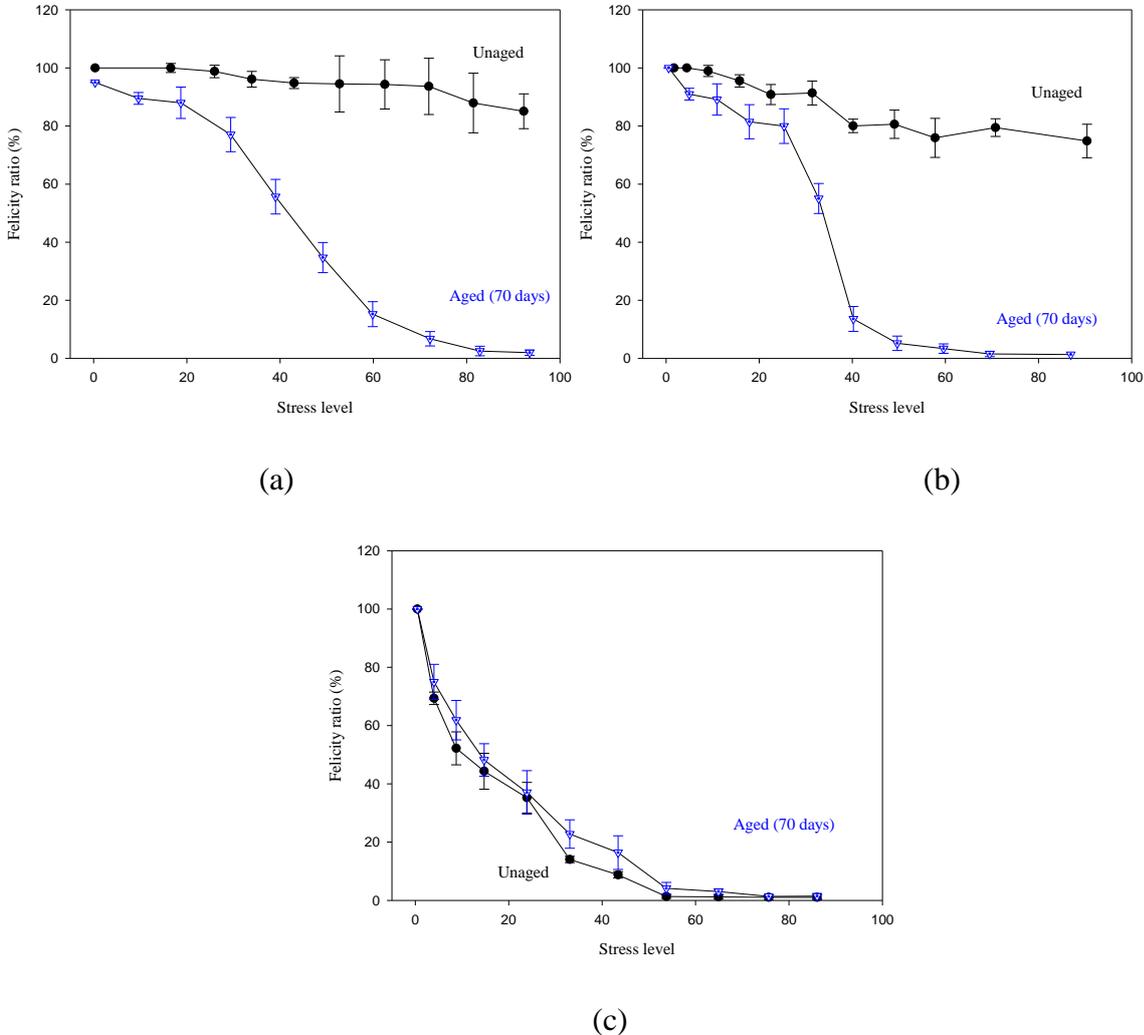


Figure 5.16: Evolution du rapport de Felicity des composites non vieillis et vieillis en fonction du niveau de contrainte : (a) [L4]s, (b) [L2/V2]s et (c) [V4]s.

Avec un rapport de Félicity proche de 1, l'activité acoustique des composites $[L_4]_s$ et $[L_2/V_2]_s$ non vieillis présente un effet Kaiser jusqu'à des niveaux de contrainte d'environ 60% et 30%. Au-delà de ces niveaux de contrainte, leurs rapports de Felicity ont légèrement diminué pour atteindre des valeurs de l'ordre de 0,85 et 0,75, respectivement, indiquant de surcroît une plus grande accumulation d'endommagements au voisinage de leur rupture finale. Pour le composite $[V_4]_s$ non vieilli, le rapport de Félicity est sensiblement inférieur à 1 dès les premiers cycles de chargement. Il a diminué progressivement lorsque les cycles et les charges ont augmenté, convergeant continuellement vers une valeur très faible. En outre, la forte croissance des événements AE apparaissant au début de chaque phase de rechargement est pratiquement liée à l'endommagement des microfissures. La littérature indique que plus le rapport de Felicity est petit, plus les dommages structurels des matériaux composites sont sévères [68,256,277,278]. Cependant, le composite $[V_4]_s$ présente un comportement linéaire élastique avec des cycles superposés et des boucles fermées, engendrant un endommagement mécanique négligeable (pas de perte de rigidité). Ce phénomène peut être expliqué par le fait que pendant les cycles de charge-décharge, les microfissures engendrées ont tendance à se refermer après chaque phase de déchargement, ce qui limite leur propagation dans les composites. La réduction d'endommagements mécaniques peut être également due au faible nombre de cycles de chargement-déchargement appliqués [256].

Pour ce qui est des composites vieillis, l'évolution du rapport de Felicity a montré une baisse rapide avec des valeurs inférieures à 1 dès le début des essais de charge-décharge, en particulier pour les composites $[L_4]_s$ et $[L_2/V_2]_s$. Cela indique un état d'endommagement important et des défaillances structurelles dans ces composites. Ces dégradations sont principalement associées à la diffusion de l'eau dans les fibres de lin et les interfaces fibre-matrice, générant des contraintes internes et favorisant ainsi les endommagements microstructuraux tels que la fissuration de la matrice, l'arrachement des fibres et le délaminage. Dans les composites à fibres de verre, la dégradation apparaît principalement dans la matrice époxyde et l'interface fibre-matrice, car les fibres de verre sont hydrophobes aux molécules d'eau.

5.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié l'effet du vieillissement hydrique sur le comportement mécanique endommageable des composites non hybrides et hybrides lin-verre. L'étude a été conduite au travers d'essais de traction monotone et cycliques en charge-décharge. Comme prévu, le vieillissement induit une diminution des modules élastiques et de la contrainte maximale et une augmentation de la déformation à la rupture du composite lin-époxyde. Cette

variation est principalement due aux endommagements induits par la dégradation des fibres de lin et à la décohésion de l'interface fibre-matrice. Comparés au composite lin-époxyde, les stratifiés hybrides sont peu impactés par le vieillissement. En effet, une hybridation lin-verre-époxyde réduit sensiblement l'effet de vieillissement sur la variation des propriétés mécaniques des matériaux après immersion.

Pour le composite lin-époxyde et le stratifié hybride, les essais de charge-décharge ont mis en évidence une apparition progressive de la déformation plastique ou anélastique à la fin de chaque phase de déchargement. Ces essais ont également révélé une perte de rigidité plus accentuée avec le vieillissement au début de chargement suivant d'une zone de rigidification. Les résultats obtenus ont montré que les composites lin-époxyde et hybrides non vieillis présentent un comportement mécanique proche de l'effet Kaiser, notamment pour les premiers cycles de chargement. Cependant, les composites vieillis présentent clairement un effet Felicity, ce qui indique la présence significative d'endommagements induits par l'absorption d'eau.

Conclusion générale

Conclusion générale

Cette étude doctorale constitue une contribution à l'analyse expérimentale et numérique du comportement hygroscopique de composites non hybrides et hybrides, à matrice époxyde renforcée par des fibres de lin et de verre UD, soumis à un vieillissement hydrique par immersion totale dans l'eau du robinet à température ambiante jusqu'à saturation. Dans un premier temps, une caractérisation mécanique a été menée sur différents stratifiés non-hybrides hybrides lin-verre. L'objectif est d'en sélectionner les plus performants en termes de propriétés mécaniques. Les composites ainsi choisis ont fait par la suite l'objet d'une étude approfondie de la cinétique de diffusion d'eau au sein de leur structure et de l'impact de plusieurs paramètres géométriques sur leur comportement diffusif. La cinétique de diffusion de l'eau a été ensuite modélisée par éléments finis à travers le développement et l'implémentation dans ABAQUS de deux éléments finis hygroscopiques de membrane basés sur les modèles de Fick et de Langmuir. Une deuxième analyse par éléments finis a été menée dans l'objectif de modéliser le comportement hygro-élastique des composites de l'étude à travers l'extension des formulations des deux éléments finis hygroscopiques. Enfin, l'évolution de leurs propriétés mécaniques avec le vieillissement hygroscopique a été évaluée en effectuant des essais de traction monotone et de charge-décharge, suivis par la technique d'émission acoustique combinée à des observations microscopiques.

La synthèse bibliographique réalisée au chapitre 1 a montré que la nature hydrophile des fibres de lin peut induire des variations importantes des propriétés mécaniques de leurs composites en raison essentiellement de la dégradation de l'interface fibre-matrice. Cette étude a montré aussi que l'hybridation « fibres de lin-fibres synthétiques » telles que le verre, peut améliorer les propriétés mécaniques et la résistance à l'absorption d'eau des composites à fibres de lin. La mise en œuvre et la caractérisation mécanique des différents composites non-hybrides et hybrides lin-verre présentés au chapitre 2 a montré que l'ajout des couches de verre aux plis de lin entraîne une augmentation des propriétés mécaniques des matériaux composites hybrides, du fait que les fibres de verre sont plus rigides que les fibres de lin. Ces résultats ont également montré que les stratifiés hybrides $[L_2/V_2]_s$ et $[V_2/L_2]_s$ présentent des propriétés mécaniques spécifiques intéressantes, comparé au composite verre-époxyde mais avec seulement 18% en fraction volumique des fibres de verre. Par conséquent, nous avons choisi d'étudier la durabilité

de deux composites hybrides $[L_2/V_2]_s$ et $[V_2/L_2]_s$, en plus des stratifiés lin-époxyde et verre-époxyde, après une immersion totale dans l'eau du robinet.

L'étude expérimentale de la cinétique d'absorption d'eau des composites non hybrides et hybrides de l'étude, présentés dans le chapitre 3, ont montré que la diffusion d'eau au sein de ces deux matériaux est fortement influencée par la nature des fibres. Nous avons également vérifié que l'hybridation avec des fibres de verre a pour effet de baisser la sensibilité à l'humidité des composites lin-époxyde. Cette baisse est essentiellement liée à la nature hydrophobe des fibres de verre induisant un effet barrière. Le développement des deux éléments finis hygroscopiques de membrane dans la deuxième partie du chapitre 3, a permis de d'obtenir une estimation des paramètres de diffusion de la fibre de lin selon les modèles de Fick et de Langmuir, difficiles à prédire expérimentalement. Cette analyse par éléments finis a permis également de mieux visualiser l'effet hydrophile des fibres de lin et l'effet barrière des fibres de verre.

L'analyse par éléments finis du comportement hygroélastique des composites de l'étude a fait l'objet du chapitre 4. Nous avons présenté les formulations de deux éléments finis hygro-élastiques, de membrane triangulaire à trois nœuds, basés sur les modèles de Fick et de Langmuir. Le but était d'estimer les contraintes mécaniques internes liées au vieillissement hydrique, en particulier dans les échantillons composites lin-époxyde et hybrides lin-verre-époxyde. Nous avons remarqué que le modèle de Langmuir permet d'obtenir une estimation des contraintes mécaniques beaucoup plus « raisonnable » que le modèle de Fick. Bien que le modèle de Langmuir améliore notablement la description du comportement hygro-élastique des composites de l'étude, quelques pistes d'amélioration de cette modélisation sont à considérer dans les travaux futurs.

Dans le cinquième chapitre, nous avons étudié l'effet du vieillissement hydrique sur le comportement mécanique endommageable des composites non hybrides et hybrides lin-verre. Les résultats ont montré que le vieillissement induit une diminution des modules élastiques et de la contrainte maximale et une augmentation de la déformation à la rupture du composite lin-époxyde. Cette variation est principalement due aux endommagements induits par la dégradation des fibres de lin et à la décohésion de l'interface fibre-matrice. Comparé au composite lin-époxyde, les stratifiés hybrides sont peu impactés par le vieillissement. Les essais de charge-décharge effectués sur les composite lin-époxyde et le stratifié hybride ont mis en évidence une apparition progressive de la déformation plastique et anélastique à la fin de chaque

phase de déchargement. Ces essais ont également révélé une perte de rigidité plus accentuée avec le vieillissement au début de chargement suivant d'une zone de rigidification.

Les résultats obtenus ont montré que l'activité acoustique des composites lin-époxyde et hybride $[L_2/V_2]_s$ non vieillis met en évidence l'effet dit de « Kaiser » jusqu'à des niveaux de contrainte d'environ 30 %. Cet effet est souvent attribué au processus d'endommagement du matériau qui présente des défauts mineurs ou insignifiants. Cependant, les composites vieillis présentent clairement un effet « Felicity » dès les premiers cycles de charge-décharge, ce qui montre un état de santé indésirable de point de vue mécanique et indique la présence d'endommagements précoces au sein des composites vieillis.

Ce travail de thèse ouvre plusieurs perspectives, dont certaines pourraient faire l'objet de développement à court et moyen termes. Nous en citons quelques-unes :

- Une classification et identification des mécanismes d'endommagements à l'aide de méthode de classification pour les séparer finement, notamment ceux dus au vieillissement.
- Une caractérisation expérimentale approfondie du phénomène de gonflement différentiel, via des techniques d'imageries comme la nano tomographie
- Une caractérisation en fatigue des composites hybrides en vue d'estimer leur durée de vie et son évolution avec le vieillissement.
- Une modélisation 3D du phénomène de diffusion en considérant l'aspect hétérogène des composites hybrides

Bibliographie

- [1] Baley C. Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites 2020:37.
- [2] Faik A, Guillot S, Lambert J, Véron E, Ory S, Bessada C, et al. Thermal storage material from inertized wastes: Evolution of structural and radiative properties with temperature. *Solar Energy* 2012;86:139–46. <https://doi.org/10.1016/j.solener.2011.09.014>.
- [3] Petriglieri JR, Laporte-Magoni C, Salvioli-Mariani E, Tomatis M, Gazzano E, Turci F, et al. Identification and Preliminary Toxicological Assessment of a Non-Regulated Mineral Fiber: Fibrous Antigorite from New Caledonia. *Environmental and Engineering Geoscience* 2020;26:89–97. <https://doi.org/10.2113/EEG-2274>.
- [4] Cunniff PM, Fossey SA, Auerbach MA, Song JW, Kaplan DL, Adams WW, et al. Mechanical and thermal properties of dragline silk from the spider *Nephila clavipes*. *Polym Adv Technol* 1994;5:401–10. <https://doi.org/10.1002/pat.1994.220050801>.
- [5] Shao Z, Vollrath F. Surprising strength of silkworm silk. *Nature* 2002;418:741–741. <https://doi.org/10.1038/418741a>.
- [6] Kubik S. High-Performance Fibers from Spider Silk. *Angewandte Chemie International Edition* 2002;41:2721–3. [https://doi.org/10.1002/1521-3773\(20020802\)41:15<2721::AID-ANIE2721>3.0.CO;2-3](https://doi.org/10.1002/1521-3773(20020802)41:15<2721::AID-ANIE2721>3.0.CO;2-3).
- [7] Antony R. Eco friendly Textiles 2018;5:67–73.
- [8] Ahmad MAA, Majid MSA, Ridzuan MJM, Firdaus AZA, Amin NAM. Tensile properties of interwoven hemp/PET (Polyethylene Terephthalate) epoxy hybrid composites. *J Phys: Conf Ser* 2017;908:012011. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/908/1/012011>.
- [9] Alves C, Ferrão PMC, Silva AJ, Reis LG, Freitas M, Rodrigues LB, et al. Ecodesign of automotive components making use of natural jute fiber composites. *Journal of Cleaner Production* 2010;18:313–27. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2009.10.022>.
- [10] Monti A, El Mahi A, Jendli Z, Guillaumat L. Mechanical behaviour and damage mechanisms analysis of a flax-fibre reinforced composite by acoustic emission. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2016;90:100–10. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2016.07.002>.
- [11] Albouy W, Vieille B, Taleb L. Experimental and numerical investigations on the time-dependent behavior of woven-ply PPS thermoplastic laminates at temperatures higher than glass transition temperature. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2013;49:165–78. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2013.02.016>.
- [12] Chilali A. Étude expérimentale et modélisation de la durabilité des biocomposites à fibres de lin. thesis. Reims, 2017.
- [13] Bambach MR. Durability of natural fibre epoxy composite structural columns: High cycle compression fatigue and moisture ingress. *Composites Part C: Open Access* 2020;2:100013. <https://doi.org/10.1016/j.jcomc.2020.100013>.
- [14] Radkar SS, Amiri A, Ulven CA. Tensile Behavior and Diffusion of Moisture through Flax Fibers by Desorption Method. *Sustainability* 2019;11:3558. <https://doi.org/10.3390/su11133558>.
- [15] Baley C. Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites 2005:18.
- [16] Ashby MF. The CES EduPack Database of Natural and Man-Made Materials n.d.:26.
- [17] Gourier C. Contribution à l'étude de matériaux biocomposites à matrice thermoplastique polyamide-11 et renforcés par des fibres de lin 2016:323.
- [18] Yan L, Chouw N, Jayaraman K. Flax fibre and its composites – A review. *Composites Part B: Engineering* 2014;56:296–317. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2013.08.014>.

- [19] Dittenber DB, GangaRao HVS. Critical review of recent publications on use of natural composites in infrastructure. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2012;43:1419–29. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2011.11.019>.
- [20] Fehri M. Comportements mécanique et hydrique des composites renforcés par des fibres naturelles et/ou conventionnelles n.d.:159.
- [21] Regazzi A. Contribution à l'étude du vieillissement couplé thermo-hydro-mécanique de biocomposite PLA/lin n.d.:191.
- [22] Lefeuvre A, Bourmaud A, Morvan C, Baley C. Elementary flax fibre tensile properties: Correlation between stress–strain behaviour and fibre composition. *Industrial Crops and Products* 2014;52:762–9. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2013.11.043>.
- [23] Melelli A, Jamme F, Legland D, Beaugrand J, Bourmaud A. Microfibril angle of elementary flax fibres investigated with polarised second harmonic generation microscopy. *Industrial Crops and Products* 2020;156:112847. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2020.112847>.
- [24] Bourmaud A, Morvan C, Bouali A, Placet V, Perré P, Baley C. Relationships between micro-fibrillar angle, mechanical properties and biochemical composition of flax fibers. *Industrial Crops and Products* 2013;44:343–51. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2012.11.031>.
- [25] 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. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2007;38:1912–21. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2007.03.006>.
- [26] Kromer K-H. Physical properties of flax fibre for non-textile-use. *Res Agr Eng* 2009;55:52–61. <https://doi.org/10.17221/6/2008-RAE>.
- [27] John MJ, Thomas S. Biofibres and biocomposites. *Carbohydrate Polymers* 2008;71:343–64. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2007.05.040>.
- [28] Gourier C, Le Duigou A, Bourmaud A, Baley C. Mechanical analysis of elementary flax fibre tensile properties after different thermal cycles. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2014;64:159–66. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2014.05.006>.
- [29] Baley C, Bourmaud A. Average tensile properties of French elementary flax fibers. *Materials Letters* 2014;122:159–61. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2014.02.030>.
- [30] 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. Theses. Université de Caen / Basse-Normandie, 2008.
- [31] Bismarck A, Aranberri-Askargorta I, Springer J, Lampke T, Wielage B, Stamboulis A, et al. Surface characterization of flax, hemp and cellulose fibers; Surface properties and the water uptake behavior. *Polymer Composites* 2002;23:872–94. <https://doi.org/10.1002/pc.10485>.
- [32] Batra S. Other Long Vegetable Fibers: Abaca, Banana, Sisal, Henequen, Flax, Ramie, Hemp, Sunn, and Coir. In: Lewin M, editor. *Handbook of Fiber Chemistry*, Third Edition, vol. 20061511, CRC Press; 2006. <https://doi.org/10.1201/9781420015270.ch8>.
- [33] Mohanty AK, Misra M, Hinrichsen G. Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites: An overview. *Macromolecular Materials and Engineering* 2000;276–277:1–24. [https://doi.org/10.1002/\(SICI\)1439-2054\(20000301\)276:1<1::AID-MAME1>3.0.CO;2-W](https://doi.org/10.1002/(SICI)1439-2054(20000301)276:1<1::AID-MAME1>3.0.CO;2-W).
- [34] Bos HL, Donald AM. In situ ESEM study of the deformation of elementary flax fibres. *Journal of Materials Science* 1999;34:3029–34. <https://doi.org/10.1023/A:1004650126890>.
- [35] Baley C. Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites 2013:25.

- [36] Mukherjee PS, Satyanarayana KG. An empirical evaluation of structure-property relationships in natural fibres and their fracture behaviour. *J Mater Sci* 1986;21:4162–8. <https://doi.org/10.1007/BF01106524>.
- [37] Pillin I, Kervoelen A, Bourmaud A, Goimard J, Montrelay N, Baley C. Could oleaginous flax fibers be used as reinforcement for polymers? *Industrial Crops and Products* 2011;34:1556–63. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2011.05.016>.
- [38] Baley C. Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2002;33:939–48. [https://doi.org/10.1016/S1359-835X\(02\)00040-4](https://doi.org/10.1016/S1359-835X(02)00040-4).
- [39] Page DH, El-Hosseiny F, Winkler K. Behaviour of Single Wood Fibres under Axial Tensile Strain. *Nature* 1971;229:252–3. <https://doi.org/10.1038/229252a0>.
- [40] Nilsson T, Gustafsson PJ. Influence of dislocations and plasticity on the tensile behaviour of flax and hemp fibres. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2007;38:1722–8. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2007.01.018>.
- [41] Hearle JWS. The fine structure of fibers and crystalline polymers. III. Interpretation of the mechanical properties of fibers. *Journal of Applied Polymer Science* 1963;7:1207–23. <https://doi.org/10.1002/app.1963.070070403>.
- [42] Gassan J, Chate A, Bledzki AK. Calculation of elastic properties of natural fibers. *Journal of Materials Science* 2001;36:3715–20. <https://doi.org/10.1023/A:1017969615925>.
- [43] McLaughlin EC, Tait RA. Fracture mechanism of plant fibres. *J Mater Sci* 1980;15:89–95. <https://doi.org/10.1007/BF00552431>.
- [44] Thygesen LG, Bilde-Sørensen JB, Hoffmeyer P. Visualisation of dislocations in hemp fibres: A comparison between scanning electron microscopy (SEM) and polarized light microscopy (PLM). *Industrial Crops and Products* 2006;24:181–5. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2006.03.009>.
- [45] Bos HL, Van Den Oever MJA, Peters OCJJ. Tensile and compressive properties of flax fibres for natural fibre reinforced composites. *Journal of Materials Science* 2002;37:1683–92. <https://doi.org/10.1023/A:1014925621252>.
- [46] Placet V, Bouali A, Garcin C, Cote J, Perre P. Suivi par DRX des réarrangements microstructuraux induits par sollicitations mécaniques dans les fibres végétales tirées du chanvre 2011:6.
- [47] Testoni GA. In situ long-term durability analysis of biocomposites in the marine environment n.d.:235.
- [48] Placet V, Cissé O, Lamine Boubakar M. Nonlinear tensile behaviour of elementary hemp fibres. Part I: Investigation of the possible origins using repeated progressive loading with in situ microscopic observations. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2014;56:319–27. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2012.11.019>.
- [49] Durier A-L. Contribution à l'étude de l'interaction contraintes-diffusion dans les polymères n.d.:149.
- [50] Aucher J. Etude comparative du comportement composites à matrice thermoplastique ou thermodurcissable n.d.:220.
- [51] Peng X, Fan M, Hartley J, Al-Zubaidy M. Properties of natural fiber composites made by pultrusion process. *Journal of Composite Materials* 2012;46:237–46. <https://doi.org/10.1177/0021998311410474>.
- [52] Merotte J, Le Duigou A, Bourmaud A, Behlouli K, Baley C. Mechanical and acoustic behaviour of porosity controlled randomly dispersed flax/PP biocomposite. *Polymer Testing* 2016;51:174–80. <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2016.03.002>.
- [53] Stewart R. Pultrusion industry grows steadily in US. *Reinforced Plastics* 2002;46:36–9. [https://doi.org/10.1016/S0034-3617\(02\)80199-0](https://doi.org/10.1016/S0034-3617(02)80199-0).

- [54] Bouzouita S. Optimisation des interfaces fibre-matrice de composites à renfort naturel n.d.:193.
- [55] Gornet L. Généralités sur les matériaux composites n.d.:48.
- [56] Monti A. Élaboration et caractérisation mécanique d'une structure composite sandwich à base de constituants naturels. thesis. Le Mans, 2016.
- [57] Poilâne C, Cherif ZE, Richard F, Vivet A, Ben Doudou B, Chen J. Polymer reinforced by flax fibres as a viscoelastoplastic material. *Composite Structures* 2014;112:100–12. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2014.01.043>.
- [58] Assarar M, Zouari W, Sabhi H, Ayad R, Berthelot J-M. Evaluation of the damping of hybrid carbon–flax reinforced composites. *Composite Structures* 2015;132:148–54. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2015.05.016>.
- [59] Assarar M, Scida D, El Mahi A, Poilâne C, Ayad R. Influence of water ageing on mechanical properties and damage events of two reinforced composite materials: Flax–fibres and glass–fibres. *Materials & Design* 2011;32:788–95. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2010.07.024>.
- [60] Cicala G, Cristaldi G, Recca G, Ziegmann G, El-Sabbagh A, Dickert M. Properties and performances of various hybrid glass/natural fibre composites for curved pipes. *Materials & Design* 2009;30:2538–42. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2008.09.044>.
- [61] Liu Q, Hughes M. The fracture behaviour and toughness of woven flax fibre reinforced epoxy composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2008;39:1644–52. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2008.07.008>.
- [62] Gning PB, Liang S, Guillaumat L, Pui WJ. Influence of process and test parameters on the mechanical properties of flax/epoxy composites using response surface methodology. *J Mater Sci* 2011;46:6801–11. <https://doi.org/10.1007/s10853-011-5639-9>.
- [63] Di Bella G, Fiore V, Valenza A. Effect of areal weight and chemical treatment on the mechanical properties of bidirectional flax fabrics reinforced composites. *Materials & Design* 2010;31:4098–103. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2010.04.050>.
- [64] Cherif ZE, Poilâne C, Falher T, Vivet A, Ouail N, Doudou BB, et al. Influence of textile treatment on mechanical and sorption properties of flax/epoxy composites. *Polymer Composites* 2013;34:1761–73. <https://doi.org/10.1002/pc.22580>.
- [65] Liang S, Gning P-B, Guillaumat L. Quasi-static behaviour and damage assessment of flax/epoxy composites. *Materials & Design* 2015;67:344–53. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2014.11.048>.
- [66] Liang S, Gning P-B, Guillaumat L. Properties evolution of flax/epoxy composites under fatigue loading. *International Journal of Fatigue* 2014;63:36–45. <https://doi.org/10.1016/j.ijfatigue.2014.01.003>.
- [67] Gassan J. A study of fibre and interface parameters affecting the fatigue behaviour of natural fibre composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2002;33:369–74. [https://doi.org/10.1016/S1359-835X\(01\)00116-6](https://doi.org/10.1016/S1359-835X(01)00116-6).
- [68] Chilali A, Zouari W, Assarar M, Kebir H, Ayad R. Effect of water ageing on the load-unload cyclic behaviour of flax fibre-reinforced thermoplastic and thermosetting composites. *Composite Structures* 2018;183:309–19. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2017.03.077>.
- [69] Poilâne C, Vivet A, Momayez L, Doudou BB, Ayachi M, Chen J. Propriétés mécaniques de préimprégnés lin/époxyde = Mechanical properties of flax/epoxy industrial prepregs 2009:11.
- [70] Cheour K, Assarar M, Scida D, Ayad R, Gong X-L. Effect of water ageing on the mechanical and damping properties of flax-fibre reinforced composite materials. *Composite Structures* 2016;152:259–66. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2016.05.045>.

- [71] Hadji H, Assarar M, Zouari W, Pierre F, Behlouli K, Zouari B, et al. Damping analysis of nonwoven natural fibre-reinforced polypropylene composites used in automotive interior parts. *Polymer Testing* 2020;89:106692. <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2020.106692>.
- [72] Marrot L, Bourmaud A, Bono P, Baley C. Multi-scale study of the adhesion between flax fibers and biobased thermoset matrices. *Materials & Design (1980-2015)* 2014;62:47–56. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2014.04.087>.
- [73] Comyn J, editor. *Polymer Permeability*. Dordrecht: Springer Netherlands; 1985. <https://doi.org/10.1007/978-94-009-4858-7>.
- [74] Morton WE, Hearle JWS, Morton WE, Hearle JWS. *Physical properties of textile fibres*. 4. ed. Boca Raton, Fla.: CRC Press [u.a.]; 2008.
- [75] Espert A, Vilaplana F, Karlsson S. Comparison of water absorption in natural cellulosic fibres from wood and one-year crops in polypropylene composites and its influence on their mechanical properties. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2004;35:1267–76. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2004.04.004>.
- [76] Lin Q, Zhou X, Dai G. Effect of hydrothermal environment on moisture absorption and mechanical properties of wood flour-filled polypropylene composites. *J Appl Polym Sci* 2002;85:2824–32. <https://doi.org/10.1002/app.10844>.
- [77] Rouch M. Contribution à la compréhension des mécanismes de vieillissement hydrothermique de matériaux composites unidirectionnels polyester insaturé/fibre de lin n.d.:231.
- [78] Sperling LH. *Introduction to physical polymer science*. 4th ed. Hoboken, N.J: Wiley; 2006.
- [79] Gigliotti M, Grandidier J-C, Lafarie-Frenot MC. Vieillissement de matériaux composites à matrice organique - Cas d'études 2014:37.
- [80] Fick A. Ueber Diffusion. *Annalen Der Physik* 1855;170:59–86. <https://doi.org/10.1002/andp.18551700105>.
- [81] Weitsman Y. A continuum diffusion model for viscoelastic materials n.d.:8.
- [82] Krauklis, Gagani, Echtermeyer. Long-Term Hydrolytic Degradation of the Sizing-Rich Composite Interphase. *Coatings* 2019;9:263. <https://doi.org/10.3390/coatings9040263>.
- [83] Ramirez FA, Carlsson LA, Acha BA. Evaluation of water degradation of vinyl ester and epoxy matrix composites by single fiber and composite tests. *J Mater Sci* 2008;43:5230–42. <https://doi.org/10.1007/s10853-008-2766-z>.
- [84] Zhou J, Lucas JP. The effects of a water environment on anomalous absorption behavior in graphite/epoxy composites. *Composites Science and Technology* 1995;53:57–64. [https://doi.org/10.1016/0266-3538\(94\)00078-6](https://doi.org/10.1016/0266-3538(94)00078-6).
- [85] Carter HG, Kibler KG. Langmuir-Type Model for Anomalous Moisture Diffusion In Composite Resins. *Journal of Composite Materials* 1978;12:118–31. <https://doi.org/10.1177/002199837801200201>.
- [86] Verdu J. Action de l'eau sur les plastiques 2000:11.
- [87] Peyser P, Bascom WD. The anomalous lowering of the glass transition of an epoxy resin by plasticization with water. *J Mater Sci* 1981;16:75–83. <https://doi.org/10.1007/BF00552061>.
- [88] Fayolle B, Verdu J. Vieillissement physique des matériaux polymères 2005:22.
- [89] Baley MC, Chaussadent MT, Davies MP, Fayolle MB, Minerbe MMG. ÉTUDE DU VIEILLISSEMENT DE COMPOSITES RENFORCÉS PAR DES FIBRES NATURELLES : APPLICATION BÂTIMENT n.d.:284.
- [90] Adamson MJ. Thermal expansion and swelling of cured epoxy resin used in graphite/epoxy composite materials n.d.:10.

- [91] Azwa ZN, Yousif BF, Manalo AC, Karunasena W. A review on the degradability of polymeric composites based on natural fibres. *Materials & Design* 2013;47:424–42. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2012.11.025>.
- [92] Le Duigou A, Davies P, Baley C. Exploring durability of interfaces in flax fibre/epoxy micro-composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2013;48:121–8. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2013.01.010>.
- [93] Simar A. Impact du vieillissement humide sur le comportement d'un composite à matrice organique tissé fabriqué par injection RTM: Mise en évidence d'un couplage entre absorption d'eau et thermo-oxydation de la matrice n.d.:254.
- [94] Perreux L, Loupy A, Volatron F. Solvent-free preparation of amides from acids and primary amines under microwave irradiation. *Tetrahedron* 2002;58:2155–62. [https://doi.org/10.1016/S0040-4020\(02\)00085-6](https://doi.org/10.1016/S0040-4020(02)00085-6).
- [95] Weitsman Y. *Fluid effects in polymers and polymeric composites*. New York: Springer; 2012.
- [96] De Neve B, Shanahan MER. Physical and Chemical Effects in An Epoxy Resin Exposed to Water Vapour. *The Journal of Adhesion* 1995;49:165–76. <https://doi.org/10.1080/00218469508014353>.
- [97] Jacquemin F, Fréour S, Clément A. Etude du comportement des matériaux composites soumis à des chargements mécaniques en milieu humide. n.d.:180.
- [98] Methacanon P, Weerawatsophon U, Sumransin N, Prahsarn C, Bergado DT. Properties and potential application of the selected natural fibers as limited life geotextiles. *Carbohydrate Polymers* 2010;82:1090–6. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2010.06.036>.
- [99] Baley C, Morvan C, Grohens Y. Influence of the Absorbed Water on the Tensile Strength of Flax Fibers. *Macromol Symp* 2005;222:195–202. <https://doi.org/10.1002/masy.200550425>.
- [100] Girault R, Bert F, Rihouey C, Jauneau A, Morvan C, Jarvis M. Galactans and cellulose in flax fibres: putative contributions to the tensile strength. *International Journal of Biological Macromolecules* 1997;21:179–88. [https://doi.org/10.1016/S0141-8130\(97\)00059-7](https://doi.org/10.1016/S0141-8130(97)00059-7).
- [101] Madsen B, Hoffmeyer P, Lilholt H. Hemp yarn reinforced composites – III. Moisture content and dimensional changes. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2012;43:2151–60. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2012.07.010>.
- [102] Pucci MF, Liotier P-J, Seveno D, Fuentes C, Van Vuure A, Drapier S. Wetting and swelling property modifications of elementary flax fibres and their effects on the Liquid Composite Molding process. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2017;97:31–40. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2017.02.028>.
- [103] Roudier A. *Analyse multi-échelle du comportement hygro-mécanique des fibres de lin* 2012.
- [104] Le Duigou A, Bourmaud A, Baley C. In-situ evaluation of flax fibre degradation during water ageing. *Industrial Crops and Products* 2015;70:204–10. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2015.03.049>.
- [105] Céline A, Fréour S, Jacquemin F, Casari P. Characterization and modeling of the moisture diffusion behavior of natural fibers. *J Appl Polym Sci* 2013;130:297–306. <https://doi.org/10.1002/app.39148>.
- [106] Céline A, Gonçalves O, Jacquemin F, Fréour S. Qualitative and quantitative assessment of water sorption in natural fibres using ATR-FTIR spectroscopy. *Carbohydrate Polymers* 2014;101:163–70. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2013.09.023>.
- [107] Roudier A, Charlet K, Moreno F, Toussaint E, Généau-Sbartai C, Commereuc S, et al. Caractérisation des propriétés biochimiques et hygroscopiques d'une fibre de lin. *Matériaux & Techniques* 2012;100:525–35. <https://doi.org/10.1051/mattech/2012044>.

- [108] Gouanvé F, Marais S, Bessadok A, Langevin D, Métayer M. Kinetics of water sorption in flax and PET fibers. *European Polymer Journal* 2007;43:586–98. <https://doi.org/10.1016/j.eurpolymj.2006.10.023>.
- [109] Hill CAS, Norton A, Newman G. The water vapor sorption behavior of natural fibers. *J Appl Polym Sci* 2009;112:1524–37. <https://doi.org/10.1002/app.29725>.
- [110] Moudood A, Rahman A, Öchsner A, Islam M, Francucci G. Flax fiber and its composites: An overview of water and moisture absorption impact on their performance. *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 2019;38:323–39. <https://doi.org/10.1177/0731684418818893>.
- [111] Zhang D, Milanovic NR, Zhang Y, Su F, Miao M. Effects of humidity conditions at fabrication on the interfacial shear strength of flax/unsaturated polyester composites. *Composites Part B: Engineering* 2014;60:186–92. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2013.12.031>.
- [112] Moudood A, Hall W, Öchsner A, Li H, Rahman A, Francucci G. Effect of Moisture in Flax Fibres on the Quality of their Composites. *Journal of Natural Fibers* 2019;16:209–24. <https://doi.org/10.1080/15440478.2017.1414651>.
- [113] Stamboulis A, Baillie CA, Peijs T. Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2001;32:1105–15. [https://doi.org/10.1016/S1359-835X\(01\)00032-X](https://doi.org/10.1016/S1359-835X(01)00032-X).
- [114] Le Duigou A, Bourmaud A, Davies P, Baley C. Long term immersion in natural seawater of Flax/PLA biocomposite. *Ocean Engineering* 2014;90:140–8. <https://doi.org/10.1016/j.oceaneng.2014.07.021>.
- [115] Cheour K, Assarar M, Scida D, Ayad R, Gong X-L. Long-term Immersion in Water of Flax-glass Fibre Hybrid Composites: Effect of Stacking Sequence on the Mechanical and Damping Properties. *Fibers Polym* 2020;21:162–9. <https://doi.org/10.1007/s12221-020-9494-7>.
- [116] Chen H, Miao M, Ding X. Influence of moisture absorption on the interfacial strength of bamboo/vinyl ester composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2009;40:2013–9. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2009.09.003>.
- [117] Li Y, Xue B. Hydrothermal ageing mechanisms of unidirectional flax fabric reinforced epoxy composites. *Polymer Degradation and Stability* 2016;126:144–58. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2016.02.004>.
- [118] Scida D, Assarar M, Poilâne C, Ayad R. Influence of hygrothermal ageing on the damage mechanisms of flax-fibre reinforced epoxy composite. *Composites Part B: Engineering* 2013;48:51–8. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2012.12.010>.
- [119] Regazzi A, Corn S, Ienny P, Bénézet J-C, Bergeret A. Reversible and irreversible changes in physical and mechanical properties of biocomposites during hydrothermal aging. *Industrial Crops and Products* 2016;84:358–65. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2016.01.052>.
- [120] Assarar M, Scida D, Zouari W, Saidane EH, Ayad R. Acoustic emission characterization of damage in short hemp-fiber-reinforced polypropylene composites. *Polym Compos* 2016;37:1101–12. <https://doi.org/10.1002/pc.23272>.
- [121] Toubal L, Cuillière J-C, Bensalem K, Francois V, Gning P-B. Hygrothermal effect on moisture kinetics and mechanical properties of hemp/polypropylene composite: Experimental and numerical studies. *Polymer Composites* 2016;37:2342–52. <https://doi.org/10.1002/pc.23414>.
- [122] Nguyen-Duy C, Makke A, Montay G. A Pull-Out Test to Characterize the Fiber/Matrix Interfaces Aging of Hemp Fiber Reinforced Polypropylene Composites. In: Nguyen-Xuan H, Phung-Van P, Rabczuk T, editors. *Proceedings of the International Conference on*

- Advances in Computational Mechanics 2017, Singapore: Springer Singapore; 2018, p. 477–84. https://doi.org/10.1007/978-981-10-7149-2_32.
- [123] Malloum A, Mahi AE, Idriss M. The effects of water ageing on the tensile static and fatigue behaviors of greenepoxy–flax fiber composites. *Journal of Composite Materials* 2019;53:2927–39. <https://doi.org/10.1177/0021998319835596>.
- [124] Kollia E, Saridaki X, Karagiannis D, Kostopoulos V. Effect of water aging on the mechanical properties of flax fiber/bio-based resin composites. *Journal of Applied Polymer Science* 2020;137:48787. <https://doi.org/10.1002/app.48787>.
- [125] Abida M, Gehring F, Mars J, Vivet A, Dammak F, Haddar M. A viscoelastic–viscoplastic model with hygromechanical coupling for flax fibre reinforced polymer composites. *Composites Science and Technology* 2020;189:108018. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2020.108018>.
- [126] Akil HM, Cheng LW, Mohd Ishak ZA, Abu Bakar A, Abd Rahman MA. Water absorption study on pultruded jute fibre reinforced unsaturated polyester composites. *Composites Science and Technology* 2009;69:1942–8. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2009.04.014>.
- [127] Chilali A, Assarar M, Zouari W, Kebir H, Ayad R. Analysis of the hydro-mechanical behaviour of flax fibre-reinforced composites: Assessment of hygroscopic expansion and its impact on internal stress. *Composite Structures* 2018;206:177–84. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2018.08.037>.
- [128] Placet V. Influence de traitements hygrothermiques sur les propriétés mécaniques de composites à fibres végétales = Effect of hygrothermal treatment on the mechanical properties of natural fibres composites 2009:11.
- [129] Muñoz E, García-Manrique JA. Water Absorption Behaviour and Its Effect on the Mechanical Properties of Flax Fibre Reinforced Bioepoxy Composites. *International Journal of Polymer Science* 2015;2015:1–10. <https://doi.org/10.1155/2015/390275>.
- [130] Le Duigou A, Davies P, Baley C. Seawater ageing of flax/poly(lactic acid) biocomposites. *Polymer Degradation and Stability* 2009;94:1151–62. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2009.03.025>.
- [131] Habibi M, Laperrière L, Hassanabadi HM. Effect of moisture absorption and temperature on quasi-static and fatigue behavior of nonwoven flax epoxy composite. *Composites Part B: Engineering* 2019;166:31–40. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.11.131>.
- [132] Moudood A, Rahman A, Khanlou HM, Hall W, Öchsner A, Francucci G. Environmental effects on the durability and the mechanical performance of flax fiber/bio-epoxy composites. *Composites Part B: Engineering* 2019;171:284–93. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2019.05.032>.
- [133] Ku H, Wang H, Pattarachaiyakoo N, Trada M. A review on the tensile properties of natural fiber reinforced polymer composites. *Composites Part B: Engineering* 2011;42:856–73. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2011.01.010>.
- [134] Ahmad F, Choi HS, Park MK. A Review: Natural Fiber Composites Selection in View of Mechanical, Light Weight, and Economic Properties. *Macromolecular Materials and Engineering* 2015;300:10–24. <https://doi.org/10.1002/mame.201400089>.
- [135] Wang A, Xia D, Xian G, Li H. Effect of nanoclay grafting onto flax fibers on the interfacial shear strength and mechanical properties of flax/epoxy composites. *Polymer Composites* 2019;40:3482–92. <https://doi.org/10.1002/pc.25210>.
- [136] Al-Hajaj Z, Sarwar A, Zdero R, Bougherara H. In-situ damage assessment of a novel carbon/flax/epoxy hybrid composite under tensile and compressive loading. *Journal of Composite Materials* 2019;53:2701–14. <https://doi.org/10.1177/0021998319839129>.

- [137] Shah N, Fehrenbach J, Ulven CA. Hybridization of Hemp Fiber and Recycled-Carbon Fiber in Polypropylene Composites. *Sustainability* 2019;11:3163. <https://doi.org/10.3390/su11113163>.
- [138] Wang A, Wang X, Xian G. Mechanical, low-velocity impact, and hydrothermal aging properties of flax/carbon hybrid composite plates. *Polymer Testing* 2020:106759. <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2020.106759>.
- [139] Zhang Y, Li Y, Ma H, Yu T. Tensile and interfacial properties of unidirectional flax/glass fiber reinforced hybrid composites. *Composites Science and Technology* 2013;88:172–7. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2013.08.037>.
- [140] Sanjay MR, Yogesha B. Studies on Mechanical Properties of Jute/E-Glass Fiber Reinforced Epoxy Hybrid Composites. *Journal of Minerals and Materials Characterization and Engineering* 2016;4:15–25. <https://doi.org/10.4236/jmmce.2016.41002>.
- [141] Atiqah A, Maleque MA, Jawaid M, Iqbal M. Development of kenaf-glass reinforced unsaturated polyester hybrid composite for structural applications. *Composites Part B: Engineering* 2014;56:68–73. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2013.08.019>.
- [142] Makinejad M, Sapuan S, Ahmad D, Ali A, Abdan K, Jonoobi M. Mechanical properties of hybrid kenaf/glass reinforced epoxy composite for passenger car bumper beam. *Materials & Design* 2010;31:4927–32. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2010.05.021>.
- [143] Davoodi MM, Sapuan SM, Ahmad D, Ali A, Khalina A, Jonoobi M. Mechanical properties of hybrid kenaf/glass reinforced epoxy composite for passenger car bumper beam. *Materials & Design* 2010;31:4927–32. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2010.05.021>.
- [144] Amico SC, Angrizani CC, Drummond ML. Influence of the Stacking Sequence on the Mechanical Properties of Glass/Sisal Hybrid Composites. *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 2010;29:179–89. <https://doi.org/10.1177/0731684408096430>.
- [145] Haneefa A, Bindu P, Aravind I, Thomas S. Studies on Tensile and Flexural Properties of Short Banana/Glass Hybrid Fiber Reinforced Polystyrene Composites. *Journal of Composite Materials* 2008;42:1471–89. <https://doi.org/10.1177/0021998308092194>.
- [146] Hariharan ABA, Khalil HPSA. Lignocellulose-based Hybrid Bilayer Laminate Composite: Part I - Studies on Tensile and Impact Behavior of Oil Palm Fiber-Glass Fiber-reinforced Epoxy Resin. *Journal of Composite Materials* 2005;39:663–84. <https://doi.org/10.1177/0021998305047267>.
- [147] Mechanical Property of Tailor Made Flax/Glass Fiber Reinforced Hybrid Polyester Composite. *IJRTE* 2020;8:204–7. <https://doi.org/10.35940/ijrte.D1062.1284S419>.
- [148] Samanta S, Muralidhar M, Singh TJ, Sarkar S. Characterization of Mechanical Properties of Hybrid Bamboo/GFRP and Jute/GFRP Composites. *Materials Today: Proceedings* 2015;2:1398–405. <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2015.07.059>.
- [149] Saidane EH, Scida D, Assarar M, Sabhi H, Ayad R. Hybridisation effect on diffusion kinetic and tensile mechanical behaviour of epoxy based flax–glass composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2016;87:153–60. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2016.04.023>.
- [150] Silva MP, Santos P, Parente JM, Valvez S, Reis PNB. Hybridization effect on the impact properties of flax composites. *Procedia Structural Integrity* 2020;28:2235–44. <https://doi.org/10.1016/j.prostr.2020.11.052>.
- [151] Dhakal HN, Zhang ZY, Guthrie R, MacMullen J, Bennett N. Development of flax/carbon fibre hybrid composites for enhanced properties. *Carbohydrate Polymers* 2013;96:1–8. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2013.03.074>.

- [152] Panthapulakkal S, Sain M. Injection-molded short hemp fiber/glass fiber-reinforced polypropylene hybrid composites—Mechanical, water absorption and thermal properties. *J Appl Polym Sci* 2007;103:2432–41. <https://doi.org/10.1002/app.25486>.
- [153] Akil HM, Santulli C, Sarasini F, Tirillò J, Valente T. Environmental effects on the mechanical behaviour of pultruded jute/glass fibre-reinforced polyester hybrid composites. *Composites Science and Technology* 2014;94:62–70. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2014.01.017>.
- [154] Romanzini D, Lavoratti A, Ornaghi HL, Amico SC, Zattera AJ. Influence of fiber content on the mechanical and dynamic mechanical properties of glass/ramie polymer composites. *Materials & Design* 2013;47:9–15. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2012.12.029>.
- [155] Bhagat VK, Biswas S, Dehury J. Physical, mechanical, and water absorption behavior of coir/glass fiber reinforced epoxy based hybrid composites. *Polymer Composites* 2014;35:925–30. <https://doi.org/10.1002/pc.22736>.
- [156] Zhang K, Liang W, Wang F, Wang Z. Effect of water absorption on the mechanical properties of bamboo/glass-reinforced polybenzoxazine hybrid composite. *Polymers and Polymer Composites* 2021;29:3–14. <https://doi.org/10.1177/0967391120903664>.
- [157] Effect of Water Absorption on the Tensile Characteristics of Natural/ Synthetic Fabrics Reinforced Hybrid Composites. *IJE* 2020;33. <https://doi.org/10.5829/ije.2020.33.11b.24>.
- [158] Calabrese L, Fiore V, Scalici T, Valenza A. Experimental assessment of the improved properties during aging of flax/glass hybrid composite laminates for marine applications. *Journal of Applied Polymer Science* 2019;136:47203. <https://doi.org/10.1002/app.47203>.
- [159] Al-Hajaj Z, Zdero R, Bougherara H. Mechanical, morphological, and water absorption properties of a new hybrid composite material made from 4 harness satin woven carbon fibres and flax fibres in an epoxy matrix. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2018;115:46–56. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2018.09.015>.
- [160] Panthapulakkal S, Sain M. Studies on the Water Absorption Properties of Short Hemp—Glass Fiber Hybrid Polypropylene Composites. *Journal of Composite Materials* 2007;41:1871–83. <https://doi.org/10.1177/0021998307069900>.
- [161] Calabrese L, Fiore V, Scalici T, Valenza A. Experimental assessment of the improved properties during aging of flax/glass hybrid composite laminates for marine applications. *Journal of Applied Polymer Science* 2019;136:47203. <https://doi.org/10.1002/app.47203>.
- [162] Cheng M, Zhong Y, Kureemun U, Cao D, Hu H, Lee HP, et al. Environmental durability of carbon/flax fiber hybrid composites. *Composite Structures* 2020;234:111719. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2019.111719>.
- [163] Regazzi A, Léger R, Corn S, Ienny P. Modeling of hydrothermal aging of short flax fiber reinforced composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2016;90:559–66. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2016.08.011>.
- [164] Jain D, Kamboj I, Bera TK, Kang AS, Singla RK. Experimental and numerical investigations on the effect of alkaline hornification on the hydrothermal ageing of Agave natural fiber composites. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 2019;130:431–9. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.10.106>.
- [165] Péron M, Céline A, Castro M, Jacquemin F, Le Duigou A. Study of hygroscopic stresses in asymmetric biocomposite laminates. *Composites Science and Technology* 2019;169:7–15. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2018.10.027>.
- [166] Péron M, Céline A, Jacquemin F, Le Duigou A. Hygroscopic stresses in asymmetric biocomposite laminates submitted to various relative humidity conditions. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2020;134:105896. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2020.105896>.

- [167] Jain D, Sekhon H, Bera TK, Jain R. Comparison of Different Hydrophobic Treatments for the Durability Improvement of Palmyra Natural Fiber Composites under Hydrothermal Ageing Environments. *Journal of Natural Fibers* 2020;17:1668–82. <https://doi.org/10.1080/15440478.2019.1588828>.
- [168] Zouari W, Assarar M, Chilali A, Ayad R, Kebir H. Numerical Modelling of the Transient Hygroscopic Behavior of Flax-Epoxy Composite. *Journal of Renewable Materials* 2019;7:839–53. <https://doi.org/10.32604/jrm.2019.06773>.
- [169] Zhong Y, Kureemun U, Tran LQN, Lee HP. Natural Plant Fiber Composites- Constituent Properties and Challenges in Numerical Modeling and Simulations. *Int J Appl Mechanics* 2017;09:1750045. <https://doi.org/10.1142/S1758825117500454>.
- [170] Xiong X, Shen SZ, Hua L, Liu JZ, Li X, Wan X, et al. Finite element models of natural fibers and their composites: A review. *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 2018;37:617–35. <https://doi.org/10.1177/0731684418755552>.
- [171] Naveen J, Jawaid M, Vasanathanathan A, Chandrasekar M. Finite element analysis of natural fiber-reinforced polymer composites. *Modelling of Damage Processes in Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, Elsevier; 2019, p. 153–70. <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-102289-4.00009-6>.
- [172] Vaddadi P, Nakamura T, Singh RP. Transient hygrothermal stresses in fiber reinforced composites: a heterogeneous characterization approach. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2003;34:719–30. [https://doi.org/10.1016/S1359-835X\(03\)00135-0](https://doi.org/10.1016/S1359-835X(03)00135-0).
- [173] le Duigou A, Merotte J, Bourmaud A, Davies P, Belhouli K, Baley C. Hygroscopic expansion: A key point to describe natural fibre/polymer matrix interface bond strength. *Composites Science and Technology* 2017;151:228–33. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2017.08.028>.
- [174] Karalekas D, Cugnoni J, Botsis J. Monitoring of hygrothermal ageing effects in an epoxy resin using FBG sensor: A methodological study. *Composites Science and Technology* 2009;69:507–14. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2008.11.028>.
- [175] Changsoo Jang, Yoon S, Bongtae Han. Measurement of the Hygroscopic Swelling Coefficient of Thin Film Polymers Used in Semiconductor Packaging. *IEEE Trans Comp Packag Technol* 2010;33:340–6. <https://doi.org/10.1109/TCAPT.2009.2038366>.
- [176] Peret T, Clement A, Freour S, Jacquemin F. Numerical transient hygro-elastic analyses of reinforced Fickian and non-Fickian polymers. *Composite Structures* 2014;116:395–403. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2014.05.026>.
- [177] Joliff Y, Belec L, Chailan JF. Modified water diffusion kinetics in an unidirectional glass/fibre composite due to the interphase area: Experimental, analytical and numerical approach. *Composite Structures* 2013;97:296–303. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2012.09.044>.
- [178] Joliff Y, Belec L, Heman MB, Chailan JF. Experimental, analytical and numerical study of water diffusion in unidirectional composite materials – Interphase impact. *Computational Materials Science* 2012;64:141–5. <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2012.05.029>.
- [179] Mercier J, Bunsell A, Castaing P, Renard J. Characterisation and modelling of aging of composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2008;39:428–38. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2007.08.015>.
- [180] Meng M, Rizvi MJ, Le HR, Grove SM. Multi-scale modelling of moisture diffusion coupled with stress distribution in CFRP laminated composites. *Composite Structures* 2016;138:295–304. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2015.11.028>.

- [181] Ouled Ahmed RBA, Chatti S, Ben Daly H. Modeling of Hygrothermal Damage of Composite Materials. *Mechanics of Advanced Composite Structures* 2016;3:137–44. <https://doi.org/10.22075/mac.2016.475>.
- [182] Peret T, Clement A, Freour S, Jacquemin F. Effect of mechanical states on water diffusion based on the free volume theory: Numerical study of polymers and laminates used in marine application. *Composites Part B: Engineering* 2017;118:54–66. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2017.02.046>.
- [183] Weitsman Y. Stress assisted diffusion in elastic and viscoelastic materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 1987;35:73–93. [https://doi.org/10.1016/0022-5096\(87\)90029-9](https://doi.org/10.1016/0022-5096(87)90029-9).
- [184] Sar BE, Fréour S, Davies P, Jacquemin F. Coupling moisture diffusion and internal mechanical states in polymers – A thermodynamical approach. *European Journal of Mechanics - A/Solids* 2012;36:38–43. <https://doi.org/10.1016/j.euromechsol.2012.02.009>.
- [185] Derrien K, Gilormini P. The effect of moisture-induced swelling on the absorption capacity of transversely isotropic elastic polymer–matrix composites. *International Journal of Solids and Structures* 2009;46:1547–53. <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2008.11.014>.
- [186] Rambert G, Grandidier J-C. An approach to the coupled behaviour of polymers subjected to a thermo-mechanical loading in a gaseous environment. *European Journal of Mechanics - A/Solids* 2005;24:151–68. <https://doi.org/10.1016/j.euromechsol.2004.10.005>.
- [187] Youssef G, Fréour S, Jacquemin F. Stress-dependent Moisture Diffusion in Composite Materials. *Journal of Composite Materials* 2009;43:1621–37. <https://doi.org/10.1177/0021998309339222>.
- [188] Neumann S, Marom G. Stress dependence of the coefficient of moisture diffusion in composite materials. *Polymer Composites* 1985;6:9–12. <https://doi.org/10.1002/pc.750060103>.
- [189] Gueribiz D, Jacquemin F, Fréour S. A moisture diffusion coupled model for composite materials. *European Journal of Mechanics - A/Solids* 2013;42:81–9. <https://doi.org/10.1016/j.euromechsol.2013.04.008>.
- [190] Khalfallah M, Abbès B, Abbès F, Guo YQ, Marcel V, Duval A, et al. Innovative flax tapes reinforced Acrodur biocomposites: A new alternative for automotive applications. *Materials & Design* 2014;64:116–26. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2014.07.029>.
- [191] Heng JYY, Pearse DF, Thielmann F, Lampke T, Bismarck A. Methods to determine surface energies of natural fibres: a review. *Composite Interfaces* 2007;14:581–604. <https://doi.org/10.1163/156855407782106492>.
- [192] Sapuan SM, Yusoff NB. The Relationship Between Manufacturing and Design for Manufacturing in Product Development of Natural Fibre Composites. In: Salit MS, Jawaid M, Yusoff NB, Hoque ME, editors. *Manufacturing of Natural Fibre Reinforced Polymer Composites*, Cham: Springer International Publishing; 2015, p. 1–15. https://doi.org/10.1007/978-3-319-07944-8_1.
- [193] Ledru Y, Bernhart G, Piquet R, Schmidt F, Michel L. Coupled visco-mechanical and diffusion void growth modelling during composite curing. *Composites Science and Technology* 2010;70:2139–45. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2010.08.013>.
- [194] Njionhou Kepnang A. Contribution à l'étude des variabilités des propriétés des stratifiés fabriqués par infusion de résine liquide. phd. Université de Toulouse, Université Toulouse III - Paul Sabatier, 2011.

- [195] Bravo A, Toubal L, Koffi D, Erchiqui F. Characterization of Tensile Damage for a Short Birch Fiber-reinforced Polyethylene Composite with Acoustic Emission. *International Journal of Material Science* 2013;3:12.
- [196] Huguet S. Application de classificateurs aux données d'émission acoustique : identification de la signature acoustique des mécanismes d'endommagement dans les composites à matrice polymère n.d.:152.
- [197] Shah DU. Damage in biocomposites: Stiffness evolution of aligned plant fibre composites during monotonic and cyclic fatigue loading. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2016;83:160–8. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2015.09.008>.
- [198] Quynh Truong Hoang T, Lagattu F, Brillaud J. Natural Fiber-Reinforced Recycled Polypropylene: Microstructural and Mechanical Properties. *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 2010;29:209–17. <https://doi.org/10.1177/0731684408096931>.
- [199] Varna J, Rozite L, Joffe R, Pupurs A. Non-linear behaviour of PLA based flax composites. *Plastics, Rubber and Composites* 2012;41:49–60. <https://doi.org/10.1179/1743289811Y.0000000007>.
- [200] Ben Ameer M, El Mahi A, Rebiere JL, Beyaoui M, Abdennadher M, Haddar M. Bending Fatigue Behavior of Flax and Carbon Fiber Reinforced Epoxy Resin. In: Aifaoui N, Affi Z, Abbes MS, Walha L, Haddar M, Romdhane L, et al., editors. *Design and Modeling of Mechanical Systems - IV*, Cham: Springer International Publishing; 2020, p. 567–75. https://doi.org/10.1007/978-3-030-27146-6_61.
- [201] Le Duigou A, Deux J-M, Davies P, Baley C. PLLA/Flax Mat/Balsa Bio-Sandwich Manufacture and Mechanical Properties. *Appl Compos Mater* 2011;18:421–38. <https://doi.org/10.1007/s10443-010-9173-8>.
- [202] Gehring F, Bouchart V, Dinzart F, Chevrier P. Microstructure, mechanical behaviour, damage mechanisms of polypropylene/short hemp fibre composites: Experimental investigations. *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 2012;31:1576–85. <https://doi.org/10.1177/0731684412464089>.
- [203] Berthelot J-M. *Mécanique des Matériaux et Structures Composites* n.d.:24.
- [204] Saidane EH, Scida D, Assarar M, Ayad R. Damage mechanisms assessment of hybrid flax-glass fibre composites using acoustic emission. *Composite Structures* 2017;174:1–11. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2017.04.044>.
- [205] Kalaprasad G, Joseph K, Thomas S. Influence of Short Glass Fiber Addition on the Mechanical Properties of Sisal Reinforced Low Density Polyethylene Composites. *Journal of Composite Materials* 1997;31:509–27. <https://doi.org/10.1177/002199839703100504>.
- [206] Ahmed KS, Vijayarangan S. Tensile, flexural and interlaminar shear properties of woven jute and jute-glass fabric reinforced polyester composites. *Journal of Materials Processing Technology* 2008;207:330–5. <https://doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2008.06.038>.
- [207] Abd El-baky M, Attia M. Water absorption effect on the in-plane shear properties of jute–glass–carbon-reinforced composites using Iosipescu test. *Journal of Composite Materials* 2019;53:3033–45. <https://doi.org/10.1177/0021998318809525>.
- [208] Pickering KL, Efendy MGA, Le TM. A review of recent developments in natural fibre composites and their mechanical performance. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2016;83:98–112. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2015.08.038>.
- [209] George M, Chae M, Bressler DC. Composite materials with bast fibres: Structural, technical, and environmental properties. *Progress in Materials Science* 2016;83:1–23. <https://doi.org/10.1016/j.pmatsci.2016.04.002>.

- [210] Céline A, Freour S, Jacquemin F, Casari P. The hygroscopic behavior of plant fibers: a review. *Front Chem* 2014;1. <https://doi.org/10.3389/fchem.2013.00043>.
- [211] Sergi C, Tirillò J, Seghini MC, Sarasini F, Fiore V, Scalici T. Durability of Basalt/Hemp Hybrid Thermoplastic Composites. *Polymers (Basel)* 2019;11. <https://doi.org/10.3390/polym11040603>.
- [212] Christian SJ, Billington SL. Moisture diffusion and its impact on uniaxial tensile response of biobased composites. *Composites Part B: Engineering* 2012;43:2303–12. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2011.11.063>.
- [213] Cherif ZE, Poilâne C, Vivet A, Ben Doudou B, Chen J. About optimal architecture of plant fibre textile composite for mechanical and sorption properties. *Composite Structures* 2016;140:240–51. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2015.12.030>.
- [214] Tengsuthiwat J, Asawapirom U, Siengchin S, Karger-Kocsis J. Mechanical, thermal, and water absorption properties of melamine–formaldehyde-treated sisal fiber containing poly(lactic acid) composites. *Journal of Applied Polymer Science* 2018;135:45681. <https://doi.org/10.1002/app.45681>.
- [215] Regazzi A, Corn S, Ienny P, Bergeret A. Coupled hydro-mechanical aging of short flax fiber reinforced composites. *Polymer Degradation and Stability* 2016;130:300–6. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2016.06.016>.
- [216] Chilali A, Assarar M, Zouari W, Kebir H, Ayad R. Effect of geometric dimensions and fibre orientation on 3D moisture diffusion in flax fibre reinforced thermoplastic and thermosetting composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2017;95:75–86. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2016.12.020>.
- [217] Saidane EH, Scida D, Assarar M, Ayad R. Assessment of 3D moisture diffusion parameters on flax/epoxy composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2016;80:53–60. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2015.10.008>.
- [218] Abdessalem A, Tamboura S, Fitoussi J, Daly HB, Tcharkhtchi A. Bi-phasic water diffusion in sheet molding compound composite. *Journal of Applied Polymer Science* 2020;137:48381. <https://doi.org/10.1002/app.48381>.
- [219] Maggana C, Pissis P. Water sorption and diffusion studies in an epoxy resin system. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics* 1999;37:1165–82. [https://doi.org/10.1002/\(SICI\)1099-0488\(19990601\)37:11<1165::AID-POLB11>3.0.CO;2-E](https://doi.org/10.1002/(SICI)1099-0488(19990601)37:11<1165::AID-POLB11>3.0.CO;2-E).
- [220] Joliff Y, Belec L, Chailan JF. Modified water diffusion kinetics in an unidirectional glass/fibre composite due to the interphase area: Experimental, analytical and numerical approach. *Composite Structures* 2013;97:296–303. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2012.09.044>.
- [221] Grace LR, Altan MC. Non-fickian three-dimensional hindered moisture absorption in polymeric composites: Model development and validation. *Polymer Composites* 2013;34:1144–57. <https://doi.org/10.1002/pc.22523>.
- [222] Crank J, Crank EPJ. *The Mathematics of Diffusion*. Clarendon Press; 1979.
- [223] De Wilde WP, Frolkovic P. The modelling of moisture absorption in epoxies: effects at the boundaries. *Composites* 1994;25:119–27. [https://doi.org/10.1016/0010-4361\(94\)90005-1](https://doi.org/10.1016/0010-4361(94)90005-1).
- [224] Shen C-H, Springer GS. *Moisture Absorption and Desorption of Composite Materials* n.d.:19.
- [225] Mitterhofer S, Barretta C, Castillon LF, Oreski G, Topič M, Jankovec M. A Dual-Transport Model of Moisture Diffusion in PV Encapsulants for Finite-Element Simulations. *IEEE Journal of Photovoltaics* 2020;10:94–102. <https://doi.org/10.1109/JPHOTOV.2019.2955182>.

- [226] Langmuir I. VAPOR PRESSURES, EVAPORATION, CONDENSATION AND ADSORPTION. *J Am Chem Soc* 1932;54:2798–832. <https://doi.org/10.1021/ja01346a022>.
- [227] Nelder JA, Mead R. A Simplex Method for Function Minimization. *Comput J* 1965;7:308–13. <https://doi.org/10.1093/comjnl/7.4.308>.
- [228] Luersen MA, Riche RL. Globalisation de l'Algorithme de Nelder-Mead : Application aux Composites n.d.:44.
- [229] Post NL, Riebel F, Zhou A, Keller T, Case SW, Lesko JJ. Investigation of 3D Moisture Diffusion Coefficients and Damage in a Pultruded E-glass/Polyester Structural Composite. *Journal of Composite Materials* 2009;43:75–96. <https://doi.org/10.1177/0021998308098152>.
- [230] Peret T, Clement A, Freour S, Jacquemin F. Homogenization of Fickian and non-Fickian water diffusion in composites reinforced by hydrophobic long fibers: Application to the determination of transverse diffusivity. *Composite Structures* 2019;226:111191. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2019.111191>.
- [231] Aoki Y, Yamada K, Ishikawa T. Effect of hygrothermal condition on compression after impact strength of CFRP laminates. *Composites Science and Technology* 2008;68:1376–83. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2007.11.015>.
- [232] Arnold JC, Alston SM, Korkees F. An assessment of methods to determine the directional moisture diffusion coefficients of composite materials. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2013;55:120–8. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2013.08.012>.
- [233] Bao L-R, Yee AF. Moisture diffusion and hygrothermal aging in bismaleimide matrix carbon fiber composites—part I: uni-weave composites. *Composites Science and Technology* 2002;62:2099–110. [https://doi.org/10.1016/S0266-3538\(02\)00161-6](https://doi.org/10.1016/S0266-3538(02)00161-6).
- [234] Choi HS, Ahn KJ, Nam J-D, Chun HJ. Hygroscopic aspects of epoxy/carbon fiber composite laminates in aircraft environments. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2001;32:709–20. [https://doi.org/10.1016/S1359-835X\(00\)00145-7](https://doi.org/10.1016/S1359-835X(00)00145-7).
- [235] 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: Applied Science and Manufacturing* 2006;37:1626–37. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2005.10.014>.
- [236] Charlet K, Jernot J-P, Breard J, Gomina M. Scattering of morphological and mechanical properties of flax fibres. *Industrial Crops and Products* 2010;32:220–4. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2010.04.015>.
- [237] Bunsell AR. Hydrothermal Ageing of Composite Materials. *Rev Inst Fr Pét* 1995;50:61–7. <https://doi.org/10.2516/ogst:1995006>.
- [238] Wang J, Dai F, Ma L. A multi-scale moisture diffusion coupled with stress model for composite materials. *Composite Structures* 2017;171:345–59. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2017.03.025>.
- [239] Mishra S, Rathore DK, Ray BC. A Recent Understanding on Theories of Moisture Ingression and its Effect on FRP Composites n.d.:26.
- [240] Bel Haj Frej H, Léger R, Perrin D, Ienny P. Effect of aging temperature on a thermoset-like novel acrylic thermoplastic composite for marine vessels. *Journal of Composite Materials* 2021;55:002199832199678. <https://doi.org/10.1177/0021998321996780>.
- [241] CASTAING P. Vieillissement des matériau composites verre-polyester en milieu marin : délaminage d'origine osmotique. 1992.
- [242] Gardner KH, Blackwell J. The structure of native cellulose. *Biopolymers* 1974;13:1975–2001. <https://doi.org/10.1002/bip.1974.360131005>.
- [243] Xiao GZ, Shanahan MER. Swelling of DGEBA/DDA epoxy resin during hygrothermal ageing. *Polymer* 1998;39:3253–60. [https://doi.org/10.1016/S0032-3861\(97\)10060-X](https://doi.org/10.1016/S0032-3861(97)10060-X).

- [244] Popineau S, Rondeau-Mouro C, Sulpice-Gaillet C, Shanahan MER. Free/bound water absorption in an epoxy adhesive. *Polymer* 2005;46:10733–40. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2005.09.008>.
- [245] Wong TC, Broutman LJ. Water in epoxy resins Part II. Diffusion mechanism. *Polymer Engineering & Science* 1985;25:529–34. <https://doi.org/10.1002/pen.760250904>.
- [246] Starkova O, Buschhorn ST, Mannov E, Schulte K, Aniskevich A. Water transport in epoxy/MWCNT composites. *European Polymer Journal* 2013;49:2138–48. <https://doi.org/10.1016/j.eurpolymj.2013.05.010>.
- [247] Zhou J, Lucas JP. Hygrothermal effects of epoxy resin. Part I: the nature of water in epoxy. *Polymer* 1999;40:5505–12. [https://doi.org/10.1016/S0032-3861\(98\)00790-3](https://doi.org/10.1016/S0032-3861(98)00790-3).
- [248] Bensalem K. Étude expérimentale et numérique du vieillissement hygrothermique d'un composite en polypropylène renforcé par des fibres courtes de chanvre. masters. Université du Québec à Trois-Rivières, 2014.
- [249] Garat W, Le Moigne N, Corn S, Beaugrand : J, Bergeret A. Swelling of natural fibre bundles under hygro- and hydrothermal conditions: determination of hydric expansion coefficients by automated laser scanning. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 2020:105803. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2020.105803>.
- [250] Péron M, Céline A, Castro M, Jacquemin F, Le Duigou A. Biocomposites with Asymmetric Stacking for the Study of Hygro-mechanical Couplings. *RCMA* 2019;29:243–52. <https://doi.org/10.18280/rcma.290408>.
- [251] Mbacke MA. Caractérisation et modélisation du comportement mécanique des composites tressés 3D: Application à la conception de réservoirs GNV n.d.:163.
- [252] Ben Ameer M, El Mahi A, Rebiere J-L, Gimenez I, Beyaoui M, Abdennadher M, et al. Investigation and identification of damage mechanisms of unidirectional carbon/flax hybrid composites using acoustic emission. *Engineering Fracture Mechanics* 2019;216:106511. <https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2019.106511>.
- [253] Suresh Kumar C, Arumugam V, Santulli C. Characterization of indentation damage resistance of hybrid composite laminates using acoustic emission monitoring. *Composites Part B: Engineering* 2017;111:165–78. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2016.12.012>.
- [254] Vieira CAB, Susin SB, Estevão F, Amico SC, Zattera AJ. Characterization of hybrid composites produced with mats made using different methods. *Mat Res* 2009;12:433–6. <https://doi.org/10.1590/S1516-14392009000400011>.
- [255] Silva RV, Aquino EMF, Rodrigues LPS, Barros ARF. Curaua/Glass Hybrid Composite: The Effect of Water Aging on the Mechanical Properties. *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 2009;28:1857–68. <https://doi.org/10.1177/0731684408090373>.
- [256] Akil HMD, De Rosa IM, Santulli C, Sarasini F. Flexural behaviour of pultruded jute/glass and kenaf/glass hybrid composites monitored using acoustic emission. *Materials Science and Engineering: A* 2010;527:2942–50. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2010.01.028>.
- [257] Dhakal HN, Zhang ZY, Richardson MOW. Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites. *Composites Science and Technology* 2007;67:1674–83. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2006.06.019>.
- [258] Alomayri T, Assaedi H, Shaikh FUA, Low IM. Effect of water absorption on the mechanical properties of cotton fabric-reinforced geopolymer composites. *Journal of Asian Ceramic Societies* 2014;2:223–30. <https://doi.org/10.1016/j.jascer.2014.05.005>.
- [259] Joseph PV, Rabello MS, Mattoso LHC, Joseph K, Thomas S. Environmental effects on the degradation behaviour of sisal fibre reinforced polypropylene composites. *Composites Science and Technology* 2002;62:1357–72. [https://doi.org/10.1016/S0266-3538\(02\)00080-5](https://doi.org/10.1016/S0266-3538(02)00080-5).

- [260] Michel AT, Billington SL. Characterization of poly-hydroxybutyrate films and hemp fiber reinforced composites exposed to accelerated weathering. *Polymer Degradation and Stability* 2012;97:870–8. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2012.03.040>.
- [261] Arbelaiz A, Fernández B, Ramos JA, Retegi A, Llano-Ponte R, 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;65:1582–92. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2005.01.008>.
- [262] Morvan C, Andème-Onzighi C, Girault R, Himmelsbach DS, Driouich A, Akin DE. Building flax fibres: more than one brick in the walls. *Plant Physiology and Biochemistry* 2003;41:935–44. <https://doi.org/10.1016/j.plaphy.2003.07.001>.
- [263] Shubhra QTH, Alam AKMM, Beg MDH. Mechanical and degradation characteristics of natural silk fiber reinforced gelatin composites. *Materials Letters* 2011;65:333–6. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2010.09.059>.
- [264] Bourmaud A, Morvan C, Baley C. Importance of fiber preparation to optimize the surface and mechanical properties of unitary flax fiber. *Industrial Crops and Products* 2010;32:662–7. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2010.08.002>.
- [265] Wang W, Sain M, Cooper PA. Hygrothermal weathering of rice hull/HDPE composites under extreme climatic conditions. *Polymer Degradation and Stability* 2005;90:540–5. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2005.03.014>.
- [266] Foulc MP, Bergeret A, Ferry L, Ienny P, Crespy A. Study of hygrothermal ageing of glass fibre reinforced PET composites. *Polymer Degradation and Stability* 2005;89:461–70. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2005.01.025>.
- [267] Saedifar M, Zarouchas D. Damage characterization of laminated composites using acoustic emission: A review. *Composites Part B: Engineering* 2020;195:108039. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2020.108039>.
- [268] Zhou W, Zhao W, Zhang Y, Ding Z. Cluster analysis of acoustic emission signals and deformation measurement for delaminated glass fiber epoxy composites. *Composite Structures* 2018;195:349–58. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2018.04.081>.
- [269] Thwe MM, Liao K. Durability of bamboo-glass fiber reinforced polymer matrix hybrid composites. *Composites Science and Technology* 2003;63:375–87. [https://doi.org/10.1016/S0266-3538\(02\)00225-7](https://doi.org/10.1016/S0266-3538(02)00225-7).
- [270] Evans AG, Zok FW, McMeeking RM. Fatigue of ceramic matrix composites. *Acta Metallurgica et Materialia* 1995;43:859–75. [https://doi.org/10.1016/0956-7151\(94\)00304-Z](https://doi.org/10.1016/0956-7151(94)00304-Z).
- [271] Reynaud P. Cyclic fatigue of ceramic-matrix composites at ambient and elevated temperatures. *Composites Science and Technology* 1996;56:809–14. [https://doi.org/10.1016/0266-3538\(96\)00025-5](https://doi.org/10.1016/0266-3538(96)00025-5).
- [272] Li L. Modeling for cyclic loading/unloading hysteresis loops of fiber-reinforced ceramic-matrix composites at room and elevated temperatures. Part II: Experimental comparisons. *Engineering Fracture Mechanics* 2016;164:137–54. <https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2016.08.004>.
- [273] Wang J, Xiao Y, Inoue K, Kawai M, Xue Y. Modeling of nonlinear response in loading-unloading tests for fibrous composites under tension and compression. *Composite Structures* 2019;207:894–908. <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2018.09.054>.
- [274] Sun L, Wagoner RH. Complex unloading behavior: Nature of the deformation and its consistent constitutive representation. *International Journal of Plasticity* 2011;27:1126–44. <https://doi.org/10.1016/j.ijplas.2010.12.003>.
- [275] Mann GE, Sumitomo T, Cáceres CH, Griffiths JR. Reversible plastic strain during cyclic loading–unloading of Mg and Mg–Zn alloys. *Materials Science and Engineering: A* 2007;456:138–46. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2006.11.160>.

- [276] Davies P, MazÉas F, Casari P. Sea Water Aging of Glass Reinforced Composites: Shear Behaviour and Damage Modelling. *Journal of Composite Materials* 2001;35:1343–72. <https://doi.org/10.1106/MNBC-81UB-NF5H-P3ML>.
- [277] Zhang M, Meng Q, Liu S, Qian D, Zhang N. Impacts of Cyclic Loading and Unloading Rates on Acoustic Emission Evolution and Felicity Effect of Instable Rock Mass. *Advances in Materials Science and Engineering* 2018;2018:e8365396. <https://doi.org/10.1155/2018/8365396>.
- [278] Hamstad MA. A review: Acoustic emission, a tool for composite-materials studies. *Experimental Mechanics* 1986;26:7–13. <https://doi.org/10.1007/BF02319949>.

Modélisation du comportement mécanique de biocomposites hybrides en présence du vieillissement

Les composites renforcés par des fibres végétales s'imposent aujourd'hui progressivement comme une alternative à certaines fibres synthétiques. L'utilisation des fibres végétales comme renfort permet de combiner le respect de l'environnement et d'avoir de matériaux composites présentant des propriétés mécaniques spécifiques intéressantes. Toutefois, la sensibilité des fibres végétales à l'humidité limite leur utilisation dans les applications structurales. De ce fait, l'hybridation des fibres végétales avec des fibres synthétiques, comme la fibre de verre, peut constituer une des solutions à la variation des propriétés mécaniques des composites à fibres végétales. Dans ce contexte, nous proposons dans cette étude doctorale d'évaluer la durabilité de matériaux composites à fibres de lin, de verre et hybrides lin-verre après leur exposition à un milieu humide à température ambiante. Tout d'abord, les comportements statiques de la résine et des composites hybrides et non hybrides sont analysés. Par la suite, nous évaluons la cinétique de diffusion d'eau dans les composites par identification de leurs paramètres de diffusion 1D et 3D, via une approche d'optimisation basée sur les modèles de Fick et de Langmuir. Ensuite, nous développons et nous implémentons dans le logiciel de calcul par éléments finis ABAQUS deux éléments finis triangulaires de membrane à trois nœuds pour modéliser le comportement hygroscopique des composites de l'étude. Cette modélisation nous permet entre autres d'estimer les paramètres diffusifs radial et longitudinal de la fibre de lin, difficile à déterminer expérimentalement. Après, nous développons et nous implémentons dans ABAQUS des éléments finis triangulaires de membrane à trois nœuds afin de modéliser le comportement hygro-élastique des composites de l'étude. L'objectif de cette partie est d'estimer leur durabilité à travers le calcul des contraintes et des déformations hygroscopiques. Pour cela, des modèles hygro-élastiques découplés, basés sur le modèle de Fick et de Langmuir, sont considérés. Enfin, nous étudions l'impact de l'humidité sur le comportement mécanique, à travers l'étude de la perte progressive des propriétés élastiques de ces composites.

Mots-clés en français : Fibre de lin, composites hybrides, durabilité, modélisation par éléments finis

Modelling the mechanical behaviour of hybrid biocomposites in the presence of ageing

Natural fibre-reinforced composites are progressively becoming an alternative to certain synthetic fibres. The use of vegetal fibres as reinforcement makes it possible to combine respect of the environment with having composite materials presenting attractive specific mechanical properties. However, the sensitivity of vegetal fibres to moisture limits their use in structural applications. Therefore, the hybridization of vegetal fibres with synthetic fibres, such as glass fibre, can be one of the solutions to the variation of mechanical properties of vegetal fibre composites. In this context, we propose in this PhD study to evaluate the durability of flax, glass and flax-glass hybrid composites after their exposure to a humid environment at room temperature. First, the static behaviour of the resin and the hybrid and non-hybrid composites are analysed. Then, we evaluate the water diffusion kinetics in the composites by identifying their 1D and 3D diffusion parameters, using an optimisation approach based on the Fick and Langmuir models. Then, we develop and implement in the ABAQUS FEA software two triangular three-node membrane finite elements to model the hygroscopic behaviour of the studied composites. This modelling allows us, among other things, to estimate the radial and longitudinal diffusive parameters of the flax fibre, which are difficult to determine experimentally. Then, we develop and implement in ABAQUS three-node triangular membrane finite elements to model the hygroelastic behaviour of the studied composites. The objective of this part is to estimate their durability through the calculation of hygroscopic stresses and strains. For this purpose, decoupled hygroelastic models, based on the Fick' and Langmuir's model, are considered. Finally, we study the impact of moisture on the mechanical behaviour, through the investigation of the progressive loss of elastic properties of these composites.

Mots-clés en anglais : flax fibre, fabric biocomposites, durability, damage events, acoustic emission, finite elements

Discipline : MÉCANIQUE DES SOLIDES, GÉNIE MÉCANIQUE, PRODUCTIQUE, TRANSPORT ET GÉNIE CIVIL

Spécialité : Mécanique

Université de Reims Champagne-Ardenne

Institut de Thermique, Mécanique, Matériaux
(EA 7548) UFR Sciences Exactes et Naturelles
Moulin de la Housse BP 1039 51687 REIMS
Cedex 2

Cliquez ici pour entrer du texte.