COLLEGE DOCTORAL BRETAGNE SCIENCES POUR L'INGENIEUR

Université Bretagne Sud

THESE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE BRETAGNE SUD

ECOLE DOCTORALE N° 647
Sciences pour l'Ingénieur
Spécialité : *« Génie des Matériaux »*

Par
Jean-Baptiste LEDRU

Contribution à l'étude des forces et des énergies générées par des actionneurs biocomposites fabriqués par impression 4D

Thèse présentée et soutenue à Lorient, le 29 Janvier 2026
Unité de recherche : UMR CNRS 6027, Institut de Recherche Dupuy de Lome
Thèse N°758

Rapporteurs avant soutenance :

	Karine CHARLET	Professeur des Universités, Université Bourgogne Europe
	Sébastien ALIX	Professeur des Universités, Univ. de Reims Champagne-Ardenne

Composition du Jury :

Examinateurs :	Mael PERON	Maître de Conférence, Nantes Université
	Nicolas LE MOIGNE	Maître de Conférence, IMT Mines Alès
Dir. de thèse :	Antoine LE DUIGOU	Professeur des Universités, Université Bretagne Sud
Encadrant de thèse :	Mickael CASTRO	Maître de Conférence, Université Bretagne Sud

« *Les braves gens n'aiment pas que,*

L'on suive une autre route qu'eux »

G. BRASSENS, 1952

Table des matières

Contributions scientifiques 8

Lexique 9

Glossaire 10

Vocabulaire technique : 10

Polymères et abréviations courantes : 12

Abréviations techniques et d'analyses : 12

Introduction générale 14

Chapitre 1 : Bibliographie 18

1. Cadre conceptuel et motivation 19

1.1. Introduction générale et problématique environnementale 19

1.1.1. Contexte historique 19

1.1.2. Contexte actuel et enjeux environnementaux 20

1.2. Définition et classification des actionneurs 22

1.2.1. Définition d'un actionneur mécanique 22

1.2.2. Les indicateurs clés de performances des actionneurs 22

1.2.3. Les catégories d'actionneurs passifs 24

1.3. Pourquoi s'inspirer du vivant ? (Biomimétisme, enjeux, contexte de durabilité) 25

2. Inspiration biologique : les mécanismes naturels d'actionnement 27

2.1. Architectures et mécanismes d'actionnement chez les plantes. 27

2.1.1. L'organisation interne des fibres végétales 27

2.1.2. Les mécanismes d'actionnement hydraulique chez les plantes 29

2.1.3. Des plantes architecturées pour un actionnement passif et hydraulique 30

2.1.4. Les efforts générés par les actionneurs naturels 32

2.1.5. Les déplacements générés par des actionneurs naturels 36

2.2. Mécanisme d'hygroexpansion pour les fibres végétales : de la sorption d'eau à l'actionnement structurel 37
2.2.1. Comportement des fibres végétales lors de la sorption d'eau 37
2.2.2. Conséquence de la sorption sur les propriétés d'hygroexpansion 40
2.2.3. Conséquences de la sorption sur les propriétés mécaniques 42
2.3. Définition et enjeux des biocomposites biosourcés 44
2.4. Propriétés mécaniques et hygromécaniques des biocomposites élaborés par fabrication additive continue. 45
2.4.1. Performances mécaniques des biocomposites renforcés continus issus de fabrication additive 45
2.4.2. Propriétés hygromécaniques des biocomposites imprimés à renforts continus 48
2.4.3. Propriétés d'hygroexpansion des biocomposites imprimés à renforts continus 49
2.5. Méthodologies de caractérisation de l'actionnement des composites hygromorphes 50
2.5.1. Mesure de force de blocage 51
2.5.2. Mesure des déplacements hygroinduits 52
3. Apport de l'impression 4D pour l'actionnement structurel 53
3.1. Impression 3D de composites 53
3.2. De l'impression 3D à la 4D : principes et matériaux 56
3.3. Programmation morphologique via l'impression 4D 56
3.3.1. Les paramètres de slicing 56
3.3.2. Les paramètres d'impression 57
3.3.3. Etat de contraintes liées à la fabrication additive 58
3.3.4. Les efforts générés par les composites imprimés 4D. 60

3.3.5. L'architecture macroscopique : un paramètre d'actionnement passif 60
4. Conclusion 62
Chapitre 2 : Matériaux et méthodes 66
1. Introduction 67
2. Matériaux bruts 67
3. Caractérisation du comportement rhéologique du PLA 3001D 67
4. Coextrusion des filaments destinés à l'impression 4D 68
4.1. Description du procédé de coextrusion 68
4.2. Plan d'expériences relatif à l'étude des paramètres de coextrusion 69
4.3. Méthodologie de quantification des forces en traction 69
5. Procédé de fabrication additive à renforts continus 71
5.1. Impression 3D en configuration planaire 71
5.2. Impression 3D en configuration rotative 73
6. Conception géométrique des impressions 4D à l'échelle macroscopique 74
6.1. Définition des géométries étudiées 74
6.2. Conception des architectures macroscopiques 74
6.2.1. Plan d'expériences dédié à l'étude des paramètres de slicing et de la géométrie cubique 74
6.2.2. Conception de la géométrie parallélépipédique élancée 75
6.2.3. Conception de la configuration tubulaire 77
7. Préparation et conditionnement des échantillons 80
7.1. Découpe et mise en forme des échantillons 80
7.2. Conditionnement hygroscopique 81
8. Méthodes de caractérisation des structures 81
8.1. Préparation des échantillons pour observation 81

8.2. Observation optique à différentes échelles 81

8.3. Observation des propriétés de sorption des biocomposites imprimés en cFF/PLA 82

9. Etudes des capacités d'actionnement : mesure de forces bloquées et de déplacements libres hydro-induits..... 84

9.1. Observation des capacités d'actionnement de HBC à géométrie cubique 84

9.2. Quantification de l'actionnement géométrie parallélépipédique élancée 85

9.2.1. Mesure du couple bloqué d'éprouvettes parallélépipédiques d'HBC..... 85

9.2.2. Mesure de la courbure sur échantillons parallélépipédiques..... 85

Approche théorique de la courbure des biocomposites hygromorphes 86

9.3. Evaluation des performances générées par les géométries tubulaires 87

9.3.1. Mesure du couple maximal bloqué..... 87

9.3.2. Mesure de la rotation libre..... 88

10. Comparaison des performances d'actionnement des différentes architectures macroscopiques..... 89

Chapitre 3 : Effets de la coextrusion sur la microstructure et les propriétés mécaniques des filaments à renforts continus naturels...... 92

1. Introduction..... 93

2. Résultats et discussion 95

2.1. Analyse de la viscosité du PLA 3001D : 95

2.2. Analyse de la microstructure des filaments cFF/PLA : 96

2.3. Etude des propriétés mécaniques..... 99

3. Conclusion 101

Chapitre 4 : Les HBC imprimés 4D possédant des propriétés de changement de forme et de génération de force : des avancées vers l'actionnement structurel 105

1. Introduction..... 106

2. Résultats et discussion 108

2.1 L'essence d'épicéa, une référence pour les mesures d'actionnement structurel. . 108

2.2. Impression 4D de HBC dédiée à l'actionnement structurel 110

2.2.1. Relation entre les paramètres de slicing utilisés pour générer l'architecture des HBC et les performances structurelles induites 110

2.2.2. Détermination de l'expansion libre maximale, de la pression de gonflement et de la densité d'énergie en fonction des paramètres de slicing des HBC. 113

2.3. Comparaison entre les HBC et d'autres actionneurs passifs à l'aide de la densité d'énergie spécifique 119

3. Conclusion 121

Chapitre 5 : Relation entre la géométrie imprimée et l'actionnement dans les structures HBC à base de cFF/PLA 125

1. Introduction 126

2. Résultats et discussions 128

2.1. Analyse de la microstructure 128

2.2. Investigation de la sorption d'eau des 3 structures imprimées 129

2.3. Performances d'actionnement de la géométrie cubique : expansion rectilinéaire 130

2.4. Performances d'actionnement de la géométrie parallélépipédique asymétrique : flexion encastrée 132

2.5. Performances d'actionnement de la géométrie tubulaire stratifiée symétriquement..... 136

2.6. Comparaison d'actionnement 140

3. Conclusion 142

Perspectives 147

Références 149

Contributions scientifiques

Article publié :

J. LEDRU, M. CASTRO, A. LE DUIGOU “4D printed hydromorph biocomposites with shape change and force generation properties: progress towards structural actuation”, 4D Printing, DOI : 10.1108/4DP-06-2025-0014, 2025

Affiche lors d’une conférence internationale :

J. LEDRU, M. CASTRO, A. LE DUIGOU “4D Printing of Hygromorph BioComposite for structural actuation”, ECCM Nantes, Juillet 2024.

Lexique

Abréviation	Unité	Définition
b	mm	Base ou largeur de l'échantillon
h	mm	Hauteur ou épaisseur de l'échantillon
L	mm	Longueur de l'échantillon
$Ø$	mm	Diamètre
r	mm	Rayon
M	g	Masse
δ	mm	Déplacement ou course
ε	%	Expansion ou allongement
Θ	°	Angle de sollicitation
ω	°	Angle de rotation parcouru
k	mm^{-1}	Courbure instantanée
Δk	mm^{-1}	Variation de courbure
S	mm^2	Surface
V	mm^3	Volume
TEX	$g.km^{-1}$	Masse par kilomètre de fil
TPM	TPM	Twist par mètre de fil
T_f	°C	Température de filière
V_t	$m.min^{-1}$	Vitesse de tirage
m	/	Rapport d'épaisseur
F	N	Force
P	MPa	Pression de gonflement
E	MPa	Module d'élasticité
n	/	Rapport des modules d'élasticité
E_d	J	Densité d'énergie
$E_{d\ volumique}$	$J.cm^{-3}$	Densité d'énergie volumique
$E_{d\ spécifique}$	$J.\ cm^3\ g^{-1}$	Densité d'énergie spécifique
K_p	/	Coefficient de couple
K_d	/	Coefficient de déflection
$K_{volumique}$	$MPa.cm^{-3}$	Rigidité d'actionnement volumique
β	%	Coefficient d'hygroexpansion
LH	mm	Hauteur de couche
ID	mm	Distance interfilamentaire
MC	%	Teneur en humidité
ΔMC	%	Variation de teneur en humidité

Glossaire

Vocabulaire technique :

Biomimétisme : approche scientifique et technologique consistant à s'inspirer des structures, des fonctions et des principes observés dans le vivant afin de concevoir des matériaux, des procédés ou des systèmes innovants.

Impression 3D : procédé de fabrication par ajout de matière couche par couche, permettant de réaliser des objets tridimensionnels à partir d'un modèle numérique, avec un haut degré de liberté géométrique.

Impression 4D : extension de l'impression 3D intégrant la dimension temporelle, où les objets imprimés sont conçus pour évoluer de manière contrôlée dans le temps ou en réponse à des stimuli externes (température, humidité, champ magnétique, etc.), généralement grâce à l'utilisation de matériaux intelligents, i.e. *Smart Materials* dans la littérature scientifique.

Métamatériaux adaptatifs : matériaux dont les propriétés effectives peuvent être modifiées de façon réversible sous l'action d'un stimulus externe, permettant des fonctions dynamiques inédites.

Architecture : agencement organisé des constituants d'un matériau ou d'un système, influençant ses performances fonctionnelles.

Géométrie : ensemble des caractéristiques dimensionnelles et topologiques d'un objet ou d'un matériau incluant sa forme.

Microarchitecture : organisation interne d'un matériau à l'échelle micrométrique (1-100 µm), influençant les propriétés mécaniques locales.

Mésoarchitecture : organisation interne d'un matériau à l'échelle mésométrique (ici celle du pli), influençant les propriétés mécaniques locales (souvent entre 100 µm et quelques mm).

Macroarchitecture : organisation visible à l'œil nu (> 1 mm) de la structure d'un matériau ou d'un objet, souvent en lien avec sa forme générale et sa fonction.

Biocomposite : composite formé à partir de constituants d'origine biologique ou biosourcée, ici de matrice polymère organique et d'un renfort sous la forme de fibre continue.

Biocomposite hygromorphe (HBC) : biocomposite conçu pour réagir morphologiquement aux variations d'humidité.

Actionnement passif : mouvement induit sans apport externe d'énergie, en réponse directe à un stimulus environnemental (humidité, température).

Actionnement actif : mouvement provoqué par une commande externe (électrique, hydraulique, pneumatique…), impliquant un apport d'énergie.

Actionnement structurel : effet permettant de coupler la fonction structurelle (géométrique) et la fonction d'actionnement (mouvement et effort), ouvrant la voie à des systèmes intégrés sans actionneurs conventionnels.

Hygromorphisme : propriété d'un matériau ou d'un système de changer de forme en réponse à une variation de l'humidité environnementale, impactant donc sa teneur en eau.

Hydromorphisme : propriété d'un matériau ou d'un système de changer de forme ou de structure en réponse à une immersion dans l'eau.

Densité d'énergie : quantité d'énergie stockée ou générée par un système en joules. Dans le cadre des matériaux activés à l'aide de stimuli, elle résulte de la capacité de déplacement et d'effort générée.

Densité d'énergie volumique : énergie stockée ou fournie par unité de volume ($J.cm^{-3}$).

Densité d'énergie spécifique : énergie par unité de masse volumique ($J.\ cm^3.g^{-1}$). Ce paramètre est principalement utilisé pour comparer la performance énergétique de matériaux légers dans des applications de stockage ou de conversion d'énergie (batteries, carburants, composites, etc.).

Paramètres de slicing : paramètres de « tranchage » utilisés en fabrication additive (impression 3D), définissant l'épaisseur des couches successives, les vitesses d'impression, le

taux de remplissage, etc. Ces paramètres doivent être distingués des paramètres d'impression, qui relèvent des conditions procédés et environnementales (ex. température de buse ou du plateau).

Polymères et abréviations courantes :

Acide polylactique (PLA) : polymère biosourcé et dégradable en compost industriel issu d'amidon végétal (maïs, manioc), couramment utilisé en impression 3D.

MEB : microscope électronique à balayage.

PBAT : polybutylène adipate-co-téréphtalate, polymère biodégradable, flexible, souvent mélangé avec du PLA pour en améliorer les propriétés mécaniques.

PA : polyamide, famille de polymères résistants et thermiquement stables (ex : nylon).

PP : polypropylène, thermoplastique couramment utilisé, léger et résistant à l'eau.

PHA : polyhydroxyalcanoates, polymères naturels biodégradables produits par certaines bactéries lorsqu'elles accumulent des réserves d'énergie en conditions de stress.

PPMA (Polypropylène + Anhydride maléique) : polypropylène fonctionnalisé par greffage chimique de groupes anhydride maléique, afin d'améliorer sa compatibilité avec d'autres matériaux polaires.

Abréviations techniques et d'analyses :

cFF : fil continu de lin.

S2 : couche composant la paroi cellulaire secondaire dans les fibres végétales.

MFA (MicroFibril Angle) : angle des microfibrilles de cellulose au sein de la paroi S2 des fibres élémentaires végétales vis-à-vis de l'axe longitudinal.

MEB : Microscopie Électronique à Balayage (Scanning Electron Microscopy = SEM).

MC (moisture content) : teneur en eau dans un matériau.

LH : hauteur de couche imprimée.

ID : distance interfilamentaire.

RA (Raster angle) : angle de trajectoire d’impression.

Introduction générale

Dans un contexte de changement climatique, le groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC) a publié en mars 2023 un rapport de synthèse du 6ème rapport d'études de 2021 à 2023 retraçant l'impact environnemental de l'activité humaine [1]. Les 3 axes abordés sont : le statut actuel des conditions et des tendances climatiques observées, soit une augmentation de 1.1 °C entre 1850 et 2020 ; de futurs risques environnementaux comportant un accroissement des évènements extrêmes et irréversibles ; une feuille de route pour des actions tant sur les plans politique, technologique que scientifique.

Depuis plusieurs années, l'institut de recherche Dupuy de Lome (IRDL UMR CNRS 6027) contribue de manière significative aux axes prioritaires de recherche scientifique identifiés notamment en termes de concepts de matériaux à impact environnemental maitrisé sur l'ensemble du cycle de vie. Ainsi, le développement de biocomposites intégrant des ressources renouvelables comme les fibres naturelles (lin ou chanvre) et de polymères biosourcés et biodégradables (PHA) s'accompagne d'analyses du cycle de vie pour justifier leurs impacts environnementaux.

Piloté par l'équipe BIONICS et soutenu par l'Agence nationale de la recherche (ANR), le projet ANR REDESIGN 4D s'inscrit dans une démarche de développement de nouveaux matériaux adaptatifs issus de ressources locales et renouvelables. Dans un contexte de transition écologique et de recherche de solutions sobres en énergie, le projet explore le potentiel de biocomposites hygromorphes capables d'utiliser les variations d'humidité afin de générer des déformations mécaniques contrôlées.

Les structures déployables conventionnelles reposent principalement sur des systèmes d'actionnement actif nécessitant une conversion d'énergie, qu'elle soit de nature électrique, thermique ou pneumatique. Toutefois, l'émergence d'une nouvelle génération d'actionneurs s'appuie sur les principes du biomimétisme et les avancées de l'impression 4D afin de reproduire et de tirer parti des mécanismes de réponse propres aux fibres naturelles. Ces matériaux dits « intelligents » sont conçus pour réagir de manière autonome à des stimuli environnementaux tels que les variations de température ou d'humidité. En l'absence d'apport énergétique exogène, ils sont capables de générer des déformations ou des mouvements

significatifs, ouvrant la voie à des solutions passives et durables pour l'autodéploiement des structures.

Les deux verrous identifiés à la mise en application de ces matériaux, lors de la création du projet, sont : i) les actionnements hygroscopiques sont lents et non contrôlés et ii) le déploiement n'est pas la seule fonction requise aux HBC, la génération d'efforts et le compromis déplacement/effort sont peu étudiés dans la littérature. Chacun de ces verrous constitue un travail de recherche à part entière. Les premiers travaux, effectués à l'INRAE de Nantes, portent sur la modification et la fonctionnalisation chimique des fibres de lin pour leur adjoindre une conductivité électrique et ainsi régir les mécanismes de désorption d'eau et *in fine* contrôler le déploiement réversible de la structure par chauffage induit par l'effet Joule.

Le second travail de thèse, présenté dans ce document, consiste en la compréhension des relations entre l'architecture multiéchelle de biocomposites hygromorphes réalisés par impression 4D et leurs capacités d'actionnement tant en termes de déplacements que d'efforts induits. Afin de répondre à ces problématiques, ce manuscrit se compose de cinq chapitres :

Le **Chapitre 1** consiste en un état de l'art reprenant le cadre historique et conceptuel des actionneurs bioinspirés hygromorphes, leurs compositions, les principes de fonctionnement et leurs procédés de fabrication, notamment par impression 3D/4D.

Le **Chapitre 2** reprend la description des matériaux bruts ou transformés ainsi que les protocoles expérimentaux développés. Il décrit les modifications des équipements de production des filaments et d'impression, les méthodes de préparation des échantillons pour l'analyse microstructurelle ainsi que les techniques de conditionnement assurant la fiabilité des essais. Enfin, les protocoles de caractérisation des filaments et les dispositifs de mesure des efforts et des déplacements générés y sont exposés.

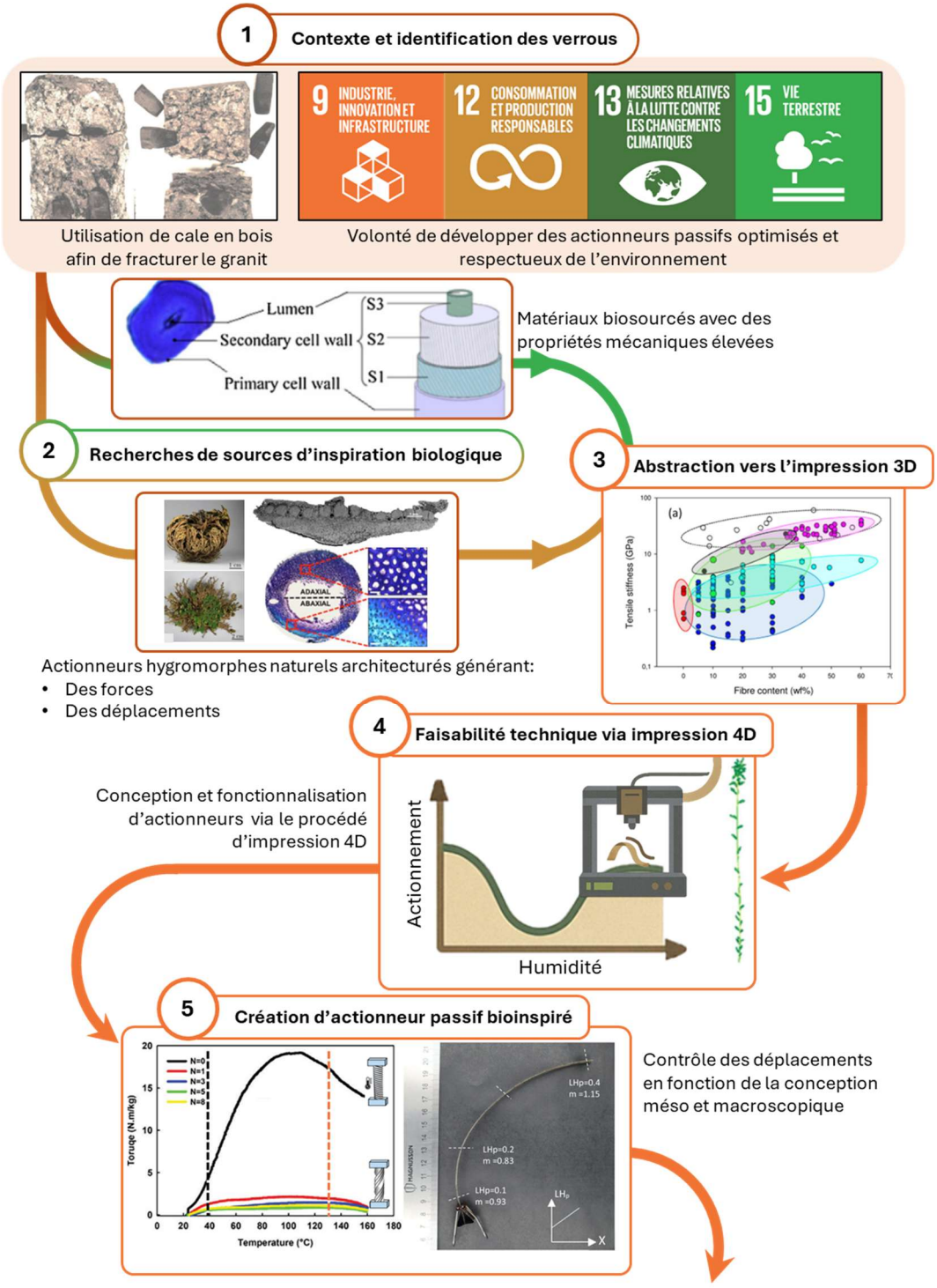
Le **Chapitre 3** retrace la méthode de coextrusion des filaments de biocomposites. Les résultats obtenus comportent une étude rhéologique de la matrice utilisée, un suivi de la microstructure et une analyse des performances mécaniques relatives en traction des filaments coextrudés d'acide poly-lactique (PLA) renforcés de fibres continues de lin (cFF).

Le **Chapitre 4** se focalise sur l'identification des mécanismes d'hydroexpansion libre et d'hydroexpansion bloquée, lors de tests d'immersion dans l'eau, des biocomposites hygromorphes élaborés par impression 4D. Cette hygroexpansion provoque une force de blocage qui est caractérisée en fonction des paramètres de slicing. Une comparaison est réalisée avec un modèle biologique suivant une méthodologie de biomimétisme « Top-Down », soit une essence d'épicéa reconnue pour disposer de propriétés naturelles d'actionneurs structurels. Les résultats sont *in fine* comparés avec des actionneurs passifs naturels ou non.

Le **Chapitre 5** propose une étude sur l'influence de la géométrie des HBC (cubique, parallélépipédique élancée et tubulaire). Ils sont mis en parallèle sur les capacités d'expansion, de génération de force et de densité d'énergie volumique.

Ce manuscrit se termine par une conclusion et une proposition de perspectives.

Chapitre 1 : Bibliographie



Actionneurs Bioinspirés Imprimés 4D à partir de filaments composites à renforts continus naturels

1. Cadre conceptuel et motivation

1.1. Introduction générale et problématique environnementale

1.1.1. Contexte historique

Vers 3500 ans av. J.-C., dans le cadre de la construction pharaonique de monuments tels que la pyramide de Khéops (Gizeh, Egypte), plus de deux millions de roches de granit ont été extraites et utilisées, les plus lourdes pesant jusqu'à 2.5 tonnes [2]. Les bâtisseurs de l'époque ont mis en place des méthodes artisanales de fracturation des blocs afin de faciliter leur manutention. Parmi ces méthodes, l'utilisation de coins de bois séchés introduits au cœur de cavités creusées dans la roche a permis, après réhydratation, de générer suffisamment d'efforts pour fracturer la roche. Plusieurs traces de ce procédé ont été retrouvées sur l'Obélisque inachevé (Assouan, Egypte), où l'utilisation de bois d'acacia rouge a pu être confirmée (cf. Figures 1a, b et c) [3].



Figure 1 : a) Photographie des cavités présentes sur le site d'extraction de granit d'Assouan en Egypte. b) Reconstitution des fractures de granits réalisée à l'aide de cales de bois [3]. c) Photographie aérienne de l'obélisque inachevé (Assouan, Egypte). d) Photographie du sarcophage de Mars et Rhéa Silvia réalisé au IIIème siècle av. J.-C en marbre blanc de Carrare (réalisé Par Sailko - Travail personnel, CC BY 3.0, https://commons.wikimedia.org/w/index.php?curid=76703268)

Au III^{ème} siècle av. J.-C., ces méthodes subsisteront dans le cadre d'excavation de marbre avec, par exemple, la mine de Carrare en Italie, où le bois de figuier était couramment utilisé pour le débitage de la pierre. Cette technique a notamment permis l'extraction du marbre ayant servi à la réalisation du sarcophage de Mars et Rhéa Silvia (cf. Figure 1d) [4]. Ces méthodes seront abandonnées pour laisser place aux inserts métalliques et aux autres méthodes

d'excavation assistées de technologies contemporaines [5]. L'emploi du bois comme moyen de fracturer de la roche, attesté sur une période d'environ 4000 ans, illustre de manière remarquable la capacité de ce matériau naturel à générer des efforts significatifs grâce à son importante hygroexpansion. Ce procédé met ainsi en évidence le potentiel d'exploitation de matériaux biosourcés capables de produire un travail mécanique à partir de stimuli environnementaux. Suivant une démarche de biomimétisme, il apparaît tout à fait pertinent de considérer les structures du bois, observables aux échelles micro-, méso- et macroscopiques, comme des modèles biologiques de référence.

Dans une époque soucieuse des ressources employées, de la quantité d'énergie consommée et de la fin de vie des produits, la recherche concernant l'actionnement hygromorphique couplé à l'utilisation de matériaux responsables est un sujet pertinent.

1.1.2. Contexte actuel et enjeux environnementaux

Selon le rapport spécial du GIEC de 2018 faisant suite aux accords de Paris en 2015, la température moyenne globale planétaire augmente actuellement de 0.2 ± 0.1 °C par décennie en raison des activités humaines passées et actuelles [6]. Les conséquences environnementales sont multiples : hausse du niveau de la mer, désertification des sols, températures extrêmes, insécurité alimentaire... En 2015, les 193 états membres de l'ONU ont adopté un programme intitulé « Agenda 2030 » dans le but de pallier ces conséquences. Il comporte 17 cibles ou défis de développement durable [7] : le climat, la biodiversité, l'énergie, l'eau, la pauvreté, l'égalité des genres, la prospérité économique ou encore la paix, l'agriculture, l'éducation, etc.



Figure 2 : Objectifs de développement durable dans lesquels s'inscrit la création d'actionneurs passifs [7].

Les actionneurs passifs composés de matrice polymère souple, aussi appelés « soft-actuators », sont des matériaux intelligents, capables de réagir à leur environnement sans motorisation. De plus, ils peuvent être réalisés et conçus à l'aide de ressources locales biosourcées et compostables industriellement (NF EN ISO 13432 [8]) et s'inscrivent principalement dans 4 de ces 17 objectifs (cf. Figure 2) : l'industrie, l'innovation et les infrastructures en proposant une innovation technologique responsable et durable ; la consommation et la production responsables en utilisant des ressources naturelles locales réduisant la dépendance des ressources pétro-sourcées; la lutte contre les changements climatiques en réduisant les émissions de CO_2 et en s'alignant avec une décarbonation des secteurs industriels ; et la vie terrestre dans le cadre d'une préservation des sols en proposant des alternatives à l'utilisation d'actionneurs utilisant des énergies issues de ressources fossiles.

Entre 2004 et 2024, le nombre d'articles relevés par Science Direct® comportant le terme « soft actuators » a été multiplié par 12 et « Biomimicry » a été multiplié par 15 (cf. Figures 3a et b), démontrant l'intérêt croissant des scientifiques pour ces thématiques. Ces deux domaines sont étroitement liés, notamment dans le cadre du développement d'actionneurs hygromorphes qui visent à reproduire les mécanismes adaptatifs observés dans les systèmes naturels. Aujourd'hui, l'importance du développement d'actionneurs passifs relève donc de décisions environnementales, scientifiques et politiques.

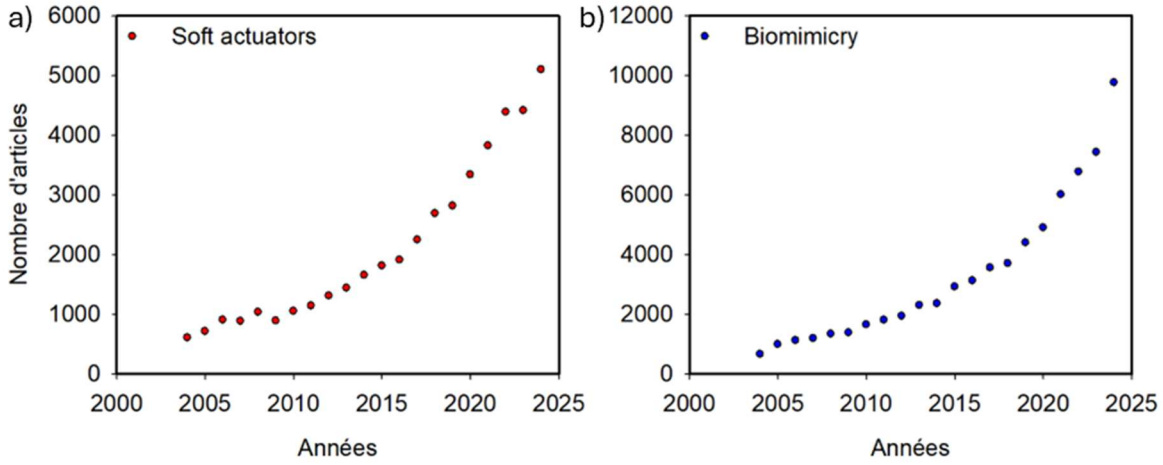


Figure 3 : Evolution de l'utilisation des termes a) « Soft actuators » et b) « Biomimicry » au sein des articles scientifiques publiés par Science Direct® entre 2004 et 2024.

1.2. Définition et classification des actionneurs

1.2.1. Définition d'un actionneur mécanique

L'actionnement mécanique est un processus par lequel un système ou un matériau convertit une entrée énergétique ou un stimulus externe en une sortie mécanique caractérisable sous la forme de déplacement ou de déformation, de force et de génération d'énergie (cf. Figure 4) [9]. Cette transformation est active lorsqu'elle est induite par une source d'énergie externe contrôlée, électrique [10], pneumatique [11] ou hydraulique [12]. Dans le cas d'un actionnement passif, elle repose sur des interactions avec l'environnement telles que des variations thermiques [13] ou hygroscopiques [14].

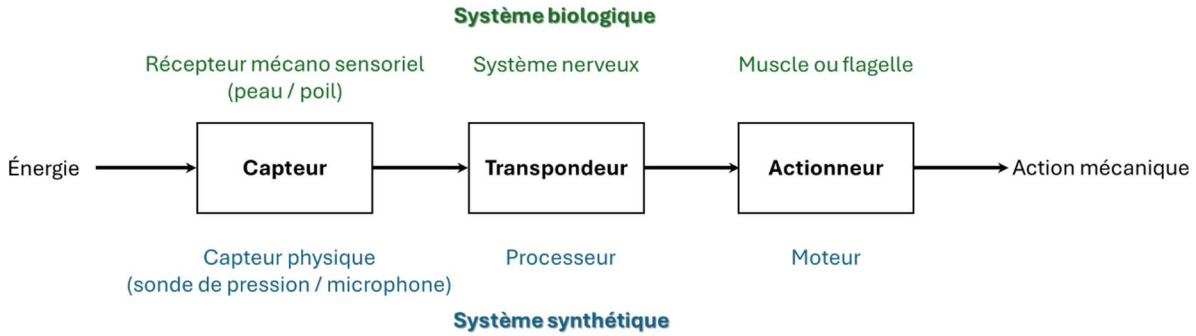


Figure 4 : Mise en parallèle de la chaîne fonctionnelle capteur-transpondeur-actionneur dans les systèmes biologiques et synthétiques [15][16].

La diversité des actionneurs mécaniques couvre un large spectre de systèmes complexes, allant des muscles biologiques, qui assurent le mouvement chez les organismes vivants, jusqu'aux moteurs thermiques.

1.2.2. Les indicateurs clés de performances des actionneurs

Par leur large variété, les actionneurs mécaniques peuvent utiliser comme entrée une énergie chimique, électrique, mécanique ou magnétique. Leurs performances sont comprises dans une vaste gamme de déplacements et de forces alors que leur usage peut cibler des applications soumises à des millions de cycles ou à une action unique. Dans le but de les caractériser, pour les sélectionner de manière optimale, Huber *et al.* [9] ont identifié plusieurs propriétés propres aux actionneurs (cf. Figure 5) telles que la contrainte d'actionnement P (MPa) représentant la force F (N) produite normalisée par la section de l'actionneur (mm²), la déformation de l'actionneur ε (%) représentant le déplacement relatif aux dimensions initiales de l'actionneur et la densité d'énergie volumique $E_{d\ volumique}$ ou spécifique $E_{d\ spécifique}$

correspondant à l'énergie générée (en joules) normalisée par le volume ou la masse de l'actionneur, respectivement. De plus, les actionneurs sont aussi caractérisés par leur masse volumique ρ (g.cm^{-3}), par leur module d'élasticité E (MPa) ainsi que par leur fréquence d'utilisation f (Hz).

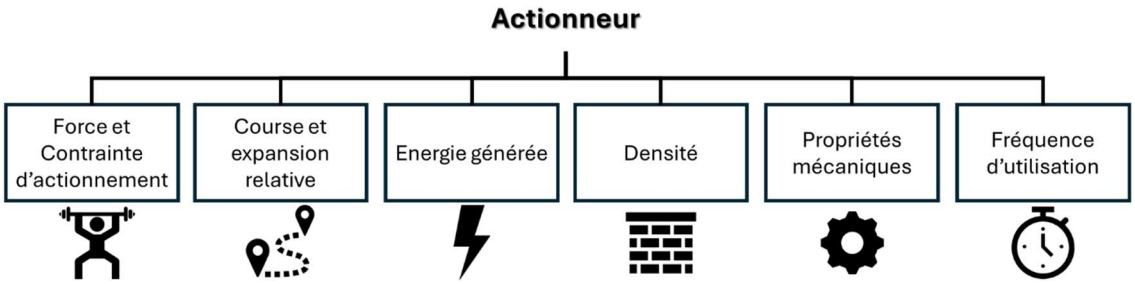


Figure 5 : Propriétés caractérisant un actionneur mécanique adapté de Huber *et al.* [9].

En s'appuyant sur les travaux d'Ashby *et al*. [17] qui traitent de la classification des matériaux et ceux de Hill *et al*. [18] qui concernent la caractérisation des actionneurs à l'aide de courbes « force-course », une classification des actionneurs a été proposée selon la densité d'énergie générée en fonction des propriétés mécaniques ou bien du nombre d'utilisations, comme représentée en Figures 6.

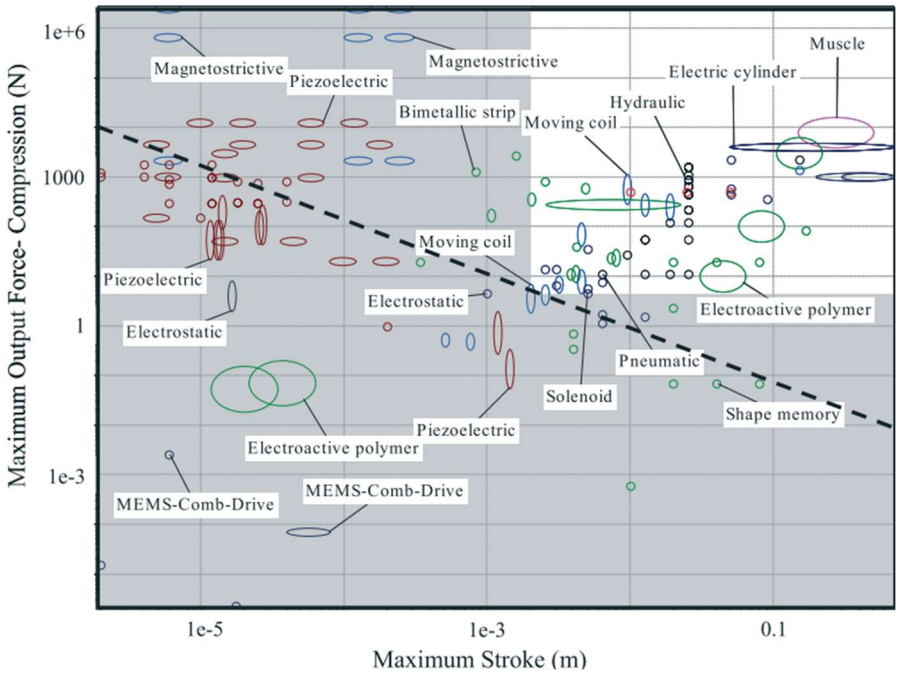


Figure 6 : Classement de familles d'actionneurs en fonction des courbes « forces-course » développées par Hill *et al*. [18] et réalisé par Zupan *et al*. en 2002 [19].

Dans la mesure où ces matériaux agissent comme des convertisseurs d'énergie, il apparaît pertinent d'examiner les gammes de densité d'énergie spécifique générées par les sources d'énergie initiales. A titre d'exemple, le pétrole présente une densité d'énergie spécifique de l'ordre de 2×10^4 J.g^{-1}, tandis que les batteries au plomb offrent une valeur typique d'environ 1×10^2 J.g^{-1} [20] et les batteries avancées peuvent atteindre jusque 1×10^3 J.g^{-1}. En ce qui concerne les sources renouvelables, l'énergie solaire et l'énergie éolienne présentent des densités d'énergie spécifiques estimées entre 6 et 2.4×10^2 J.g^{-1}, respectivement. Enfin, les énergies issues des réactions nucléaires affichent des valeurs nettement supérieures, de l'ordre de 8×10^{10} J.g^{-1} pour la fission nucléaire et 3×10^{11} J.g^{-1} pour la fusion [19]. Bien que ces valeurs permettent de situer les ordres de grandeur des différentes sources d'énergie, elles doivent désormais être recontextualisées à la lumière de leur impact environnemental. L'évaluation de la performance énergétique devrait ainsi être normalisée en intégrant des indicateurs environnementaux quantitatifs, tels que le coût et la faisabilité énergétique de production ou de recyclage des matériaux impliqués.

1.2.3. Les catégories d'actionneurs passifs

L'actionnement passif est largement répandu dans des applications du quotidien, notamment les capteurs thermiques [21] ou hygroscopiques [22]. Le couplage direct entre la stimulation externe et la réponse mécanique confère à ces éléments un comportement de capteur et d'actionneur. Ce principe de transduction réciproque, dans lequel une variation d'un paramètre environnemental induit une déformation mesurable, fait de l'actionneur passif un capteur intrinsèque [15].

Les actionneurs synthétiques désignent des dispositifs capables de produire un mouvement, une déformation ou une force mécanique sous l'effet d'un stimulus externe contrôlé, tel qu'un champ électrique, thermique, magnétique ou chimique. Conçus à partir de polymères fonctionnels [23] ou de composites thermoactifs [24], ils convertissent une énergie d'entrée en travail mécanique utile. Leur performance dépend fortement de la nature chimique du matériau, de la cinétique de réponse, de l'efficacité de la conversion énergétique mais surtout de ses propriétés mécaniques. Ces systèmes sont largement utilisés dans les domaines de la robotique, des capteurs intelligents et des dispositifs adaptatifs, où ils offrent une réponse programmable.

Parmi les actionneurs passifs, les actionneurs biologiques sont des systèmes naturels capables de convertir un stimulus environnemental (humidité, température, potentiel chimique ou électrique) en réponse mécanique. Leur fonctionnement repose sur des mécanismes couplés de transport de masse et de déformation structurale au sein de systèmes hiérarchisés, souvent à base de polymères naturels tels que la cellulose ou la lignine. Ces structures (pomme de pin, plantes de la résurrection, fibre de lin…) présentent une anisotropie architecturale et une réponse réversible, souvent sans apport énergétique externe. Cette capacité d'actionnement découle de l'adaptation des systèmes biologiques à leur environnement dans le but de se reproduire, se déplacer ou se nourrir.

1.3. Pourquoi s'inspirer du vivant ? (Biomimétisme, enjeux, contexte de durabilité)

Selon la norme ISO 18458 :2015 [25] qui établit un cadre de référence pour les applications industrielles et scientifiques, la biomimétique repose sur l'analyse des systèmes biologiques pour identifier des solutions à des problématiques techniques, favoriser l'émergence de nouvelles inventions et innovations, et transférer ces connaissances à des systèmes techniques.

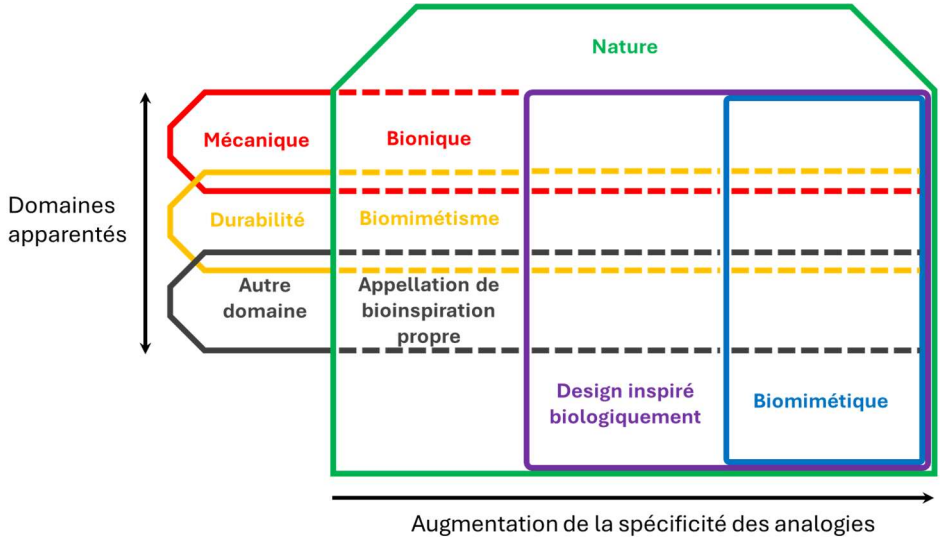


Figure 7 : Schématisation des liens reliant les différents domaines de la bioinspiration selon la norme ISO 18458 :2015, adapté de Fayemi *et al*.[26]

Décrite par la norme citée précédemment et schématisée par Fayemi *et al.* [26] en Figure 7, le cadre terminologique appartenant au domaine du biomimétisme définit les termes : Bionique

comme une discipline technique qui cherche à reproduire, améliorer ou remplacer des fonctions biologiques par leurs équivalents électroniques ou mécaniques ; Biomimétisme comme une philosophie conceptuelle interdisciplinaire prenant pour modèle la nature afin de relever les défis du développement durable ; Biomimétique correspondant à la coopération interdisciplinaire de la biologie et de la technologie ou d'autres domaines d'innovation dans le but de résoudre des problèmes pratiques par le biais de l'analyse fonctionnelle des systèmes biologiques, de leur abstraction ainsi que du transfert et de l'application de ces modèles à la solution.

Introduit en 1957 par Otto Schmitt [27], le biomimétisme est aujourd'hui largement appliqué dans des domaines techniques variés. Il est possible de citer l'inspiration de l'hygrosensibilité des écailles des pommes de pin pour concevoir des volets réagissant aux variations environnementales (cf. Figure 8a)[28], l'optimisation aérodynamique d'un véhicule réalisée par DaimlerChrysler® et inspirée du poisson coffre (*Ostracion cubicum*) (cf. Figure 8b)[29] ou encore l'optimisation climatique du gratte-ciel Eastgate (Harare, Zimbabwe) dont la régulation thermique passive s'inspire de l'architecture des termitières (cf. Figure 8c).

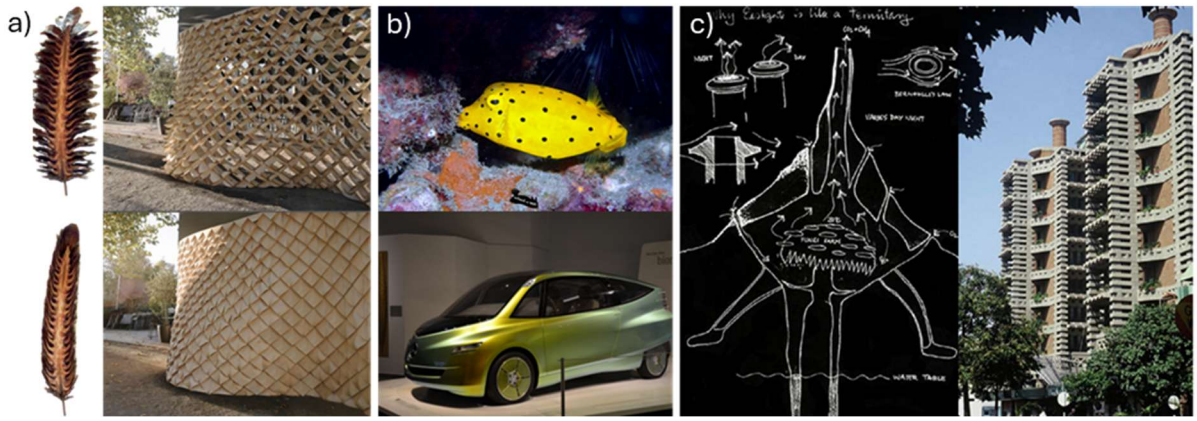


Figure 8 : a) Paroi actionnée par les variations hygroscopiques, architecturée et inspirée de la pomme de pin [28]. b) Prototype d'architecture de véhicule inspiré du poisson coffre afin d'optimiser l'aérodynamisme [29]. c) Gratte-ciel Eastgate (Harare, Zimbabwe) possédant une architecture thermorégulatrice et bioinspirée des termitières [30].

Deux approches de la biomimétique sont complémentaires selon Helms *et al.* [31] : « Bottom-up » (cf. Figure 9a) qui part d'un principe biologique observé pour en explorer les applications possibles et « Top-down » (cf. Figure 9b) partant d'un problème technique pour chercher une solution dans la nature.

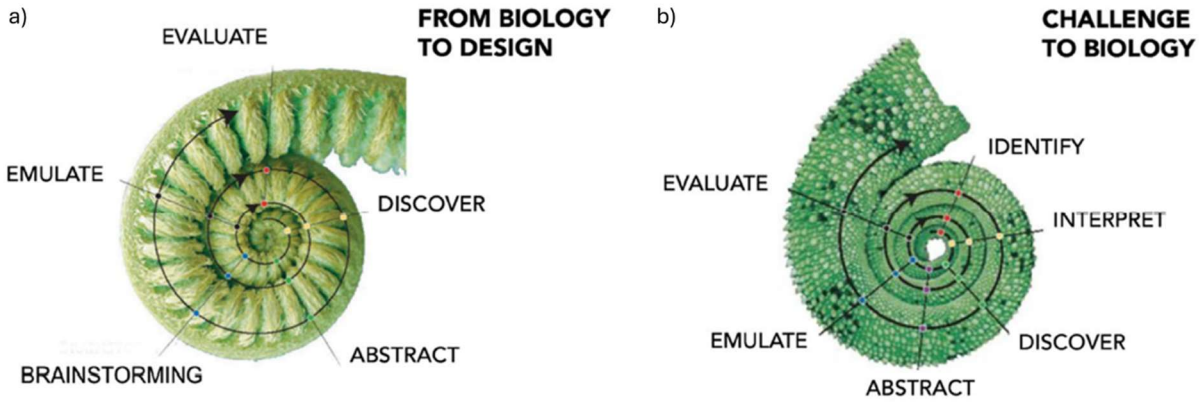


Figure 9 : Schématisation en spirale de la méthodologie biomimétique a) « Bottom-up » et b) « Top-down » interprétée par Rivas *et al*. [32]

Dans le cadre de ces travaux de thèse, le choix s'est porté sur l'application d'une méthodologie biomimétique « Top-down » décrite par *Helms et al.* [31]. Cette méthode suit 7 étapes : La définition des caractéristiques du système actuel, l'identification des verrous techniques, la recherche de sources d'inspirations biologiques, le discernement des principes clés de fonctionnement, l'abstraction vers le sujet d'application, la faisabilité technique des solutions apportées et la création du produit bioinspiré.

2. Inspiration biologique : les mécanismes naturels d'actionnement

2.1. Architectures et mécanismes d'actionnement chez les plantes.

L'actionnement mécanique au sein du monde vivant s'illustre par le mouvement ou la force que produit un organisme en réponse à un stimulus. Cela inclut la contraction musculaire chez les animaux [33] mais aussi des mécanismes hydriques complexes chez les végétaux. En perpétuelle quête de survie, les systèmes biologiques se sont adaptés à leurs environnements [34] et sont capables de vivre en symbiose avec plusieurs espèces, végétales ou animales, dans le but de se nourrir [35], de polliniser, de se protéger [36] ou de se mouvoir [37][38].

2.1.1. L'organisation interne des fibres végétales

Le lin (cf. Figure 10) est composé de différentes parties telles que les feuilles, les racines et la tige, possédant chacune leurs fonctions et leurs structures propres [39]. A l'échelle macroscopique, la tige est constituée du xylème permettant la transmission de sève et d'eau au sein de la plante [40], de faisceaux de fibres apportant une rigidité mécanique [41] et d'une écorce protégeant des interactions extérieures. A l'échelle mésoscopique, les faisceaux de

fibres sont formés de fibres élémentaires à sections hexagonales figées dans une matrice appelée lamelle mitoyenne.

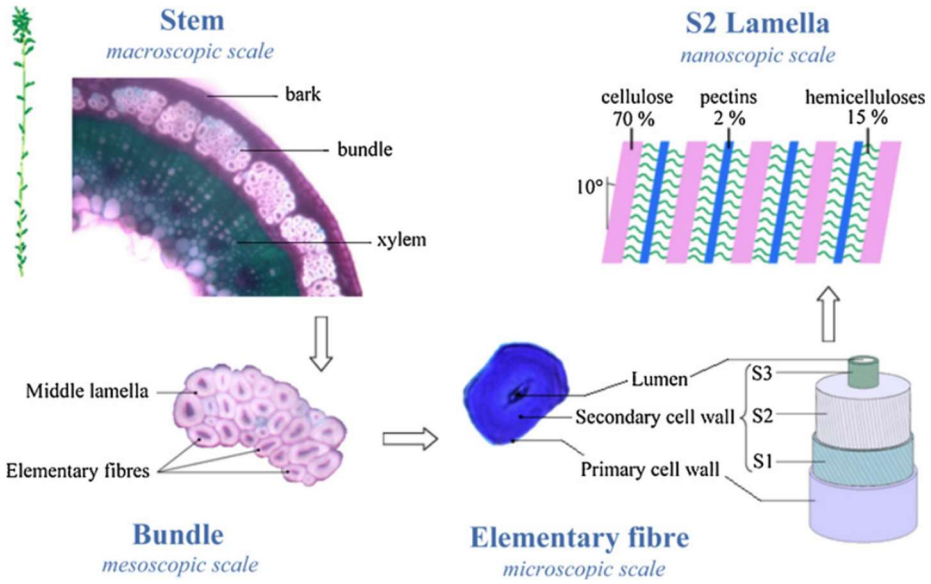


Figure 10 : Vue en coupe et schématisation des composants d'une fibre de lin à différentes échelles, de la fibre de la tige au fibrille de cellulose [42].

Chaque fibre unitaire est constituée d'un lumen entouré de parois cellulaires primaire et secondaire, conférant à l'ensemble du tissu une stabilité [42][43].

Les parois sont principalement composées de microfibrilles de cellulose, orientées selon des directions spécifiques en fonction du type cellulaire et du tissu concerné [44]. Ces microfibrilles sont intégrées dans une matrice polysaccharidique complexe, composée d'hémicellulose, de lignine et de pectine, qui assure la cohésion, la plasticité et la régulation des propriétés hygro-thermo-mécaniques du système (cf. Figure 10) [45]–[47]. L'architecture hiérarchique de l'ensemble est fondamentale dans le contrôle des mouvements chez les plantes. Les microfibrilles de cellulose, caractérisées par un module d'élasticité élevé (~140 GPa [48]) et une faible extensibilité, limitent l'expansion cellulaire dans la direction longitudinale de la fibre. Dans le cas particulier du lin, dont l'angle microfibrillaire est d'environ 10 °, cette contrainte peut même se traduire par une déformation longitudinale négative lors d'une sorption d'eau[49][50]. Tandis que la matrice amorphe, plus souple et hydrophile, est responsable des phénomènes de gonflement en réponse aux variations de teneur en eau [44][51]. Par conséquent, ce couplage hydromécanique affecte directement la rigidité du matériau.

2.1.2. Les mécanismes d'actionnement hydraulique chez les plantes

Chez les plantes, l'actionnement s'explique principalement par des transferts hydriques au sein de canaux et de cellules les composant [52]–[57]. Selon Dumais *et al*., les actionneurs naturels peuvent être classés selon deux mécanismes [58]: l'un basé sur la pression de turgescence et l'autre reposant sur l'expansion cellulaire.

La première utilise les phénomènes d'évaporation ou d'osmose de l'eau. Lorsque les cellules subissent des différentiels de pression, elles voient leur volume évoluer [52][58]. L'organisation structurelle de la paroi cellulaire, en particulier l'alignement et l'orientation des microfibrilles de cellulose, joue un rôle déterminant dans le comportement mécanique des cellules végétales. Par conséquent, ces paramètres contrôlent l'amplitude et la direction du gonflement cellulaire en réponse aux variations de pression [59]. Ce gonflement est induit par une augmentation de la pression de turgescence, générée par l'accumulation d'eau dans les cellules. Tant que cette pression reste modérée, la déformation conserve un comportement élastique. Toutefois, lorsqu'elle dépasse le seuil de propriétés mécaniques de la paroi cellulaire, la cellule cède de manière irréversible, traduisant une croissance active [60]. Ce comportement définit donc les cellules comme des matériaux élasto-viscoplastiques, capables de décrire à la fois une réponse élastique sous faibles contraintes et une réponse viscoplastique au-delà du seuil de turgescence critique [61][62].

La seconde catégorie correspond aux actionneurs passifs réversibles observés chez certaines structures végétales comme la pomme de pin [63]. Les tissus de soutien lignifiés sont constitués de cellules mortes dont la paroi secondaire a subi un fort épaississement par imprégnation de la lignine, conférant au matériau une rigidité élevée. Ce tissu est composé de fibres sclérenchymes et de sclérides. Les premières étant des cellules allongées, étroites et possédant un angle microfibrillaire (MFA) faible au sein de la couche S2. Les secondes étant des cellules courtes, de forme irrégulière et possédant un MFA élevé. Ce contraste fonctionnel permet à certains organismes végétaux de réaliser des mouvements sans consommation énergétique métabolique, comme par exemple les graines d'érodium [64] et l'avoine sauvage [65]. L'étude approfondie des composants et de leur arrangement dans les actionneurs naturels s'impose comme une étape essentielle pour appréhender la manière dont les systèmes biologiques génèrent des mouvements fonctionnels.

2.1.3. *Des plantes architecturées pour un actionnement passif et hydraulique*

Architectures des tissus

Les actionneurs naturels ont développé des architectures organisées dans le but d'optimiser leur fonction. Certaines plantes, comme la plante de la résurrection (cf. Figures 11a et b), possèdent un différentiel de densité entre des cellules nommées « adaxiales » pour les plus épaisses et « abaxiales » pour les plus étroites. Le différentiel de propriétés mécaniques entre les cellules possédant des parois cellulaires larges et fines se traduit, lors de la sorption d'eau, par la génération d'une courbure [66].

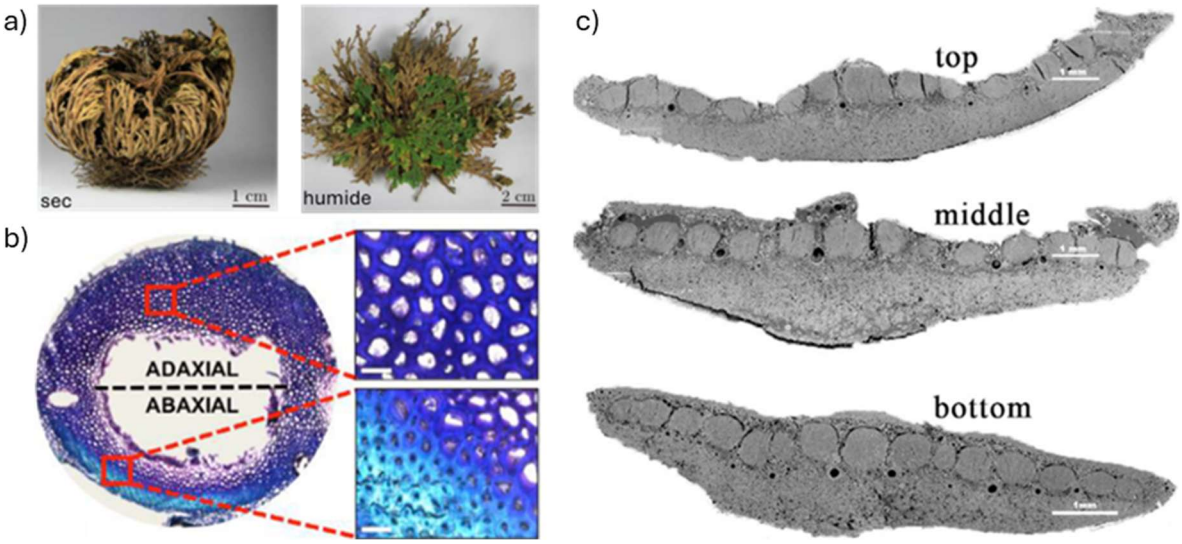


Figure 11 : a) Photographies de plante de la résurrection avant (gauche) et après (droite) exposition à l'humidité [66]. b) Images obtenues par MEB d'une section de tissus de plantes de la résurrection présentant les différences de densité entre les parties adaxiales et abaxiales des tiges [67]. c) Vues en coupe transversale d'une écaille de pomme de pin présentant une architecture de bilame asymétrique [68].

Architectures des fibres

Au sein de la couche S2 de la paroi secondaire des fibres élémentaires, plusieurs travaux de recherche ont mis en évidence le rôle déterminant de l'angle des microfibrilles (MFA) sur les propriétés mécaniques des fibres élémentaires [47][64][69][70]. En effet, plus le MFA se rapproche de 0 °, plus le module élastique longitudinal en traction est élevé. Ce comportement explique pourquoi les fibres de lin, possédant un MFA autour de 10 ° au sein de leur couche S2, présentent une anisotropie importante lors de leur hygroexpansion, comme représenté en Figure 12 [44][49]. De plus, il est observable que les contraintes générées par le gonflement sont drastiquement plus élevées lorsque le MFA est proche de 10°.

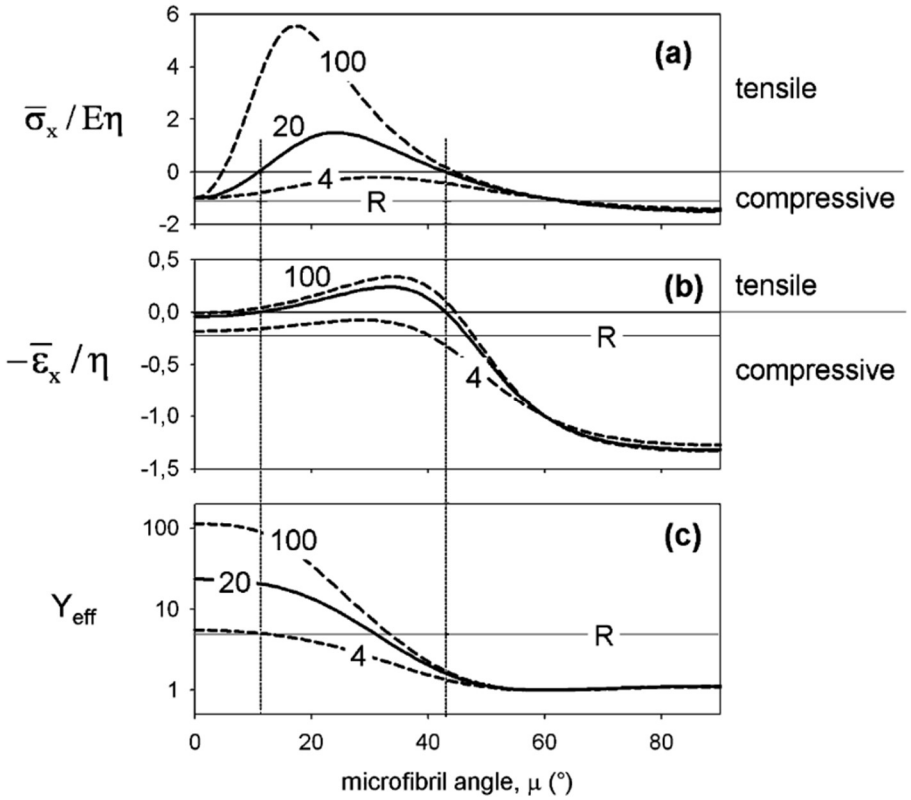


Figure 12 : a) Modélisation de l'évolution de la contrainte longitudinale σ_x générée par le gonflement lorsque la paroi cellulaire lignocellulosique ne peut pas changer de longueur, b) la déformation longitudinale ε_x générée sans contrainte appliquée et c) le module élastique longitudinal effectif du composite lignocellulosique constituant la paroi cellulaire, en fonction de l'angle microfibrillaire μ (°). Les données sont représentées pour 3 valeurs de module élastique effectif (4, 20 et 100). Les deux lignes verticales indiquent les valeurs de l'angle des microfibrilles où la contrainte et la déformation changent de signe, dans le cas de module élastique effectif de 20 [44].

Les écailles de pomme de pin s'appuient dans leur architecture sur l'anisotropie d'hygroexpansion des composants de son tissu et des fibres sclérenchymes (~35 %) et scléréides (~65 %). De composition quasi identique, avec un taux de cellulose proche de 20 %, ces fibres sont sensibles aux variations d'humidité. Cependant, leurs propriétés hygromécaniques sont drastiquement différentes, avec un module d'élasticité longitudinal des fibres de sclérenchyme de E_{fibre} = 4.53 ± 0.90 GPa et de $E_{scléreides}$ = 0.86 ± 0.05 GPa pour les scléréides et des coefficients d'hygroexpansion de β_{fibre} = 0.06 ± 0.02 et de $\beta_{scléreides}$ = 0.20 ± 0.04, respectivement. Par conséquent, les scléreides (MFA ~30 – 35 °) sont considérées comme la partie générant le mouvement (phase active) et les fibres de sclérenchyme (MFA ~0 °) comme la partie contraignante (phase passive) [70][71], dans leur arrangement en bilame asymétrique (cf. Figure 11c).

Il est important de souligner que la comparaison entre les différents actionneurs naturels demeure complexe, en raison de la grande diversité des mouvements produits par les plantes.

En effet, à l'échelle des fibres élémentaires, certaines structures végétales sont capables de générer des expansions rectilinéaires et radiales. À l'échelle du tissu, la structuration asymétrique, comme celle observée chez la pomme de pin, permet quant à elle d'engendrer des déformations de flexion à simple ou double courbure. Enfin, à l'échelle macroscopique, la combinaison de ces différents mécanismes conduit à des mouvements complexes résultant d'interactions multiéchelles. Ces différences soulignent la nécessité de préciser non seulement l'échelle d'observation et la géométrie et l'architecture interne du système étudié. Les performances d'actionnement observées dans la nature doivent ainsi être interprétées suivant cette hiérarchie structurale et fonctionnelle.

2.1.4. Les efforts générés par les actionneurs naturels

Les propriétés structurelles et architecturales des fibres et des tissus exercent une influence directe sur les performances globales d'actionnement de la plante. Toutefois, la comparaison des systèmes biologiques et la mesure des efforts générés sont rarement étudiées et/ou difficiles à établir en raison de la variété de formes et de mouvements étudiés (constriction, torsion, flexion, expansion… etc.) et de conditions expérimentales (état hydrique par exemple) ou environnementales. Huber *et al.* sensibilisent à normaliser les forces mesurées par la surface active, permettant une comparaison en termes de pression générée [9].

Il convient cependant d'analyser avec précaution certaines valeurs expérimentales rapportées dans la littérature. Par exemple des valeurs de forces bloquées, représentant les efforts générés lorsque les mouvements dans le sens de mesure sont contraints, comprises entre 10^{-3} et 10^{-1} N ont été mesurées pour de la flexion chez *Drosera capensis* [72]. De plus, des forces jusqu'à 45×10^{-3} N sont enregistrées lors de la torsion observée chez une graine d'érodium exposée 70 minutes à un environnement humide non contrôlé [73]. En ce qui concerne les écailles de pommes de pin préalablement séchées, les forces mesurées varient entre 2.2 ± 0.1 et 3.1 ± 0.5 N lors d'une immersion en eau déminéralisée pour les écailles inférieures et supérieures respectivement [68]. Rafsandjani *et al.* ont montré l'augmentation de la force de blocage de flexion de tige de plante de la résurrection, entre 3 et 10.5 N lors du séchage de 60 à 50 % RH [66].

Ces valeurs mesurées ne peuvent pas être directement comparées en raison de l'absence de standardisation et par conséquent ne reflètent pas les propriétés intrinsèques des tissus étudiés.

Bien que ces essais soient généralement réalisés selon des protocoles non standardisés, Perkitny *et al.* ont proposé, en 1938, un protocole expérimental (cf. Figure 13a) de mesure des forces et des déplacements générés par des essences de bois lors d'essais de sorption d'eau [74]. En contraignant le déplacement, il est possible de mesurer les forces maximales résultantes lors de la sorption d'eau. A l'inverse, en appliquant une force quasi nulle, les auteurs quantifient l'hydroexpansion maximale/libre du matériau.

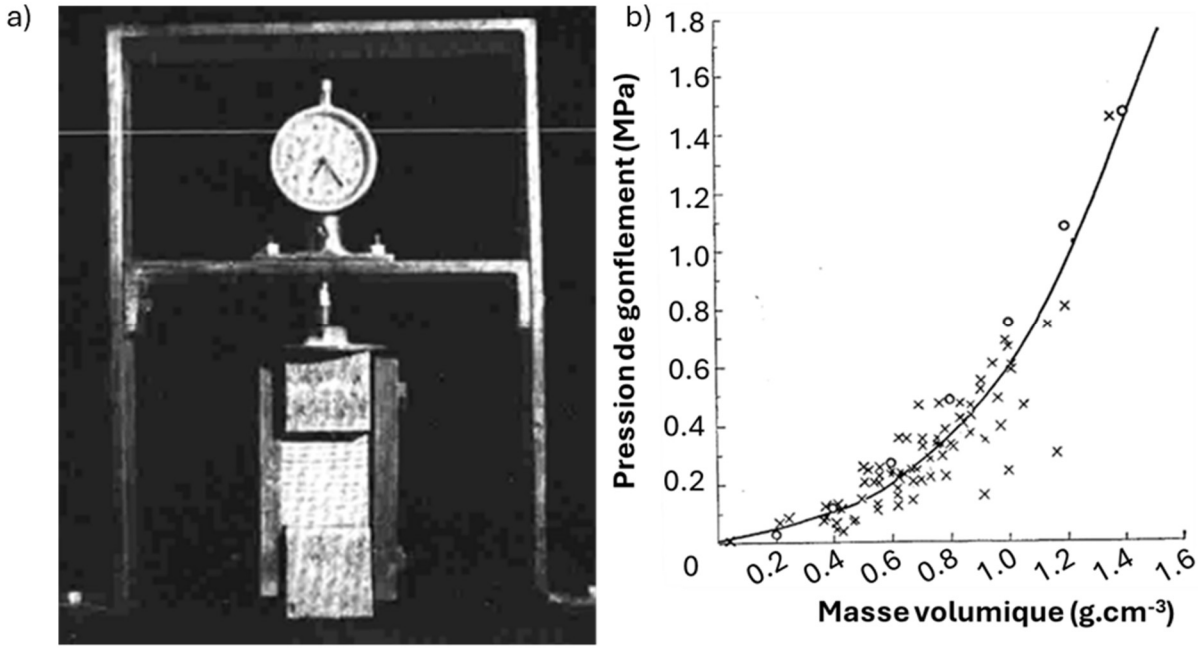


Figure 13 : a) Dispositif de mesure en continu des pressions de gonflement réalisé en 1938 par Perkitny *et al*. [74] b) Evolution des pressions de gonflement (MPa) générées par des essences de bois en fonction de la densité des cellules. [75]

Parmi les actionneurs naturels, les essences de bois présentent les pressions de gonflement les plus élevées, corrélées à des densités d'énergies spécifiques remarquables selon les orientations transverses et hors plan (épaisseur). Celles-ci varient de 9.2 ± 0.3 J.cm^3.g^{-1} pour de l'essence d'épicéa jusqu'à 477.8 ± 17.1 J.cm^3.g^{-1} pour le *Lignum vitae* ou *Guaiacum officinale* [75]. Les données de la littérature sont regroupées dans le tableau 1.

D'après les auteurs, ces propriétés d'actionnement sont principalement attribuées au rapport entre l'épaisseur des parois des cellules et le diamètre du lumen influençant directement la

densité du matériau et sa capacité à générer des contraintes internes importantes lors de la sorption (cf. Figure 13b). Dans ces travaux, les paramètres structuraux tels que les angles microfibrillaires, ainsi que les variations de composition chimique entre espèces de bois, n'ont pas été pris en compte. Cela représente une limite importante de la littérature existante, dans la mesure où ces facteurs influencent directement le comportement hydromécanique des matériaux.

Tableau 1 : Capacité d'actionnement des actionneurs naturels dans la littérature [63][65][66][68][73][75]–[80]

	Mouvement	Force	Déplacement	Pression de gonflement	Expansion relative	Densité d'énergie
		N	mm	MPa	%	J.cm^{-3}
Cedrus decdara	Linéaire hors plan	2.8	0.12	0.11	2.4	13.5
Tectona grandis (old)	Linéaire hors plan	3.1	0.14	0.12	2.7	16.7
Cryptomeria japonica	Linéaire hors plan	2	0.22	0.08	4.4	17.8
Pterocarpus dalbergicdes	Linéaire hors plan	4	0.12	0.16	2.4	18.8
Alnus nepalensis	Linéaire hors plan	1.6	0.29	0.07	5.8	18.9
Balsa	Linéaire hors plan	1.7	0.29	0.07	5.7	19.5
Aesculus indica	Linéaire hors plan	2.8	0.18	0.11	3.6	19.6
Abies pindrow	Linéaire hors plan	2.1	0.34	0.09	6.7	28.6
Tectona grandis	Linéaire hors plan	6	0.14	0.24	2.8	33.6
Pterocarpus macroarpus	Linéaire hors plan	5.6	0.16	0.22	3.2	35.7
Morus serrata	Linéaire hors plan	5.1	0.21	0.21	4.1	42.1
Acacia Chundra	Linéaire hors plan	6.2	0.18	0.25	3.5	43.1
Gluta tavoyana	Linéaire hors plan	8.3	0.17	0.33	3.3	55
Bridelia retusa	Linéaire hors plan	7.2	0.2	0.29	4	57.3
Cedreda toona	Linéaire hors plan	5.2	0.28	0.21	5.7	58.7
Tectonia grandia	Linéaire hors plan	8.8	0.18	0.35	3.5	61.7
Hardwickia binata	Linéaire hors plan	7.6	0.12	0.3	2.4	62.2
Fraxinus floribunda	Linéaire hors plan	5.3	0.32	0.21	6.4	68.4
Quercus lamellosa	Linéaire hors plan	9.3	0.2	0.37	3.9	72.1
Acer-campbellii	Linéaire hors plan	5.5	0.33	0.22	6.6	72.9
Bursera serrata	Linéaire hors plan	9.6	0.2	0.39	3.9	75.1
Picea smithiana	Linéaire hors plan	6.5	0.35	0.26	7	90.7
Michelia champaca	Linéaire hors plan	5.8	0.41	0.23	8.1	94.3
Dipterccarphus spp.	Linéaire hors plan	6	0.41	0.24	8.1	96.6

Zanthoxylum rhetsa	Linéaire hors plan	9	0.29	0.36	5.7	102.3
Dysoxylum malabaricum	Linéaire hors plan	5.8	0.45	0.23	8.9	103.3
Talauma hodgsoni	Linéaire hors plan	6.5	0.42	0.26	8.3	107.8
Juglans regia	Linéaire hors plan	8.9	0.32	0.35	6.4	113.3
Dalbergia sissoo	Linéaire hors plan	8.1	0.37	0.32	7.3	118.5
Acacia catechu	Linéaire hors plan	11.9	0.28	0.47	5.5	130.4
Castanopsis tribuloides	Linéaire hors plan	7.4	0.46	0.3	9.1	134.5
Dillenia pentagyna	Linéaire hors plan	7.1	0.54	0.28	10.8	153.6
Pterocarpus santalinus	Linéaire hors plan	18.9	0.22	0.76	4.3	162.3
Palaquium spp	Linéaire hors plan	11.6	0.38	0.46	7.6	174.9
Chloroxylon swietenia	Linéaire hors plan	15.2	0.29	0.61	5.8	176.3
Diospyros spp Ebony	Linéaire hors plan	11.7	0.39	0.47	7.7	181.2
Santalum album	Linéaire hors plan	10.8	0.42	0.43	8.4	181.7
Terminalia chebula	Linéaire hors plan	12.3	0.4	0.49	8	197.4
Hopea parviflora	Linéaire hors plan	11.6	0.44	0.46	8.8	204.2
Olea ferruginea	Linéaire hors plan	16.9	0.32	0.67	6.3	212.5
Kayea assamica	Linéaire hors plan	13	0.45	0.52	9	233.6
Diospyros spp Ebony	Linéaire hors plan	15	0.44	0.6	8.7	261.9
Terminalia pallida	Linéaire hors plan	20.5	0.48	0.82	9.5	389
Lignum vitae	Linéaire hors plan	26.9	0.45	1.07	8.9	648.4
Fly trap	Flexion	/	30 - 70	/	/	/
Drosera capensis	Flexion	10^{-3} - 10^{-1}	/	/	/	/
Arête d'épis de blé	Flexion	/	19	/	/	/
Ecaille de pomme de pin	Flexion	2.2 - 3.3	16.2 - 20	/	/	/
Plante de la résurrection	Flexion	3 - 10.5	50	/	/	/
Graine d'Erodium	Torsion	45 x 10^{-3}	/	/	/	/
Graine d'Erodium	Expansion	/l	6.5 ± 0.3	/	/	/
Impatiens glandulifera	Fracture	/	2000	/	/	/
Sporangium	Fracture	/	57	/	/	/

2.1.5. *Les déplacements générés par des actionneurs naturels*

La capacité à générer des déplacements est plus communément mesurée chez les actionneurs naturels. Les plantes usant de pressions turgescentes déploient des stratégies structurelles telles que l'instabilité de la *Venus flytrap (*cf. Figure 14a) lui permettant de se refermer sur 3 à 7 cm en 0.1 s [80], la fracture de l'*Impatiens glandulifera* permettant de projeter ses graines jusqu'à 2 m à une vitesse de 4.1 $m.s^{-1}$ [76] ou de l'eau en cavitation chez le *Sporangium* lui permettant de projeter jusque 100 g de graines à 0.057 m à une vitesse de 10 $m.s^{-1}$ [79].

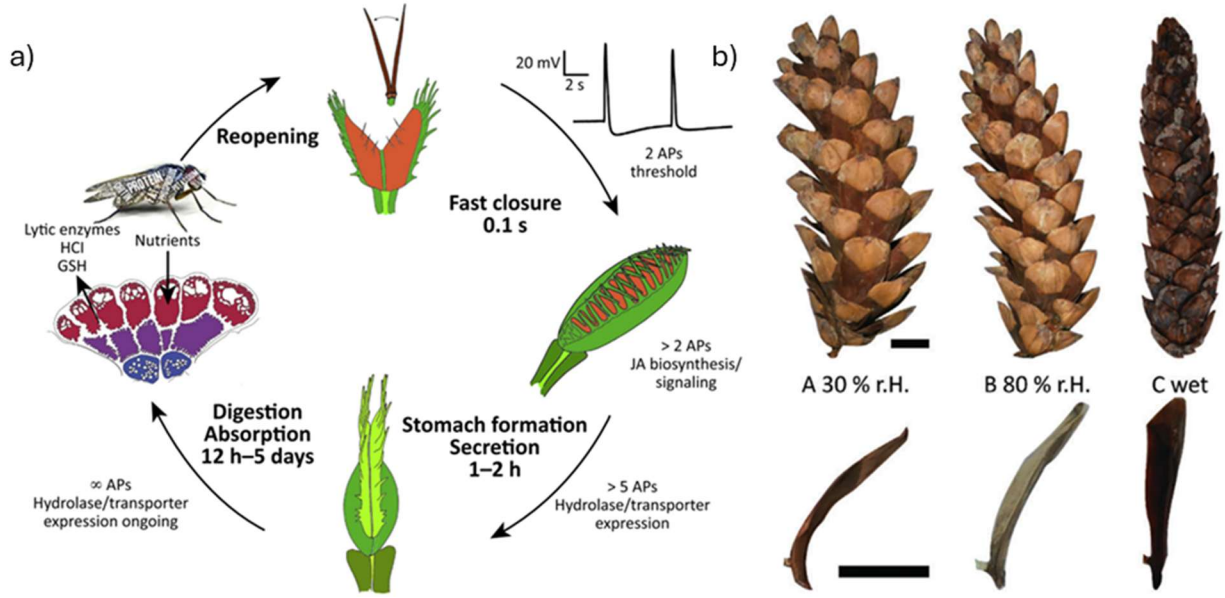


Figure 14 : a) Schématisation du cycle de chasse d'une *Venus flytrap.* b) Photographies du cycle de sorption d'une pomme de pin et de ses écailles.

Les amplitudes des déplacements induits par des variations hygroscopiques observées dans certaines structures végétales sont plus modestes. Par exemple, les écailles de la pomme de pin (cf. Figure 14b) présentent un déplacement en bord d'écaille, résultant d'une flexion, d'environ 20 mm lors d'une variation de l'humidité relative de 10 à 90 % RH [63]. Les tiges externes des plantes de la résurrection se déploient de 50 mm lors d'une désorption impliquant une perte de masse totale comprise entre 50 et 60 % [66]. De manière similaire, les arêtes des épis de blé présentent un déplacement du point externe jusqu'à 19 mm sous une variation hygrométrique comparable (de 10 à 90 % RH) [65]. Enfin, les graines d'érodium montrent une expansion hélicoïdale de 6.5 ± 0.3 mm entre les pas de leur structure hélicoïdale pour une variation d'humidité ambiante allant de 50 à 90 % RH [69]. Ces travaux soulignent l'intérêt d'un arrangement structurel asymétrique ou hélicoïdal afin de développer des mouvements conséquents.

Toutefois, ces travaux n'intègrent pas systématiquement la prise en compte du volume actif de matière ni des dimensions géométriques des structures végétales. Or, l'amplitude du déplacement absolu ne permet pas à elle seule d'évaluer l'efficacité hygromécanique d'un système. Une approche plus rigoureuse consisterait à exprimer les performances en termes d'expansion relative ou de déformation spécifique, permettant ainsi de comparer les capacités d'actionnement indépendamment de la taille ou de la masse des échantillons.

2.2. Mécanisme d'hygroexpansion pour les fibres végétales : de la sorption d'eau à l'actionnement structurel

2.2.1. Comportement des fibres végétales lors de la sorption d'eau

Habituellement considéré comme un défaut dans les industries aéronautique, automobile et de génie civil, le phénomène d'hygroexpansion des fibres végétales au sein des composites est aujourd'hui étudié afin de répondre aux enjeux environnementaux en termes de frugalité (consommation matière, énergie…). Elle consiste en une manifestation de déformations d'un matériau à la suite d'une absorption/désorption d'eau contenue dans l'environnement. Cette réponse, généralement passive, découle de la présence de porosités et des propriétés hydrophiles des composants.

L'absorption d'eau au sein des matériaux lignocellulosiques fait gonfler les composants polaires amorphes au sein de la couche S2 et par conséquent génère une pression de gonflement sur les microfibrilles de cellulose. Ce gonflement modifie l'espacement interfibrillaire [81]. Dans le cadre de cycles sorption/désorption isothermes d'eau chez les hygromorphes naturels, l'évolution de la teneur en eau (*MC)* (cf. Figure 15) est sigmoïdale et présente une hystérésis (cf. Figure 16a).

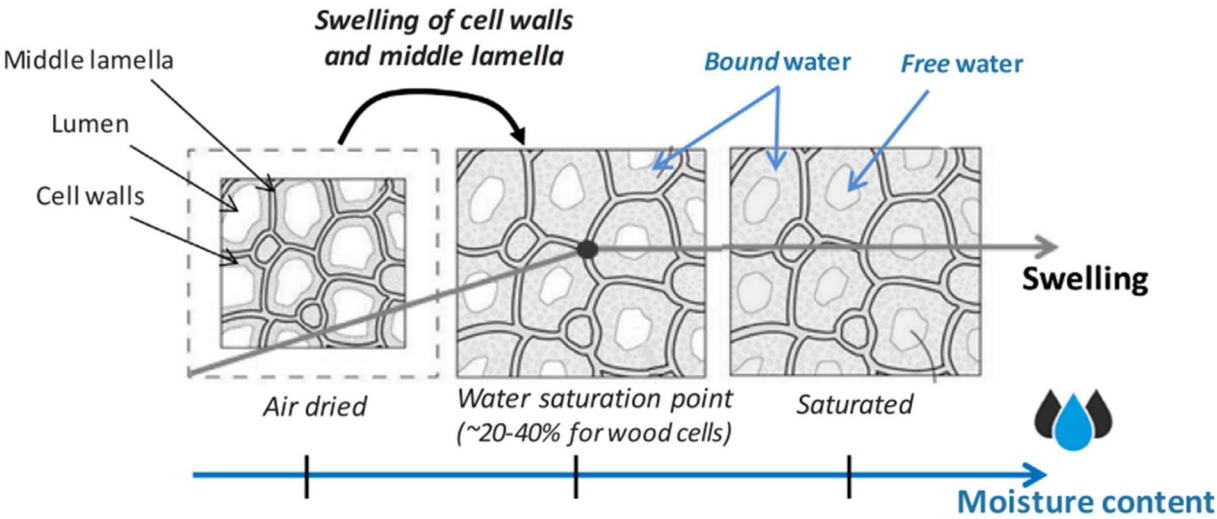


Figure 15 : Mécanisme de gonflement et état de l'eau (liée ou libre) en fonction de la teneur en eau chez les cellules de bois. Adapté par Garat *et al.* [78] de [82].

Dans l'étape de sorption, il est important de dissocier l'eau liée de l'eau libre. L'eau liée interagit avec le matériau via des interactions physicochimiques (hydrogène, Van der Waals…). Elle est, par conséquent, associée à la composition du matériau et va influencer ses propriétés hygromécaniques et structurelles [83]. A l'inverse, l'eau libre interagit faiblement avec la structure du matériau et son apport ou son retrait n'engendre pas de phénomène d'hygroexpansion important [84]. L'eau libre est transportée par capillarité au sein des lumens et autres porosités [85]. Il est possible de déterminer la teneur en eau à l'aide de l'équation suivante :

$$MC = \frac{M_t - M_{initiale}}{M_{initiale}} \times 100 \qquad \text{(Eq. 1)}$$

M_t représente la masse du matériau à un instant t du cycle de sorption/désorption et $M_{initiale}$ la masse initiale du matériau avant exposition à une variation d'humidité. L'isolation de variation thermique dans ce genre de cas permet d'éviter les variations de cinétiques de sorption/désorption d'eau induites par la sensibilité thermique des composants du système, comme le démontre la Figure 16b [86].

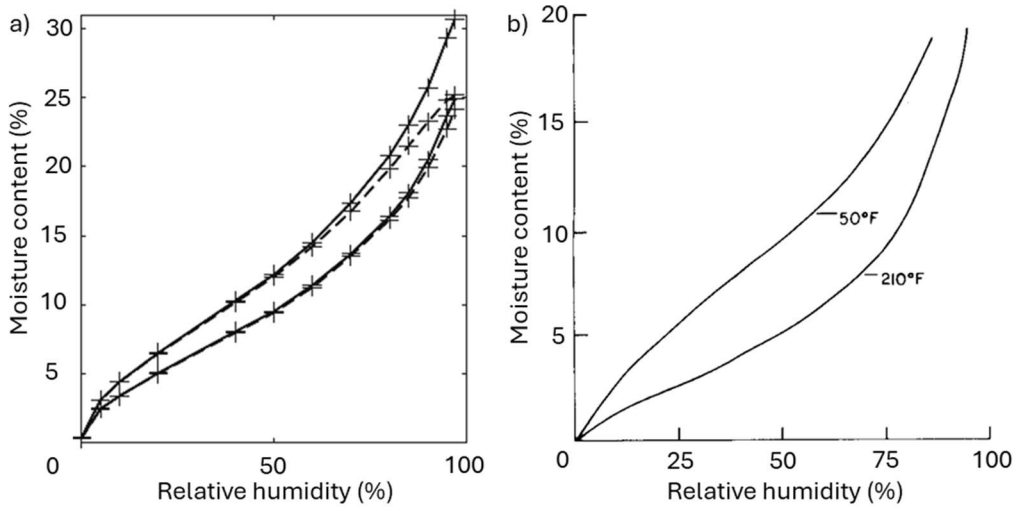


Figure 16 : a) Courbe de sorption/désorption isotherme d'un bois jeune d'épicéa Norway avec la désorption en courbe supérieure et la sorption en courbe inférieure, adaptée de Fredriksson *et al*. [87]. b) Courbe de sorption isotherme de bois à 50 °F et 210 °F adaptée de Simpson *et al.*[86].

Ces courbes de sorption/désorption sont segmentables en trois domaines distincts. Le premier, compris entre 0 et 15 % RH, correspond au phénomène d'adsorption de monocouches d'eau dans la paroi cellulaire. Ce comportement est modélisé par l'isotherme de Langmuir dans lequel la pression partielle de vapeur régit l'équilibre chimique entre le nombre de molécules adsorbées et les surfaces disponibles pour l'eau [88]. Jusqu'à 70 % RH, l'absorption de la vapeur d'eau à la surface du matériau est généralement décrite par la loi de Henry, selon laquelle la concentration de l'eau est directement proportionnelle à sa pression partielle dans l'environnement extérieur [89]. Au-delà des 70 % RH, la cinétique de concentration en eau s'intensifie, correspondant à l'eau liée ou à des clusters d'eau.

On atteint alors le taux de saturation en eau du matériau, qui va dépendre des composants de chacune des différentes fibres naturelles, avec des valeurs entre 20 % et 35 % pour la fibre de lin [78][90], de 25.7 ± 2.0 % pour le bois d'acacia (*Robinia pseudoacacia*) et jusqu'à 45.8 ± 1.8 % pour l'essence d'épicéa (*Picea abies*) [91].

Rappelons que les parois cellulaires des matériaux lignocellulosiques sont constituées de chaînes de cellulose cristalline, intégrées dans une matrice amorphe composée d'hémicelluloses, de pectines et de lignines. Dans les parois végétales, l'hygroscopicité provient principalement des polysaccharides amorphes comme les hémicelluloses, riches en groupements hydroxyles, qui favorisent l'adsorption d'eau et influencent fortement les

propriétés mécaniques. Des études expérimentales sur hémicelluloses isolées montrent que le module d'élasticité peut varier de plusieurs ordres de grandeur par exemple entre environ 8 GPa à l'état quasi-sec et quelques dizaines de MPa à haute humidité en fonction du contenu en eau, reflétant une sensibilité mécanique extrême aux conditions environnementales [92]. Ainsi, seule une fraction des groupes hydroxyles est disponible pour interagir avec les molécules d'eau, les autres étant localisées au sein des zones cristallines, peu accessibles car situées au cœur des microfibrilles de cellulose [93]–[100].

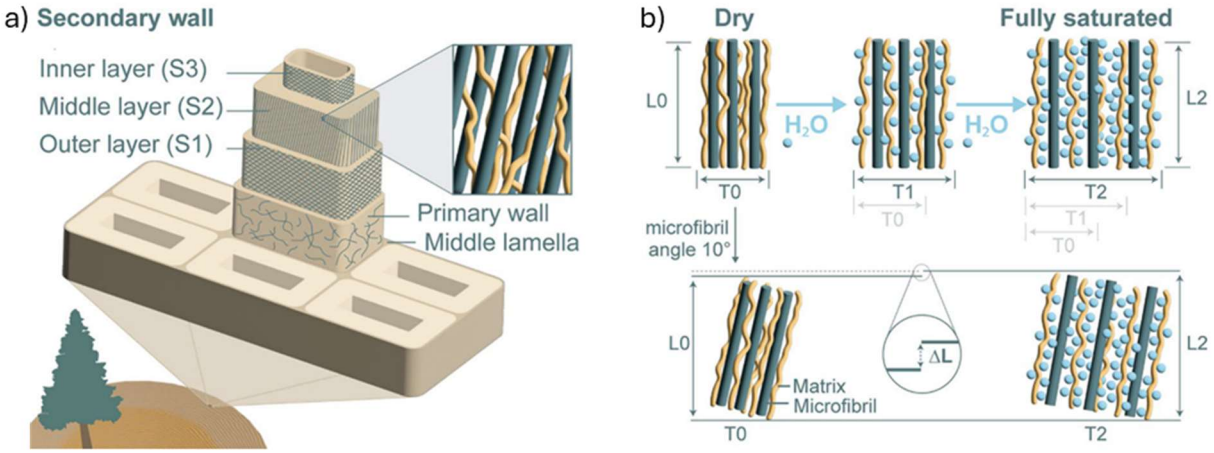


Figure 17 : a) Schématisation de la localisation des microfibrilles de cellulose au sein de la couche S2 composant la paroi cellulaire secondaire. b) Schématisation du phénomène d'hygroexpansion lors de l'absorption de molécules d'eau entre les microfibrilles de cellulose (vert) au sein de la matrice amorphe composée d'hémicellulose et de pectine (jaune). Cette figure est adaptée de l'étude de *Hill et al.* [101].

Par ailleurs, la rigidité et la résistance de ces microfibrilles sont dues principalement à cette structure cristalline [48][102]–[107]. Malgré la difficulté d'accès aux groupements O-H internes au sein des structures cristallines, il a été démontré que l'humidité modifie le réseau cristallin par des mécanismes d'absorption et de désorption d'eau, entraînant l'ajustement des distances interchaînes [108][109].

2.2.2. Conséquence de la sorption sur les propriétés d'hygroexpansion

Le coefficient d'expansion hygroscopique ou CHE (β) qualifie la capacité de gonflement lors de la sorption d'eau au sein des fibres naturelles. Il est régi par la composition chimique de la fibre (cf. tableau 2) et son architecture. La réponse du matériau présente des complexités selon l'échelle observée : de la fibre élémentaire, du faisceau ou du composite.

Tableau 2 : Composition chimique de différentes fibres élémentaires ainsi que le MFA de la couche S2 associée [110][111]

Fibre	Cellulose (%)	Hémicelluloses (%)	Lignine (%)	Paraffine et graisse (%)	S2 MFA (°)
Lin	60-85	14-21	1-3	1-6	8-11
Jute	61-71	14-20	12-13	1	7-12
Chanvre	68	15	10	1	11
Kénaf	72	20	9	/	9-15
Sisal	65	12	10	2	20

A l'échelle microscopique, la capacité d'expansion des fibres élémentaires dépend principalement de l'angle microfibrillaire de cellulose au sein de la couche S2 [44]. Lorsque le MFA est proche de 0°, l'expansion longitudinale est minimale, voire négative et l'expansion transverse maximale. A l'inverse, lorsque le MFA est plus élevé, l'expansion longitudinale est maximale et l'expansion transverse minimale (cf. Figure 18) [112].

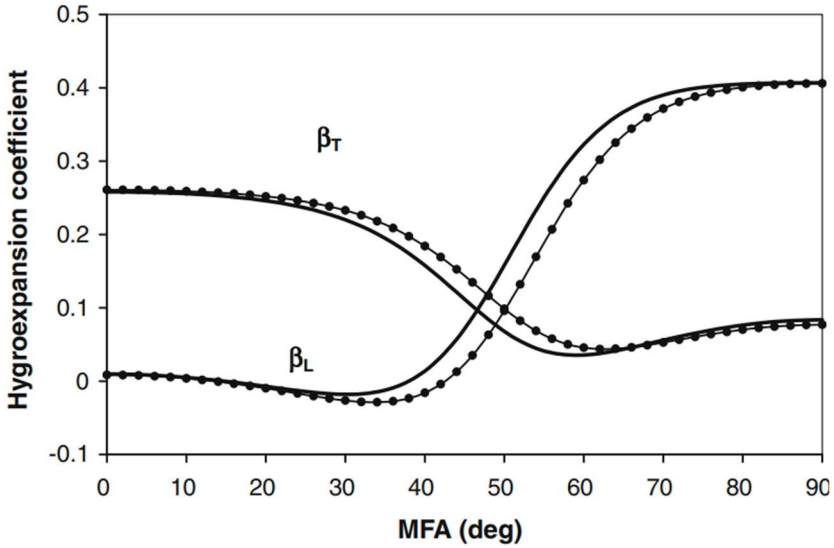


Figure 18 : Modélisation de l'évolution des coefficients d'hygroexpansion longitudinale et transverse de fibres de bois exposées à 80 % RH en fonction de l'angle microfibrillaire de cellulose de la couche S2 [112].

Dans le cas de la fibre élémentaire de lin, les coefficients d'expansion hygroscopique longitudinal et transverse s'élèvent à β_l = - 0.02 ± 0.004 et β_t = 1.14 ± 0.019 [49][50], respectivement. Le coefficient d'hygroexpansion longitudinal négatif est attribué au couplage géométrique induit par l'angle microfibrillaire. Les microfibrilles de cellulose, disposées hélicoïdalement dans la matrice hémicellulosique, subissent un gonflement transversal lors de

l'absorption d'eau. L'augmentation du rayon entraîne alors une modification de l'angle hélicoïdal, réduisant la projection longitudinale des microfibrilles et générant une contraction apparente dans l'axe de la fibre. A l'échelle du faisceau de fibres, Garat *et al.* ont mesuré un coefficient d'hygroexpansion transverse de $\beta_t = 1.67$ [78] tandis qu'à l'échelle du fil de lin, Abida *et al*. évaluent un CHE transverse $\beta_t = 1.07 \pm 0.04$ [50].

Les résultats montrent une évolution du coefficient d'hygroexpansion transverse (β_t) en fonction de l'échelle d'observation, depuis la fibre élémentaire jusqu'au fil. Si une diminution apparente de β_t est observée, traduisant potentiellement une atténuation des déformations hygroscopiques à l'échelle macroscopique, cette tendance doit être interprétée avec précaution. En effet, les différences variétales des lins considérés, ainsi que la variabilité inhérente à la structure fibrillaire, peuvent influencer la réponse hygromécanique.

2.2.3. Conséquences de la sorption sur les propriétés mécaniques

La sorption d'eau induit une diminution marquée des propriétés mécaniques des fibres végétales, ayant pour conséquence l'écrantage des interactions hydrogène entre la phase amorphe (hémicelluloses et pectines) et les microfibrilles de cellulose. Ce phénomène favorise le réalignement partiel des microfibrilles, modifiant les propriétés élastiques. Les effets réversibles de la sorption se traduisent par une variation temporaire du module élastique, tandis que les effets irréversibles, tels que la création de vides ou la perte de cohésion interfaciale, conduisent à une réduction des propriétés à la rupture. Ces évolutions structurales se propagent jusqu'à l'échelle du composite, où elles compromettent la rigidité et la résistance en traction en conditions humides [113]–[115]. Lorsque la teneur en eau augmente, un phénomène réversible de plastification du composite apparait. Simpson *et al*. ont montré que les fibres de sapin de type Douglas peuvent perdre jusqu'à 35 % de leur module de flexion pour une variation de teneur en eau de 0 % à 10 % [86].

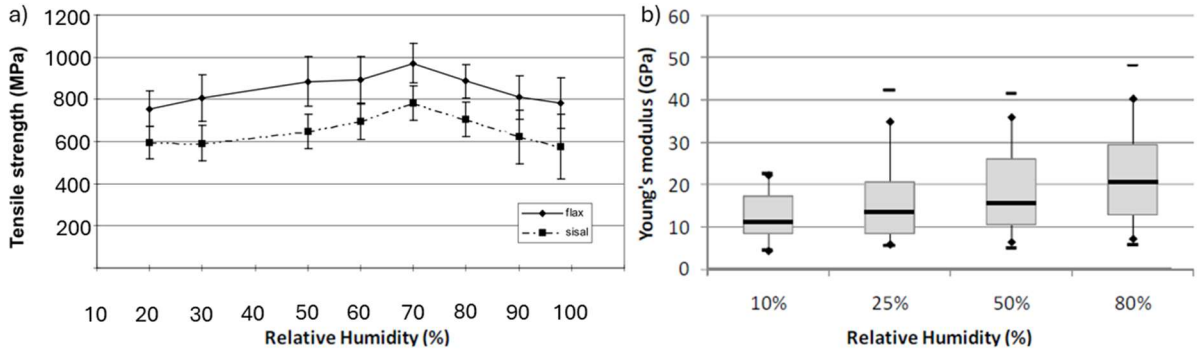


Figure 19 : a) Evolution de la contrainte à la rupture (MPa) de fibre de lin et de sisal sous différentes humidités relatives (%) [116]. b) Evolution du module d'élasticité longitudinal (GPa) en fonction de l'humidité relative (%) de fibres élémentaires de chanvre [117].

Concernant les fibres de lin (cf. Figure 19), plusieurs études ont mis en évidence qu'une humidité relative comprise entre 60 et 70 % RH entraîne une augmentation de la valeur de contrainte maximale à la rupture. En revanche, au-delà de 70 % RH et jusqu'à saturation, cette propriété diminue plus nettement. Ce comportement non monotone s'explique par une plasticisation accrue de la matrice hémicellulosique. L'augmentation du contenu en eau abaisse la température de transition vitreuse et affaiblit les liaisons hydrogène interfibrillaires, réduisant ainsi l'efficacité du transfert de charge vers les microfibrilles de cellulose [116][118][119].

A l'échelle de la fibre élémentaire, la détermination d'un module d'élasticité est une tâche complexe. Dans le cadre des fibres de lin, un panel important de valeurs est rapporté, s'étalant de 25 jusque 90 GPa [120] (cf. Figure 20b). Leurs propriétés mécaniques varient selon les espèces et les récoltes, et par conséquent sont dépendantes de leur section, du MFA de la couche S2 et de leur composition biochimique [47].

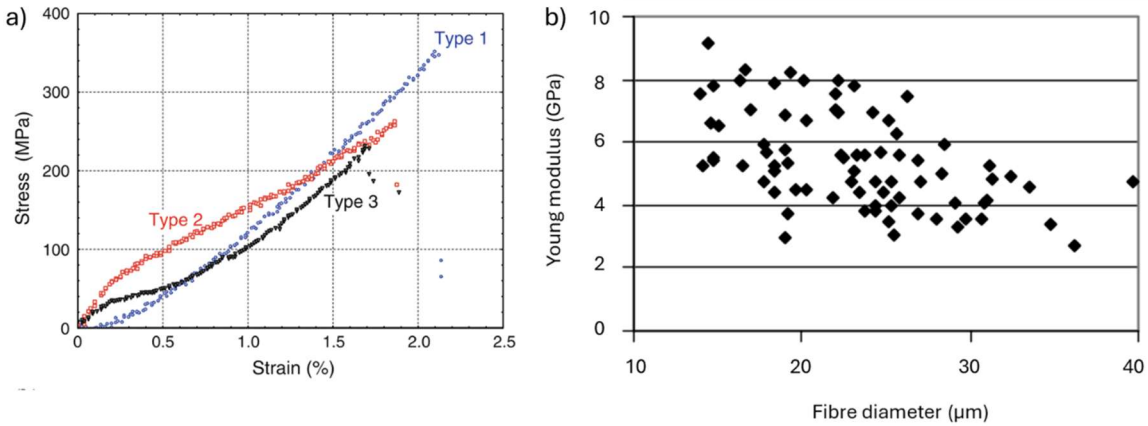


Figure 20 : a) Courbes typiques de « contrainte-déformation » en traction de fibres de chanvre élémentaires b) Module d'élasticité (MPa) de fibres élémentaires de lin en fonction de leur diamètre (µm) [120].

Par ailleurs, lors d'essais de traction dans le domaine élastique sur des fibres élémentaires de lin (déformation < 0.1 %), Baley *et al*. ont mis en évidence un comportement de raidissement progressif des fibres, attribué à une réorientation plastique des microfibrilles de cellulose, entraînant une diminution de l'angle de microfibrilles [120]. Jusqu'à environ 0.6 % de déformation, un phénomène de glissement intrapariétal au sein de la couche S2 a également été observé, notamment par Placet *et al*. sur des fibres de chanvre [121]. Ce glissement résulte d'un cisaillement de la matrice amorphe sous l'effet combiné de la contrainte longitudinale et de la traction, provoquant le franchissement du seuil d'écoulement de la matrice, la rupture d'interactions hydrogène, et le glissement des microfibrilles les unes par rapport aux autres. Ce mécanisme s'accompagne d'une réduction du MFA ainsi que d'une recristallisation partielle de la cellulose amorphe, induisant une augmentation finale de la rigidité des fibres.

2.3. Définition et enjeux des biocomposites biosourcés

Si un matériau composite consiste en l'assemblage d'un minimum de deux composants de nature différente et non miscible, son intérêt réside dans le but de tirer parti des avantages des propriétés intrinsèques de chaque composant. En science des matériaux, la nomination de renforts et de matrice caractérise l'armature et le liant permettant d'orienter les propriétés mécaniques du renfort, respectivement.

Dans le cadre de biocomposites, l'origine des composants se doit d'être végétale ou animale, c'est-à-dire biosourcée. Communément, la substitution des matières pétro-sourcées par des matières biosourcées est issue d'une volonté de réduire l'impact environnemental mais aussi de trouver une alternative économique au prix de marché [122]. Dans cette optique, les biocomposites hygromorphes se définissent comme des matériaux composites biosourcés capables de modifier leur forme ou leurs propriétés mécaniques en réponse à des variations d'humidité ambiante. Ils associent généralement une matrice en polymère biodégradable à un renfort d'origine végétale, dont le comportement hygroscopique confère au matériau sa capacité d'actionnement.

Pour les biocomposites hygromorphes, l'utilisation de matrices thermoplastiques biodégradables telles que l'acide polylactique (PLA), le polybutylène adipate téréphtalate (PBAT), le polysuccinate de butyle (PBS) ou le polybutylène succinate adipate (PBSA) [123] s'inscrit dans une volonté d'avoir des matériaux dégradables en milieu naturel ou en compost

industriel selon la norme NF EN 13432 [8]. La Figure 21 réalisée par Correa *et al*. schématise cette classification [124].

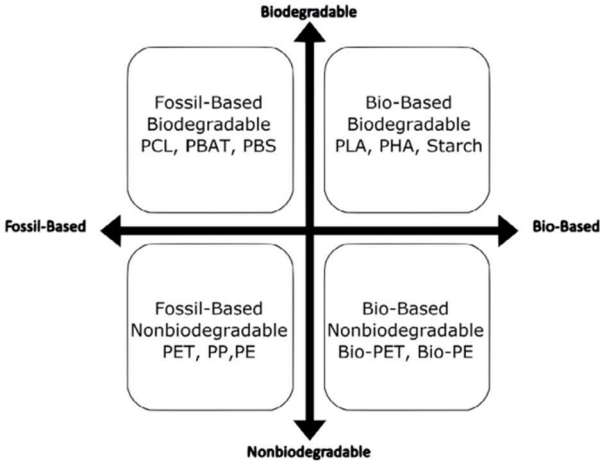


Figure 21 : Schématisation de la classification des terminologies employées dans le cadre de mots biodégradables et biosourcés [124].

L'association de matrices polymères hydrophobes, capables d'orienter et de maintenir les renforts selon une architecture optimisant leurs propriétés mécaniques, avec des fibres naturelles telles que celles de lin, de jute, de kénaf ou de coco, permet d'exploiter la capacité d'hygroexpansion intrinsèque de ces renforts [125]. Ce couplage entre phase hydrophobe et phase hygrophile conduit, *in fine*, à la génération de déplacements ou de contraintes induits par les variations d'humidité [126]. Etymologiquement, il est donc possible de définir ces matériaux comme des biocomposites hygromorphes (HBC).

Au-delà de leur intérêt fonctionnel, les HBC s'inscrivent dans une démarche écoresponsable : les deux phases constituantes peuvent être soit biosourcées soit biodégradables, participant à la valorisation des ressources utilisées.

2.4. Propriétés mécaniques et hygromécaniques des biocomposites élaborés par fabrication additive continue.

2.4.1. Performances mécaniques des biocomposites renforcés continus issus de fabrication additive.

La teneur en fibres ainsi que le taux de porosité d'un biocomposite imprimé sont deux paramètres majeurs influençant les propriétés mécaniques. En effet, la fraction volumique de

renforts joue un rôle déterminant dans l'optimisation du module d'élasticité, tant selon l'orientation longitudinale que transversale.

Dans le cas de biocomposites imprimés à base de matrice polypropylène (PP) renforcée par des fibres de chanvre, Stoof *et al.* ont mis en évidence une augmentation significative du module d'élasticité, passant de 892 à 2681 MPa lorsque la fraction volumique de fibres est portée de 0 à 30 % [127]. Cette amélioration traduit l'efficacité mécanique du renfort naturel dans la transmission des contraintes au sein de la matrice thermoplastique. Comme illustré en Figure 22, une évolution de la dégradation de l'état de surface du filament est observée pour les biocomposites constitués de poly(ε-caprolactone) (PCL) renforcé par des déchets de coques de cacao (CSW) : l'augmentation du taux de fibres de 0 à 50 % conduit à la formation de filaments plus rugueux, présentant des agglomérats fibreux visibles en surface, et induit une diminution de l'allongement à la rupture de 702 ± 6 % à 23 ± 8 % [128].

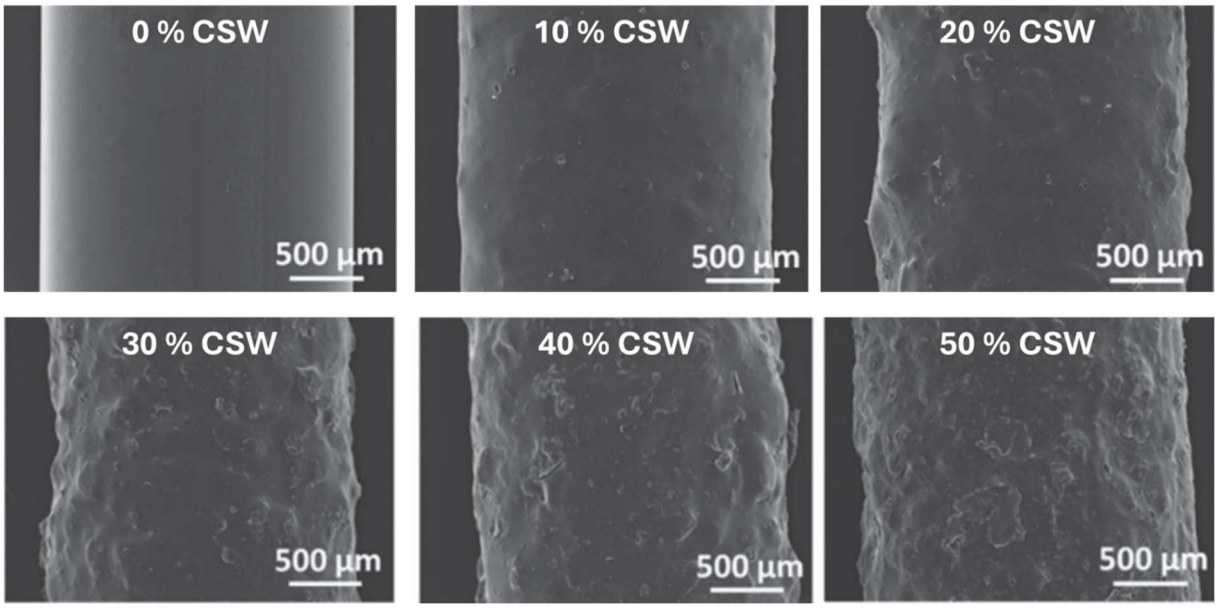


Figure 22 : Evolution de l'état de surface de filaments en PCL renforcés de fibre de CSW lors de l'augmentation de la teneur en fibre de 0 à 50 % [128].

Par ailleurs, Filgueira *et al.* ont montré, sur des composites à matrice polyéthylène (PE) renforcés par des fibres de bois, qu'une augmentation de la teneur en fibres de 10 à 20 % engendre une augmentation d'environ 20 % de la porosité au sein du matériau [129]. Ce résultat souligne que, quelle que soit la matrice considérée, l'accroissement de la fraction volumique de renforts naturels tend à accentuer la présence d'hétérogénéités

microstructurales telles que la rugosité ou la porosité, pouvant *in fine*, compromettre les propriétés mécaniques du composite.

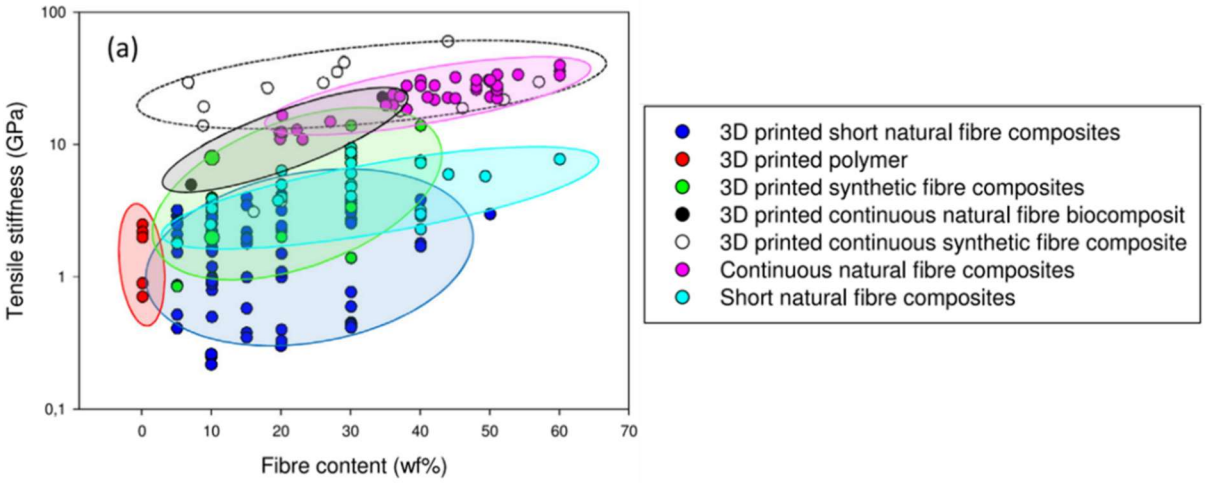


Figure 23 : Diagramme d'Ashby des valeurs de module d'élasticité longitudinale (GPa) de composites à base de fibres naturelles ou non fabriqués par impression 3D en fonction de leur teneur en fibre (%) réalisé par Le Duigou *et al*. [127]–[149]

Comme l'ont synthétisé Le Duigou *et al*. [142], le diagramme d'Ashby présenté en Figure 23 met en évidence l'influence de la fraction volumique de fibres sur les modules d'élasticité longitudinaux des biocomposites. Contrairement aux composites à fibres courtes, les renforts continus assurent une meilleure efficacité de charge et une augmentation du module d'élasticité avec la teneur en fibres.

De plus, il est remarquable que les modules élastiques des composites renforcés par des fibres naturelles continues se rapprochent de ceux renforcés par des fibres synthétiques, traduisant une capacité équivalente à supporter des contraintes uniaxiales, confirmant l'intérêt de renforts naturels continus pour certaines applications structurales.

Concernant l'influence du procédé d'impression 3D, Le Duigou *et al.* ont observé que modifier les paramètres de slicing impacte les propriétés mécaniques en traction [150]. Les auteurs ont relevé une augmentation du module d'élasticité longitudinal de 9.5 ± 0.4 à 17.2 ± 0.7 GPa pour une réduction de la hauteur de couche de 0.6 à 0.2 mm et une diminution de 17.1 ± 1.5 à 12.9 ± 0.9 GPa pour une réduction de la distance interfilamentaire de 0.8 à 0.6 mm. Ces paramètres définissent la microstructure des matériaux imprimés et permettent de définir les limites de conception. L'augmentation de la hauteur de couche induit une hausse du taux de porosité qui se traduit par une délamination favorisée. La réduction de la distance interfilamentaire, quant

à elle, entraîne l'apparition de défauts tels que des désalignements ou des chevauchements entre les filaments qui dégradent les propriétés mécaniques.

2.4.2. Propriétés hygromécaniques des biocomposites imprimés à renforts continus.

Contrairement aux composites renforcés par des fibres synthétiques comme le verre ou le carbone en raison de leur insensibilité à l'humidité [151][152], le renforcement par des fibres végétales présente encore des verrous scientifiques lorsqu'il s'agit de leur utilisation pour des applications structurelles sous charge.

Dans le cadre de biocomposites imprimés intégrant des renforts continus de fibres de lin, Fruleux *et al.* ont mis en évidence une diminution des modules élastiques longitudinaux et transverses, d'environ 60 % lorsque la teneur en eau varie de 0 à 20 %, et ce, quelle que soit la matrice polymérique considérée (PBAT, PLA ou PBS). Cette tendance traduit la forte sensibilité hygromécanique des biocomposites à fibres naturelles, liée à l'interaction entre la phase hydrophile du renfort et la phase hydrophobe de la matrice [123]. Comme représenté en Figure 24, ce comportement se retrouve aussi pour des composites renforcés de fibre naturelle en PP/lin préparés par thermocompression, comme le démontre Péron *et al.* [153].

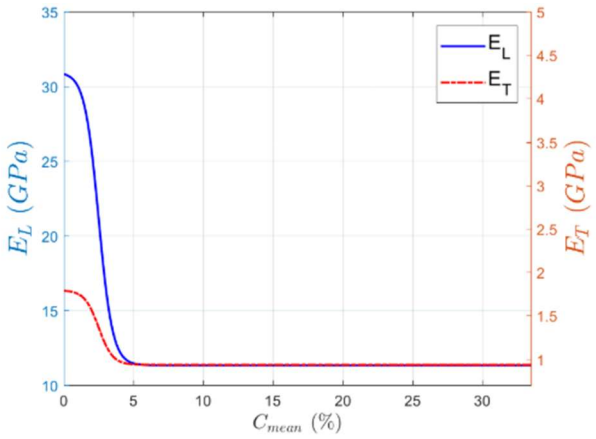


Figure 24 : Evolution des modules d'élasticité (GPa) longitudinaux (bleu) et transversaux (rouge) en fonction de la teneur en eau (%) de composites thermocomprimés en PP renforcés de fibre continue de lin [153].

Ces phénomènes sont explicables par plusieurs facteurs tels que la rupture des interactions hydrogènes au sein des fibres qui affecte le comportement mécanique des fibres et des biocomposites [154] mais aussi la réduction des propriétés des interfaces entre la matrice et le renfort des biocomposites, que ce soit pour les fibres de bambou ou de chanvre [155][156].

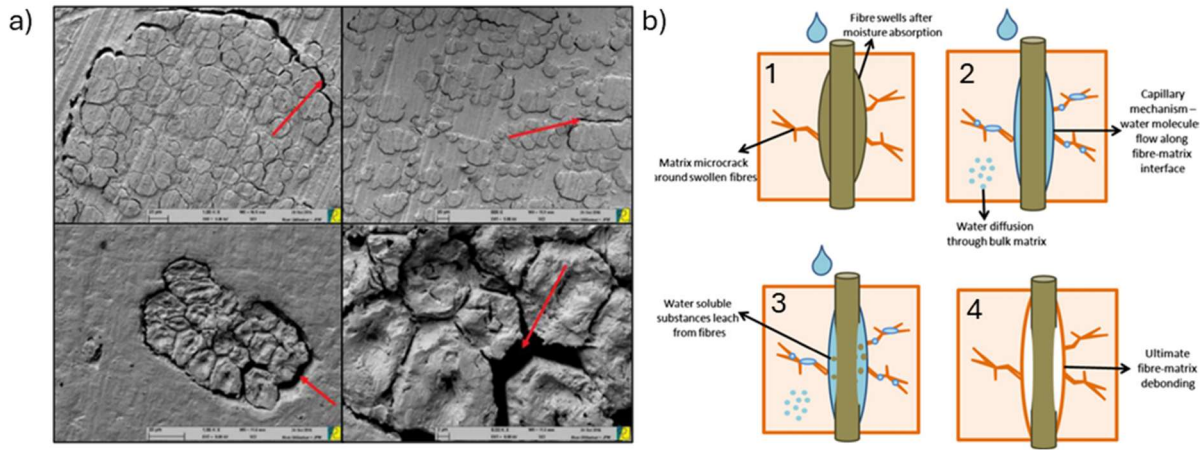


Figure 25 : a) Observation au microscope électronique à balayage d'échantillon en époxy/lin après 30 jours de vieillissement dans de l'eau déminéralisée. Les flèches rouges indiquent la présence de microfissures. b) Schématisation de la dégradation des interfaces fibres matrice au sein des biocomposites subissant une augmentation de la teneur en eau interne [157][158].

L'impact de la sorption sur la microstructure des biocomposites peut s'observer aux échelles microscopique et mésoscopique. À l'échelle des constituants, Le Duigou *et al.* ont montré que les contraintes hygroscopiques générées lors de la sorption d'eau induisent un état de compression radiale au sein des fibres naturelles [49]. Au sein des faisceaux et des interfaces fibres/matrice, il est possible d'observer des microfissures causées par le gonflement différentiel des fibres et de la matrice. Cette hétérogénéité de déformation génère des contraintes internes de traction et de cisaillement localisées, favorisant l'apparition de microfissures interfaciales et de délaminations partielles, comme illustré en Figures 25a et b.

Ces défauts, progressifs et souvent irréversibles, marquent les premiers stades de la dégradation microstructurale du composite. Ils altèrent la continuité du transfert de charge et conduisent, à terme, à une détérioration des propriétés mécaniques globales, notamment du module de rigidité et de résistance à la rupture.

2.4.3. Propriétés d'hygroexpansion des biocomposites imprimés à renforts continus

Rappelons que les biocomposites hygromorphes imprimés à renforts continus associent une matrice à des renforts fibreux continus hydrophiles. Dans le domaine de l'hygroexpansion, cet assemblage permet la conversion des variations hygrométriques en déformations macroscopiques, en exploitant la réponse hygroactive des fibres naturelles. Il est à noter cependant que le coefficient d'hygroexpansion (β) des renforts est notablement réduit

lorsqu'ils sont confinés dans une matrice moins hydrosensible, celle-ci limitant leurs déformations libres par sa rigidité. A titre d'exemple, Fruleux *et al.* ont observé, pour des biocomposites imprimés en PLA (3.1 ± 0.3 GPa), PBS (0.7 ± 0.2 GPa), PBSA (0.3 ± 0.1 GPa) et PBAT (0.06 ± 0.03 GPa), des coefficients (β) respectifs de 0.06 ± 0.01, 0.13 ± 0.01, 0.14 ± 0.01 et 0.19 ± 0.01. Ces valeurs s'avèrent inférieures à celles obtenues pour des composites similaires thermocomprimés, mesurées à 0.14 ± 0.01, 0.20 ± 0.02, 0.30 ± 0.02 et 0.31 ± 0.01, respectivement [123]. A titre de comparaison, Chilali *et al.* ont observé un coefficient d'hygroexpansion β de 4.7 x 10^{-2} pour un composite en époxy (3.6 GPa) renforcé de fibres de lin [159].

Ces résultats soulignent le rôle de la rigidité de la matrice. En effet, plus le module d'élasticité de cette dernière est élevé, plus la déformation hygromécanique globale est limitée. Ainsi, dans une optique de favoriser l'amplitude de mouvement, il apparaît avantageux de privilégier des matrices à faible rigidité.

Jusqu'ici, la majorité des travaux s'est attachée à caractériser la déformation des biocomposites hygromorphes, négligeant partiellement la réponse mécanique associée. Pourtant, la génération d'efforts lors des cycles de sorption/désorption conditionne directement la performance énergétique de ces systèmes. L'étude de ces efforts est donc primordiale pour établir un cadre prédictif du comportement mécano-hygroscopique des HBC en vue de leur développement.

2.5. Méthodologies de caractérisation de l'actionnement des composites hygromorphes

Afin de caractériser les mécanismes opérant pendant une stimulation hydrique, plusieurs méthodes expérimentales ont été mises en place en fonction des mouvements générés (torsion, flexion, retrait, expansion), des environnements de mesure (variation de % RH ou immersion dans l'eau) et des géométries étudiées. Les mesures de forces et de courses générées ont pour objectif de pouvoir calculer la densité d'énergie volumique $E_{d\ volumique}$ par le calcul suivant :

$$E_{d\ volumique} = \frac{1}{V} \int F \partial \delta \qquad \text{(Eq. 2)}$$

Avec la force générée F en newtons, V le volume de l'échantillon en cm^3 et la course δ en mm.

2.5.1. Mesure de force de blocage

Même si elles sont peu représentées dans le domaine des actionneurs hygro-hydromorphiques, les mesures de forces de blocage sont effectuées à l'aide de cellules de charge se déformant sous une pression et générant un signal électrique.

C'est le cas pour la mesure de force de constriction réalisée par Cheng et *al.* pour laquelle des cellules de charges cylindriques sont utilisées (cf. Figure 26a) [160]. Le Duigou *et al.* ont également mesuré le couple généré lors de la rotation d'un tube imprimé en PA renforcé de fibre de carbone à l'aide d'une cellule de charge (cf. Figure 26b), lors d'une variation de température de 20 à 160 °C [24]. Des cellules de charge ont aussi été utilisées par Luo *et al.* [73] afin de mesurer la poussée axiale d'une hélice en bois de chêne activée lors de variations hygroscopiques (cf. Figure 26c). Autrement, la mesure de force de blocage en flexion hygroinduite générée par un HBC bilame parallélépipédique, élaboré par thermocompression, a été calculée à l'aide d'une balance de précision (10^{-4} g) par Le Duigou *et al.* [68] (cf. Figure 26d).

Toujours de manière non conventionnelle, Kim *et al*. ont quantifié les efforts générés via deux méthodes. La première approche consiste à quantifier les forces générées lors de la rétraction de l'hydrogel sous charge, en corrélant son déplacement avec l'analyse d'une série d'images acquises successivement.

La seconde se rapproche des essais réalisés par Perkitny *et al.* et Narayanamurti *et al.* sur les essences de bois [74][75]. Elle consiste en l'étude des efforts générés lorsqu'aucun déplacement n'est autorisé. Les auteurs l'effectuent à l'aide d'un rhéomètre (cf. Figures 26e et f) [161]. La diversité des méthodes de mesure rapportées dans la littérature traduit la nécessité d'adapter les protocoles expérimentaux à la multitude de mouvements observés.

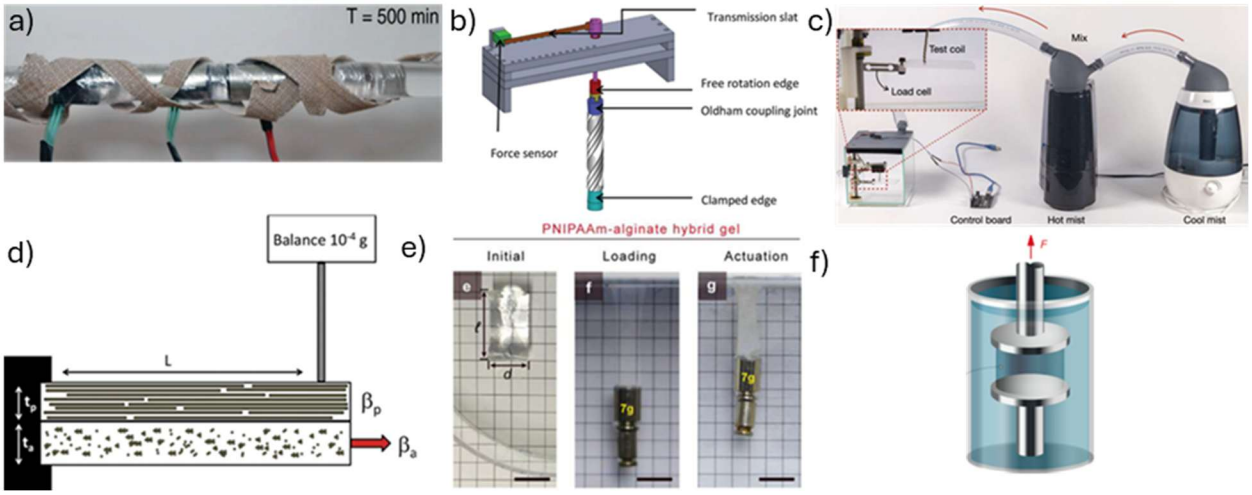


Figure 26 : Montages expérimentaux dédiés à la mesure de force dans le cadre de a) une force de constriction [160], b) un couple issu de la rotation d'une structure tubulaire [24], c) la poussée axiale d'une structure en hélice [73], d) la flexion d'une poutre [68], e) le retrait uniaxial d'un hydrogel et f) une expansion linéaire [161].

2.5.2. Mesure des déplacements hygroinduits

Les déplacements hygro-induits sont plus souvent étudiés, car ils sont faciles à observer directement.

Pour les variations d'épaisseur (cf. Figure 27a), Fruleux *et al.* ont réalisé des observations tridimensionnelles à l'aide d'un microscope numérique. Le traitement d'image via ImageJ a ensuite permis d'extraire les profils de déformation en fonction de la teneur en eau [123]. Après immersion complète en eau déminéralisée et selon une orientation transverse aux renforts, les valeurs d'expansion relative maximale obtenues s'élèvent à 1.5 ± 0.3, 3.0 ± 0.3 et 4.0 ± 0.4 % pour des biocomposites imprimés en cFF/PLA, cFF/PBS et en cFF/PBAT, respectivement. Selon l'orientation hors plan, les valeurs d'expansion relative sont de 5.3 ± 1.1, 5.1 ± 0.6 et 7.8 ± 1.0 %. Ce comportement met en évidence l'anisotropie des biocomposites imprimés et renforcés de fibres naturelles liée à la compression selon l'orientation hors plan imposée par le procédé d'impression.

Dans le cas de mouvements complexes, tels que des variations de courbure, de déformation biaxiale ou de torsion, le suivi temporel par imagerie couplé à une procédure d'analyse des images constitue une méthode de référence pour quantifier l'évolution des déplacements. Comme illustré sur la Figure 27b, cette approche a été employée par Josselin *et al*. pour suivre les déformations hygroinduites de biocomposites thermo-hygromorphes imprimés à base de PBAT renforcé de fibres de lin [162]. Lu *et al.* ont effectué des mesures manuelles de la

variation d'épaisseur à l'aide d'un micromètre de précision, permettant de valider les résultats issus de leur analyse d'images [163]. De façon analogue aux mesures de forces, l'emploi de capteurs de déplacement uniaxial appliquant une force minimale de contact permet d'obtenir une mesure directe et précise de l'amplitude de mouvement linéaire. Ce principe a notamment été utilisé pour la caractérisation de matériaux hautement déformables, tels que les hydrogels [164] ou certaines essences de bois hygroscopiques [75].

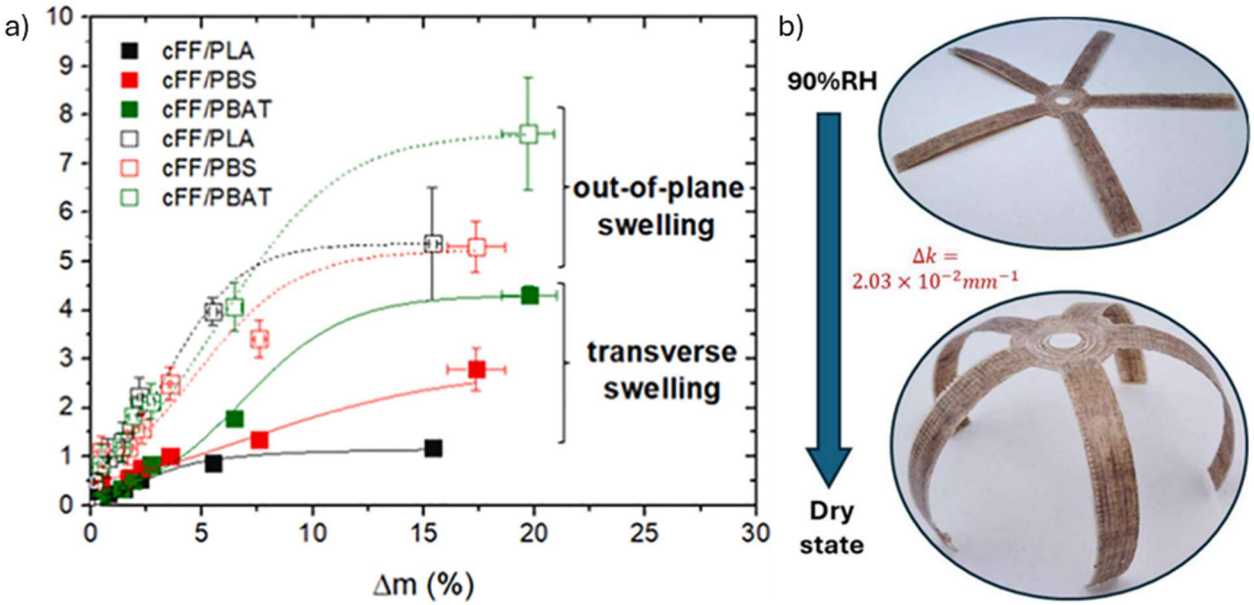


Figure 27 : a) Evolution de l'expansion relative (%) de biocomposites hygromorphes imprimés selon les directions hors plan et transverse en fonction de leur teneur en eau (%) [123]. b) Représentation du potentiel d'actionnement d'un thermo-hygromorphe biocomposite en PBAT renforcé de fibre de lin continue, sur toute la plage d'humidité relative à 20 °C [162].

3. Apport de l'impression 4D pour l'actionnement structurel

3.1. Impression 3D de composites

Aujourd'hui démocratisée, l'impression 3D regroupe plusieurs technologies : la stéréolithographie (SLA), l'impression 3D par projection de lumière (DLP), le frittage sélectif par laser (SLS), le Multi Jet ou l'impression par projection de matière (MJF), et la plus répandue étant la fabrication par dépôt de filaments fondus (FFF/FDM) [165]. Pour les utiliser, il est initialement nécessaire de développer un objet virtuel 3D à l'aide d'un logiciel de conception assistée par ordinateur (CAO). Par la suite, il convient de l'exporter en fichier exploitable, le plus communément en fichier «.STL », pour le traiter dans un logiciel de slicing. Ce dernier est conçu pour séquencer en couche 2D le modèle 3D de l'objet, le traiter et exporter ces informations sous un format « .Gcode » lisible par les imprimantes (cf. Figure 28) [166].

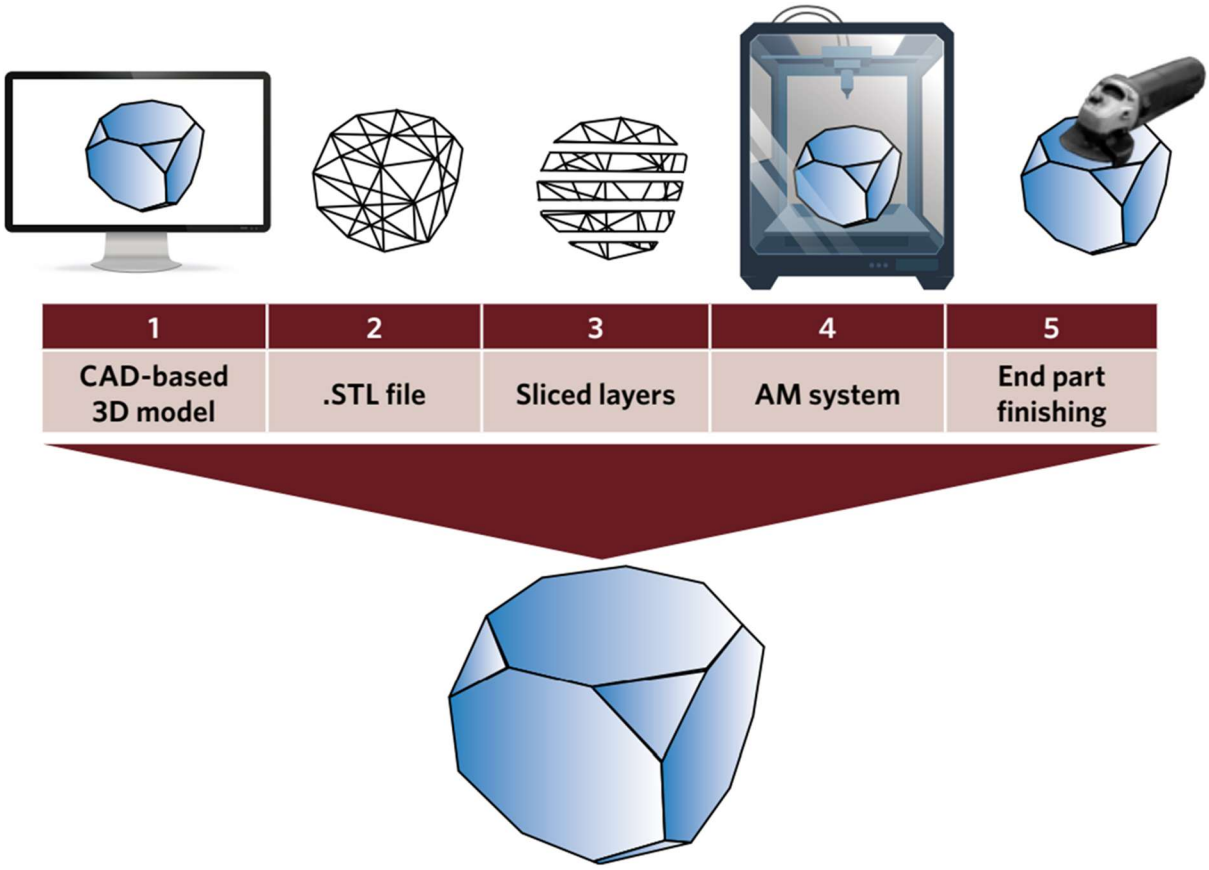


Figure 28 : Schématisation des cinq étapes successives du procédé de fabrication additive, illustrant la chaîne complète de conception et de production : modélisation CAO, exportation au format .STL, tranchage numérique, impression couche par couche et post-traitement de la pièce finale [167].

La mise en avant de la technologie FFF réside dans le gain de temps de production de pièces complexes [168], une réduction de coût pour une production de faibles quantités [169], une diminution des déchets de production [170] mais aussi la modification de la mésostructure de la pièce dans le plan [171].

L'impression FFF de filaments renforcés se sépare en deux catégories : les renforts discontinus et continus. Les premiers sont constitués de fibres courtes, broyées et mélangées, puis incorporées directement dans une matrice. Leur insertion induit une anisotropie modérée et une amélioration limitée mais notable des propriétés mécaniques à cause du léger contrôle de l'orientation des fibres et par conséquent des propriétés mécaniques [172]. De plus, leur mise en œuvre ne nécessite pas de modification importante des imprimantes FFF classiques, ce qui les rend attractifs et accessibles (cf. Figure 29a).

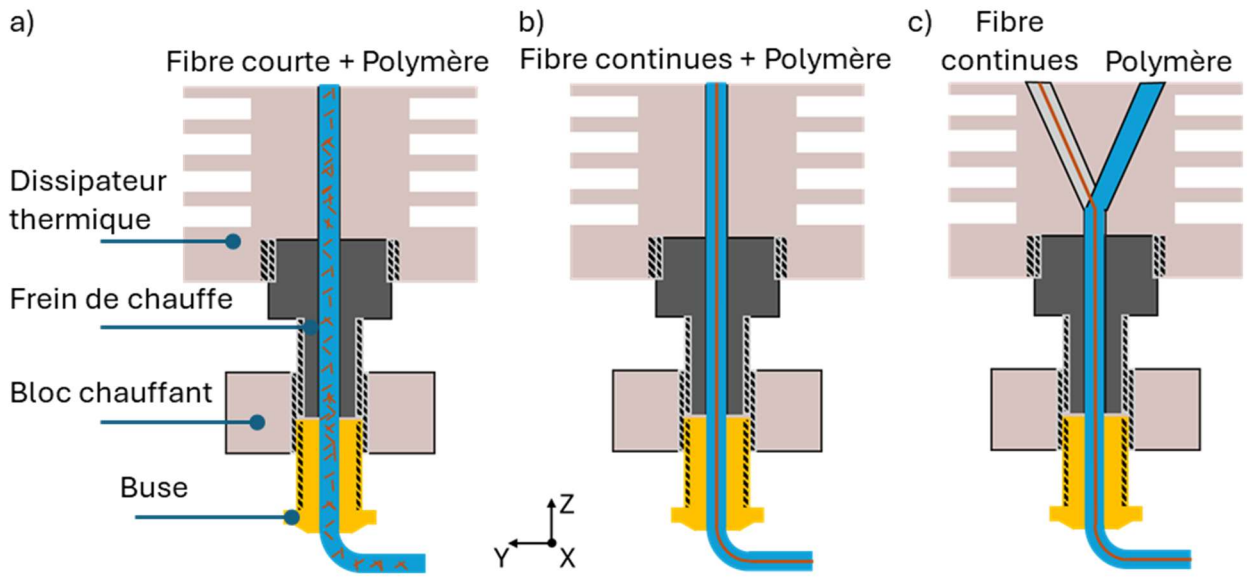


Figure 29 : Schématisation de section transversale de tête d'impression 3D destinée à a) l'impression de filament à renfort discontinu. b) l'impression de filament à renfort continu préimprégné. c) l'impression de filament à renfort continu au sein de la tête d'impression.

La dépose de filaments à renforts continus consiste en la dépose de fibres longues enrobées d'une matrice polymère. Elle permet d'obtenir des performances mécaniques supérieures aux fibres courtes et accentue fortement l'anisotropie du matériau imprimé [173]. Cependant, leur application nécessite des systèmes d'impression avancés [174] capables d'extruder simultanément polymère et fibres de renfort [175] et une conception adaptée à la trajectoire d'impression des renforts [176] (cf. Figures 29b et c). Les deux systèmes présentés se distinguent par des étapes avant dépose du filament. Le premier (cf. Figure 29b) nécessite une préimprégnation du filament composite via un système externe au procédé d'impression, ce qui permet d'effectuer un contrôle qualité du filament produit et d'obtenir des paramètres de procédés maîtrisables. De plus, il est important de noter qu'une seule arrivée de matière est nécessaire, ce qui limite la complexité du système. Le deuxième procédé d'impression (cf. Figure 29c) se distingue par sa capacité à moduler la composition du filament *in situ*. A l'inverse du procédé précédent, il nécessite l'utilisation de température de fusion de la matrice favorisant une imprégnation des fibres, si ces dernières ne se dégradent pas.

3.2. De l'impression 3D à la 4D : principes et matériaux

Si l'impression 3D a pour but de créer une pièce avec des propriétés stables, l'impression 4D a pour objectif le changement de forme, de propriété ou de fonction dans le temps en réponse à des stimuli. Ils peuvent être thermique [13], hygroscopique [177], acidobasique (pH) [178], magnétique [179], …etc.

Il est à noter que le contrôle de l'orientation des renforts et de la mésostructure est crucial pour le pilotage de l'actionnement. Les matériaux couramment utilisés dans ce contexte sont principalement les hydrogels et les polymères à mémoire de forme, en raison de leur capacité à générer des déplacements significatifs. C'est notamment le cas des hydrogels thermomorphes et hygromorphes développés par Gladman *et al.* [23] (cf. Figures 30a et b).

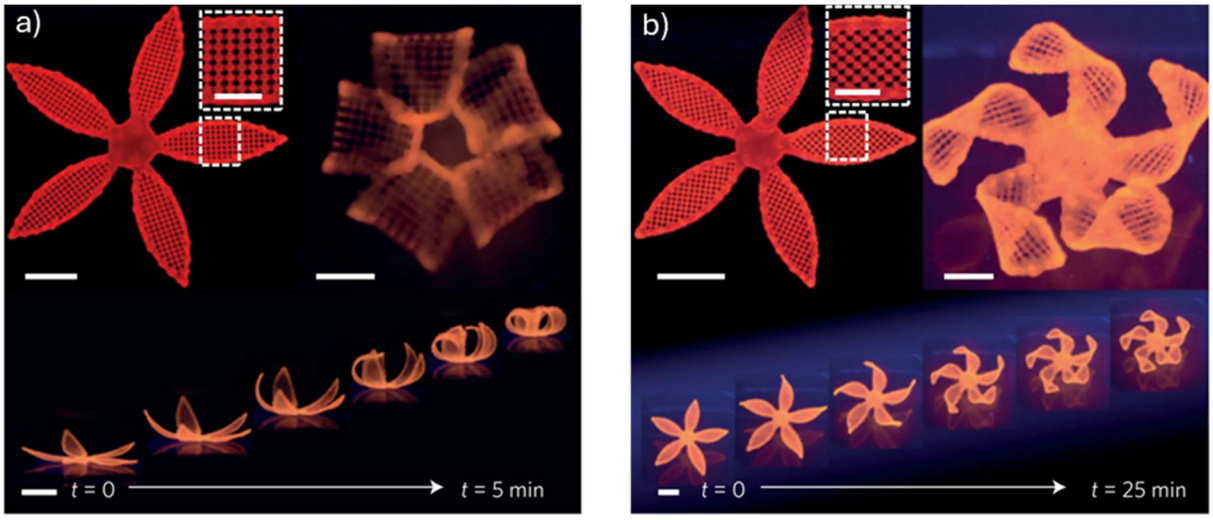


Figure 30 : a) Fleurs imprimées avec une architecture bilames de 90°/0° et b) -45°/45° réalisées par Gladman *et al.*[23]

3.3. Programmation morphologique via l'impression 4D

3.3.1. Les paramètres de slicing

Dans le cadre d'impression de filaments possédant des renforts continus ou discontinus, les paramètres régissant le contrôle de la dépose de matière et définissant une stratégie de construction de la mésostructure sont appelés les paramètres de slicing. Ils se composent de :

- La hauteur de couche (LH) caractérisant la distance nominale entre deux fibres de couches superposées suivant l'axe Z,
- La distance interfilamentaire (ID) spécifiant la distance nominale entre deux fibres de filaments voisins/limitrophes et permettant de réaliser des zones de vides,

- L’angle de dépose (RA) correspondant à la différence angulaire entre la trajectoire de buse et l’axe X,
- Les plans d’impression comprenant les orientations hors plan, transverse et longitudinale correspondant aux plans XY, XZ et YZ respectivement.

3.3.2. Les paramètres d’impression

Les paramètres d’impression définissent les conditions opératoires réelles appliquées par l’imprimante lors de l’exécution d’un fichier « .Gcode » et sont dépendants du matériau, de la machine et de l’environnement. Ils comportent :

- La vitesse d’impression en $mm.min^{-1}$. Elle affecte principalement le temps de séjour du filament au sein du bloc de chauffe mais aussi l’étirement des chaînes de polymères. Par conséquent, une vitesse d’impression faible favorisera le transfert thermique au sein du filament imprimé, une meilleure adhésion entre les filaments déposés et limitera l’apparition de défauts tels que le retrait des filaments lors de demi-tours effectués [180].
- La température du plateau en °C. Elle permet de gérer les phénomènes de gauchissement et de rétractation thermique et d’adhésion lors de l’impression de la première couche.
- La température de la buse et du bloc d’impression en °C. Généralement elle est située au-dessus de la température de fusion de la matrice et en deçà des températures de dégradation des composants du composite [180].
- La température et l’humidité d’enceinte en °C et en % RH spécifient les conditions environnementales influençant le contenu en eau du filament et affectant, *in fine*, la viscosité d’extrusion, la cohésion intercouches et les propriétés mécaniques après solidification.

L’augmentation des températures de plateau et de buse a pour objectif d’approcher des niveaux de mobilité des chaînes de polymère, de permettre une meilleure adhésion des surfaces et de prévenir le gauchissement induit par les contraintes thermiques. Comme démontré par Dou *et al.*, l’augmentation des températures de buse de 180 à 230 °C permet d’améliorer l’assemblage entre les plis et, par conséquent, les contraintes maximales à la

rupture de 187 à 211 MPa pour des composites PLA renforcés de fibres continues de carbone [181]. De plus, la température de buse affecte les propriétés géométriques des filaments déposés par son impact sur la viscosité de la matrice. Une température d'impression élevée, par rapport à la température de fusion du polymère, fluidifie la matrice, diminue la viscosité, ce qui, *in fine*, diminue l'adhésion avec le plateau et favorise un déphasage entre la dépose du renfort et de la matrice, respectivement [182].

3.3.3. Etat de contraintes liées à la fabrication additive

Comme évoqué précédemment, les variations des paramètres de slicing et d'impression impactent le comportement viscoélastique du matériau composite. Actuellement peu de travaux sont réalisés sur l'impact des paramètres de slicing et d'impression sur l'état de contraintes résiduelles au sein d'une pièce composite. Ces contraintes se séparent en 3 catégories : les contraintes résiduelles d'origine thermique (cristallisation, mémoire de forme..etc), chimique (réticulation) et hygroscopiques [183].

Les contraintes résiduelles d'origine thermique désignent les tensions internes générées dans le matériau en raison de gradients de température subis pendant le processus de dépôt et de refroidissement. Ces différences de température entraînent des dilatations et des contractions différentes au sein même d'une couche ou entre les couches imprimées, induisant des déformations résiduelles [184]. Ces contraintes peuvent provoquer divers défauts tels que le gauchissement, la délamination entre les plis, des fissurations ou une variation locale des propriétés mécaniques, compromettant la précision dimensionnelle et l'intégrité structurelle de la pièce finale.

Dans le cadre de l'impression 4D, les contraintes résiduelles désignent les efforts internes stockés de manière intrinsèque dans le matériau imprimé, résultant de gradients de température, de déformation ou de propriétés physiques introduits intentionnellement lors du procédé de fabrication. Ces contraintes peuvent être générées pendant l'impression. Elles influencent directement la résistance, la rigidité, la durabilité et le comportement en service de la pièce. De plus, elles sont fortement dépendantes de l'orientation de l'impression, de l'anisotropie du matériau, et de la qualité des interfaces intercouches [185][186].

Van Manen *et al.* ont mis en évidence l'influence significative des paramètres de slicing et d'impression sur la déformation des pièces en PLA, liée à la libération contrôlée de contraintes résiduelles de type « mémoire de forme » [185]. Ces contraintes, générées et stockées au cours du procédé d'impression, se comportent comme un réservoir d'énergie interne capable d'induire une déformation réversible sous l'effet d'un stimulus thermique. Dans le cas du PLA, cette réorganisation morphologique se produit lors du passage au-dessus de la température de transition vitreuse (~60 °C), où la mobilité des chaînes polymériques permet la relaxation des contraintes stockées. Lorsque la température de buse augmente de 195 à 240 °C, la déformation liée aux contraintes résiduelles diminue de 35 à 14 %, en raison de la baisse de viscosité du polymère fondu, qui réduit l'apparition de ces contraintes. Concernant la hauteur de couche, une diminution de 200 à 50 µm augmente la déformation induite par les contraintes résiduelles de 12 à 39 %.

Cerbe *et al.* ont analysé les forces exercées sur le plateau lors de l'impression de pièces en PLA, traduisant ainsi l'influence des paramètres prédéfinis sur les contraintes apportées au matériau [186]. Ils ont pu observer que l'augmentation de la vitesse d'impression de 65 à 95 $mm.s^{-1}$ fait évoluer les efforts appliqués sur la pièce imprimée de 1.65 ± 0.10 à 2.55 ± 0.10 mN. Par ailleurs, l'analyse de la force en fonction de la hauteur dans la pièce imprimée met en évidence une diminution progressive des efforts appliqués sur le plateau avec l'augmentation de la hauteur d'impression. La force moyenne décroît ainsi de 2.25 ± 0.16 mN pour la première couche à 1.97 ± 0.04 mN pour une hauteur de 1 mm, correspondant à la cinquième couche. Cette diminution est attribuée à l'augmentation de la temperature et de la viscosité du polymère lors de l'empilement des couches, ce qui favorise la relaxation des contraintes dans les couches supérieures.

Bien que ce type de contrainte ne soit pas à l'origine de l'actionnement des biocomposites hygromorphes imprimés en 4D, ces résultats démontrent que le procédé d'impression continue génère des contraintes résiduelles internes. Leur distribution peut être exploitée pour orienter de manière irréversible le comportement mécanique ou fonctionnel du matériau. Par ailleurs, la littérature ne recense que peu d'études dédiées à l'analyse de ces contraintes dans les pièces composites renforcées par des fibres naturelles continues obtenues par impression additive.

3.3.4. Les efforts générés par les composites imprimés 4D.

Malgré la multiplication des travaux portant sur l'impression 4D et la mise en forme de structures actives, la caractérisation des efforts générés par ces systèmes demeure très peu documentée dans la littérature.

Dans le cas des polymères à mémoire de forme imprimés 4D, les études rapportent principalement des contraintes de récupération résultant d'une déformation préalable imposée. Par exemple, Monzón *et al*. ont observé des valeurs de contrainte de récupération comprises entre 0.45 et 0.65 MPa pour des échantillons en TPU imprimés puis thermocomprimés [187]. Cependant, ces contraintes sont induites par un préchargement mécanique externe, ce qui diffère des efforts générés par des HBC soumis à des stimuli environnementaux passifs tels que l'humidité.

Dans ce contexte, Josselin *et al*. ont apporté une contribution notable en présentant les premières mesures expérimentales d'efforts, de déplacement et *in fine* de densité d'énergie pour des HBC imprimés à renforts continus. À partir d'une architecture tubulaire en PBAT (Ø = 10 mm ; L = 50 mm) renforcée de fibres continues de lin, les auteurs ont rapporté un couple de 82 ± 3 N.mm, un déplacement angulaire de 10.5°, et une densité d'énergie spécifique de 2 × 10^2 $J.kg^{-1}$, démontrant ainsi le potentiel énergétique significatif de ces systèmes passifs [188].

Ces résultats, issus de l'une des rares études consacrées à la quantification des efforts générés par des biocomposites hygromorphes imprimés à renforts continus, soulignent la nécessité d'approfondir nos recherches pour mieux évaluer l'efficacité énergétique et d'envisager leur intégration dans des dispositifs autonomes à actionnement passif.

3.3.5. L'architecture macroscopique : un paramètre d'actionnement passif

L'impression 4D repose sur le comportement dynamique d'un objet. Ce comportement ne dépend pas seulement du matériau mais de la manière dont il est architecturé. Il est notable par exemple de citer les architectures bilames asymétriques 0/90° permettant de générer des

courbures [189] et les architectures tubulaires [190] ou hélicoïdales [191] permettant des mouvements rotatifs lorsqu'elles sont stimulées.

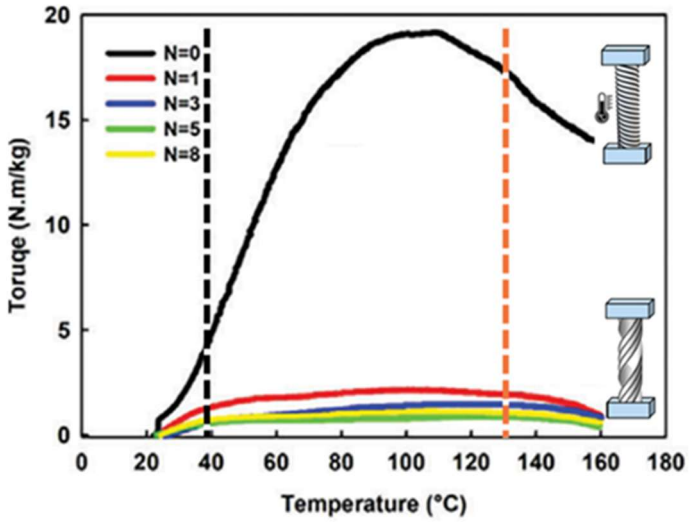


Figure 31 : Evolution du couple spécifique (N.m.kg^{-1}) généré lors de l'évolution de la température (°C) de l'environnement d'une impression 4D à géométrie tubulaire en noir et hélicoïdale en rouge, bleu, vert et jaune. N représentant le nombre d'hélices. Figure adaptée de [24].

Initialement explorée dans des travaux fondamentaux par Alban *et al.* puis validée expérimentalement par Byxbee *et al.,* la comparaison entre différentes architectures macroscopiques a mis en évidence l'efficacité de densité d'énergie supérieure des structures bilames hélicoïdales par rapport aux simples structures bilames [192][193]. Lors du rapport des coefficients géométriques de couple et de déflexion élaborés par Chace *et al.*[194], K_p et K_d, des architectures bilame hélicoïdale et bilame plan, il est possible d'établir que :

$$\frac{K_{P\ hélicoïdale} K_{D\ hélicoïdale}^2}{K_{P\ plan} K_{D\ plan}^2} = \frac{(0.0058\ K_{P\ plan})(125 K_{D\ plan})^2}{K_{P\ plan} K_{D\ plan}^2} = 0.0058 \times 125^2 \qquad \text{(Eq. 3)}$$

Ainsi, pour des matériaux et des volumes similaires, le rapport des densités d'énergie est donné par :

$$\frac{E_{bilame\ hélicoïdale}}{E_{bilame\ plan}} = \frac{K_{P\ hélicoïdale} K_{D\ hélicoïdale}^2}{K_{P\ plan} K_{D\ plan}^2} \times \frac{2\pi}{360} = 90.625 \times 0.01742 = 1.578 \qquad \text{(Eq. 4)}$$

Ce résultat montre que la géométrie hélicoïdale permet une amplification énergétique d'environ 58 %, principalement due à la contribution combinée de la torsion et de la flexion dans le bilame spiralé. Plus tard, dans le cadre d'une étude comparative, Le Duigou *et al.* ont

mis en parallèle l'impact d'une géométrie hélicoïdale et tubulaire sur les capacités d'actionnement thermomorphe d'un polyamide-6 (PA6) renforcé par des fibres de carbone obtenu par impression 4D. Avec des paramètres d'impression similaires, une géométrie tubulaire démontre un couple spécifique 6 fois supérieur à celui d'une géométrie hélicoïdale comportant 1, 3, 5 ou 8 hélices [24].

Ces observations démontrent que l'optimisation de l'architecture macroscopique est un levier pertinent pour amplifier la réponse fonctionnelle. De nouvelles configurations pourraient potentiellement permettre de générer des déformations complexes, adaptatives et multidirectionnelles, élargissant les possibilités d'application dans des domaines tels que la robotique, les dispositifs biomédicaux ou les structures déployables pour l'aérospatial.

4. Conclusion

Dans le cadre de la fabrication de pièces imprimées programmables à partir de matériaux biosourcés, les biocomposites hygromorphes renforcés par des fils de lin continus constituent une voie prometteuse pour reproduire les capacités de déformation observées dans les hygromorphes naturels tels que le bois. Longtemps perçue comme un défaut, leur hygrosensibilité devient un atout, permettant d'exploiter des mécanismes de réponse passive. En combinant les principes du biomimétisme et de l'impression 4D, ces actionneurs passifs s'inscrivent dans des travaux de recherche visant à réduire la dépendance aux énergies fossiles dans leurs domaines d'application.

Néanmoins, l'exploitation des hygromorphes requiert la prise en compte des efforts générés afin d'évaluer la densité d'énergie associée aux déformations induites. Une telle approche est essentielle pour établir un lien quantitatif entre la réponse hygromorphique et la capacité énergétique du système, condition préalable à leur intégration dans des dispositifs à actionnement passif.

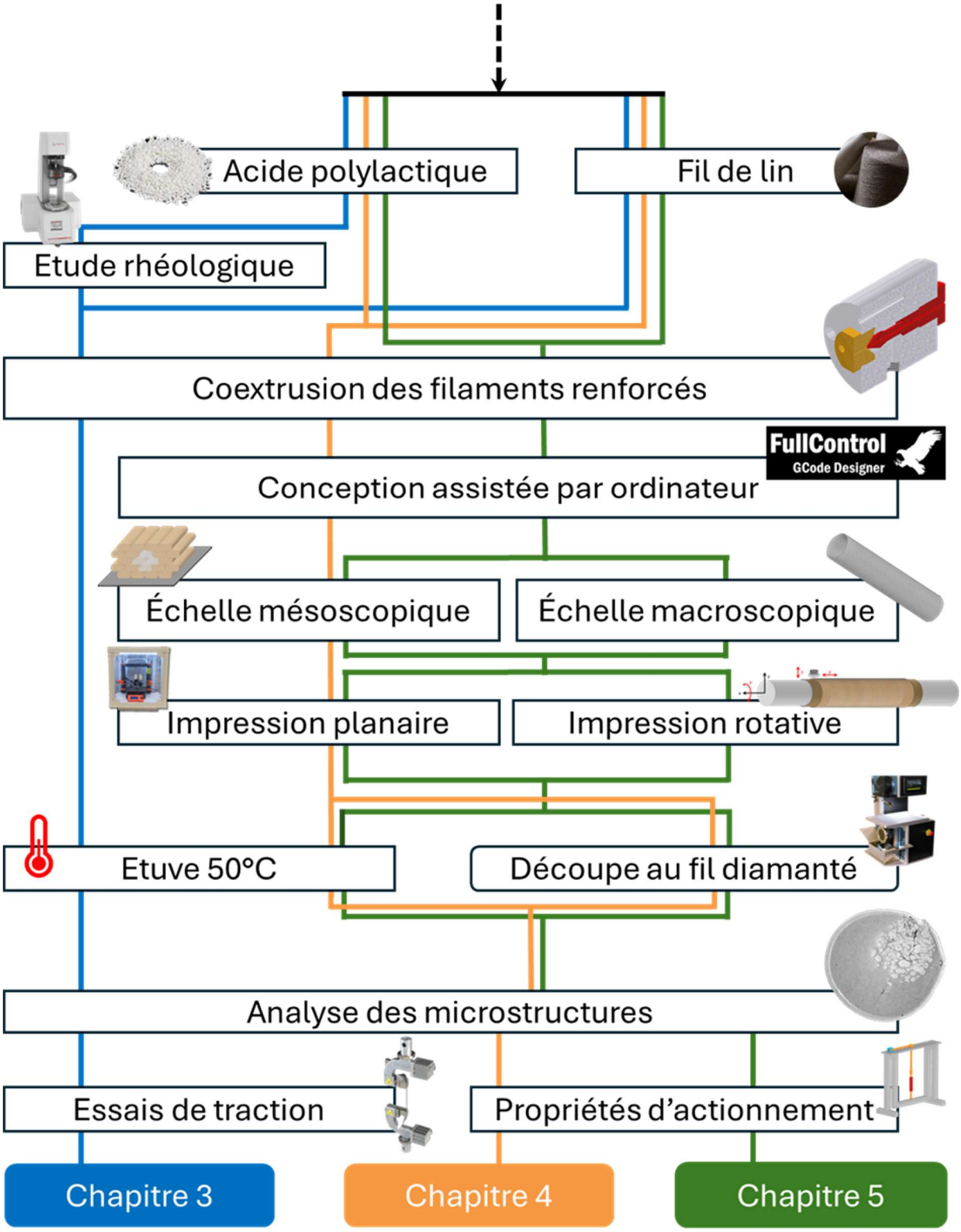
Les biocomposites imprimés renforcés de fibres naturelles présentent une amélioration notable du module d'élasticité avec l'augmentation de la fraction volumique de renfort, atteignant des performances comparables à celles des composites à fibres synthétiques. Malgré une sensibilité hygromécanique marquée, la continuité des fibres assure une diffusion efficace des contraintes et une rigidité spécifique élevée. Les interactions hygroscopiques, bien

que sources de dégradations interfaciales, participent également au mécanisme d'actionnement hygromorphique. Ainsi, ces matériaux biosourcés se positionnent comme des candidats crédibles à la substitution des composites synthétiques, conciliant performance mécanique, durabilité environnementale et morphisme.

Du point de vue de la littérature, l'étude des mécanismes et des capacités d'hygroexpansion aux échelles mésoscopiques liés au procédé d'impression de filament à renfort de fibres naturelles continues demeure peu explorée, voire inexistante. De plus, l'étude des interactions entre l'architecture et les propriétés d'actionnement reste complexe à toutes les échelles.

Ainsi, la question se pose de savoir dans quelle mesure les paramètres de fabrication additive et l'architecture des biocomposites à renforts continus de fibres naturelles conditionnent les déplacements mais surtout les efforts générés dans le but de déterminer les densités d'énergie mobilisables. Cette approche vise à établir les bases nécessaires à la conception d'actionneurs passifs biosourcés.

Chapitre 2 : Matériaux et méthodes



1. Introduction

Ce chapitre est consacré à la présentation des matériaux, bruts ou transformés, ainsi qu'aux protocoles expérimentaux développés et mis en œuvre dans ces travaux. Les modifications apportées aux imprimantes afin d'effectuer la dépose de filament continu ont déjà été décrites précédemment dans les travaux de *Le Duigou et al.* [174].

Ce chapitre inclut également les protocoles de conditionnement établis pour garantir la reproductibilité et la fiabilité des essais. Les différentes techniques de caractérisation des filaments en cFF/PLA sont expliquées à l'attention du chapitre 3. Les méthodes de mesure des forces et des déplacements générés ont été décrites, à l'échelle du pli imprimé et à l'échelle de la pièce imprimée, pour les chapitres 4 et 5, respectivement.

2. Matériaux bruts

Initialement utilisé pour une application textile, du fil de lin est fourni par l'entreprise SAFILIN située à Sailly-sur-la-Lys, en France. Il possède une structure twistée de 320 TPM afin de conserver des propriétés mécaniques longitudinales à l'état sec pendant le processus de filage et de tissage. Il a été sélectionné pour sa masse linéaire faible (TEX) de 68 $g.km^{-1}$, permettant de créer des filaments composites de faible diamètre à destination de l'impression 4D. Le polymère utilisé dans ce projet est un acide polylactique (PLA) INGEO 3001D de NatureWorks®.

Dans le cadre du chapitre 4, une espèce autochtone de bois d'épicéa a été sélectionnée (Pontivy, France), avec une masse volumique de 0.38 ± 0.01 $g.cm^{-3}$, pour valider la méthodologie de caractérisation et établir une comparaison avec un actionneur structurel naturellement architecturé. Les planches ont été extraites du duramen dans des coupes à vif, composées d'environ 90 % de bois initial et 10 % de bois final.

3. Caractérisation du comportement rhéologique du PLA 3001D

Les mesures de viscosité du PLA ont été réalisées sur un rhéomètre ANTON PAAR 301 équipé de plateaux parallèles de diamètre Ø = 25 mm et d'un entrefer réglé à 1 mm. Les échantillons de polymère (n = 5) ont été thermocomprimés à T = 200 °C aux dimensions suivantes : Ø 25 mm et h = 1.5 mm. Le taux de cisaillement $\dot{\gamma}$ est paramétré entre 0.01 et 100 s^{-1} comme réalisé

par Najafi *et al*.[195] et est défini suite à la conversion de la vitesse de rotation Ω (rad.s^{-1}) en taux de cisaillement (s^{-1}) à l'aide de l'équation suivante :

$$\dot{\gamma} = \frac{r\Omega}{h} \qquad \text{(Eq. 5)}$$

En effet, la normalisation par une valeur unique de *r* est appliquée car la valeur en bord de géométrie est la plus représentative du signal mesuré. Les mesures ont été effectuées dans un environnement contrôlé en température et en humidité (T = 20 °C et 50 % RH). Les essais ont été réalisés sous essais statiques ne permettant pas de situer le comportement viscoélastique du matériau.

4. Coextrusion des filaments destinés à l'impression 4D

4.1. Description du procédé de coextrusion

Le procédé de coextrusion (cf. Figure 32a) a été réalisé à l'aide d'une filière en forme de T (cf. Figure 32b). Cette dernière comporte deux entrées destinées aux matières brutes. La première entrée est utilisée pour l'insertion du fil de lin (1), lui-même déroulé d'une bobine. La seconde entrée permet l'apport de matrice polymère à l'état fondu via une extrudeuse FILABOT EX2 (2). Une torpille d'extrusion permet, par la suite, une homogénéisation de la matrice (3) avant imprégnation du renfort dans la cavité (4). Enfin, une buse amovible conforme le filament aux dimensions souhaitées (5). Cette dimension de buse a été définie afin d'ajuster les dimensions du filament aux procédés d'impression suivants. Les paramètres de coextrusion sont référencés en tableau 3.

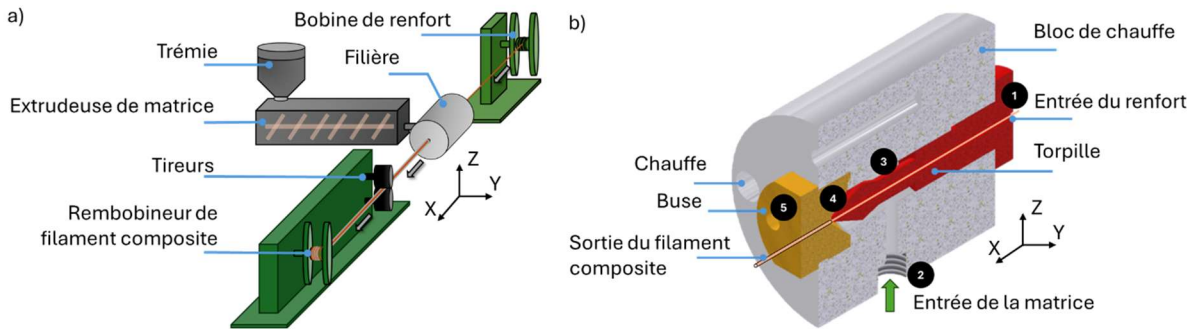


Figure 32 : a) Schématisation de la ligne de coextrusion destinée à produire des filaments composites à renforts continus. b) Vue en coupe de la filière de coextrusion avec le bloc de chauffe (en gris), la torpille d'extrusion (en rouge), la buse (en orange), le renfort de lin (en beige) et le filament composite (en beige et gris).

Tableau 3 : Paramètres de coextrusion des filaments en cFF/PLA :

Paramètres d'extrusion	Valeurs
Température d'extrudeuse (°C)	190
Vitesse de vis (Tr/min)	2
Diamètre de vis (")	5/8
Diamètre de buse (mm)	0.63

4.2. Plan d'expériences relatif à l'étude des paramètres de coextrusion

Souvent énoncés dans la littérature comme les paramètres les plus influents sur les propriétés physiques des produits coextrudés [196]–[198], les paramètres étudiés dans le chapitre 3 sont la température de filière (°C) et la vitesse de tirage (m.min^{-1}). Les plages de températures de la filière et de vitesse de tirage sont représentées en tableau 4 :

Tableau 4 : Plan d'expérience de l'étude des paramètres de coextrusion selon 2 facteurs : la température (4 niveaux) en °C et la vitesse de tirage (3 niveaux) en m.min^{-1}.

		Vitesse de tirage (m.min^{-1})		
		1	1.5	2
Température (°C)	205	a	b	c
	210	d	e	f
	215	g	h	i
	220	i	k	l

La limite haute de vitesse de tirage est de 2 m.min^{-1}, car au-delà le diamètre du filament présente une irrégularité et casse fréquemment pour des températures de 205 °C et 210 °C. Les paramètres à suivre sont la viscosité du polymère η (Pa.s) impactant l'imprégnation des fibres, les taux de porosité V_p et de fibres V_f (%), les diamètres apparents $\emptyset$ (µm) et les propriétés mécaniques relatives telles que la contrainte à la rupture, l'allongement à la rupture et les modules d'élasticités E_{11} lors d'essais de traction.

Dans le but d'établir des comparaisons avec la littérature, les filaments utilisés dans les chapitres 4 et 5 seront produits avec une vitesse de tirage de 1 m.min^{-1} et une température de filière de 215 °C.

4.3. Méthodologie de quantification des forces en traction

La caractérisation des forces applicables a été réalisée sur une machine de traction INSTRON 10 kN équipée d'une cellule de charge 1 kN (n = 5). Des mors à corne de traction pneumatiques dédiés à la traction de filaments, fils et cordages sont utilisés afin de réduire les

problématiques de glissement (cf. Figure 33a.). Une précharge de 0.6 N, soit 2 % de la force maximale appliquée, est employée afin d'avoir une mise en tension des filaments.

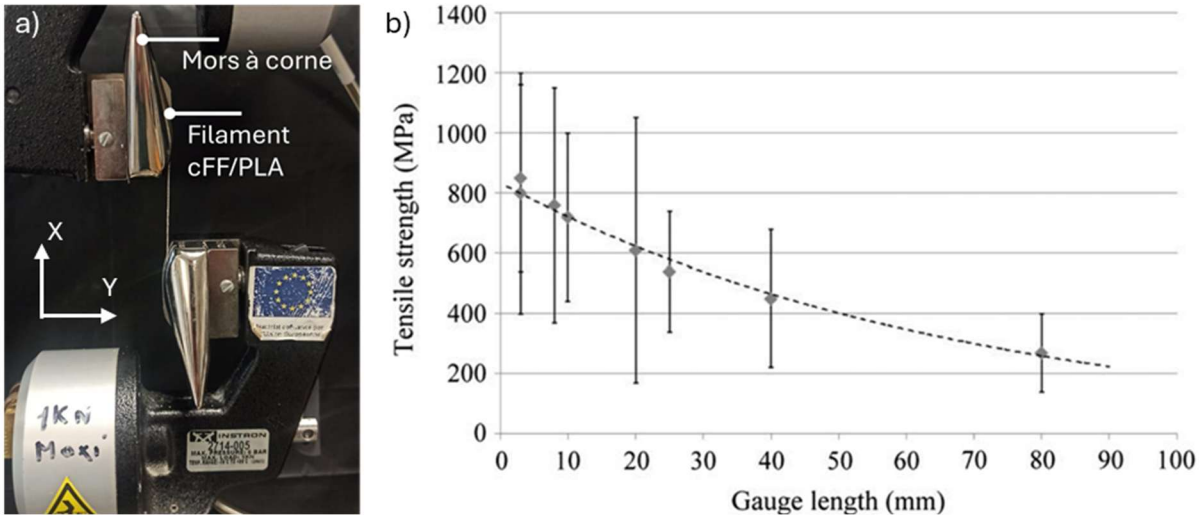


Figure 33 : a) Photographie du montage utilisé lors d'un essai de traction de filament en cFF/PLA. b) Résistance à la traction de faisceau de lin en fonction de la longueur de la jauge [199].

Les sections apparentes moyennes des filaments ont été analysées à l'aide de la démarche d'analyse microstructurale (cf. Figure 41). La déformation ε_{11} des échantillons est mesurée à partir d'une longueur de jauge de 100 mm. En effet, même s'il a été montré sur des faisceaux de fibres que lorsque la longueur de jauge augmente, une présence de défauts induit une diminution des contraintes à la rupture observables [199], la norme encore en vigueur DIN 53835-4 [200] concernant les essais de traction sur filaments et cordages recommande une longueur de 250 mm afin d'évaluer le comportement mécanique. Un compromis de 100 mm a ainsi été retenu. La courbe T III « contrainte-déformation » illustrée en Figure 34a est représentative d'un essai de traction de fibres végétales avec un angle microfibrillaire de leur couche S2 autour de 10 °, comme évoqué par Lefeuvre *et al.* [201]. En raison du comportement non linéaire observé en début de déformation, il est nécessaire d'appliquer une précharge sans provoquer de déformation initiale du matériau, afin d'éviter tout glissement au sein des mors.

Dans le cadre de nos essais sur des filaments imprimés, les modules d'élasticité E_{11} ont été déterminés par régression linéaire des courbes contrainte–déformation, présentant un coefficient de corrélation R^2 d'au minimum 0.99. Afin de valider cette méthode d'extraction des modules tangentiels E_{11}, des essais de cyclage entre 1 et 5 N ont été réalisés. Ces derniers ont mis en évidence une hystérèse très faible entre la charge et la décharge (< 0,1 %), ainsi

qu'une répétabilité de la pente des courbes Force-Allongement, confirmant ainsi la stabilité du module d'élasticité E_{11} (cf. Figure 34b).

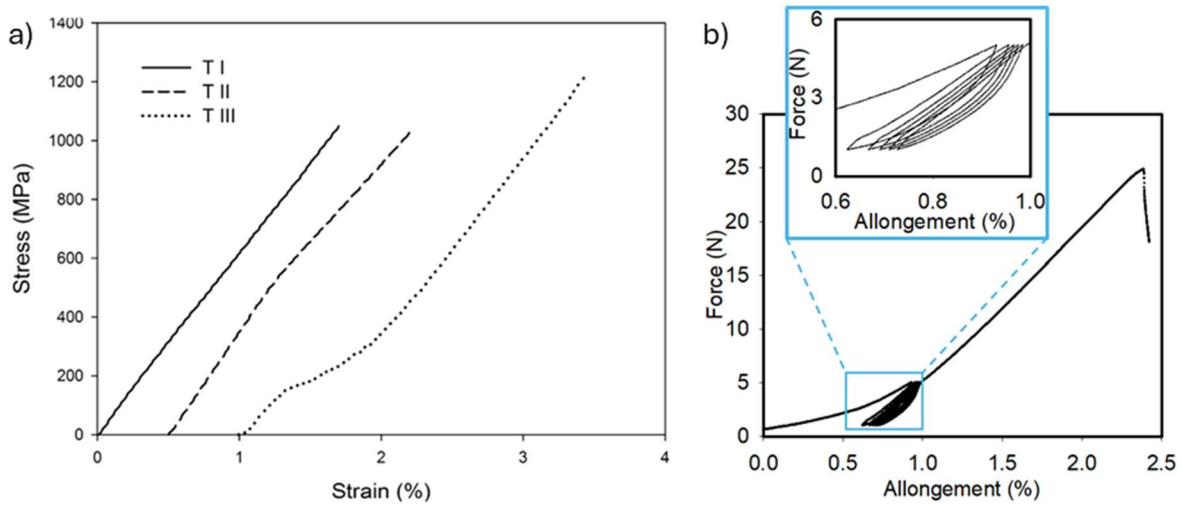


Figure 34 : a) Courbe « contrainte-déformation » des différents comportements de fibres végétales en traction avec un comportement linéaire uniforme (T I), un comportement scindé en deux sections linéaires (T II) et un comportement non linéaire sur la première section puis suivi d'une section linéaire (T III) extraite des travaux de Lefeuvre *et al.* [202]. b) Courbe « force-allongement » d'essai de cyclage, entre 1 et 5 N, réalisée sur un filament en cFF/PLA.

L'équation 6 a permis de déterminer le module d'élasticité longitudinal tangentiel des filaments :

$$E_{11} = \frac{\sigma_{11}}{\varepsilon_{11}} \qquad \text{(Eq.6)}$$

Les valeurs analysées ont été extraites de cinq échantillons pour chaque condition de mesure. Compte tenu de la difficulté à obtenir une complaisance sur ce type de système [203], l'ensemble des résultats est présenté de manière relative aux résultats des paramètres initiaux de coextrusion, à savoir une vitesse de tirage de 1 m.min^{-1} et une température d'extrusion de 205 °C.

5. Procédé de fabrication additive à renforts continus

5.1. Impression 3D en configuration planaire

Une imprimante PRUSA MK3S+ (cf. Figure 35a) avec une tête d'impression modifiée pour l'impression de renforts continus est utilisée pour la production de HBC [174]. Cette modification comprend le changement du système d'extrusion classique par une extrusion de

type Bowden. Les paramètres de conception ont été définis à l'aide de l'application de slicing FullControlGCode [204].

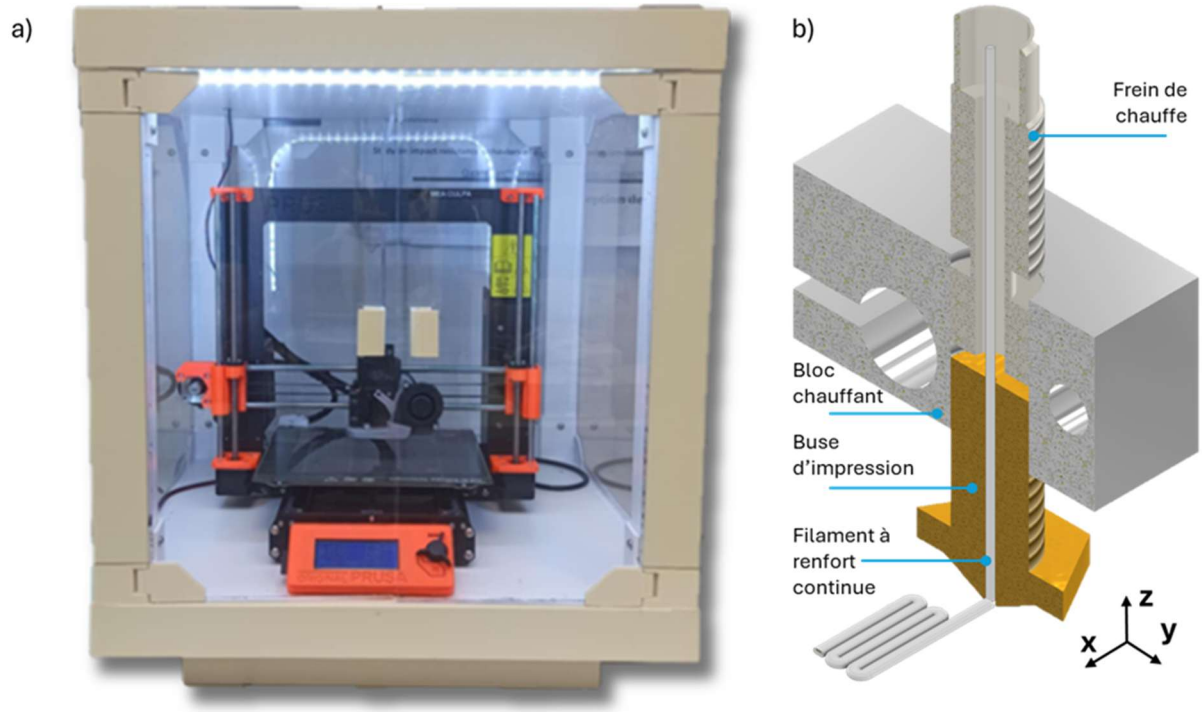


Figure 35 : a) Imprimante PRUSA MK3S+ modifiée pour impression de composites à renforts continus et son enceinte passive destinée au procédé d'impression 3D planaire schématisé. b) Vue en coupe de la tête d'impression comprenant la buse en laiton, le bloc de chauffe en aluminium et le frein de chauffe en titane.

Pendant l'impression, le filament coextrudé est acheminé vers la tête d'impression (cf. Figure 35b), fondu, puis déposé sur un plateau régulé en température. Une enceinte passive a été installée dans l'objectif de stabiliser l'humidité relative et la température ambiante (RH = 50 % et T = 20 °C). Les paramètres d'impression constants ont été définis pour les architectures étudiées et se retrouvent au tableau 5.

Tableau 5 : Paramètres définis pour l'impression planaire de HBC en cFF/PLA

Paramètres d'impression	Valeurs
Température de buse (°C)	190
Diamètre de buse (mm)	0.6
Température de plateau (°C)	60
Vitesse d'impression en ligne droite (mm.min^{-1})	360
Vitesse d'impression en virage (mm.min^{-1})	50
Température d'enceinte (°C)	20
Humidité de l'enceinte (%)	50

Dans le cadre de l'étude de l'impact des architectures macroscopiques (chapitre 5), la LH et la ID ont été définies à 0.3 mm et 0.6 mm, respectivement. Post-impression, les dimensions des géométries cubiques et parallélépipédiques ont été définies à 30 × 30 × 5 mm^3 et 70 × 75 × 3 mm^3, respectivement.

5.2. Impression 3D en configuration rotative

Les impressions des géométries tubulaires ont été réalisées à l'aide d'une imprimante 3D modifiée pour permettre la dépose du filament sur un mandrin rotatif [24]. Ce dispositif, nommé « Rotoprinter », repose sur une base d'imprimante Prusa I3 (cf. Figures 36a et b). Le mouvement linéaire, initialement associé à l'axe Y, a été remplacé par une rotation continue autour de l'axe du cylindre (cf. Figure 36b). Contrairement à l'imprimante d'origine, le mandrin/plateau n'est pas chauffé, ce qui peut impacter l'adhésion entre le filament extrudé et le plateau. Afin d'assurer une bonne tenue du filament lors des changements de direction, deux entretoises imprimées de manière conventionnelle (FFF) en PLA ont été positionnées aux extrémités du mandrin (cf. Figure 36b) comme décrit par *Josselin et al.* [188]. Les paramètres d'impression sont identiques à ceux présentés au tableau 5, à l'exception de la température de mandrin qui est à température ambiante (~20 °C). Les dimensions des échantillons tubulaires (hors entretoise) sont L = 55 mm, diamètre extérieur $Ø_{ext}$ = 12 mm et diamètre intérieur $Ø_{int}$ = 10 mm, soit une épaisseur de h = 1 mm.

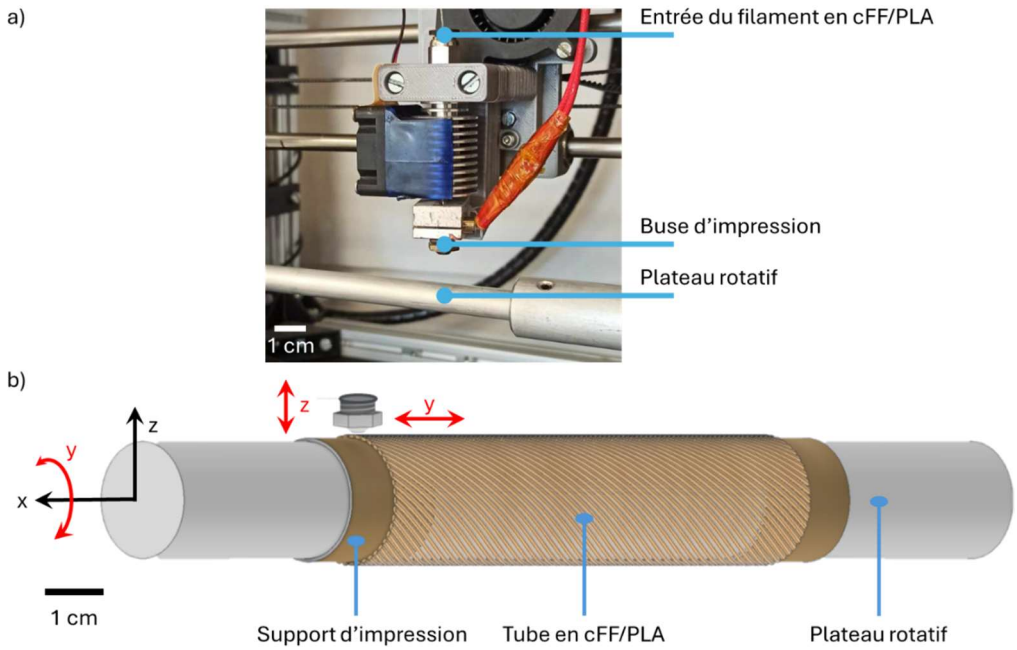


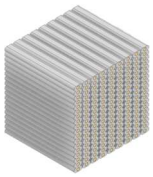
Figure 36 : a) Imprimante à plateau rotatif permettant l'impression de tube en cFF/PLA et b) schématisation du procédé d'impression sur un mandrin rotatif.

6. Conception géométrique des impressions 4D à l'échelle macroscopique

6.1. Définition des géométries étudiées

Comme l'ont démontré *Alban et al*. [193], deux architectures macroscopiques, bilame hélicoïdal et bilame plan, composées de matériaux métalliques similaires, peuvent générer des densités d'énergie volumiques distinctes lors d'un actionnement induit par la température. Comme indiqué dans le tableau 6, le chapitre 5 se concentre sur la confrontation de trois mouvements hygroinduits : linéaire rectiligne, flexion encastrée et torsion.

Tableau 6 : Mouvements étudiés associés aux structures et aux géométries respectives.

Mouvement	Structure/Architecture	Géométries	Schéma
Linéaire rectiligne	Symétrique Unidirectionnel Couplage extension/pression linéaire	Cubique	
Flexion encastrée	Asymétrique Bilame Couplage courbure/flexion	Parallélépipède élancé	
Torsion	Symétrique Unidirectionnel hors axe Couplage extension/torsion	Tubulaire	

6.2. Conception des architectures macroscopiques

6.2.1. Plan d'expériences dédié à l'étude des paramètres de slicing et de la géométrie cubique

Pour évaluer l'influence de la hauteur de couche, des échantillons cubiques ont été fabriqués avec 18, 16, 14 et 12 couches correspondant à des hauteurs de couches programmées de 0.25, 0.30, 0.35 et 0.40 mm, respectivement. Précédemment, les recherches se sont principalement limitées à des modèles comportant jusqu'à 5 couches déposées [150]. En revanche, les études présentées en chapitres 4 et 5 portent sur un plus grand nombre de couches.

Plusieurs paramètres de slicing, y compris la hauteur de couche (0.25, 0.30, 0.35 et 0.40 mm) et l'orientation du filament (0, 30, 45, 60 et 90 °), ont été testés à l'aide d'un modèle de dépôt

aligné selon l'axe Z, comme illustré en Figure 37a. Sur la base d'un travail antérieur [205], la distance interfilamentaire locale a été ajustée pour concevoir des canaux de taille prédéfinie (Ø 0 /Ø 1 /Ø 2/ Ø 3 mm). Les filaments ont été disposés en quinconce, en utilisant une LH de 0.35mm car une LH en deçà impliquait une compression trop élevée empêchant la création de cavités et qu'une LH supérieure à 0.40 mm présentait de la délamination (cf. Figure 37b).

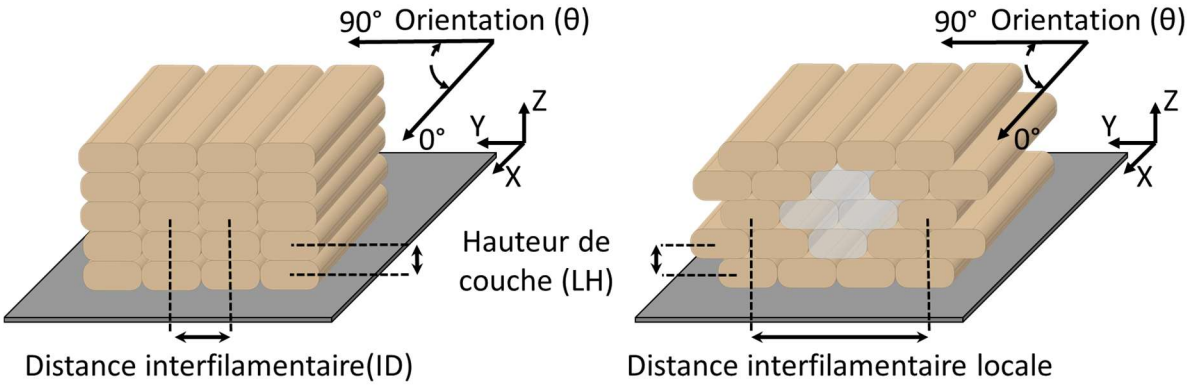


Figure 37 : a) Représentation schématique de HBC en cFF/PLA imprimés 4D avec les paramètres de slicing (hauteur de couche, orientation des filaments, et distance interfilamentaire pour une structure alignée selon l'axe Z. b) Représentation schématique de HBC en cFF/PLA imprimés 4D avec les paramètres de slicing (hauteur de couche, orientation des filaments, et distance interfilamentaire localisée) pour une structure désalignée selon l'axe Z.

6.2.2. Conception de la géométrie parallélépipédique élancée

Depuis les années 1920, l'architecture stratifiée asymétrique a été largement exploitée pour induire des déplacements significatifs, notamment dans le domaine des actionneurs métalliques [206]. Cette configuration repose sur l'association de matériaux aux propriétés de dilatation différentes, générant une courbure contrôlée sous l'effet d'un stimulus thermique ou hygrométrique [207][208]. Ici, le choix de longueur L = 70 ± 1 mm, de largeur l = 15 ± 1mm et d'épaisseur h = 3.0 ± 0.1 mm permet de considérer la géométrie comme parallélépipédique élancée, où $\frac{L}{h} > 15$. Dans le cadre des HBC, la variation de courbure Δk est régie par l'équation modifiée de *Timoshenko et al.* [209] (cf. Eq. 7 et 8) valable pour des géométries parallélépipédiques élancées asymétriques :

$$\Delta k = \frac{\beta . \Delta MC . f(m,n)}{h} \qquad \text{(Eq.7)}$$

Avec,

$$f(m,n) = \frac{6(1+m)^2}{3(1+m)^2+(1+mn)(m^2+\frac{1}{mn})} \quad \text{(Eq.8)}$$

où β est la variation de coefficient d'hygroexpansion transverse du matériau composé de filament de cFF/PLA, ΔMC correspond à la variation de teneur en eau et les paramètres structurels $m = \frac{h_{passive}}{h_{active}}$ et $n = \frac{E_{passive}}{E_{active}}$ désignent les rapports des épaisseurs et de modules d'élasticité entre les couches passive et active qui, dans le cadre des HBC imprimés 4D, correspondent aux couches ayant un différentiel de coefficient d'hygroexpansion.

Selon les études de Wang *et al.* [210] et de Balakrisnan *et al.* [211], les performances de variation de courbure atteignent leur maximum lorsque le rapport $f(m,n)$ tend vers 1.5 indépendamment des matériaux utilisés. La Figure 38 présente ce ratio optimal dans le cadre d'un composite stratifié en cFF/PLA caractérisé par des modules d'élasticité longitudinaux et transverses de E_{11} = 16 GPa et de E_{22} = 2.5 GPa, respectivement. Pour l'empilement retenu (3 couches passives pour 7 couches actives), on obtient ainsi $m = 0.43$, ce qui correspond à une fraction d'épaisseur passive de 30 % par rapport à l'épaisseur totale du bilame. Cette configuration se situe dans la zone quasi-optimale de la fonction $f(m,n)$, permettant de maximiser la courbure tout en conservant une rigidité structurelle suffisante pour par la suite générer des efforts. En raison de l'orientation transverse des fibres dans la phase active, celle-ci présente une déformation hygroscopique dominante dans la direction transverse. Le différentiel de déformation avec la phase passive engendre des contraintes internes et conduit à une flexion du bilame, caractérisée par des contraintes longitudinales de traction dans la couche active, de compression dans l'autre et du cisaillement entre les deux phases. De plus, à fraction passive constante, l'augmentation du nombre total de couches accroît l'épaisseur globale du stratifié et donc sa rigidité en flexion, ce qui entraîne une diminution de la courbure générée.

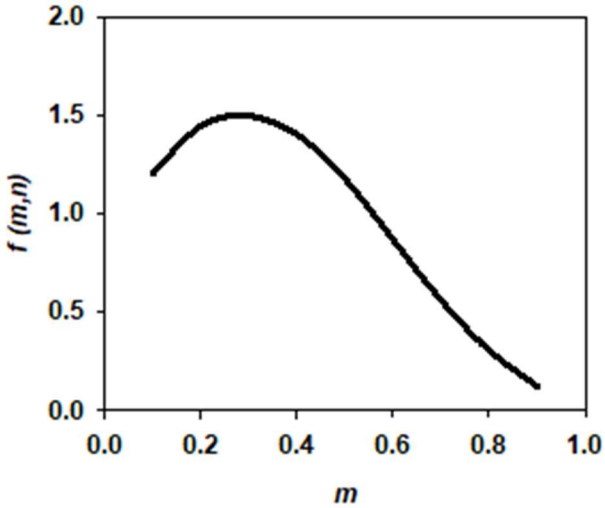


Figure 38 : Evolution de *f(m,n)* en fonction du ratio d'épaisseur entre les couches passive et active *m* d'un bilame en cFF/PLA réalisé à partir des données obtenues par les recherches précédentes du laboratoire sur un matériau similaire [123][150][212][213].

6.2.3. Conception de la configuration tubulaire

Josselin et al. ont mis en évidence que, dans le cas de structures tubulaires fabriquées à partir de cFF/PBAT, les performances d'actionnement spécifiques optimales sont obtenues expérimentalement pour un angle de dépose de θ = 45 ° et possédant un diamètre intérieur de tube de $Ø_{int}$ = 10 mm [188]. Cette architecture a permis de maximiser le compromis entre l'amplitude de déformation et le couple généré par l'actionneur en fonction du volume de matière utilisé.

Cette observation est soutenue par un modèle analytique développé par Burgert *et al.* [214]. Dans le cadre de notre étude, le modèle suivant sera utilisé à titre de comparaison des résultats de force et de course en périphérie de tube en cFF/PLA immergé dans de l'eau déminéralisée. La géométrie du tube est définie par sa longueur *L* (mm), son diamètre *D* (mm) et l'angle d'inclinaison de ses filaments *α* (°). L'épaisseur du tube *h* n'est pas considérée dans ce modèle. Dans un premier temps, nous considérons une section unitaire de tube de hauteur *H,* définie de telle sorte qu'une fibre fasse exactement un tour complet autour du tube (cf. Figure 39a). La hauteur de ce tube est définie par la relation suivante :

$$H = \frac{\pi D}{\tan \alpha} \qquad \text{(Eq.9)}$$

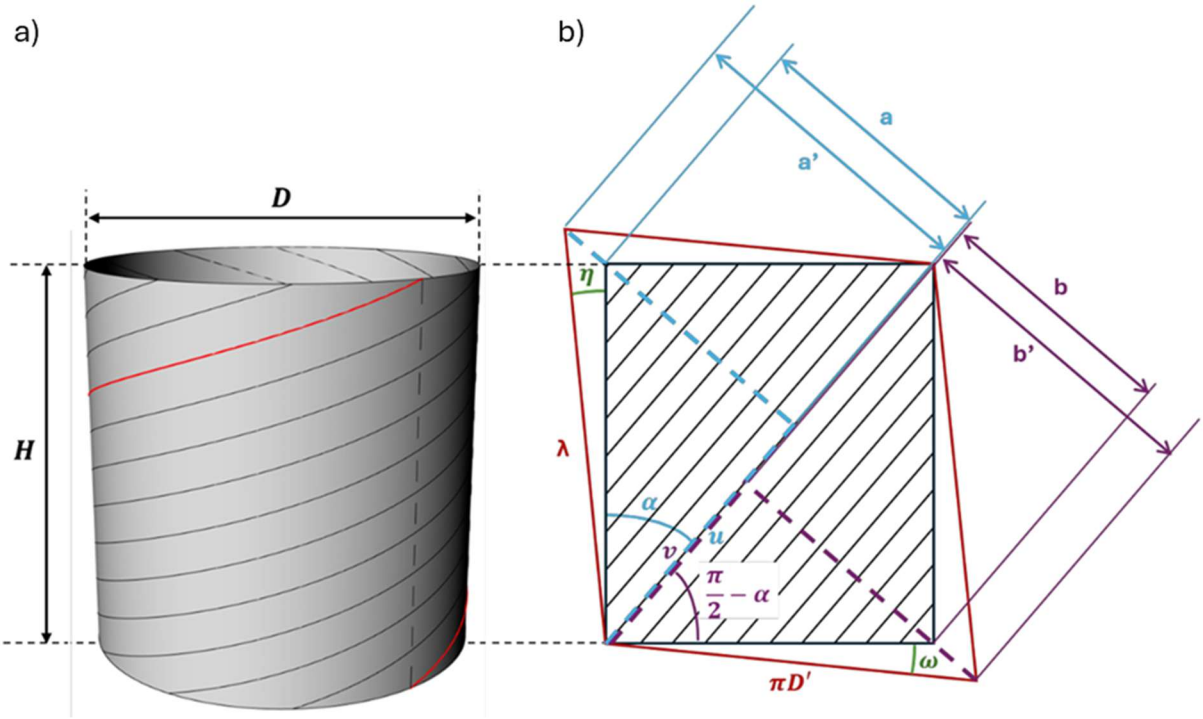


Figure 39 : a) Section de tube de hauteur *H*, définie de telle sorte qu'une fibre fasse exactement un tour complet autour du tube. b) Projection planaire de la section tubulaire de hauteur *H* dans ses conditions avant et après déformation. Adaptée de [188][214].

À la suite d'une projection planaire du tube (cf. Figure 39b) et d'une variation de la teneur en eau interne ΔM, l'expansion transverse des fibres mène à une géométrie rhombique, représentée en rouge. Ce phénomène d'hygroexpansion peut être décrit analytiquement de la manière suivante :

$$\begin{cases} a' = a\,(1+\beta.\Delta M) \\ b' = b\,(1+\beta.\Delta M) \end{cases} \qquad \text{(Eq.10)}$$

L'angle η, formé entre les déplacements verticaux induits par le gonflement des fibres, peut être déterminé à l'aide de l'équation suivante, identifié en bleu sur la Figure 39b :

$$\begin{cases} \tan\alpha = \frac{a}{u} \\ \tan(\alpha+\eta) = \frac{a'}{u} \end{cases} \Rightarrow \frac{a}{\tan(\alpha)} = \frac{a'}{\tan(\alpha+\eta)} \Rightarrow \eta = \tan^{-1}((1+\beta.\Delta M)\tan\alpha) - \alpha \qquad \text{(Eq.11)}$$

L'angle ω, formé par les déplacements horizontaux induits par le gonflement des fibres, peut être déterminé à l'aide de l'équation suivante, identifiée en violet sur la Figure 39b :

$$\begin{cases} \tan\left(\frac{\pi}{2}-\alpha\right) = \frac{b}{v} \\ \tan(\frac{\pi}{2}-\alpha+\omega) = \frac{b'}{v} \end{cases} \Rightarrow \omega = \tan^{-1}((1+\beta.\Delta M)\cot\alpha) + \alpha - \frac{\pi}{2} \qquad \text{(Eq.12)}$$

En considérant que la base de la géométrie rhombique correspond à celle du tube, une rotation angulaire de $\varphi = \eta + \omega$ est appliquée à cette géométrie, comme illustré sur la Figure 39b. Il en résulte une rotation θ de l'unité tubulaire, laquelle est calculée à l'aide de l'équation suivante :

$$\theta = 2\pi \frac{\varepsilon}{\pi D'} = 2\frac{\lambda}{D'} sin\varphi \quad \text{(Eq.13)}$$

Dans laquelle λ correspond à la longueur de filament inclinée dans la forme rhombique, ε est la déflection de la partie supérieure du tube aplanie et D' est le diamètre du tube déformé. Ici, λ et D' sont calculées de manière similaire à η et ω, selon les triangles rectangles présentés dans la Figure 39b, tels que :

$$\begin{cases} \cos\alpha = \frac{u}{H} \\ \cos(\alpha+\eta) = \frac{u}{\lambda} \end{cases} \Rightarrow \lambda = H \frac{\cos\alpha)}{\cos(\alpha+\eta)} \quad \text{(Eq. 14)}$$

$$\begin{cases} \cos(\frac{\pi}{2} - \alpha) = \frac{v}{\pi D} \\ \cos\left(\frac{\pi}{2} - \alpha + \omega\right) = \frac{v}{\pi D'} \end{cases} \Rightarrow D' = D\frac{\sin\alpha}{\sin(\alpha-\omega)} \quad \text{(Eq. 15)}$$

Ensuite, l'équation finale de l'angle de rotation généré par l'unité tubulaire d'hauteur *H* est :

$$\theta = 2\pi \frac{\sin\varphi}{\text{ta}^{\,2}} \frac{\sin(\alpha-\omega)}{\cos(\alpha+\eta)} \quad \text{(Eq.16)}$$

La Figure 40c illustre les variations dimensionnelles du tube avant et après immersion dans l'eau déminéralisée. Il est important de noter qu'en plus de la rotation, les mouvements induits incluent une augmentation du diamètre ainsi que de la longueur du tube.

La rotation totale, notée θ_{tot}, normalisée par la longueur du tube, est déterminée à partir de l'équation suivante :

$$\theta_{tot} = \frac{L}{H}\theta = \frac{L\tan\alpha}{\pi D}\theta \quad \text{(Eq.17)}$$

Il convient de rappeler que ce modèle analytique ne prend pas en compte les propriétés intrinsèques des matériaux, à l'exception du coefficient d'expansion hygroscopique transverse des filaments imprimés en cFF/PLA, estimé à β = 0.0013 [49].

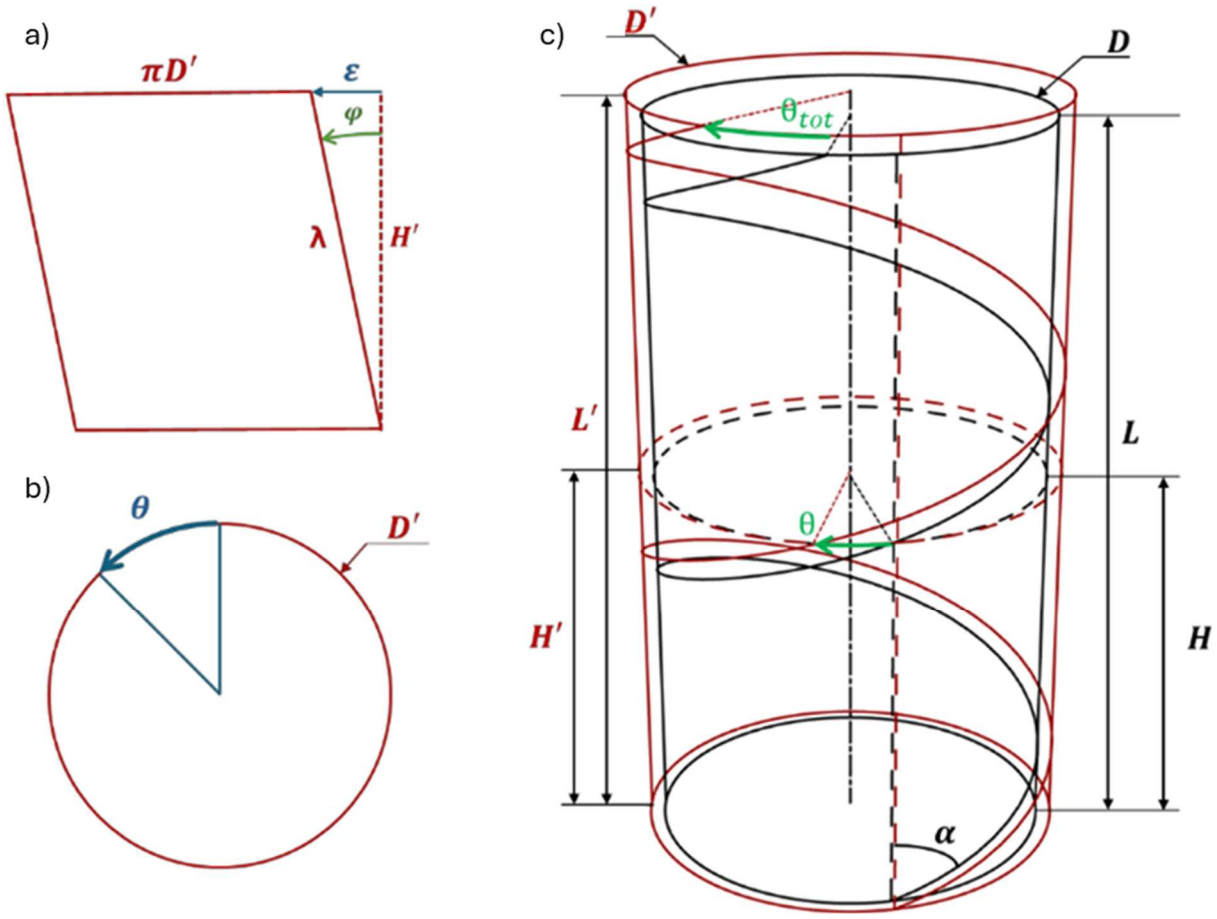


Figure 40 : a) Représentation planaire de la géométrie rhombique induite par les déformations hygroscopiques du tube. b) Vue de dessus de l'angle parcouru par le tube unitaire. c) Schématisation de la géométrie initiale (en noire) et après déformation (en rouge) du tube dans le cadre de sa hauteur totale. Schémas adaptés de Josselin et al.[188]

7. Préparation et conditionnement des échantillons

7.1. Découpe et mise en forme des échantillons

La découpe des échantillons à l'aide d'une découpe à fil diamanté a été sélectionnée afin d'obtenir des surfaces planes lors des mesures de forces. Lors de l'impression, les surfaces présentent des défauts de planéité pouvant *in fine* impacter la transmission des efforts vers la cellule de charge. De plus, cette méthode de découpe a été sélectionnée afin de minimiser un échauffement du composite rendant difficile son usinage.

Les échantillons à base de bois ou en cFF/PLA imprimés sous forme de plaque de 30 × 30 × 5 mm³ ont été usinés en cube de 5 × 5 × 5 mm³. Les coupes ont été effectuées en fonction des plans (YZ) et (XZ) à l'aide d'une scie circulaire de précision STRUERS.

Les échantillons en cFF/PLA dédiés à l'étude de l'orientation des filaments ont nécessité l'utilisation de cales de découpe angulaire (30, 45 et 60°). Ceux intégrant une distance interfilamentaire locale destinée à la création de canaux internes ont été usinés aux dimensions de $5 \times 17 \times 5$ mm^3, de manière à conserver la concentricité des canaux au sein de l'architecture imprimée.

Enfin, les échantillons asymétriques stratifiés ont été découpés, après impression, aux dimensions de $70 \times 15 \times 3$ mm^3, afin de reproduire les conditions géométriques des essais décrits par *Le Duigou et al*., comportant uniquement deux couches superposées [212].

7.2. Conditionnement hygroscopique

Afin de contrôler la teneur en eau dans les matériaux utilisés, un protocole de séchage a été systématiquement appliqué avant les essais afin d'approcher une teneur en eau minimale (~0 % MC). Les échantillons soumis aux essais de traction ou d'actionnement immergés dans l'eau ont, au préalable, été placés en étuve sous vide MEMMERT à 50 °C pendant 48 heures. Ils ont ensuite été sortis individuellement, juste avant leur utilisation, afin de minimiser leur exposition à l'humidité ambiante.

8. Méthodes de caractérisation des structures

8.1. Préparation des échantillons pour observation

Les échantillons ont été enrobés d'une résine thermodurcissable époxy EPOLAM 2020 afin de permettre l'observation des microstructures. Le polissage des surfaces a été réalisé à l'aide d'une polisseuse automatique STRUERS LaboPol-30 suivant une séquence de six disques abrasifs de granulométries croissantes (500, 800, 1000, 1200, 2000, 4000 µm) sous une charge constante de 10 N.

8.2. Observation optique à différentes échelles

L'analyse des structures (n = 10) a été effectuée à l'aide d'un microscope numérique KEYENCE VHX-S770E et d'un microscope électronique à balayage (MEB) Jeol JSM-IT500HR défini à 15 kV (313 nm / pixel). Le traitement d'image a été réalisé avec le logiciel ImageJ [215] via la binarisation des images (8 bits). Les fractions volumiques de fibre V_{fibre} et de porosité $V_{porosité}$

ont été calculées à partir des rapports surfaciques entre les surfaces ciblées S et la surface totale de l'échantillon $S_{échantillon}$ selon les équations suivantes :

$$V_{fibre} = \frac{S_{fibre}}{S_{échantillon}} \times 100 \quad \text{(Eq. 18)}$$

$$V_{porosité} = \frac{S_{porosité}}{S_{échantillon}} \times 100 \quad \text{(Eq. 19)}$$

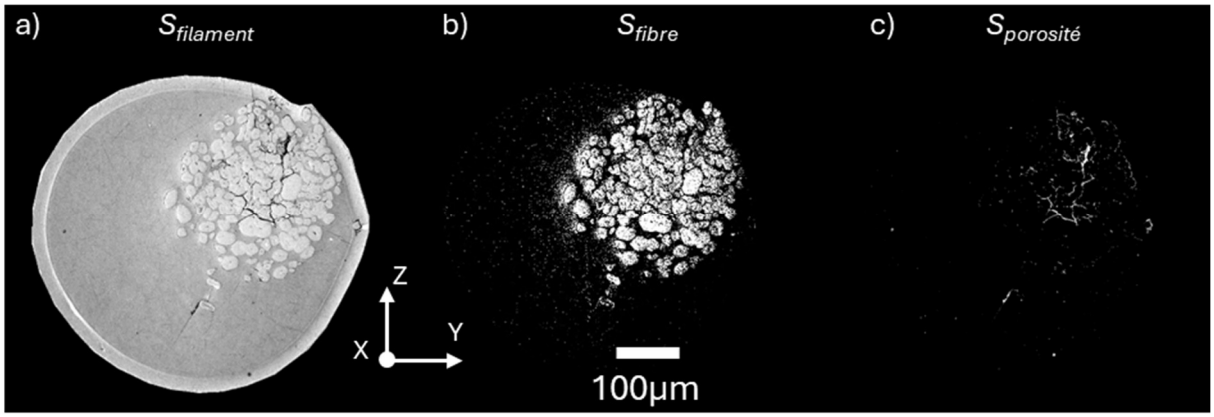


Figure 41 : a) Photographie binarisée d'une section de filament en cFF/PLA prise au microscope numérique Keyence VHX puis traitée à l'aide du logiciel ImageJ [215] afin d'obtenir b) la surface de fibres ou c) de porosité.

Les diamètres apparents ont été déterminés à partir de l'équation suivante :

$$Ø_{filament} = 2\sqrt{\frac{S_{Filament}}{\pi}} \quad \text{(Eq. 20)}$$

8.3. Observation des propriétés de sorption des biocomposites imprimés en cFF/PLA

La teneur en eau des biocomposites imprimés est déterminée par mesures gravimétriques (n = 5). Pour cela, les échantillons sont immergés dans de l'eau déminéralisée à température ambiante, puis relevés à intervalles réguliers. Après immersion, les surfaces des spécimens ont été soigneusement essuyées à l'aide de papier absorbant, puis leur masse a été immédiatement mesurée. Les pesées ont été réalisées à l'aide d'une balance de précision Fisher Analysis (± 10^{-4} g). La teneur en eau a ensuite été déterminée selon l'équation suivante :

$$MC = \frac{M_t - M_0}{M_0} \times 100 \quad \text{(Eq. 21)}$$

Avec *MC* la teneur en eau (%), M_t la masse (g) d'un échantillon à l'instant *t* et M_0 la masse initiale (g). Dans le but de caractériser les comportements d'absorption d'eau au sein des matériaux composites, différents modèles analytiques ont été proposés. Pour un matériau imprimé d'épaisseur *h*, en considérant une distribution initiale homogène et une concentration de surface constante, la loi de Fick conduit à l'équation suivante :

$$\frac{MC_t}{MC_{finale}} = 1 - \frac{8}{\pi^2}\sum_{n=0}^{\infty}\frac{1}{(2n+1)^2}\exp\left(\frac{-(2n+1)^2\pi^2 Dt}{h^2}\right) \quad \text{(Eq.22)}$$

Où MC_t désigne la teneur en eau à l'instant *t*, MC_{finale} la teneur en eau à l'équilibre et *D* la diffusivité isotrope au sein du matériau. Dans le cadre où la valeur de $\frac{M_t}{M_{finale}}$ <0.6, la partie initiale de la courbe peut être corrélée par l'équation suivante :

$$\frac{MC_t}{MC_{finale}} = \frac{4}{h}\sqrt{\frac{Dt}{\pi}} \quad \text{(Eq.23)}$$

Pour la seconde partie de la courbe, Shen *et al.* [216] ont proposé cette approximation adaptée à la sorption chez les matériaux composites :

$$\frac{MC_t}{MC_{finale}} = 1 - \exp\left[-7.3\left(\frac{Dt}{h^2}\right)^{0.75}\right] \quad \text{(Eq.24)}$$

Rappelons ici que le coefficient de diffusion D, utilisé dans la loi de Fick, correspond à :

$$D = \frac{\pi}{\left(4MC_{finale}\right)^2}\left(\frac{MC_t h}{\sqrt{t}}\right)^2 = \pi\left(\frac{k}{4MCfinale}\right)^2 \quad \text{(Eq. 25)}$$

où le coefficient k correspond à la pente de la partie linéaire de la courbe $MC_t = f(\frac{\sqrt{t}}{h})$. Toutefois, il est important de prendre en compte un facteur correctif permettant de s'acquitter des dimensions rectangulaires des spécimens. Le coefficient de diffusion corrigé D_c s'écrit alors :

$$D_c = D(1 + \frac{h}{L} + \frac{h}{b}) \quad \text{(Eq.26)}$$

9. Etudes des capacités d'actionnement : mesure de forces bloquées et de déplacements libres hydro-induits

9.1. Observation des capacités d'actionnement de HBC à géométrie cubique

La géométrie cubique des HBC a été choisie afin de mettre en évidence l'anisotropie intrinsèque du matériau, tout en évitant toute complexification géométrique pouvant interférer avec l'analyse des propriétés d'hydroexpansion. Les essais ont été réalisés à l'aide d'un rhéomètre ANTON PAAR MCR 301 en configuration plan-plan, dans la direction transverse et hors plan aux filaments imprimés (n = 5). Les échantillons ont été placés dans un réceptacle dédié, puis immergés dans de l'eau déminéralisée (T = 20.0 ± 0.3 °C). La géométrie supérieure plane de 25 mm de diamètre est reliée à un capteur de force motorisé (50.000 N ± 0.001 N) et assure la mesure des forces et des déplacements générés par l'expansion du matériau. La géométrie inférieure, également de 25 mm de diamètre, supporte le réceptacle contenant l'échantillon comme représenté en Figures 42a et b.

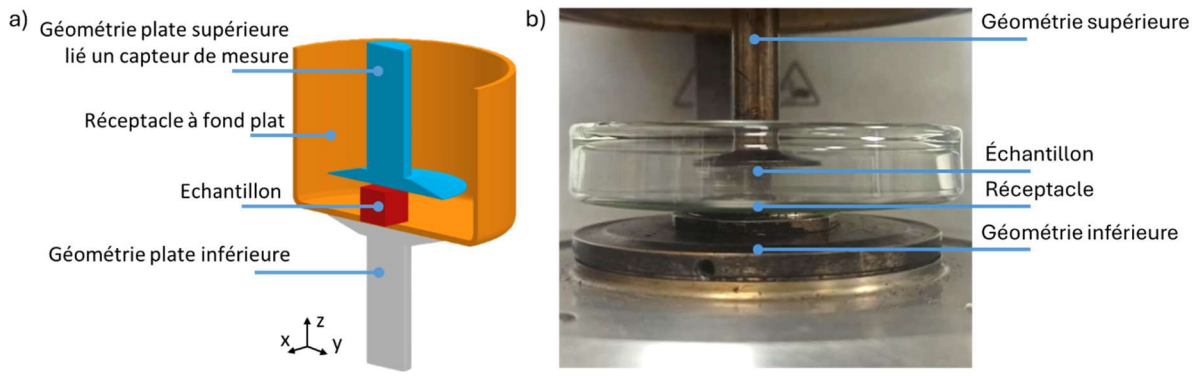


Figure 42 : a) Schématisation du protocole de mesure des capacités d'actionnement d'échantillons et cFF/PLA avec une géométrie cubique symétrique. b) Photographie du protocole de mesure des capacités d'actionnement d'échantillons en cFF/PLA avec une géométrie cubique symétrique.

La course parcourue δ par la géométrie supérieure est utilisée pour mesurer la variation d'épaisseur de l'échantillon testé pendant l'immersion. Le déplacement libre a été quantifié lorsque la géométrie supérieure exerce une force minimale, considérée négligeable, fixée à 0.010 ± 0.005 N. En effet, dès lors qu'une valeur supérieure est appliquée, l'entrefer augmente afin de stabiliser la valeur de force programmée. D'autre part, la force normale de blocage F générée est mesurée dans des conditions limites où le déplacement est nul. Cette configuration permet de caractériser la pression de gonflement maximum induite par la réponse hydromorphique du matériau.

9.2. Quantification de l'actionnement géométrie parallélépipédique élancée

9.2.1. Mesure du couple bloqué d'éprouvettes parallélépipédiques d'HBC

Afin de mesurer les efforts de flexion générés par les bilames en cFF/PLA lors d'une stimulation hydrique (n = 5), un dispositif expérimental a été développé à l'aide d'une cellule de force (2.00 ± 0.0001 N) disposée sur un bâti en profilé aluminium inspiré du montage de *Le Duigou et al.*[217] et illustré en Figures 43a et b. Une tige filetée (M6) en acier inoxydable, considérée comme infiniment rigide, a assuré le contact avec les échantillons élancés (où $\frac{L}{h} > 15$). Ces derniers ont été disposés sur un porte-échantillon immergé dans une eau déminéralisée (~20 °C) et ont été maintenus en position par un serrage entre deux écrous afin de garantir l'encastrement pendant la durée de l'essai.

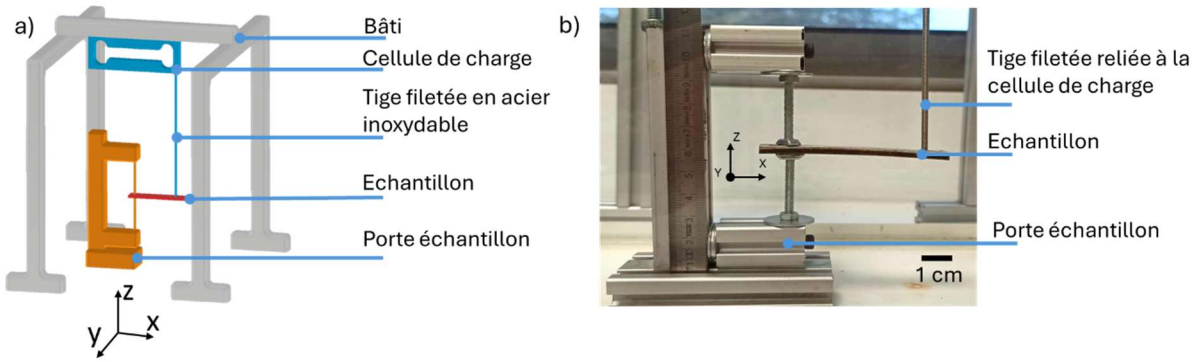


Figure 43 a) Schéma et photographie (b) du montage destiné à la mesure de force générée par les HBC (bilame simple).

9.2.2. Mesure de la courbure sur échantillons parallélépipédiques

L'analyse des courbures générées par les HBC lors de l'immersion (n = 5) a été réalisée à partir d'un suivi visuel par acquisition d'images (fréquence 0.16 Hz) à l'aide d'une caméra Logitech® HD Pro C920. Chaque échantillon a été positionné dans un porte-échantillon identique à celui des essais de mesure de force (cf. Figures 43a et b). Le traitement des images a été effectué à l'aide de l'application ImageJ® (National Institute of Health, USA) [215]. La courbure initiale de déformation est supposée correspondre à l'inverse d'un cercle de rayon r, lequel évolue au cours de l'immersion. La courbure instantanée k est définie selon la relation suivante :

$$k = \frac{1}{r} \qquad \text{(Eq. 27)}$$

Ainsi, la différence entre les courbures initiale $k_{initiale}$ et finale k_{finale} permet d'obtenir expérimentalement la courbure effective Δk générée par les HBC en cFF/PLA.

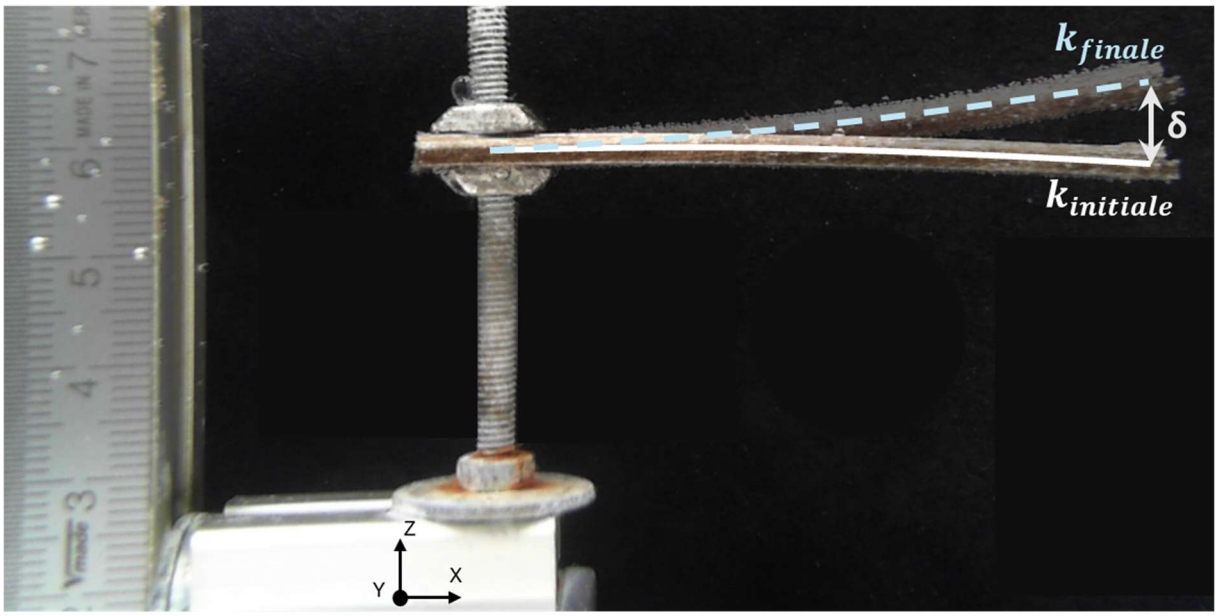


Figure 44 : Illustration de la détermination de la courbure effective des HBC en cFF/PLA lors de l'immersion dans l'eau.

Conformément à la théorie des poutres, il est supposable que pour des déplacements modérés (δ < 20 % de la longueur totale de l'échantillon), le déplacement vertical à l'extrémité libre δ du bilame peut être assimilé à la flèche d'une poutre encastrée soumise à une courbure homogène (cf. Figure 44). Ainsi, δ peut être estimée à partir de l'équation suivante :

$$\delta = \frac{FL^3}{3EI} \qquad \text{(Eq. 28)}$$

où L est la longueur de l'échantillon en mm et I le moment quadratique en mm^4 d'une poutre rectangulaire de largeur b en mm et d'épaisseur h en mm, défini par l'équation suivante :

$$I = \frac{bh^3}{12}. \qquad \text{(Eq. 29)}$$

Approche théorique de la courbure des biocomposites hygromorphes

Deux approches de la courbure effective des bilames ont été comparées aux résultats développés. La première repose sur l'étude de Timoshenko [209], citée précédemment, qui suppose une interface plane entre les deux phases (active et passive). La seconde approche de détermination de la courbure Δk réalisée par *Wang et al.* [210] introduit une prise en compte de la position réelle de la fibre neutre du bilame permettant une estimation plus précise. L'expression de cette courbure effective s'écrit :

$$\Delta k = \frac{6.\Delta MC.\Delta\beta.h_p.h_a(h_p+h_a)}{\frac{BE_p}{bE_a}h_p^4+4h_p^3.h_a+6h_p^2.h_a^2+4h_p.h_a^3+\frac{bE_a}{BE_p}.h_a^4} \quad \text{(Eq.30)}$$

Avec E_p et E_a représentant les modules d'élasticité longitudinaux en GPa, h_p et h_a correspondant aux épaisseurs ainsi que B et b exprimant la largeur des couches passive et active, respectivement.

Conformément à la méthodologie proposée par *Kim et al.* [218] dans le cadre de son étude des bilames électromorphes, la force F induite par le blocage a été quantifiée à l'aide de l'expression suivante :

$$F = \frac{6EI\Delta k}{L^3} \quad \text{(Eq.31)}$$

où les paramètres $F, E, I, \Delta k \; et \; L$ sont définis conformément aux notations introduites précédemment.

9.3. Evaluation des performances générées par les géométries tubulaires

9.3.1. Mesure du couple maximal bloqué

Afin de quantifier le couple généré par une géométrie tubulaire en cFF/PLA en fonction du temps d'immersion, un montage spécifique a été conçu. Un bâti réalisé à partir de profilés d'aluminium a permis la mise en place des échantillons (n = 5) au sein d'un bassin d'eau déminéralisée. Les tubes ont été fixés à l'aide de colliers de serrage en acier inoxydable sur un porte-échantillon rigide, lui-même relié au bâti principal. Un joint d'Oldham a permis d'assurer la transmission du couple généré tout en accordant une expansion longitudinale. Cette transmission a été effectuée à l'aide d'une lame usinée en acier, de 95 mm de longueur et de 2 mm d'épaisseur, positionnée en contact avec une cellule de charge (200 ± 2 g). Deux vis de positionnement de l'échantillon ont servi à ajuster le placement initial de la lame de transmission par rapport à la cellule de charge, de manière à obtenir une valeur de force initiale proche de zéro. La longueur de la lame, agissant comme un bras de levier, est ajustable afin de garantir que la force exercée ne dépasse pas la capacité maximale de la cellule de charge.

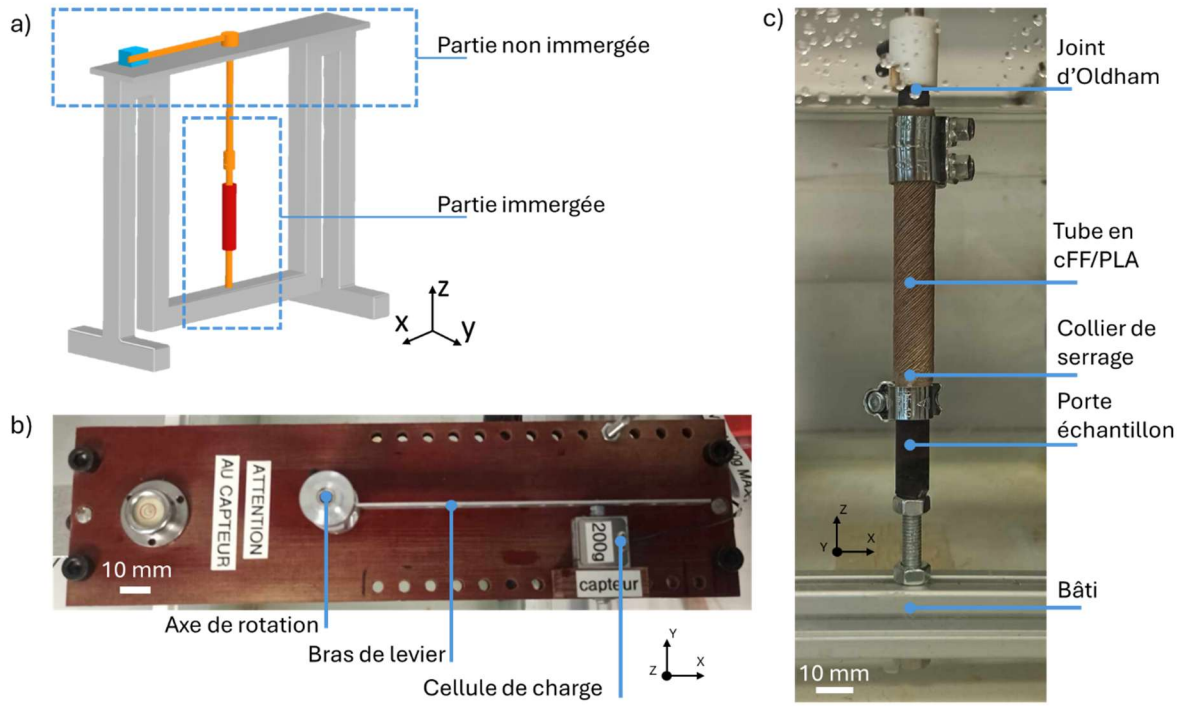


Figure 45 : a) Schématisation 3D du montage de mesure de couple des tubes HBC en cFF/PLA avec b) la partie non immergée en vue de dessus et c) la partie immergée en vue de face.

La force générée au périmètre de l'échantillon F est alors déterminée par la relation reliant la force mesurée par le capteur au bras de levier effectif :

$$F_{périmètre} = F_{cellule\ de\ charge} \times \frac{L_{0 \to cellule\ de\ charge}}{r} \qquad \text{(Eq.32)}$$

9.3.2. Mesure de la rotation libre

La mesure de l'angle de rotation induit (n = 5), par l'activation des structures tubulaires HBC en cFF/PLA lors de l'immersion dans l'eau, s'appuie sur le montage précédent. Un bâti identique a été utilisé avec une partie supérieure non immergée composée d'un codeur angulaire Copal Electronics® (± 0.345 °). Étant toujours couplé à l'aide d'un joint d'Oldham, ce capteur permet d'acquérir l'angle de rotation parcouru ω par le tube lors de l'hydroexpansion. L'équation suivante permet de déduire la course tangentielle δ parcourue par le tube à sa périphérie :

$$\delta = \frac{2\,\pi\,r\,\omega}{360} \qquad \text{(Eq. 33)}$$

Avec δ étant la course parcourue en mm, r correspondant au rayon du tube en mm et ω représentant l'angle de rotation du tube en °.

10. Comparaison des performances d'actionnement des différentes architectures macroscopiques

Afin de comparer les performances d'actionneurs passifs élaborés avec des ressources similaires, mais des architectures à échelles distinctes, des normalisations volumique et spécifique de la densité d'énergie pour le chapitre 4 et de la rigidité d'actionnement pour le chapitre 5 ont été réalisées. Ces deux paramètres sont issus des courbes « force-course » (cf. Figure 46a) proposées par *Hill et al.* [18] :

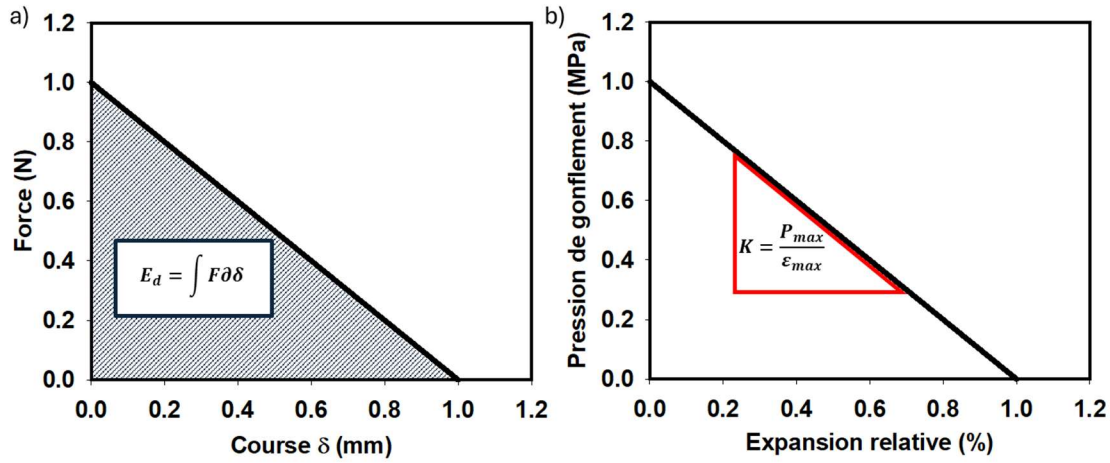


Figure 46 : a) Exemple de courbe « force-course » proposée par *Hill et al.* [18] permettant de calculer la densité d'énergie (J). b) Exemple de courbe « contrainte-expansion » d'un actionneur permettant de déduire la rigidité d'actionnement K (MPa).

La densité d'énergie volumique $E_{d\ volumique}$ en J.cm^{-3} est déterminée à partir du calcul suivant :

$$E_{d\ volumique} = \frac{1}{V}\int F\partial\delta \qquad \text{(Eq. 34)}$$

Avec la force générée F en newtons, V le volume de l'échantillon en cm^3 et la course δ en mm. Afin d'assurer une comparaison pertinente des contraintes générées au sein des différentes architectures, celles-ci sont normalisées par rapport à la section transverse des filaments imprimés comme représenté en Figure 47. Cette démarche a permis de s'affranchir des variations géométriques et de focaliser l'analyse sur les effets structurels intrinsèques liés à l'architecture. Les pressions de gonflement P_{max} et les expansions relatives ε_{max} sont issues des équations suivantes :

$$P_{max} = \frac{F_{max}}{S_{utile}} \quad \text{(Eq. 35)}$$

Et,

$$\varepsilon_{max} = \frac{L+\delta}{L} \quad \text{(Eq. 36)}$$

Avec S_{utile} correspondant à la section utile.

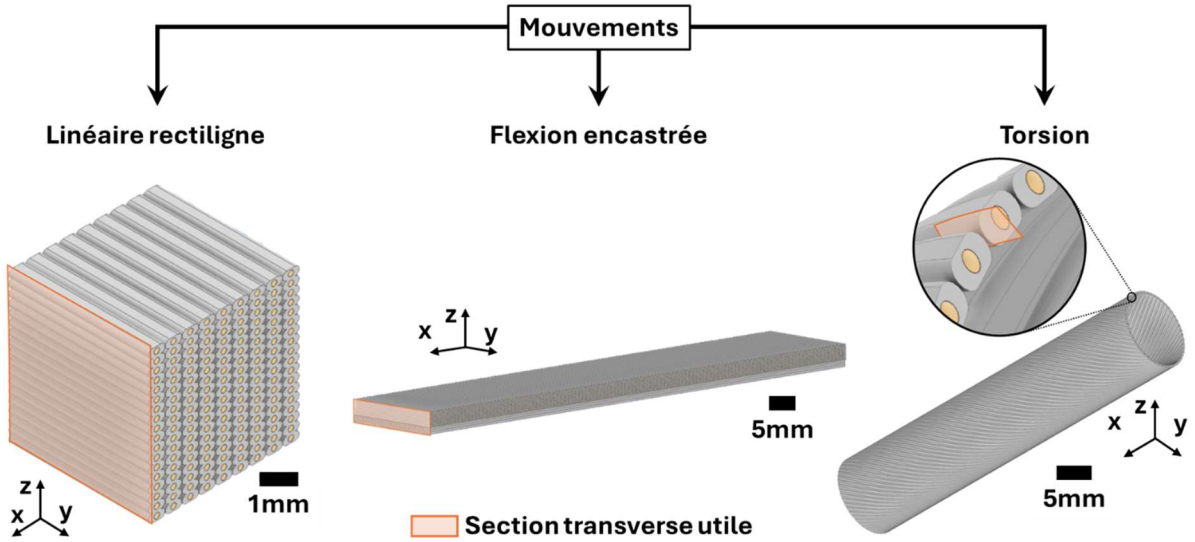


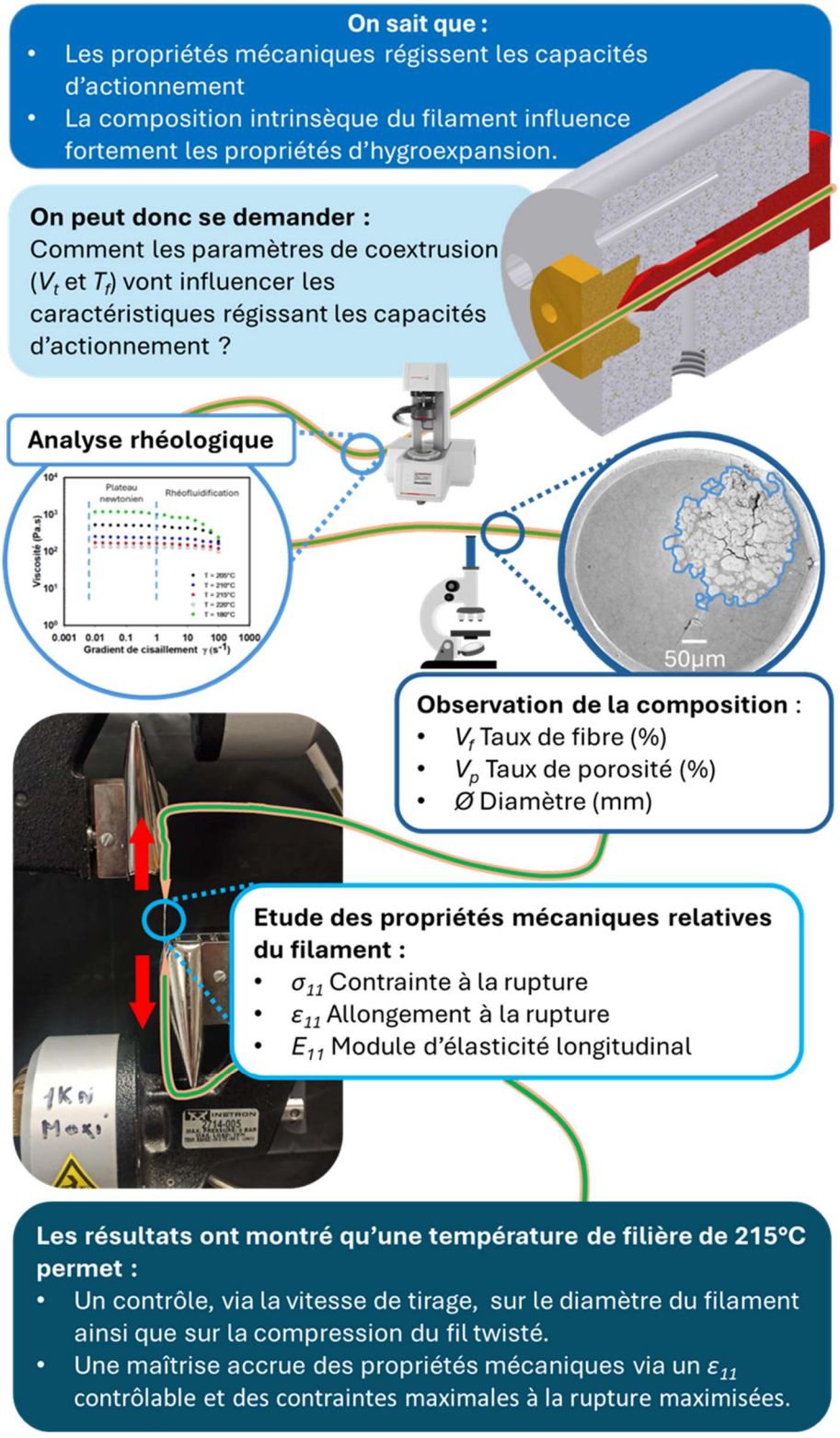
Figure 47 : Schématisation des sections transverses utile nécessaire à la normalisation des efforts générés.

La rigidité d'actionnement K (MPa) est définie comme la capacité d'un actionneur à supporter une charge mécanique tout en autorisant un déplacement. Si un actionneur présente une faible rigidité d'actionnement, et donc une capacité réduite à supporter des forces, il se déformera sous une charge élevée plutôt que de générer un mouvement ou une force utile. La rigidité conditionne ainsi directement l'efficience mécanique de l'actionneur.

Dans le but d'établir une comparaison entre les différentes géométries, la rigidité d'actionnement K a été normalisée par le volume de matière utilisé, conduisant à la définition d'une rigidité d'actionnement volumique, décrite par l'équation suivante :

$$K_{volumique} = \frac{1}{V} \cdot \frac{P_{max}}{\varepsilon_{max}} \quad \text{(Eq. 37)}$$

Chapitre 3 : Effets de la coextrusion sur la microstructure et les propriétés mécaniques des filaments à renforts continus naturels.



1. Introduction

Le procédé de coextrusion de renforts continus est une étape préalable à l'impression 4D, garantissant la mise en forme et l'homogénéité des filaments. Il permet l'enrobage d'une large variété de renforts par des matrices thermoplastiques. Cette diversité de produits permet d'adresser les besoins de divers secteurs, notamment le génie civil, avec des applications telles que les structures de ponts à tablier [219], ainsi que la recherche, notamment dans le domaine de la coextrusion de fibres de carbone [220]. Dans une approche environnementale, cette facilité d'application favorise aussi la transition des matériaux à base de composants synthétiques vers des alternatives naturelles.

Le procédé de coextrusion (cf. Figure 48) consiste en l'enrobage d'un renfort (fibreux ou non) par une matrice (thermoplastique ou thermodurcissable) extrudée au travers d'une filière chauffée. Communément, il permet d'obtenir un profilé de section constante [221]. Ce procédé de fabrication s'impose par sa facilité de mise en œuvre dans la production de profilés composites renforcés de fibres continues dont les modules d'élasticité longitudinaux sont jusqu'à 5 fois plus élevés que ceux des composites renforcés par des fibres courtes [171][173][222].

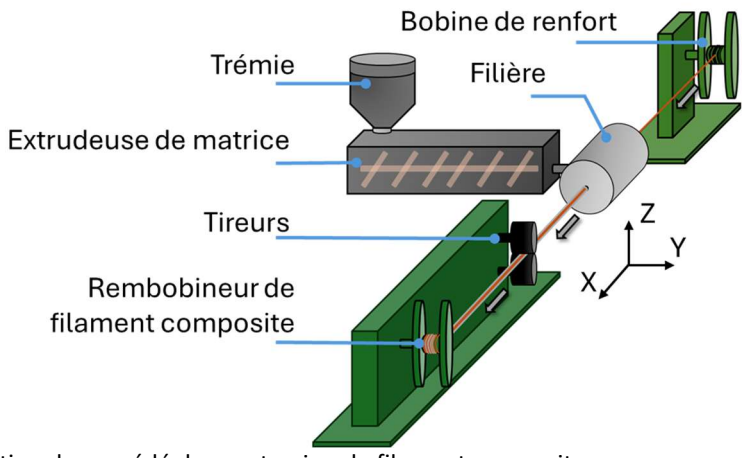


Figure 48 : Schématisation du procédé de coextrusion de filament composite.

Les propriétés mécaniques de l'extrudat résultent de la composition du profilé, de la répartition des constituants [172] et de la présence potentielle de porosités et/ou défauts.

A ce jour, plusieurs études concernant l'impact du taux de porosité [223][224], du taux de fibres [225][226] sur les propriétés mécaniques [196][224][227] ont été réalisées sur les

filaments composites à renforts synthétiques. Cependant, les études réalisées concernant la coextrusion des composites à renforts de fibres naturelles demeurent peu disponibles.

La présente étude consiste à évaluer l'impact des paramètres de coextrusion (température de filière et vitesse de tirage) sur la microstructure et par conséquent sur les propriétés mécaniques d'un filament cFF/PLA destiné à l'impression 4D.

En 2019, Le Duigou *et al.* proposent des filaments coextrudés avec une matrice en PLA et renforcés par des fibres continues de lin (cFF) pour l'impression 3D et 4D [173]. Une fois les pièces imprimées, dont l'architecture est inspirée d'actionneurs naturels comme la pomme de pin, elles sont capables de générer des mouvements et des efforts (morphing). L'hygroexpansion des fibres naturelles présentes au sein des biocomposites hygromorphes (HBC) architecturées en bilame est à l'origine de l'actionnement [68]. Ces composites étant dotés d'un renfort rigide et d'une matrice compliante, ils permettent de générer une expansion anisotrope conséquente et de posséder des propriétés mécaniques élevées dans l'axe de renforcement [123]. Dépendant des modules d'élasticité [9], l'actionnement des HBC découle de la composition des filaments et, par conséquent, de leur taux de fibres et de porosités [142][212]. Talimi *et al.* ont relevé que l'augmentation du taux de fibres courtes de coton au sein d'une matrice PLA de 10 % à 30 % fait croitre le module d'élasticité de 3.5 ± 0.1 GPa à 4.9 ± 0.3 GPa [228].Cependant, Hans *et al.* ont montré qu'au-delà d'une limite de 55 % de taux de fibre, le taux de porosité au sein du composite évolue drastiquement [229] et, par conséquent, fait chuter le module E_{11}. L'actionnement étant dépendant d'une relation entre rigidité et déplacement générés [123], la proportion de fibres végétales est un levier capital au sein des HBC qu'il conviendrait de maitriser par le processus de coextrusion de filaments.

Concernant les propriétés rhéologiques de la matrice, elles vont influencer l'enrobage du renfort et par conséquent les propriétés mécaniques du filament. Linganiso *et al.* ont montré que lorsque la température de filière augmente de 270 °C à 290 °C, les modules d'élasticité de filaments lin/PLA augmentent de 5.1 ± 0.3 à 6.8 ± 0.3 GPa [230]. Toutefois, les températures étudiées sont relativement élevées au regard de la résistance à la dégradation des composants de la fibre de lin. La lignine présente (~2 - 5 %) se dégrade à partir de 160 °C, la cellulose (~64 - 70 %) à partir de 270 °C et les hémicelluloses entre 200 et 260 °C (~20 - 25 %) [231]–[233]. Pour un composite tubulaire de jute/fibre de verre/PLA, l'augmentation de la température de

195 °C à 225 °C réduit la porosité de 12.5 % à 10 % d'après les auteurs [234]. Ces résultats n'ont pas encore été corrélés aux viscosités des thermoplastiques associés, ce qui constitue l'objet de la présente étude dans le cadre de composites en cFF/PLA.

La vitesse de tirage du filament impacte l'homogénéité de chauffe et la pression au sein de la filière. De nombreuses études sur des renforts continus synthétiques ont mis en avant que l'augmentation de la vitesse de tirage lors du procédé de coextrusion diminue le module de flexion du profilé produit [198][235][236]. De plus, Carlsson *et al.* énoncent que l'augmentation de la vitesse de tirage augmente la présence de défauts en surface [225].

Dans le cas de la coextrusion de thermoplastiques renforcés par des fibres naturelles, une augmentation de la vitesse de tirage pourrait, hypothétiquement, accentuer les défauts de surface, mais également affecter l'imprégnation des fibres, leur orientation et la qualité de l'interface entre la fibre et la matrice. Ainsi, l'impact sur les propriétés mécaniques et le comportement hygromécanique du composite reste à ce jour insuffisamment documenté.

La présente étude est consacrée à la caractérisation des composants de filaments en cFF/PLA dédiés à l'impression 4D et à l'étude de leurs propriétés mécaniques en fonction de la vitesse de tirage et de la température de filière de coextrusion. Le protocole expérimental inclut une analyse rhéologique, des observations au microscope optique ainsi que des essais de traction.

2. Résultats et discussion

2.1. Analyse de la viscosité du PLA 3001D :

Communément, le PLA est un polymère qui s'extrude entre 190 et 220 °C. A noter qu'une perte de masse conséquente s'observe à partir de 300 °C [237]. Comme observé sur les courbes de viscosité (cf. Figure 49), le PLA 3001D présente un plateau newtonien pour un taux de cisaillement de 0.01 s^{-1} à 1 s^{-1} puis un comportement rhéofluidifiant jusque 100 s^{-1}. Une mesure à 180 °C a été faite et est identique aux résultats apportés par Najafi *et al.* [195].

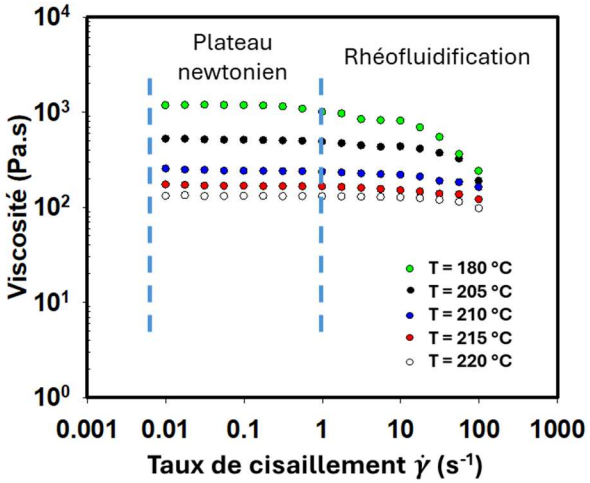


Figure 49 : Evolution de la viscosité (Pa. s) du PLA 3001D en fonction du taux de cisaillement (s^{-1}) entre 180 et 220 °C.

Ainsi, les valeurs de viscosité diminuent de 75 % pour des températures de 205 à 220 °C, respectivement. Cette augmentation de fluidité, induite par l'augmentation de température, modifie la pression exercée au sein de la filière, comme l'ont montré Kim *et al.* [238]. Il est donc supposé que ces variations puissent influencer la composition et les propriétés mécaniques des filaments, bien que ces effets doivent encore être confirmés.

2.2. Analyse de la microstructure des filaments cFF/PLA :

Les filaments analysés se composent de plusieurs composants distincts (Figure 50) : le renfort continu de lin, la matrice de PLA et les porosités. Il est à noter qu'ici seule la matrice hémicellulosique de la fibre de lin génère du gonflement. Premièrement, l'architecture torsadée du fil de lin limite la dispersion homogène des fibres au sein de la section transversale du filament composite. Dans un second temps, il est observable au microscope qu'un effet « cœur-peau » du PLA apparait sur les contours du filament composite, dû au refroidissement à température ambiante après coextrusion. Ce phénomène a été mis en évidence par Evstatiev *et al.* [239] pour des filaments en PET/LDPE et n'affecte pas le comportement mécanique longitudinal, celui-ci étant principalement gouverné par la qualité de l'interface fibre/matrice et par la fraction volumique des constituants [240][241].

L'observation de la section du filament cFF/PLA révèle un écart de concentricité entre le renfort de lin et la matrice au sein du composite et la présence de porosités interfibres principalement induites par le twist du fil de lin utilisé. Ceci implique que les efforts en traction ne seront pas répartis uniformément sur la section du filament composite.

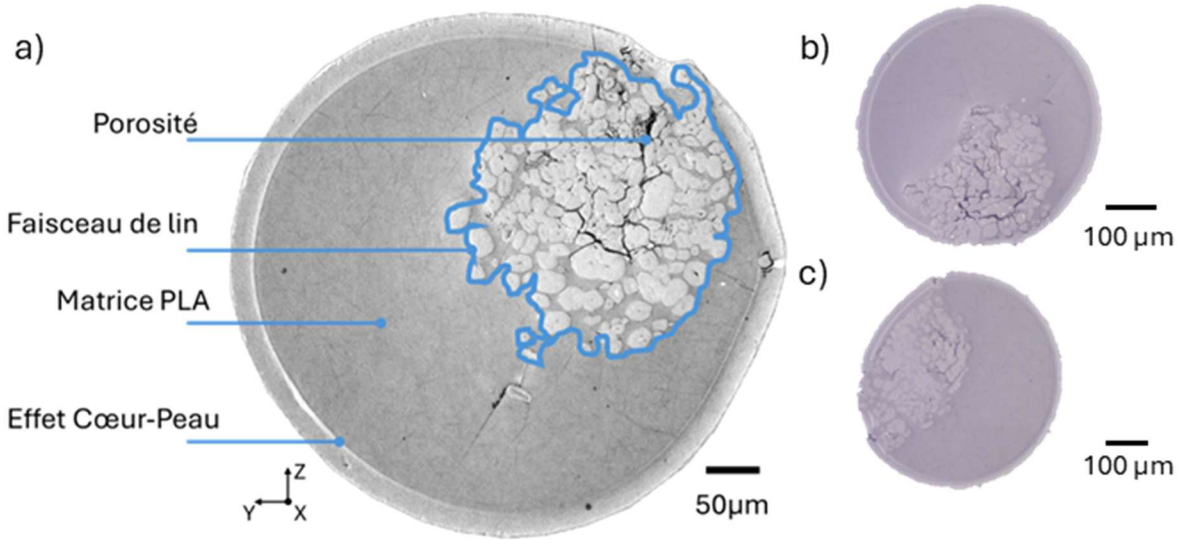


Figure 50 : Coupe transversale d'un filament coextrudé de cFF/PLA coextrudé avec une vitesse de 1 m.min^{-1} et a) une température de filière de 205 °C b) une température de 210 °C et c) une température de 215°C.

Comme représenté sur la Figure 51, pour une viscosité de 502.5 et de 238.7 Pa. s^{-1}, le diamètre du filament extrudé évolue de 9 et 10 % lorsque la vitesse de tirage passe de 1 à 2 m.min^{-1}. Similairement, Astrom *et al.* ont observé qu'une augmentation de la vitesse de tirage, associée à une viscosité élevée, entraîne une pression accrue dans la filière, ce qui conduit à la compression du filament [197]. Une fois sorti de la filière, la section du filament ne parvient pas à conserver les dimensions imposées par la filière en raison de la libération des contraintes et, par conséquent, s'expanse. Ce phénomène, désigné sous le terme d'effet Barus ou de "gonflement en sortie de filière", fait encore l'objet d'investigations dans le cas des polymères thermoplastiques [242], mais demeure à ce jour inexploré pour les composites renforcés par des fibres naturelles.

Cette tendance se confirme par la stabilisation du diamètre du filament dès que la température de filière atteint 210 °C. Par ailleurs, une diminution légère du diamètre est observée lorsque la vitesse de tirage augmente de 1 à 2 m·min^{-1} à 220 °C, traduisant un effet direct du tirage sur la section extrudée. Ces résultats suggèrent que la variation de viscosité induite par la température influence la pression interne à la filière et, par conséquent, le contrôle dimensionnel du filament. [243].

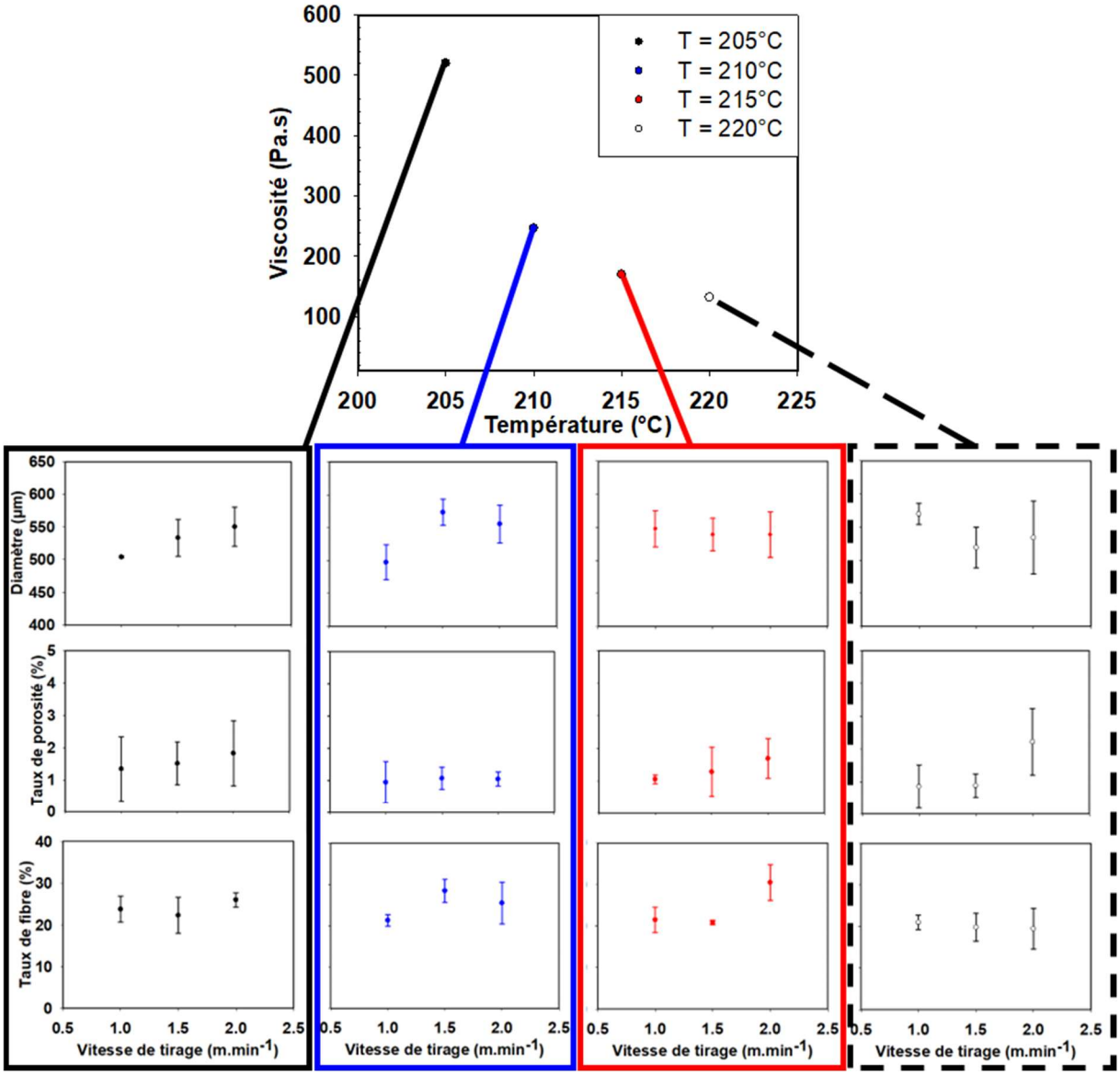


Figure 51 : Evolution du diamètre (µm), du taux de fibres (%) et du taux de porosité (%) des filaments cFF/PLA en fonction de la vitesse de tirage (m.min^{-1}) dans une plage de 205 °C à 220 °C.

À 205 et 210 °C, l'évolution du taux de fibres suit celle du diamètre du filament pour des vitesses de tirage de 1 et 1.5 m.min^{-1}. Ce comportement pourrait s'expliquer par la compaction du fil de lin, qui maintient un ratio fibre/matrice relativement constant.

Ainsi, cette seconde analyse met en évidence l'influence des paramètres d'extrusion observés et de la viscosité du polymère sur la stabilité dimensionnelle et le contrôle de la composition du filament.

2.3. Etude des propriétés mécaniques

Rappelons qu'afin de contrôler le morphing au sein du processus d'impression 4D, le module d'élasticité est un levier d'actionnement [209][212]. Ici, l'ensemble des résultats a été normalisé par rapport au filament coextrudé à 1 m·min^{-1} et 205 °C. Toutefois, en l'absence d'un dispositif de traction spécifiquement dimensionné pour la gamme d'efforts considérée, la complaisance réelle du système n'a pu être évaluée avec précision et reste à préciser dans de futurs travaux [203].

Pour des températures de 205 et 210°C, l'augmentation de la vitesse de tirage de 1 m.min^{-1} à 2 m.min^{-1} fait diminuer les modules d'élasticité relatifs E_{11} de 23 et 22 % (cf. Figure 52), respectivement. A l'inverse, pour des températures de filière de 215 et 220°C, les modules d'élasticité longitudinaux relatifs augmentent de 14 et 30 % pour une vitesse de tirage de 1 m.min^{-1} à 2 m.min^{-1}.

L'analyse de ces tendances repose sur l'observation de l'allongement à la rupture (ε_{11}). À 205 °C, la viscosité plus élevée du PLA limite l'imprégnation homogène du fil de lin, rendant ainsi le filament plus susceptible de présenter des propriétés mécaniques réduites. [224]. Il est possible d'observer que cette caractéristique tend à se stabiliser autour d'une déformation relative environ deux fois plus élevée lorsque la température augmente, pour une vitesse de tirage fixée à 1 m·min^{-1}. A l'inverse de ε_{11}, la contrainte à la rupture relative (σ_{11}) ne varie pas en fonction de la vitesse de tirage pour des températures de 205 et 210 °C.

Lorsque la viscosité de la matrice diminue, favorisant une imprégnation plus homogène des fibres au sein de la matrice PLA, la variation de σ_{11} devient alors fortement dépendante de la vitesse de tirage. Il est obtenu une contrainte à la rupture relative évoluant de 42 et 92 % pour une vitesse passant de 1 m.min^{-1} à 2 m.min^{-1} et des températures de 215 et 220°C, respectivement.

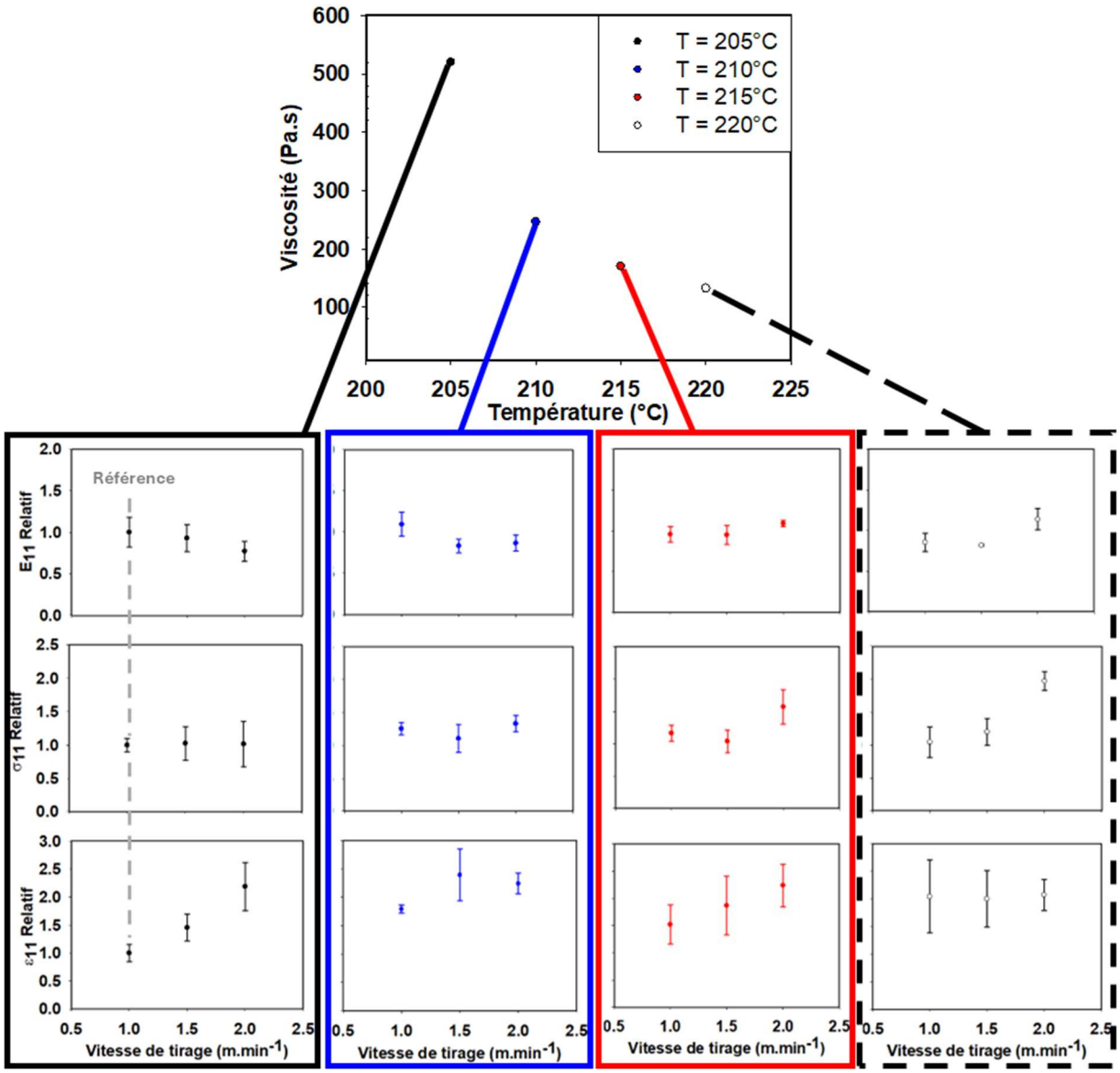


Figure 52 : Evolution du module d'élasticité relatif E11, de la contrainte à la rupture relative et de l'allongement à la rupture relative des filaments cFF/PLA en fonction de la vitesse de tirage ($m.min^{-1}$) dans une plage de 205 °C à 220 °C.

Les variations de σ_{11} et de ε_{11} peuvent également être attribuées à l'architecture torsadée du fil de lin, ainsi qu'à la structure microfibrillaire des fibres élémentaires végétales, qui se réorientent en fonction du sens de la sollicitation. Comme évoqué par Bourmaud *et al.* [47] et Placet *et al.* [115] pour les fibres de lin et de chanvre respectivement, ainsi que rapporté par Gril *et al.* [244] pour les fibres de bois, la réorientation des fibres dans la direction de sollicitation tend à accroître les contraintes maximales supportées avant rupture. Il est suggéré que l'augmentation de la vitesse de tirage, en accroissant la force appliquée, favorise la réorientation des fibres au sein du filament à différentes échelles. Ce phénomène, rendu

possible par la diminution de la viscosité de la matrice, conduit à une amélioration des propriétés mécaniques globales du filament [197][225][245].

Par conséquent, il est possible de supposer qu'une coextrusion avec un tirage de 2 $m.min^{-1}$ et une température de 215 °C présente des caractéristiques mécaniques maximisées pour des filaments par la suite mis en œuvre par impression 4D.

3. Conclusion

Le procédé de coextrusion permet la mise en forme de filaments à renforts continus d'origine naturelle, destinés à l'impression 4D. Plusieurs études ont montré que les paramètres d'extrusion agissent sur la composition et les propriétés mécaniques des filaments à renfort de fibres synthétiques. Leurs homologues réalisés à partir de fibres naturelles sont aujourd'hui de plus en plus mis en avant dans le cadre d'une démarche d'amélioration environnementale.

Ce chapitre présente l'impact des paramètres de coextrusion (vitesse de tirage et température de filière) sur la composition ainsi que les propriétés mécaniques d'un filament en cFF/PLA destiné au procédé d'impression 4D.

Premièrement, une mesure des propriétés rhéologiques de la matrice PLA 3001D a été réalisée afin de mettre en lumière l'impact des températures de filières sur les viscosités de la matrice d'enrobage. Dans un second temps, une analyse optique des filaments selon plusieurs conditions de coextrusion a permis de comparer l'évolution de la composition structurelle du filament coextrudé aux propriétés des matériaux bruts et similaires. Enfin, des essais de traction ont été réalisés sur lesdits filaments pour mettre en évidence le lien entre le processus de fabrication et les propriétés mécaniques.

Les mesures rhéologiques du PLA ont montré une diminution de la viscosité du polymère avec la température entre 205 et 220°C. La baisse de viscosité de 75 % a un effet sur l'imprégnation de la matrice au sein du faisceau de fibres de lin et par conséquent sur les propriétés mécaniques du filament. Par ailleurs, des essais rhéologiques en régime dynamique, réalisés avec différentes géométries, permettraient de vérifier si les viscosités mesurées relèvent du domaine de viscoélasticité linéaire.

L'analyse optique a révélé que la viscosité du polymère est un levier sur le contrôle du diamètre, plus particulièrement à partir d'une température de 215°C. Il serait donc pertinent de réaliser ces essais avec des filaments de lin présentant différents niveaux de torsion et grammages linéaires. Ces paramètres, influençant la capacité d'imprégnation [230], pourraient ainsi constituer un levier stratégique pour l'optimisation de la mise en forme du renfort en fil de lin. De plus, il est important de garder en tête que les taux de fibres mesurés (~25 %) sont modérés. Dans la littérature, pour des composites unidirectionnels renforcés de fibres continues de lin, des fractions volumiques de fibres allant de l'ordre de 47 % à près de 60 % ont été mesurées en fonction du procédé de consolidation et des conditions de compactage [246].

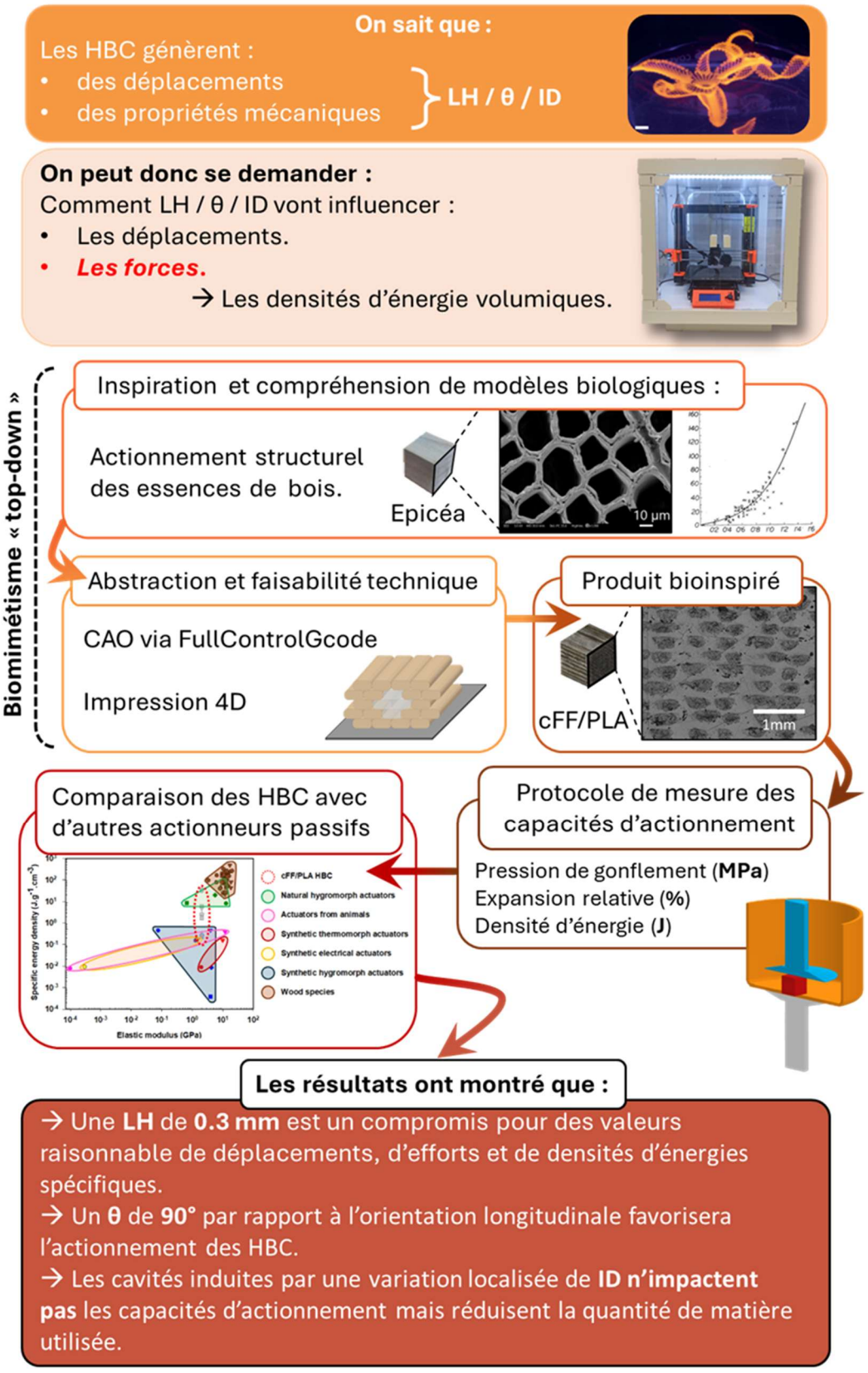
Les essais de traction ont démontré la dépendance des contraintes et des allongements à la rupture des filaments en cFF/PLA à la microstructure induite par les variations de température et de vitesse de tirage. Afin d'améliorer la compréhension des contraintes subies par le filament cFF/PLA au sein de la filière ou de la buse d'impression 3D, des simulations numériques ou expérimentales, notamment par fibre optique, permettraient d'analyser leur influence sur les propriétés mécaniques du matériau.

Additionnellement, d'autres paramètres restent encore à étudier comme la vitesse de rotation ou la forme de la vis d'extrusion permettant de contrôler le cisaillement de la matrice et par conséquent sa viscosité. Michaeli *et al.* ont aussi mis en avant l'importance de la géométrie de filière utilisée et son impact sur la structure des filaments à renforts synthétiques [247], n'étant jusqu'ici pas appliquée pour des fibres végétales.

Afin d'assurer la comparabilité avec les travaux antérieurs, les filaments ont été extrudés à une vitesse de 1,5 $m \cdot min^{-1}$ et à une température de 215 °C, conditions opératoires permettant d'obtenir des compositions équivalentes [123][212].

Ces éléments seront essentiels à la compréhension et à la démocratisation des filaments renforcés par des fibres continues naturelles, dont l'intérêt réside notamment dans leur impact environnemental réduit.

Chapitre 4 : Les HBC imprimés 4D possédant des propriétés de changement de forme et de génération de force : des avancées vers l'actionnement structurel



1. Introduction

Dans le royaume des plantes, certaines espèces sont capables de générer des mouvements passifs réversibles (expansion, flexion, torsion, etc.) induits par des variations d'humidité et/ou de température [63][65][66][72][160][248]–[250] : elles sont appelées les "actionneurs hygromorphes naturels".

Outre les mouvements générés, ces architectures naturelles peuvent produire des forces importantes dès lors que le changement de forme est contraint. Ces capacités ont été utilisées par d'anciennes civilisations, comme en Égypte, où des coins en bois étaient insérés dans des pré-fissures et hydratés pour fendre de larges roches [3]. En conséquence, le bois est considéré comme un matériau naturel architecturé possédant un potentiel d'actionnement structurel. Perkitny [74] a défini un protocole de mesure de l'hydroexpansion du bois, capable de quantifier les forces et les pressions de gonflement générées lorsque l'hydroexpansion est contrainte dans une direction.

Suivant un protocole similaire, Roszyk *et al.* [251] ont obtenu une pression de gonflement et une hydroexpansion radiale d'une essence de bambou s'élevant à 1.2 ± 0.1 MPa et 4.5 ± 0.5 %, respectivement, pour une masse volumique de 385 ± 25 $kg.m^{-3}$. Ces propriétés sont fortement influencées par la teneur en eau initiale et par l'architecture interne, en particulier l'orientation des fibres. Outre les déplacements et les forces bloquées générés dans ces matériaux, Hill a caractérisé leur plage de fonctionnement en analysant les courbes « force-course » et l'aire sous cette courbe appelée densité d'énergie et exprimée en joules [18].

Globalement, les actionneurs hydromorphes naturels tels que l'écaille de pomme de pin naturelle ou le bois de *Lignum vitae* présentent une densité d'énergie spécifique (DES), avec des valeurs maximales de 85.2 $J.cm^3.g^{-1}$ et 477.8 $J.cm^3.g^{-1}$, respectivement [75][217]. Ces valeurs sont considérablement plus élevées que celles des polymères ferroélectriques ou des alliages à mémoire de forme thermiques, qui présentent des $E_{d\ spécifique}$ maximales de 0.17 $J.cm^3.g^{-1}$ et 0.15 $J.cm^3.g^{-1}$ (Madden *et al.*, 2004; Usab, Hardin and Bilanin, 2004).

En effet, l'architecture de ces matériaux combine des renforts rigides continus et une matrice polysaccharidique souple dans une structure concentrique hiérarchisée, qui permet une forte expansion anisotrope tout en conservant une grande rigidité et *in fine* une forte densité

énergétique. La gestion des propriétés paradoxales de changement de forme et de génération de force pour les matériaux artificiels est clairement un défi puisque la priorité est généralement donnée soit à la résistance, soit à la performance d'actionnement, mais rarement aux deux.

La mise en œuvre de l'impression en 4 dimensions (4D) est aujourd'hui une stratégie clé qui permet de transférer les principes et les architectures biologiques pertinentes dans des biocomposites hygromorphes novateurs (HBC) dotés d'un potentiel de changement de forme [254]. Ces "smart materials" appartiennent à une nouvelle gamme de matériaux composites où le renfort en fibres végétales fournit un potentiel de détection, d'actionnement et de support de charge. Ce potentiel dépend de la nature du matériau végétal [255], ainsi que de la teneur en eau maximale, de l'orientation et des propriétés interfaciales avec la matrice polymère environnante et l'architecture à l'échelle mésoscopique globale [160][255][256].

Dans la plupart des cas, les architectures asymétriques, avec deux couches, sont étudiées avec une couche dite « active » qui assure l'expansion induite par l'humidité et une couche « passive » qui entraîne une action de restriction. L'ensemble de la configuration entraîne un déplacement amplifié avec un mouvement complexe de flexion ou de torsion. L'expansion de la couche active est induite par la sensibilité à l'humidité d'une fibre végétale alignée perpendiculairement à la direction du mouvement ciblé et intégrée dans une matrice polymère [257]. La couche passive peut être un polymère insensible (ou moins sensible que la couche active) à l'humidité pour fournir un actionnement global avec une seule direction [257][258]. Inversement, il peut être basé sur des biocomposites à base de fibres végétales dont l'orientation est différente par rapport aux parties actives. Cela conduit à un actionnement multidirectionnel complexe [259].

La plupart des recherches publiées sur l'impression 4D se concentre sur la capacité des matériaux à changer de forme sans tenir compte de leur capacité à supporter des charges. Or, lors de leur application, ces matériaux seront soumis à des charges mécaniques (masse à transporter, pluie, vent...) simultanément avec leur capacité à se mouvoir. Les composites stratifiés imprimés en 4D peuvent être assemblés pour répondre à de multiples exigences fonctionnelles telles que la modification de forme, mais aussi à des exigences d'intégrité structurelle. Par exemple, Wang *et al*. et Le Duigou *et al*. ont proposé des matériaux à changement de forme imprimés en 4D basés sur des fibres continues rigides (synthétiques ou

naturelles). Grâce à l'utilisation de renforts continus, il est désormais possible d'obtenir des changements de forme complexes et importants tout en conservant une grande rigidité sous l'effet de stimuli thermiques ou hygroscopiques. Cependant, à notre connaissance, il est encore rare que l'actionnement structurel soit caractérisé par la mesure de la force et l'estimation de la densité d'énergie. Des études récentes ont évalué le compromis entre le déplacement et la force bloquée pour les matériaux tubulaires imprimés en 4D [24][162].

La présente étude vise à démontrer le potentiel d'actionnement structurel des biocomposites renforcés par des fibres naturelles continues imprimées en 4D. A titre de comparaison, des échantillons de bois d'épicéa ont été caractérisés en termes d'hydroexpansion libre et contrainte. Ensuite, un biocomposite hydromorphe (HBC) unidirectionnel (UD) renforcé par des fibres de lin a été sélectionné. Cette configuration de matériau peut être utilisée soit pour un changement de forme rectiligne, soit comme couche active potentielle lorsqu'elle est combinée à d'autres orientations de fibres de la couche passive pour générer des changements de forme plus complexes (par exemple, la flexion et la torsion) [150][212].

La caractérisation présentée ici comprend des mesures d'hydroexpansion sous contrainte impliquant à la fois l'expansion libre et la force bloquée. Les propriétés ont été mesurées en fonction de différents paramètres architecturaux liés aux paramètres de découpage (hauteur de la couche, orientation des filaments et inclusion des canaux par la distance interfilamentaire locale) (cf. Chapitre 1.3.3.1). Enfin, la densité d'énergie spécifique des HBC avec différentes configurations architecturales a été calculée et comparée à celle des actionneurs architecturés hydro- et hygro-morphiques naturels tels que le bois, mais aussi à celle de « smart materials » artificiels.

2. Résultats et discussion

2.1 L'essence d'épicéa, une référence pour les mesures d'actionnement structurel.

Des échantillons de bois de $5 \times 5 \times 5$ mm^3 ont été utilisés pour valider le protocole expérimental proposé ici afin de déterminer la densité d'énergie. L'essence d'épicéa sélectionnée présente des trachéides à parois minces avec de larges lumens, ce qui donne une porosité apparente de 75 ± 1 % (cf. Figure 53a), en accord avec les résultats publiés précédemment [260]. Des expériences d'expansion libre et contrainte ont été menées dans la

direction tangentielle du bois en fonction du temps d'immersion dans de l'eau déminéralisée. Pendant des temps d'immersion très courts, le matériau ne présente pas de gonflement. Ce délai est un comportement typique qui s'explique par la diffusion initiale de l'eau libre dans la porosité du bois et dans les lumens [261]. Ensuite, l'hydroexpansion libre et la force bloquée augmentent presque linéairement avec le temps d'immersion (cf. Figure 53b). Après un maximum atteint vers 3 min, il est possible d'observer une diminution de la force générée due à des phénomènes de mécanosorption [262].

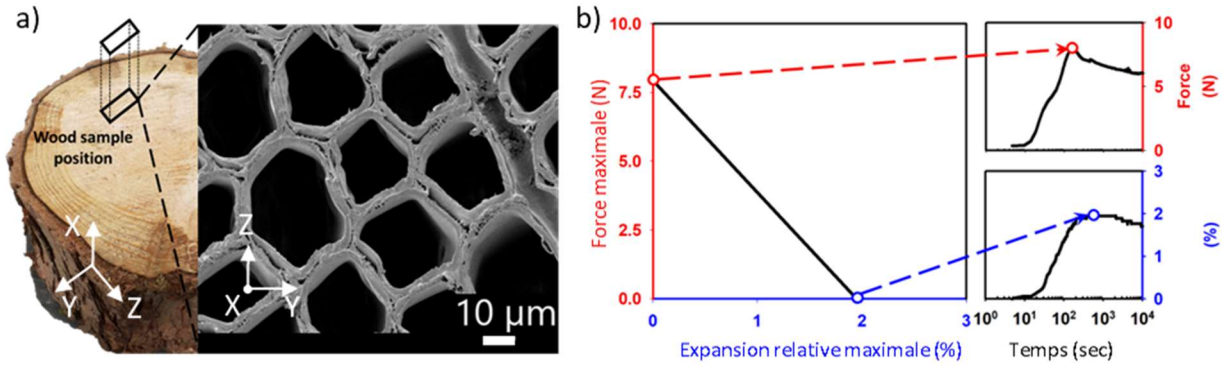


Figure 53 a) Localisation de l'extraction de la plaque dans le tronc d'épicéa (~40 ans). L'insert est une micrographie MEB d'une coupe transversale de bois d'épicéa. b) Courbe « force-expansion relative » maximale des échantillons de bois d'épicéa, incluant les courbes de force en fonction du temps et d'expansion relative en fonction du temps utilisées pour déterminer la force maximale et l'expansion relative.

L'expansion libre relative maximale, correspondant au rapport entre les courses parcourues et l'épaisseur initiale de l'échantillon, atteint des valeurs de 1.95 ± 0.50 % après une immersion dans l'eau d'une durée avoisinant 10 min (cf. Figure 53b). Les valeurs d'expansion libre sont en accord avec des essences de bois similaires dans la direction tangentielle [75]. La pression de gonflement obtenue au cours de l'essai d'expansion entièrement contraint est de 0.32 ± 0.08 MPa, ce qui est proche des résultats de Zauer *et al.* obtenus, après normalisation volumétrique, avec du bois d'épicéa norvégien [263]. Par la suite, le calcul de la densité d'énergie permet d'obtenir une valeur de 3.0 ± 0.1 J.cm^{-3} et une densité d'énergie spécifique de 7.9 ± 0.3 J.cm^3.g^{-1}. Cette densité d'énergie spécifique est nettement inférieure à la valeur de 170 J.cm^3.g^{-1} obtenue par Narayanamurti *et al* [75] pour un conifère de l'Himalaya (*Picea smithiana*) dont la masse volumique est de 0.52 g.cm^{-3}. Même si ces deux espèces d'arbres appartiennent au même genre, les importantes différences peuvent être dues aux conditions de croissance sous des climats et des lieux différents.

2.2. Impression 4D de HBC dédiée à l'actionnement structurel

2.2.1. Relation entre les paramètres de slicing utilisés pour générer l'architecture des HBC et les performances structurelles induites

La mésostructure des HBC est caractérisée par la teneur en fibres de lin et la porosité associée, car l'hydroexpansion est induite par les fibres naturelles et non par la matrice polymère [49]. Les données relatives à la teneur en fibres et à la porosité des échantillons sont reportées dans le tableau 7 en fonction des différents paramètres utilisés pour générer les canaux.

Ces paramètres comprennent la hauteur de couche (LH), l'orientation du filament (θ) et la distance interfilamentaire locale (ID). En ce qui concerne l'effet de la hauteur de couche programmée sur le taux de porosité, la tendance globale est en accord avec les résultats obtenus précédemment sur des matériaux similaires (cf. Figure 54a) [150]. En effet, la porosité augmente considérablement lorsque LH > 0.4 mm, en raison de la diminution de la pression de compression appliquée par la buse lors de l'impression. Cependant, une légère différence dans les données absolues par rapport aux études précédentes est notable.

En effet, les HBC actuels sont imprimés avec un plus grand nombre de couches par rapport aux travaux précédents [150]. Cela peut conduire à une réduction de l'épaisseur moyenne des couches, à une augmentation de la compaction globale et *in fine* à une réduction de la porosité. Dans tous les cas, la teneur en fibres n'est pas trop affectée pendant le processus d'impression.

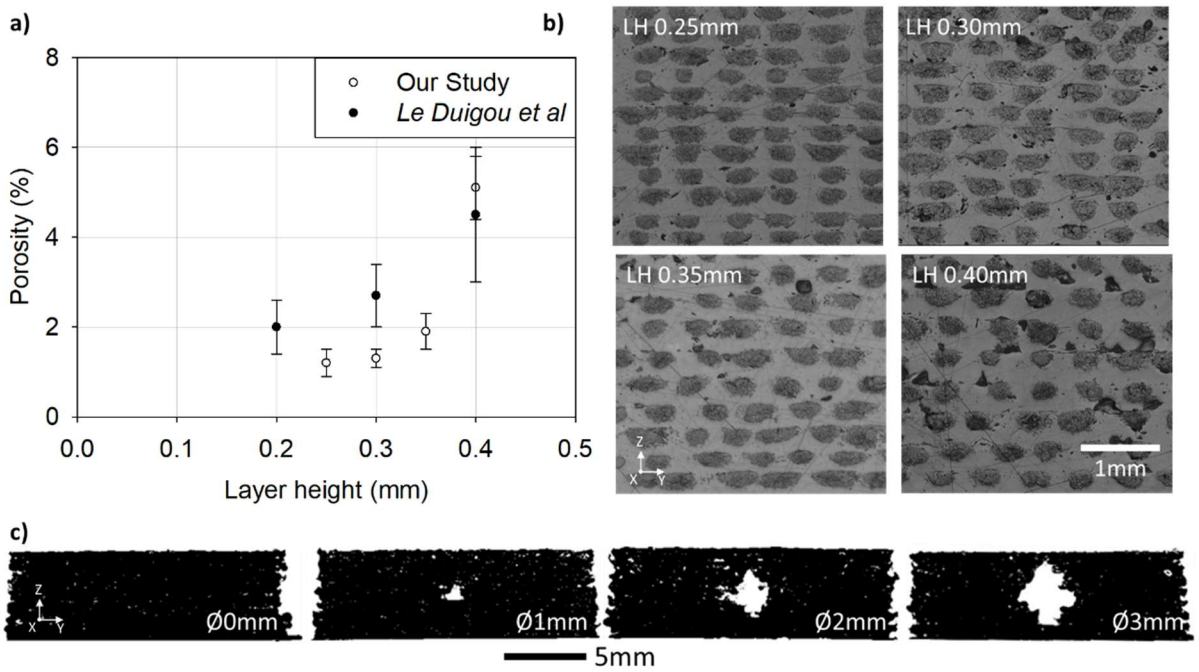


Figure 54 a) Variation du taux de porosité (%) en fonction de la hauteur de couche (mm), avec comparaison des résultats d'études antérieures [150] b) Images MEB de la section transversale d'échantillons cubiques avec un alignement le long de l'axe Z ayant une variation de LH de 0.25 mm à 0.40 mm où chaque composant est en gris clair (matrice), en gris foncé (fibres) et en noir (porosité). c) Section transversale binarisée d'une configuration en quinconce avec des canaux architecturés. Les porosités apparaissent en blanc, tandis que les fibres et la matrice apparaissent en noir (LH = 0.35 mm et ID = 0.6 mm).

L'orientation du filament (0, 30, 45, 60, 90 °) par rapport à l'axe X n'implique pas de modification de la fraction volumique des fibres de lin ou de la teneur en porosité. En effet, les échantillons imprimés sont coupés à partir d'un HBC imprimé de façon unidirectionnelle (LH = 0.30 mm) et ensuite usinés à différents angles. La porosité des échantillons est 2 fois plus faible pour une LH = 0.3 mm que celle observée dans la littérature où les filaments sont imprimés dans des orientations différentes [150].

Cette observation peut être expliquée par l'évolution du ratio de compression en fonction du nombre de couches imprimées. Comme représenté en figure 55, un nombre de couches comprises entre 1 et 5 et une hauteur de couche de 0.2mm vont induire un ratio de compression élevé induisant une porosité élevée. A l'inverse, les échantillons présentés ici, possèdent un nombre de couches compris entre 12 et 20, présentant un ratio de compression moindre.

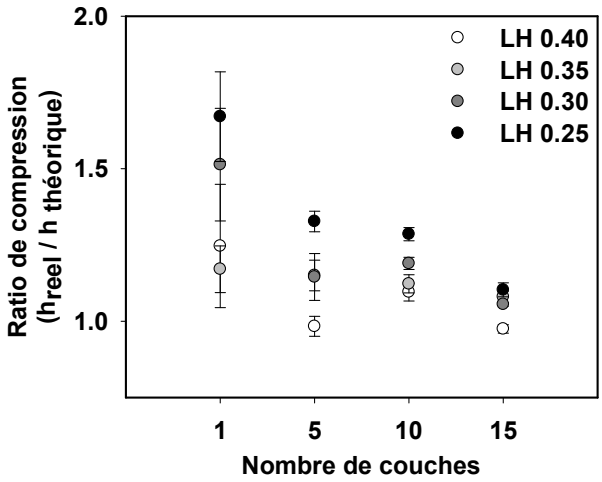


Figure 55 : Evolution du ratio de compression ($h_{réel}/h_{théorique}$) en fonction du nombre de couches pour des hauteurs de couche programmées comprises entre 0.25 et 0.40 mm.

La distance interfilamentaire locale est ajustée ici pour contrôler la conception des canaux architecturés (cf. Figure 54c). Il a été démontré précédemment que ce paramètre influence le transport de l'humidité et la cinétique de changement de forme des HBC imprimés 3D en PLA renforcés par des fibres de lin discontinues [205]. La réduction de teneur en fibre entre les échantillons à ID locale et à LH variables peut être due à la disposition en quinconce des filaments le long de l'axe Z [264], même si les deux ont la même hauteur de couche (LH = 0.35 mm). En complément, le taux de compression, défini comme le rapport entre l'épaisseur réelle et l'épaisseur théorique des échantillons imprimés ($\frac{t_{z\,real}}{t_{z\,theorical}}$), diffère légèrement entre les échantillons avec des valeurs de 0.96 ± 0.02 pour la conception en quinconce et de 1.05 ± 0.01 pour la configuration alignée sur l'axe Z.

Cela met en évidence l'influence du désalignement des filaments le long de l'axe Z sur le dépôt des filaments, qui se traduit par une différence d'environ 5 % dans la teneur en fibres.

Tableau 7 : Analyse de l'influence des paramètres de slicing (LH, θ, ID) sur la teneur en fibres et la porosité des échantillons cFF/PLA imprimés.

Hauteur de couche (mm)	**0.25**	**0.3**	**0.35**	**0.4**
Taux de porosité (%)	1.2 ± 0.3	1.3 ± 0.1	1.7 ± 0.1	5.1 ± 0.7
Taux de fibre (%)	30.9 ± 0.3	32.1 ± 0.2	29.4 ± 0.4	28.6 ± 0.6
Orientation des filaments θ (°)	**0 or 90**	**30**	**45**	**60**
Taux de porosité (%)	1.1 ± 0.2	0.8 ± 0.2	1.2 ± 0.2	1.1 ± 0.3
Taux de fibre (%)	32.1 ± 0.2	30.3 ± 1.0	31 ± 1.6	30.6 ± 4.1
Distance interfilamentaire localisée (mm)	**0.6**	**1.8**	**2.4**	**3**
Taux de porosité (%)	0.8 ± 0.2	0.7 ± 0.2	1.2 ± 0.4	0.9 ± 0.1
Taux de fibre (%)	25.4 ± 0.2	25.1± 1.1	27.5 ± 0.9	26.5 ± 1.1

2.2.2. Détermination de l'expansion libre maximale, de la pression de gonflement et de la densité d'énergie en fonction des paramètres de slicing des HBC.

Hauteur de couche

L'expansion des fibres naturelles est plus importante dans l'orientation transverse que dans l'orientation longitudinale en raison de la disposition des chaînes de cellulose [49]. Les HBC unidirectionnels cFF/PLA présentent une expansion libre longitudinale légèrement négative (dans le sens des fils de lin) et est donc considérée comme négligeable dans cette étude [44][49][50]. L'hydroexpansion selon l'orientation transversale (axe Y) du cFF/PLA est actuellement utilisée pour concevoir la couche active des bicouches HBC imprimées en 4D [212] mais elle peut également être utilisée pour un changement de forme rectiligne, comme présenté dans cette étude.

Bien que ce phénomène ne soit encore largement étudié, il a été démontré que le gonflement hors plan (ε_z) des HBC est plus important que celui selon l'orientation transverse (ε_y), avec un ratio $\frac{\varepsilon_z}{\varepsilon_y}$ de 1.67 et 1.51 pour des HBC en cFF/PBAT et en fibre de chanvre/époxy, respectivement [126][162].

Il a été démontré que l'étape d'impression induit une compression, ainsi que l'apparition de contraintes et une distribution hétérogène des fibres. Le mécanisme d'expansion libre des HBC selon l'orientation hors plan mérite donc d'être caractérisé afin d'être exploité pour optimiser le potentiel d'actionnement d'un bilame à l'aide d'un procédé d'actionnement hors plan dédié.

Les valeurs d'expansion libre observées selon l'orientation transverse des HBC sont multipliées par 6.75 lors d'un changement de LH de 0.40 à 0.30 mm, puis diminuent de 30 % entre une LH de 0.3 et 0.25 mm (Figure 56a). Un optimum est remarqué pour une hauteur de couche de 0.3 mm, avec des valeurs similaires à celles des échantillons d'épicéa testés précédemment. De surcroît, une LH de 0.3 mm correspond à la valeur de transition entre une compaction insuffisante et excessive, menant à des valeurs maximales de déformation à la rupture [150].

Au-delà d'une LH de 0.3 mm, le ratio de compaction est réduit, induisant une porosité plus importante (tableau 7) et de la délamination (Figure 54b). En deçà d'une LH de 0.3 mm, des désalignements du filament apparaissent, ce qui réduit le potentiel de performance hydromorphique [265]. Il est intéressant de noter que, pour une hauteur de couche de 0.3 mm, l'expansion libre obtenue dans cette étude est deux fois plus élevée que celle reportée précédemment [123][212], qui s'élevait à 1.26 ± 0.5 % ou 1.5 ± 0.3 %, respectivement, pour des échantillons imprimés avec une LH de 0.2 mm. La différence principale réside dans l'épaisseur de l'échantillon (5 mm contre 0.6 mm) et le nombre de couches (12 - 18 vs 2). En fait, une augmentation du nombre de couches des HBC imprimés implique une réduction linéaire dans l'épaisseur réelle de chaque couche, une augmentation de la largeur et, comme résultat, une augmentation des propriétés mécaniques en traction (rigidité et résistance) en raison d'une compaction plus élevée dans l'échantillon [150].

En faisant varier la LH de 0.25 à 0.4 mm, il est à constater la même tendance pour l'expansion relative évaluée selon l'orientation hors plan, avec une valeur maximale observée à LH = 0.3 mm (Figure 56a). Cependant, il est observable que les valeurs d'expansion libre des HBC sont 0.4 fois plus faibles lorsqu'elles sont mesurées selon l'orientation transverse et en utilisant une LH programmée de 0.3 mm. Cela confirme l'expansion orthotrope des biocomposites, quel que soit le processus de fabrication. Pour un LH de 0.3 mm, une expansion libre de 2.7 ± 0.4 % et de 6.2 ± 0.6 % est mesurée dans les orientations transverse et hors plan, respectivement. Il est intéressant de noter que le rapport $\frac{\varepsilon_z}{\varepsilon_y}$, évolue en fonction de la valeur LH. Un rapport plus élevé est observé pour des valeurs de LH plus faibles, de 0.4 à 0.3 mm, ce qui correspond à une compression normale plus élevée pendant l'impression [185]. Cela souligne que le gonflement orthotrope des biocomposites peut être attribué à la pression normale appliquée et à ses effets sur le compactage transverse au cours du processus d'impression. Ce phénomène pourrait être exploité en induisant un changement des valeurs LH dans le même

plan, ce qui pourrait potentiellement générer une distribution de l'amplitude de l'hydroexpansion dans un plan et donc déclencher un changement de forme complexe [266]. L'analyse ANOVA a montré des valeurs p significativement inférieures à 0.05 (2.98×10^{-6}). Ce résultat souligne que l'effet de la hauteur de couche est statistiquement hautement significatif. Ce résultat met en évidence l'influence de ce paramètre sur les expansions relatives observées. Autrement dit, les variations de hauteur de couche entraînent des différences importantes et marquées des valeurs d'expansion relatives.

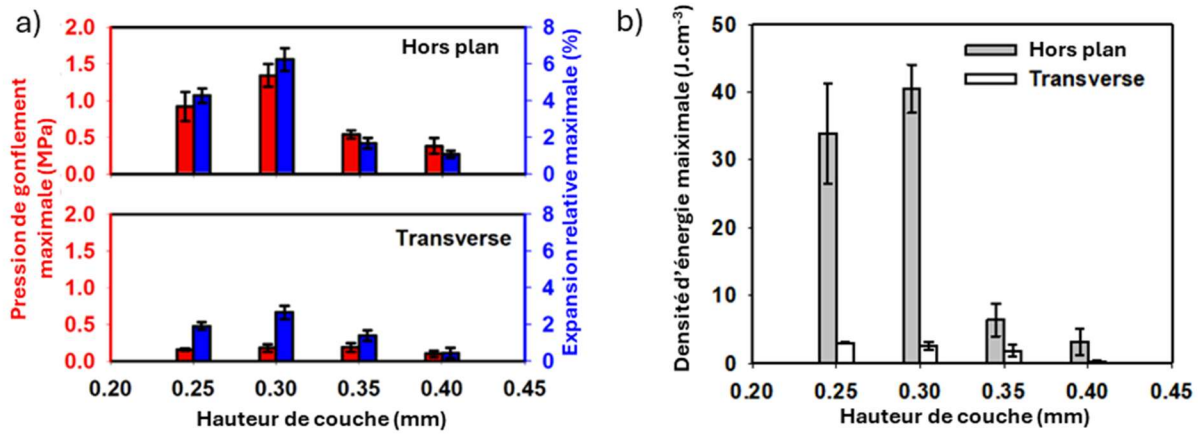


Figure 56 : a) Expansion relative maximale (%) en fonction de la hauteur de couche programmée (mm) indiquée en bleu et pression de gonflement maximale (MPa) en fonction de la hauteur de couche programmée (mm) indiquée en rouge (mm). b) Densité d'énergie volumique ($J.cm^{-3}$) en fonction de la hauteur de couche programmée où les orientations hors plan et transversales sont indiquées en gris et en blanc, respectivement.

Les valeurs de pression de gonflement (MPa) sont estimées à partir des essais de force bloquée normale lorsque les échantillons sont immergés dans l'eau, puis normalisées par la surface de l'échantillon en contact avec la géométrie supérieure du rhéomètre. Comme observé pour l'expansion libre maximale, les valeurs de pression de gonflement transverse et hors plan indiquent une LH optimale d'environ 0.3 mm. La pression de gonflement hors plan mesurée est donc concurrentielle à celle obtenue dans la direction radiale du bambou [251] et équivaut quasiment à une valeur 7 fois plus élevée selon l'axe Y.

Les valeurs obtenues pour la pression de gonflement suivent une tendance similaire à celle de l'expansion libre avec une évolution de 80 % entre des LH de 0.3 et 0.4 mm, suivi d'une diminution de 12 % entre une LH de 0.3 et 0.25 mm. Une fois de plus, l'analyse ANOVA a montré des valeurs p bien inférieures à 0.05 (1.26×10^{-4}). Ce résultat souligne l'impact du paramètre de hauteur de couche sur la pression de gonflement observée ici.

A partir de la force bloquée et de la mesure de la course maximale, la densité d'énergie peut être calculée et est présentée à la Figure 56c. Selon l'orientation transverse, les ratios obtenus entre des LH de 0.3 et 0.4 mm s'élèvent à 10. Si la LH diminue de 0.3 à 0.25 mm, une diminution de 14 % de la densité d'énergie volumique est observée. Selon l'orientation hors plan, une diminution de la LH de 0.4 à 0.3 mm relève un ratio de densité d'énergie volumique de 12.7, puis d'une diminution de 17 % lorsque la LH diminue de 0.3 à 0.25 mm.

Les résultats obtenus présentent des tendances similaires en comparaison à l'expansion relative et à la pression de gonflement, avec un ratio de densité d'énergie de 15.75 entre les orientations hors plan et transverse, pour une hauteur de couche de 0.3 mm. Ces résultats confirment que l'énergie de densité des HBC est programmable à l'aide de la LH pendant le procédé d'impression. D'un point de vue technique, il est intéressant de favoriser une LH minimale induisant un meilleur potentiel d'actionnement structurel [186]. De futures études, impliquant l'utilisation d'un gradient de hauteur de couches, pourraient être menées pour tirer parti de ce potentiel d'actionnement élevé, car il devrait favoriser considérablement les propriétés de changement de forme des HBC et permettre la génération de mouvements complexes. Il est par ailleurs observable que les propriétés hors plan aient été récemment utilisées comme moteur dans une structure imprimée non plane composée d'un composite bois-polymère pour la fabrication d'actionneurs hydromorphes ou hygromorphes [162][267]. Bien qu'une telle approche demeure techniquement complexe à mettre en œuvre, elle offrirait la possibilité d'exploiter un actionnement plus important selon l'orientation hors plan.

Orientation des filaments

L'orientation des filaments (θ) est définie dans le plan XY, et varie de 0 ° (axe X) jusqu'à 90 °(axe Y) (cf. Chapitre 1.3.3.1). Etant donné que les échantillons ont été obtenus à partir de la découpe de plaques unidirectionnelles imprimées, avec des valeurs de LH et de ID fixes, la teneur en fibre et en porosité observée pour toutes les configurations angulaires est identique (cf. tableau 7). D'après la Figure 57a, les valeurs d'expansion libre relative varient de 0.39 ± 0.05 jusqu'à 2.65 ± 0.36 % suivant l'évolution angulaire de 30, 45, 60, et 90 °. Une valeur maximale a été observée pour un angle de 90 °, confirmant que l'expansion transverse des fibres de lin contrôle l'expansion du biocomposite. Ce résultat ouvre la possibilité d'exploiter la fibre de lin comme élément constitutif d'une couche active au sein d'un HBC multicouche et

asymétrique même si la valeur maximale d'expansion, à LH = 0.3 mm, est drastiquement inférieure à celle de la fibre élémentaire [49][268].Le gonflement selon l'axe X est considéré comme négatif en raison de la forte anisotropie des fibres de lin incorporées dans le filament. Cette propriété constitue un levier pertinent pour la conception de la couche passive au sein d'HBC multicouches asymétriques. [266]. Comme présenté en Figure 57a, la pression de gonflement générée par les HBC augmente de façon monotone avec l'orientation des filaments (θ), variant par un facteur de 3 (de 0.05 ± 0.02 à 0.16 ± 0.02 MPa) sur la gamme d'orientation étudiée (angles de filaments de 30, 45, 60 et 90 °, respectivement). De Kergariou *et al.* [269] et Fruleux *et al.* [123] ont étudié les propriétés de cisaillement selon les orientations hors plan et transverse d'un biocomposite imprimé cFF/PLA identique. Ils ont montré qu'il présente une rigidité de cisaillement similaire (~2 GPa) et une réduction équivalente de la résistance mécanique suivant l'évolution de la teneur en eau pendant l'immersion, indépendamment du fait que le filament soit orienté à ± 45 ° ou à 90 °, respectivement.

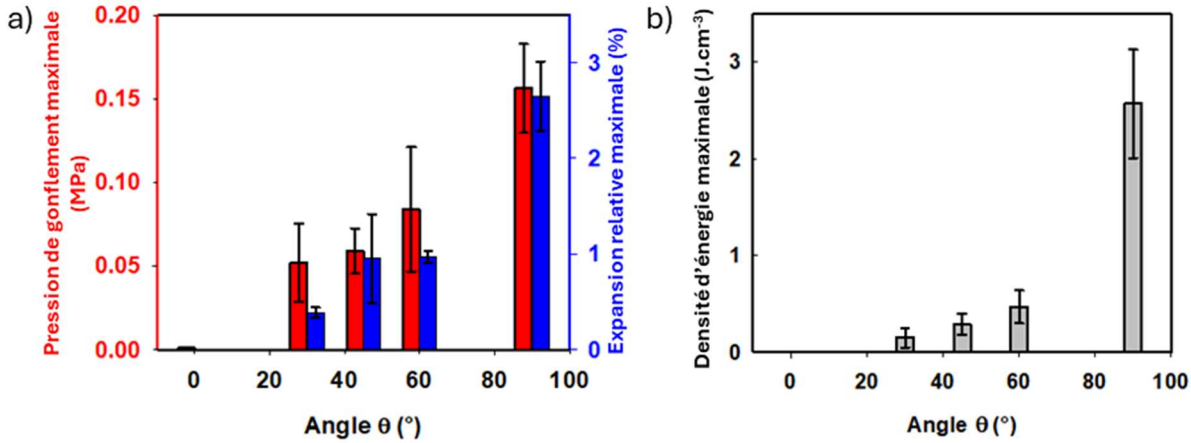


Figure 57 : a) Expansion relative maximale (%) en bleu et pression de gonflement maximale (MPa) en rouge en fonction de l'orientation des filaments θ (°). b) Densité d'énergie (J.cm^{-3}) en fonction de l'orientation des filaments θ (°).

Par conséquent, la pression de gonflement des HBC est contrôlée par la relation entre l'expansion des fibres naturelles et l'orientation des filaments plutôt que par la rigidité induite. Dans le cas des variations d'angle, l'analyse ANOVA a révélé des valeurs p de 7.86×10^{-5} et 1.4×10^{-3}, respectivement. Ce résultat étant nettement inférieur à 0.05, il indique que l'effet du paramètre étudié est statistiquement significatif. Ce résultat met en évidence son influence marquée sur l'actionnement des HBC, les variations observées dépassant la variabilité expérimentale.

Ainsi, les densités d'énergie générées vont de 0.15 ± 0.10 à 2.60 ± 0.60 J.cm^{-3} (cf. Figure 57b). Puisque la direction d'actionnement est contrôlée par l'orientation des fibres, il est important de concevoir des HBC avec une fraction des filaments imprimés orientés à 90° par rapport à la direction longitudinale afin d'optimiser le compromis entre l'expansion et la force générée.

Distance interfilamentaire localisée (ID) : conception de canaux architecturés.

Le paramètre de distance interfilamentaire locale permet de concevoir des canaux qui modulent la cinétique d'absorption d'eau sans affecter l'hydroexpansion [205]. Sur la Figure 58a, l'expansion relative maximale des HBC (6.2 ± 0.6 %) reste sensiblement la même pour des distances interfilamentaires localisées de 0.6, 1.8, 2.4 et 3 mm correspondant à des tailles de canaux programmées de 0, 1, 2 et 3 mm.

Pour une valeur de LH de 0.35 mm, avec une ID de 0.6 mm et aucun canal conçu, un rapport d'expansion relatif de 3.2 peut être observé entre les architectures en quinconce et alignées en Z (cf. Figures 56a et 58a). La rigidité des HBC est influencée par la disposition des filaments : les filaments alignés en Z renforcent la rigidité anisotrope et limitent l'expansion, tandis qu'une disposition en quinconce réduit la rigidité et permet un gonflement plus important des fibres sous l'effet de l'eau. Le taux de compression ($\frac{t_{z\,real}}{t_{z\,theorical}}$) diffère sensiblement entre les échantillons, avec des valeurs de 0.96 ± 0.02 pour la disposition en quinconce et de 1.05 ± 0.01 pour la configuration alignée en Z, ce qui met en évidence l'influence de la configuration des filaments sur la réponse au gonflement.

La pression de gonflement maximale diminue très légèrement (de 0.50 ± 0.02 à 0.40 ± 0.03 MPa) avec l'augmentation de la taille des canaux (cf. Figure 58a), ce qui peut être dû à la diminution de la rigidité hors plan des échantillons lorsque le volume des canaux augmente. Il est intéressant de noter que la densité d'énergie (19 ± 2.4, 20.7 ± 3.9, 16.9 ± 3.3 et 16.8 ± 3.5 J.cm-^{3}) ne présente pas de changement statistiquement significatif en fonction de la distance interfilamentaire localisée. Cela suggère qu'en s'inspirant des trachéides du bois, il est possible de générer des performances d'actionnement structurelles similaires, mais avec une réduction de quantité de matière, ici jusqu'à 8.4 % avec une cavité de 3 mm.

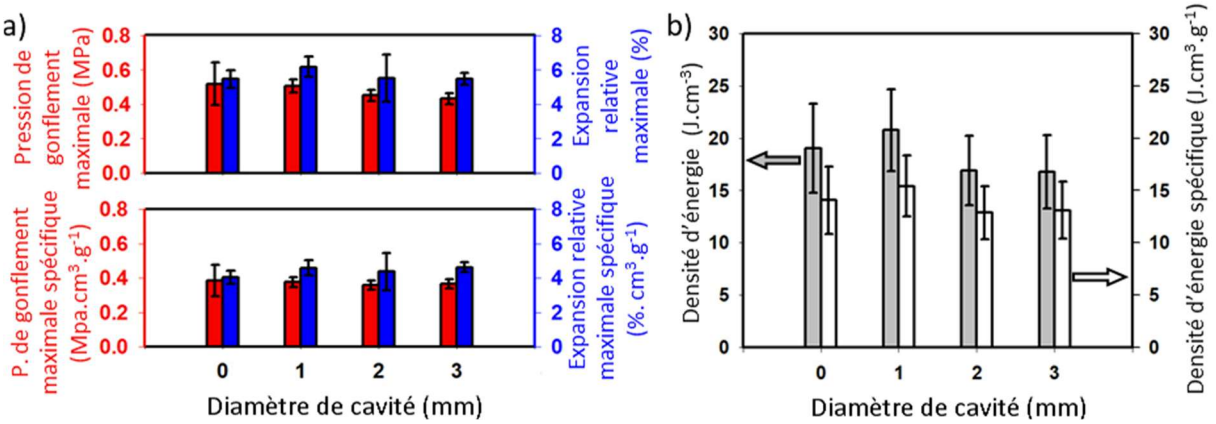


Figure 58 : a) Expansion relative maximale et expansion relative maximale spécifique représentées en bleu et pression de gonflement maximale et pression de gonflement maximale spécifique représentées en rouge en fonction du diamètre des canaux (0, 1, 2, 3 mm) selon une orientation hors plan. b) Densité d'énergie ($J.cm^{-3}$) et densité d'énergie spécifique ($J.cm^3.g^{-1}$) en fonction du diamètre des canaux (0, 1, 2, 3 mm) selon une orientation hors plan où la densité d'énergie et la densité d'énergie spécifique sont représentées en gris et en blanc, respectivement.

Dans le contexte des cavités architecturées, l'analyse ANOVA a présenté des valeurs p de 0.34 et 0.20, respectivement pour les expansions relatives et les pressions de gonflement. Ce résultat étant supérieur à 0.05, il indique que l'effet de la création de cavités n'est pas statistiquement significatif. Ce résultat met en évidence l'influence négligeable de ce paramètre sur les propriétés d'actionnement observées, les variations constatées restant dans la variabilité expérimentale.

2.3. Comparaison entre les HBC et d'autres actionneurs passifs à l'aide de la densité d'énergie spécifique

Les HBC ouvrent la voie à de nouveaux développements dans le domaine des matériaux passifs stimuli-réactifs. Toutefois, la question de savoir si l'actionnement structurel est un compromis entre l'amplitude du mouvement et la génération de force reste ouverte. Souvent, les actionneurs passifs sont comparés en utilisant la densité d'énergie spécifique ($E_{d\ spécifique}$) exprimée en $J.cm^3.g^{-1}$.

Le diagramme d'Ashby (cf. Figure 59) est utilisé pour comparer les valeurs de $E_{d\ spécifique}$ en fonction du module élastique le long de l'axe longitudinal pour les matériaux anisotropes tels que les composites avec des renforts fibreux continus. Le module d'Young est utilisé pour les matériaux aux propriétés mécaniques isotropes tels que les hydrogels. Les HBC cFF/PLA produits dans cette étude génèrent un actionnement rectiligne (symboles pleins gris clair). Ces matériaux ont démontré des densités d'énergie variées dépendantes des mésostructures

programmées lors de l'impression. Les variations de LH de 0.25, 0.30, 0.35, et 0.40 mm (avec des orientations de fibre de θ = 0 ° et une ID = 0.6 mm) ont produit des $E_{d\ spécifique}$ de 2.3 ± 0.1, 2.7 ± 0.5, 1.7 ± 0.8, et 0.3 ± 0.1 J.cm^3.g^{-1} selon l'orientation transverse et de 30.0 ± 6.6, 37.1 ± 3.3, 6.2 ± 2.3, et 2.6 ± 1.9 J.cm^3.g^{-1} selon l'orientation hors plan.

Différentes orientations de filament, *i.e.* 30, 45, 60, et 90 ° (avec une LH = 0.3 mm et une ID = 0.6 mm) ont généré des $E_{d\ spécifique}$ de 0.15 ± 0.10, 0.30 ± 0.10, 0.50 ± 0.20, et 2.30 ± 0.50 J.cm^3.g^{-1}, respectivement. Le contrôle de la ID locale de 0.6 à 3 mm a mené à la formation de canaux de 1, 2 et 3 mm (avec une LH = 0.35 mm, une orientation de filament θ = 0 ° et une ID = 0.6 mm), exposant des valeurs de $E_{d\ spécifique}$ constantes (*i.e.*15.4 ± 2.9, 12.9 ± 2.5 et 13.0 ± 2.7 J.cm^3.g^{-1}, respectivement). Sans cavité, la $E_{d\ spécifique}$ s'élève à 14.1 ± 1.2 J.cm^3.g^{-1}.

La Figure 59 compare plusieurs familles d'actionneurs naturels et synthétiques selon différents modes opérationnels (linéaire rectiligne, flexion ou torsion) : les actionneurs électriques (symbole plein jaune) avec une gamme de $E_{d\ spécifique}$ allant de 0.01 J.cm^3.g^{-1} pour les élastomères diélectriques jusque 0.17 J.cm^3.g^{-1} pour les polymères ferroélectriques; les actionneurs naturels (symbole coloré en rose) avec des $E_{d\ spécifique}$ s'étalant de 0.08 J.cm^3.g^{-1} pour les muscles de mammifères jusque 0.38 J.cm^3.g^{-1} pour la soie d'araignée; les actionneurs thermomorphes synthétiques (symbole rempli en rouge) avec des $E_{d\ spécifique}$ de 0.01 J.cm^3.g^{-1} jusque 0.15 J.cm^3.g^{-1} pour les alliages à mémoire de forme et les actionneurs à base de nanotube de carbone, respectivement; les actionneurs hydromorphique synthétique (symbole rempli en bleu) avec des $E_{d\ spécifique}$ de 3.8 × 10^{-5} J.cm^3.g^{-1} jusque 0.5 J.cm^3.g^{-1} pour les composites en PAA/NO63 et en LCN/PA6, respectivement.

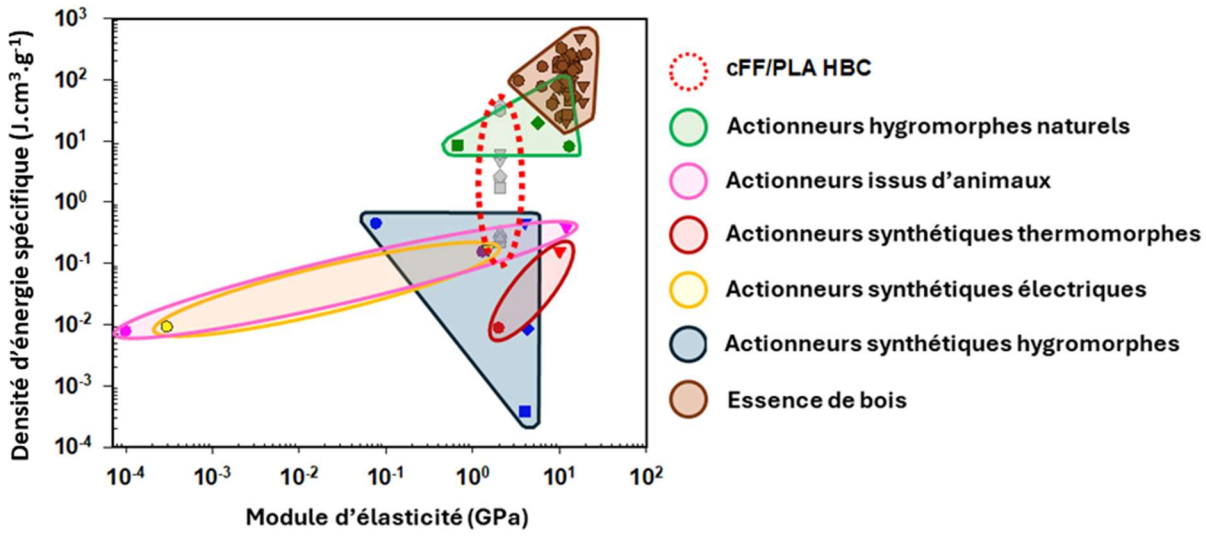


Figure 59 : Diagramme d'Ashby comparant les densités d'énergie spécifiques ($J.cm^3.g^{-1}$) de plusieurs actionneurs en fonction des modules élastiques longitudinaux pour les matériaux anisotropes, et d'Young (GPa) pour les autres. Les propriétés des essences de bois sont issues des travaux de Narayanamurti *et al.* [75]. Les actionneurs hygromorphes naturels incluent : le blé sauvage [65] ; les écailles de pomme de pin [63][217], du papier à pollen [270], et des spores [271]. Les actionneurs électriques comprennent les actionneurs élastomères diélectriques [272] et les polymères ferroélectriques [252]. Les actionneurs dérivés de ressources animales incluent les muscles de mammifères [273] et la soie d'araignée [274]. Les actionneurs thermomorphiques synthétiques regroupent les alliages à mémoire de forme [253] et les actionneurs à base de nanotube de carbone [275]. Les actionneurs hygromorphiques synthétiques incluent les Hygrobots [14] ; les actionneurs en PAA/métal [276] ; les actionneurs multicouches en PAA/NOA63 [277] et les actionneurs en LCN/PA6 [278].

Les actionneurs hydromorphiques naturels ont démontré une gamme de $E_{d\ spécifique}$ allant de 8.6 ± 0.7 $J.cm^3.g^{-1}$ jusqu'à 85.2 $J.cm^3.g^{-1}$ pour le papier de pollen et les écailles de pomme de pin, respectivement. Différentes essences de bois ont démontré leur supériorité en termes d'actionnement structurel, avec des $E_{d\ spécifique}$ de 9.2 ± 0.3 $J.cm^3.g^{-1}$ pour l'essence d'épicéa testée dans cette étude jusqu'à 477.8 ± 17.1 $J.cm^3.g^{-1}$ pour le *Lignum vitae*.

Les HBC en cFF/PLA développés dans notre étude représentent un compromis entre $E_{d\ spécifique}$ et rigidité, avec des valeurs légèrement inférieures à celles obtenues pour le bois (cf. Figure 59). Néanmoins, les HBC offrent une grande liberté de conception en termes d'architecture, de production de matériaux et de sélection des matières premières basée sur la sensibilité intrinsèque à l'humidité et à la température des fibres végétales combinée à leurs propriétés mécaniques spécifiques [49][255]. Il est important de garder à l'esprit que les composites développés ici ont une teneur modérée en fibres de lin de 30 %. Des fractions volumiques de fibres végétales plus élevées (jusque 60 %) au sein du composite permettraient une expansion hygroscopique plus importante, des forces bloquées plus élevées et une densité énergétique accrue [173][256].

3. Conclusion

Les biocomposites sont sensibles à l'humidité, et ceci est souvent considéré comme un obstacle majeur à leur application. Cependant, ce caractère peut être utilisé pour le développement de matériaux, comme des biocomposites hydromorphes et hygromorphes, capables de changer de forme sous un stimulus hydrique et/ou thermique.

Ces matériaux peuvent produire soit une déformation linéaire, soit un mouvement de flexion ou de torsion lorsqu'ils intègrent une architecture empilée asymétrique, composée d'une

phase active présentant une forte hydroexpansion et d'une phase passive exerçant un effet contraignant.

Ces « smart materials » sont communément développés dans le but de produire de larges déplacements programmables. Cependant, leur adéquation avec un environnement extérieur requiert la considération des capacités d'actionnement programmables menant à un compromis en termes d'actionnement structurel. Dans le royaume des plantes, certaines plantes comme les essences de bois démontrent des capacités d'actionnement structurel. Cet aspect est au cœur de cette étude.

Cette étude a amené à comprendre et à caractériser les propriétés qui permettent l'utilisation du procédé d'impression 4D de filament en PLA renforcé de cFF, et *in fine* des HBC, comme des actionneurs structurés. Utilisant une méthodologie adaptée de la littérature pour évaluer l'expansion libre et contrainte, il a été possible de mener des essais initiaux sur une essence d'épicéa pour établir notre base de référence. L'étude a révélé que modifier la hauteur de couche des HBC imprimés en cFF/PLA est un moyen conséquent pour contrôler les deux paramètres d'un actionnement structurel, *i.e*. l'hydroexpansion et la pression de gonflement. Plus précisément, une hauteur de couche de 0.3 mm a fourni le meilleur compromis dû à la création d'une mésostructure impliquant le moins de porosité (1.3 ± 0.2 %).

De surcroît, il a été trouvé que la magnitude de réponse, que ce soit en termes d'hydroexpansion, de pression de gonflement ou de densité d'énergie, diffère drastiquement en fonction de l'orientation des filaments (de l'orientation transverse au plan XY, jusqu'à l'orientation hors plan dans l'épaisseur). Cependant, des recherches complémentaires sont requises pour tirer profit de cet avantage à utiliser l'impression 4D d'HBC avec une stratégie de fabrication hors plan. Basée sur des études précédentes retraçant de faibles différences entre des composites imprimés 3D avec des orientations de filaments de θ = 45 ° et 90 °, il a été conclu que leur potentiel d'actionnement structurel est gouverné par la relation entre l'expansion des fibres et l'orientation des filaments plutôt que par la rigidité.

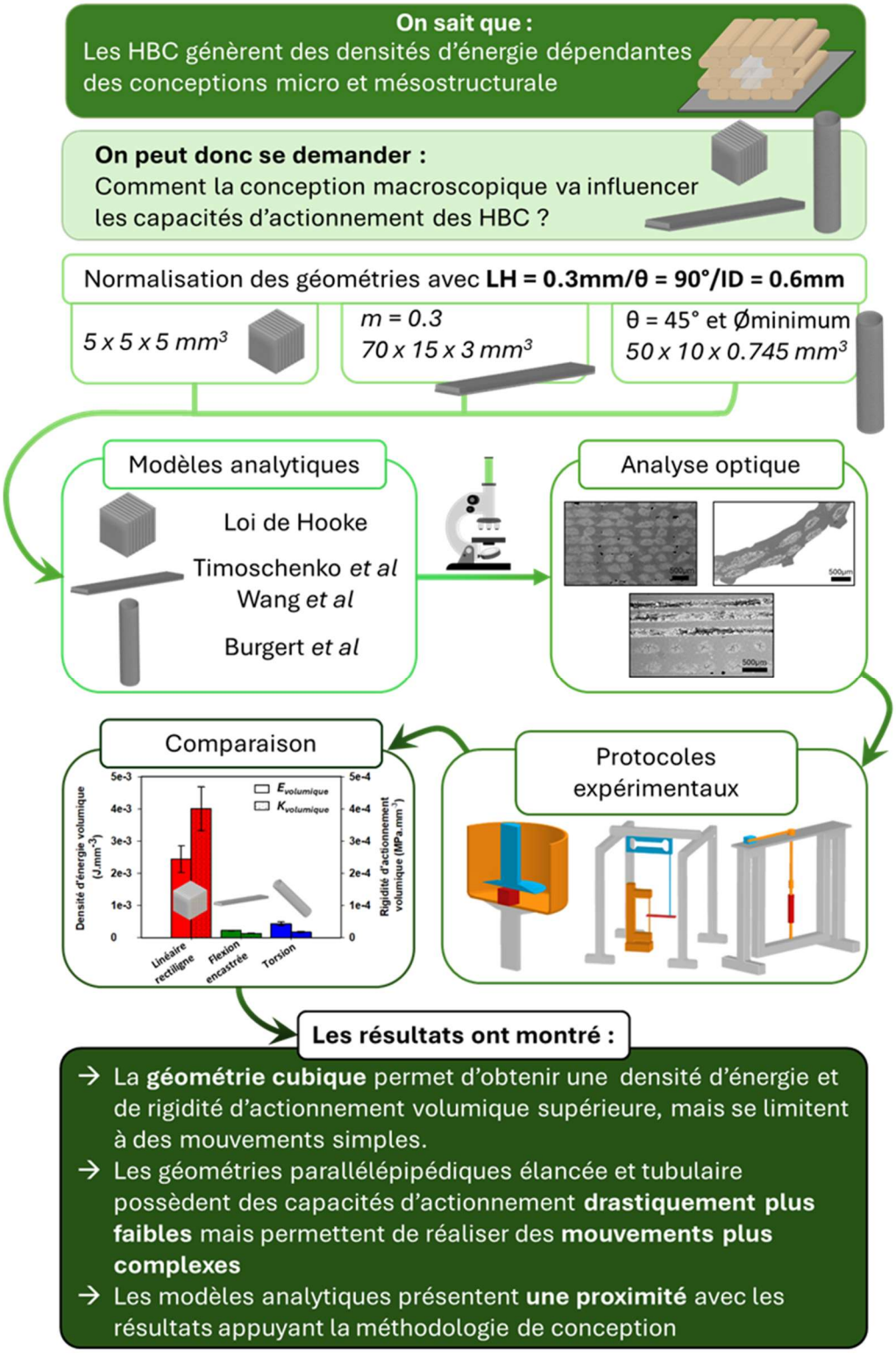
Le paramètre de distance interfilamentaire (ID) a été utilisé pour concevoir des canaux architecturés (Ø 0, Ø 1, Ø 2, et Ø 3 mm), lesquels ne sont pas considérés comme des porosités. Il est intéressant de noter qu'en dépit d'une réduction de quantité de matière utilisée, les HBC

peuvent produire la même performance d'actionnement en termes de densité d'énergie (~18 $J.cm^{-3}$).

Dans un contexte d'évaluation environnementale, il serait aussi intéressant d'analyser les performances d'actionnement issues de la littérature au regard d'indicateurs environnementaux pertinents, notamment les émissions de CO_2 exprimées en $kgCO_2éq$.

Cela ouvre la voie à la conception biomimétique des structures inspirées par les actionneurs hydro- et hygromorphes naturels. En effet, si l'actionnement a été mesuré ici lors d'immersions en eau déminéralisée, il serait tout autant intéressant de l'étudier en fonction de variations hygroscopiques. Enfin, les HBC générant des mouvements rectilinéaires ont pu être classifiés en termes de densité d'énergie spécifique et de module d'élasticité, ce qui met en lumière leur utilisation potentielle en tant qu'actionneurs architecturés passifs, à l'instar de plusieurs matériaux existants.

Chapitre 5 : Relation entre la géométrie imprimée et l'actionnement dans les structures HBC à base de cFF/PLA



1. Introduction

L'intérêt grandissant de l'accès à l'énergie et de l'utilisation de matériaux biosourcés a mené le projet ANR REDESIGN 4D à étudier l'influence de l'architecture microscopique, mésoscopique et ici, macroscopique de biocomposites hygromorphes (HBC) sur leurs capacités d'actionnement et sur la génération de densité d'énergie.

Dans la littérature, les mécanismes d'actionnement passif sont souvent mis en lumière par l'usage de matériaux dont l'architecture est un bilame simple [259]. Rappelons que cette architecture repose sur la superposition de deux matériaux possédant des coefficients d'expansion thermique ou hygroscopique différents induisant une courbure [209]. La courbure générée dans un bilame est dépendante du rapport d'épaisseur (*m*) et du rapport de module d'élasticité (*n*) de chacune des couches, respectivement. Le premier étant modulable, il est communément utilisé afin de contrôler la courbure générée de HBC [123][212][249][256]. Concernant les efforts induits par le blocage de l'hygroexpansion, ils demeurent moins étudiés. Il est possible de souligner des mesures de déplacements sous charges effectuées par Rüggeberg *et al.* [249] sur des bilames d'essence d'épicéa et d'hêtre, mais aussi celles de mesures de forces perpendiculaires en bout de poutre par Le Duigou *et al.* [217] sur des bilames thermocomprimés de lin/PPMA développant jusque 0.5 N.

Les travaux d'Alban *et al.* sont les premiers, en 1959, à avoir comparé les densités d'énergie générées lors d'une thermostimulation par un actionneur à architecture bilame simple et à architecture bilame hélicoïdale. Il en ressort que cette dernière permet une augmentation de 58 % de l'énergie volumique produite [193].

Les auteurs expliquent cette performance accrue par la capacité de l'architecture hélicoïdale à éliminer la nécessité de convertir mécaniquement un mouvement linéaire en mouvement rotatif. Dans le cas d'une géométrie parallélépipédique élancée, la courbure principale induite par l'activation thermique se développe généralement autour de l'axe correspondant à la largeur. Toutefois, des déformations secondaires, notamment autour de l'axe longitudinal, peuvent survenir et atténuer l'efficacité de la courbure principale. À l'inverse, une configuration hélicoïdale tend à restreindre naturellement ces déviations indésirables, stabilisant ainsi l'axe longitudinal au cours de l'activation. Plus tard, Byxbee *et al*. ont poursuivi

les investigations en développant plusieurs prototypes à usage spatial, notamment un traqueur solaire thermomorphe et un système de stockage d'énergie thermique [192].

En 2024, ces résultats ont inspiré deux études s'inscrivant dans une démarche de biomimétisme « Top-Down » comme décrit par Helms *et al.* [31], combinant l'inspiration des angles de microfibrilles de cellulose observés chez les actionneurs naturels [44] et le potentiel de conception apporté par l'impression 4D [217]. Le Duigou *et al.* ont proposé une comparaison d'HBC à architecture bilame hélicoïdale et tubulaire réalisés à partir de matériaux composites en PA6-1 renforcés de fibres continues de carbone (cCF/PA6-1) [24]. Dans cette étude, les géométries hélicoïdales stratifiées asymétriquement (Ø = 20 mm ; L = 100 mm ; h = 0.4 mm) possédant 3, 5 ou 8 brins ont permis d'atteindre un angle de rotation maximal de 110 °, accompagné d'un couple spécifique de 0.7, 1 et 1.4 $N.m.kg^{-1}$ lorsque la rotation est bloquée. En comparaison, la géométrie tubulaire stratifiée symétriquement (Ø = 20 mm ; L = 100 mm ; h = 0.4 mm), bien que générant un angle plus limité de 15 °, a présenté un couple spécifique nettement supérieur, avoisinant 30 $N.m.kg^{-1}$ permettant de se hisser à une densité d'énergie volumique de 10^7 $J.m^{-3}$. Les auteurs expliquent cette différence de rigidité d'actionnement par un fluage plus prononcé dans les géométries hélicoïdales que dans les géométries tubulaires. Ainsi, malgré les variations d'actionnement observées à proximité et au-delà de la température de transition vitreuse, la rigidité accrue des structures tubulaires favorise un transfert plus efficace des efforts générés.

Dans une logique d'usage de ressources locales, Josselin *et al.* ont exploré l'utilisation de fils continus de lin (cFF) associés à une matrice en polybutylène adipate téréphtalate (PBAT) [188] dédiée à l'impression de géométrie tubulaire. Malgré un angle de rotation maximal modéré de l'ordre de 10 °, ces dispositifs (Ø = 10 mm ; L = 100 mm ; h = 0.9 mm) ont démontré un couple spécifique de 29 $N.m.kg^{-1}$. Par conséquent, les densités d'énergie obtenues s'élèvent à 2.5×10^2 $J.kg^{-1}$.

En comparaison avec les résultats énoncés précédemment lors d'une thermostimulation, ces performances soulignent la pertinence de ces matériaux biosourcés pour des applications d'actionnement structurel mais aussi la portée d'énergie accessible par des matériaux hydrostimulés.

La présente étude a pour objectif d'analyser l'influence des architectures macroscopiques sur la performance d'actionnement des HBC au travers de géométries et de mécanismes d'actionnement différents, soit une expansion uniaxiale, une expansion différentielle menant à une flexion et une expansion hors axe résultant en torsion. La mise en parallèle a été réalisée en mettant en évidence les différences de rendement en termes de densité d'énergie et de rigidité d'actionnement. Trois types de mouvements sont comparés (rectilinéaire, flexion encastrée et torsion). L'approche proposée vise à orienter les choix de conception vers des solutions architecturales capables de maximiser la génération d'énergie tout en minimisant la quantité de matière utilisée.

2. Résultats et discussions

2.1. Analyse de la microstructure

La géométrie cubique, imprimée avec un plan de stratification symétrique (hauteur de couche = 0.3 mm ; distance interfilamentaire = 0.6 mm) présente une fraction volumique de fibre Vf = 32.1 ± 0.2 % et un taux de porosité de Vp = 1.7 ± 0.1 %. Ces observations sont en accord avec les différents résultats obtenus dans d'autres études [123][150].

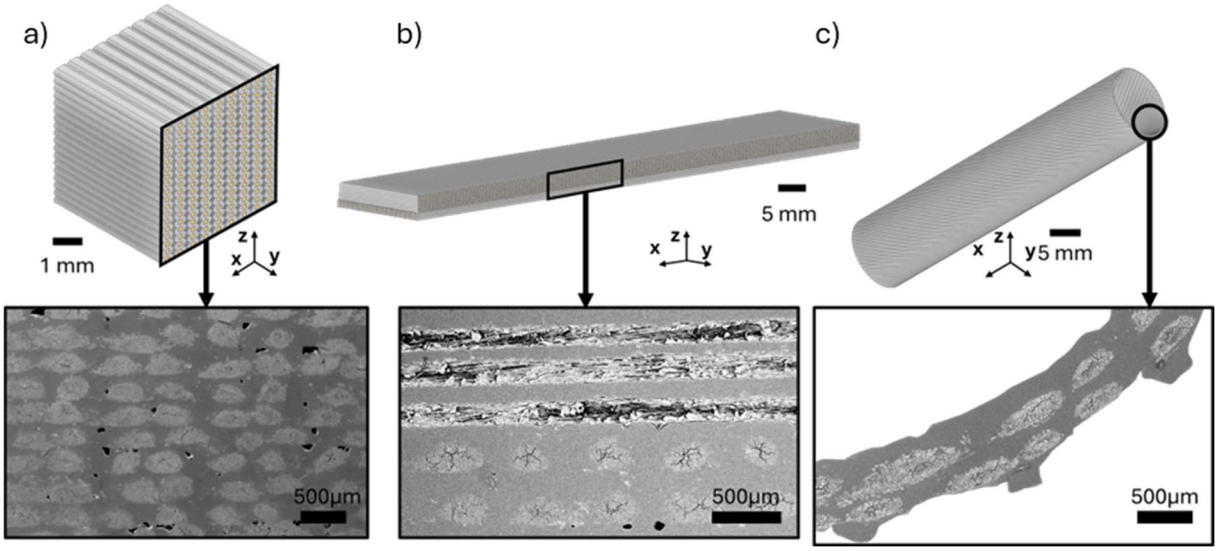


Figure 60 : Photographie au MEB des coupes transverses d'échantillons en cFF/PLA a) avec une géométrie cubique à stratification symétrique, b) parallélépipédique bilame asymétrique et c) tubulaire stratifié symétrique.

La détermination des taux de fibres et de porosité dans les architectures parallélépipédiques asymétriques (0/90°) demeure plus délicate. Cette difficulté résulte de l'influence du procédé de polissage qui altère significativement l'état des fils de lin orientés parallèlement au disque abrasif. En conséquence, il est possible de supposer que les couches actives et passives de ces

structures présentent des taux de fibres comparables à ceux observés dans des géométries cubiques, lesquelles ont été imprimées selon une hauteur de couche et une distance interfilamentaire identiques [279]. Par ailleurs, comme mis en évidence dans le **chapitre 4**, la variation de l'orientation n'induit aucune modification significative ni du taux de fibres ni de la porosité au sein de la microstructure du matériau.

Les actionneurs HBC produits à partir de cFF/PLA possédant une géométrie tubulaire symétrique ont présenté des fractions volumiques de fibre de Vf = 29.8 ± 1.2 %, identiques aux taux de fibre relevés par Josselin *et al.* avec une matrice en PBAT. Concernant le taux de porosité, il s'élève à Vp = 1.7 ± 0.1 % et est 3 fois inférieur aux résultats présentés par Josselin *et al.* [188]. En effet, cette différence s'explique par une amélioration de la calibration de l'impression rotative s'effectuant aujourd'hui avec des jauges d'épaisseurs métriques (± 2 - 4 µm).

2.2. Investigation de la sorption d'eau des 3 structures imprimées

L'analyse de l'évolution de la teneur en eau des biocomposites imprimés permet d'établir un lien direct entre leurs capacités d'actionnement et leur microstructure.

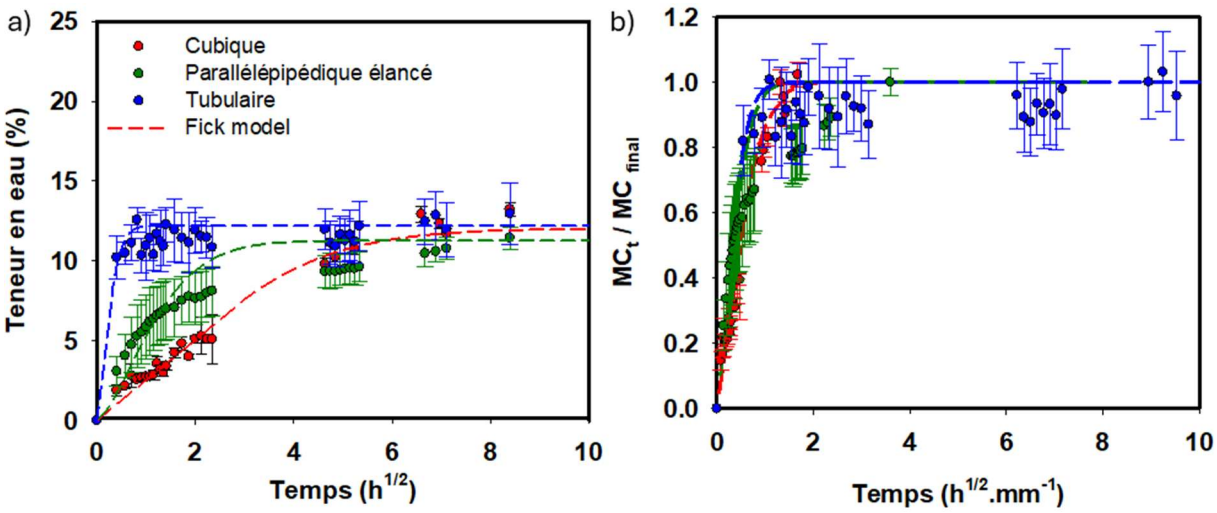


Figure 61 : a) Evolution de la teneur en eau (%) en fonction du temps d'immersion ($h^{1/2}$) en eau déminéralisée de biocomposites imprimés en cFF/PLA. b) Normalisation de la teneur en eau (MC_t) par la teneur en eau maximale (MC_{final}) en fonction du temps d'immersion normalisé par l'épaisseur de chacune des géométries, soit 5, 3 et 0.745 mm pour la géométrie cubique (rouge), parallélépipédique élancée (vert) et tubulaire (bleu) respectivement. Les courbes représentent les tendances obtenues à l'aide des modèles analytiques de la loi de Fick [280].

Il convient de souligner que, durant cette expérience, les spécimens n'étaient pas soumis à des contraintes mécaniques extérieures. Comme illustré en Figures 61a et b, les teneurs en eau

maximales atteignent 13.2 ± 0.4, 11.4 ± 0.7 et 12.9 ± 1.9 % pour les géométries cubique, parallélépipédique élancée et tubulaire, respectivement. La proximité de ces valeurs tend à confirmer une proportion en fibres globalement similaire au sein des différentes structures testées.

Les coefficients de diffusion corrigés D_c obtenus sont de 5.7, 9.5 et 11.9 × 10^{-5} mm^2. s^{-1} pour les géométries cubique, parallélépipédique élancée et tubulaire, respectivement. Par ailleurs, la normalisation du temps de sorption par l'épaisseur met en évidence l'influence du nombre de couches imprimées sur la cinétique d'absorption. Ce résultat corrobore les observations de Josselin *et al.* sur des tubes imprimés en cFF/PBAT, pour lesquels des épaisseurs différentes, à taux de fibres identiques, induisent des vitesses de sorption distinctes [188]. Ces phénomènes ont également été rapportés par Chilali *et al.,* qui ont montré que, pour des taux de fibres équivalents, des composites à matrice thermoplastique (Elium 150) ou thermodurcissable (époxy) présentent une diminution d'environ 50 % de leur coefficient de sorption lorsque l'épaisseur est doublée.

Ces résultats soulignent d'une part l'importance de la compaction progressive du matériau avec l'augmentation du nombre de couches, et d'autre part la difficulté accrue pour l'eau d'atteindre les fibres localisées au cœur de l'épaisseur des spécimens.

2.3. Performances d'actionnement de la géométrie cubique : expansion rectilinéaire

Rappelons dans un premier temps que les essais d'actionnement effectués sur les HBC à la géométrie cubique (étudiés transversalement aux fibres de lin) permettent de mettre en évidence un actionnement rectilinéaire. Ils peuvent, de manière analogue, servir comme un outil de compréhension de la phase/couche active au sein d'un bilame. Comme représenté sur la Figures 62a et b, les cubes en cFF/PLA génèrent une force maximale de 3.9 ± 0.7 N lorsqu'ils sont bloqués et se déplacent de 0.16 ± 0.01 mm en immersion selon l'orientation transverse en 480 minutes.

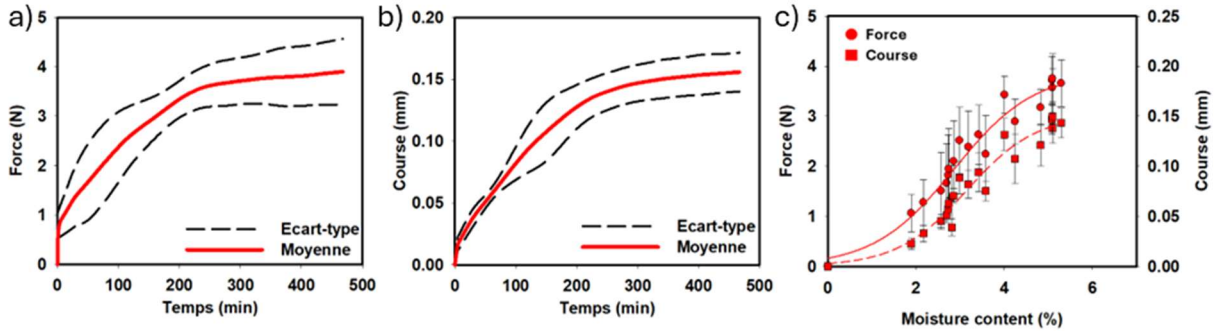


Figure 62 a) Evolution de la force de blocage (N) et b) de la course (mm) générée selon l'orientation transverse en fonction du temps d'immersion (min) des HBC fabriqués avec une géométrie cubique stratifiée symétriquement. c) Evolution de la force (N) et de la course (mm) générée selon l'orientation transverse en fonction de la teneur en eau (%) des HBC fabriqués avec une géométrie cubique stratifiée symétriquement. Les lignes pleines et pointillées représentent un ajustement sigmoïdal.

Après normalisation selon la surface de contact et les dimensions initiales des échantillons, les pressions de gonflement et les expansions relatives sont de 0.16 ± 0.3 MPa et de 3.1 ± 0.3 %, respectivement. Il est important de noter que les pressions de gonflement mesurées dans le cadre de cette étude sont équivalentes à celles du Chapitre 4. En revanche, les expansions relatives observées se situent dans la plage supérieure des valeurs précédemment rapportées (2.7 ± 0.4 %).

Les Figures 62a et b mettent en évidence trois phases distinctes, en accord avec les observations de Perkitny *et al.* lors de la sorption de cubes de bois [250]. La première correspond à un gonflement rapide, associé à l'établissement d'un contact parfait entre l'échantillon et la géométrie supérieure du système de mesure, et se situe entre 0 et 5 minutes. Cette étape est suivie d'un régime d'actionnement linéaire, qui se prolonge jusqu'à environ 200 minutes d'immersion. Enfin, la diminution d'actionnement apparait entre 200 et 250 minutes.

Ce comportement suggère que la capacité d'actionnement reste stable, avec ou sans contrainte appliquée, tant que la teneur en eau demeure inférieure à 4 %, alors que les résultats rapportés par Fruleux *et al*. démontraient 6 % [123]. Au-delà de ce seuil, une diminution de l'actionnement du système est observée.

L'analyse de l'actionnement en fonction de la teneur en eau des échantillons (cf. Figure 62c) met en évidence un comportement sigmoïdal typique des HBC [15]. Par ailleurs, un plateau

est atteint pour une teneur en eau d'environ 6 %, indiquant que l'eau liée joue un rôle prépondérant dans l'actionnement de la géométrie cubique.

Le modèle analytique utilisable dans le cadre de la géométrie cubique est issu de la loi de Hooke $\sigma = \frac{F}{S} = E.(\beta.\Delta M)$. Ainsi, l'expansion relative théorique générée avec une teneur en eau de 11 % en 8 heures d'immersion s'élève à 1.43 %, soit quasiment 2 fois moins que les résultats rapportés. De surcroît, les efforts générés selon le modèle analytique avec une section de 25 mm² s'élèvent à 5.72 MPa en utilisant un module E_{22} = 400 MPa, correspondant à cette teneur en eau [123].

Les valeurs calculées par ce modèle sont limitées par plusieurs points. Le premier étant que les modules d'élasticité transverses utilisés dans la loi de Hooke supposent que les modules transverses en compression et en traction soient identiques. Cette hypothèse est uniquement valable pour les matériaux isotropes et denses. Dans le cadre de filaments de lin possédant un lumen ainsi que des propriétés anisotropes, cela limite cette utilisation [240][281]. De plus, la compaction induite par le procédé d'impression peut biaiser le modèle lorsque les coefficients d'hygroexpansion ont été mesurés sur des échantillons avec un faible nombre de couches : soit 2 par Le Duigou *et al.* avec β = 0.013 [212] et 5 par Fruleux *et al*. avec β = 0.006 [123]. En perspective des résultats obtenus ici, pour 20 couches, un coefficient d'hydroexpansion s'élevant à β = 0.0047 est observable. Ainsi ces résultats induisent qu'une augmentation du nombre de couches, et par conséquent de l'épaisseur, diminue drastiquement la valeur du coefficient d'hygroexpansion transverse.

2.4. Performances d'actionnement de la géométrie parallélépipédique asymétrique : flexion encastrée

Inspirée par le mouvement de multiples modèles biologiques tels que les écailles de pomme de pin [63], l'architecture parallélépipédique élancée (où $\frac{L}{h} > 15$) asymétrique est largement représentée au sein des actionneurs passifs synthétiques. Rappelons qu'ici, le choix d'un stratifié composé de 7 couches actives (90°) et 3 couches passives (0°) résulte d'un rapport d'épaisseur m = 0.43 [209][210] (cf. **Chapitre 2**). Possédant une phase active et une phase passive caractérisées par des coefficients d'hygroexpansion différents, le bilame se distingue des autres géométries étudiées par la présence de deux interactions mécaniques opposées :

la phase passive agit comme élément contraignant (compression) tandis que la phase active génère la déformation (traction), induisant la flexion globale du système.

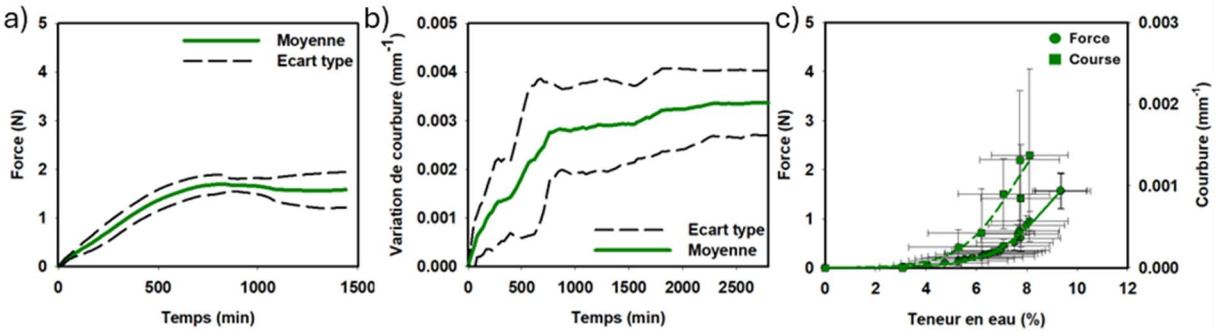


Figure 63 a) Evolution de la force bloquée (N) et de b) la variation de courbure (mm^{-1}) générée en fonction du temps d'immersion dans l'eau (min), où 0 min correspond à un état sec, des HBC avec une géométrie parallélépipédique bilame asymétrique. c) Evolution de la force bloquée (N) et de la variation de courbure (mm^{-1}) générée en fonction de la teneur en eau (%) des HBC avec une géométrie parallélépipédique bilame asymétrique. Les lignes pleines et pointillées représentent un ajustement sigmoïdal.

Dans le cadre de notre étude, cette géométrie parallélépipédique asymétrique a généré une force maximale de 1.90 ± 0.20 N en 12.5 heures ainsi qu'une courbure de 0.0034 ± 0.0007 mm^{-1} en 48 heures (Figures 63a et b). Comme exprimé dans le **Chapitre 2**, la déflexion maximale à l'extrémité de la poutre générée par ces HBC est par conséquent de 0.72 ± 0.07 mm. Il est possible d'observer que le temps requis pour atteindre l'optimum de la force maximale ainsi que celui de la variation de courbure est respectivement trois et six fois supérieur à celui nécessaire pour la géométrie cubique. Cette différence s'explique en premier lieu par le volume nettement plus important de la géométrie parallélépipédique élancée, environ 25 fois supérieur à celui de la géométrie cubique. En effet, comme illustré en Figure 61b, l'épaisseur du bilame, fixée ici à 3 mm, apparaît comme le paramètre dimensionnel prépondérant dans la cinétique de sorption. Dans le cas d'une architecture élancée, cette dimension contrôle directement la diffusion de l'humidité à travers l'épaisseur et conditionne ainsi la rapidité et l'amplitude de la réponse hygromorphique. Dans un second temps, le rapport d'environ 4 observé entre les temps nécessaires pour atteindre la force générée maximale et la variation de courbure s'explique par la différence de sollicitation mécanique des phases active et passive, respectivement selon leurs orientations longitudinale et transverse. Cette configuration engendre un cisaillement significatif entre les deux phases, lequel impacte fortement la capacité du système à soulever une charge, en particulier lors de la plastification progressive des matériaux au cours de l'hydroexpansion.

Conformément aux observations de Perkitny *et al*. à propos de l'hygroexpansion sur bois, il est constaté que les pressions de gonflement maximales sont atteintes en amont du déplacement libre maximal, traduisant un décalage temporel marqué entre les optimums de contrainte et d'expansion générés en fonction de la teneur en eau interne [250]. En effet, les efforts générés lors de l'hydroexpansion sous contrainte atteignent un maximum tant que le matériau demeure partiellement rigide, c'est-à-dire avant l'amorce d'un fluage hydro induit par la matrice polysaccharidique. Une fois ce seuil dépassé, les propriétés mécaniques du matériau diminuent progressivement, tout comme la pression de gonflement associée. À l'inverse, dans le cas d'une expansion libre, le matériau continue de se déformer lentement au cours de l'hydroexpansion, et ce, malgré l'état de plastification engagée [115][119].

Une fois les valeurs obtenues normalisées par la section transverse utile, c'est-à-dire la section utile à l'actionnement du matériau (cf. **Chapitre 2**), la pression de gonflement maximale et l'expansion relative maximale sont de 0.042 ± 0.004 MPa et 1.02 ± 0.10 %, respectivement.

A titre de comparaison, les bilames asymétriques en cFF/PLA réalisés par Le Duigou *et al.* génèrent une courbure de 0.027 ± 0.003 mm^{-1} avec deux couches (h = 0.602 ± 0.014 mm), un rapport d'épaisseur théorique de m = 1, une fraction volumique de fibres de 30 % de cFF et des modules élastiques identiques aux matériaux utilisés dans cette étude [212]. Cette différence s'explique par le nombre de couches impactant la raideur du bilame.

Dans le cadre d'une étude sur les forces générées par des bilames hygromorphes de dimensions 70 × 10 × 1.2 mm, composés d'une matrice en polypropylène (PP) (E = 1.000 ± 0.053 GPa) renforcée de fibres de lin et thermocomprimée, Le Duigou *et al.* ont mis en évidence une augmentation significative des efforts produits en fonction de la fraction volumique de fibres [143]. Les valeurs mesurées atteignent respectivement 2.2, 3.1 et 4.8 ± 0.2 x 10^{-3} MPa pour des teneurs en fibres de 17, 40 et 60 %. De plus, l'emploi d'une matrice PP greffée avec de l'anhydride maléique (PPMA), favorisant l'adhésion interfaciale entre fibre et matrice, a conduit à une amélioration notable des performances, avec une pression générée de 9.7 ± 0.2 x 10^{-3} MPa pour un taux de fibres de 60 %.

Ainsi, les HBC à matrice PLA présentent des pressions de gonflement supérieures d'un ordre de grandeur à celles obtenues avec des matrices PP et PPMA, traduisant une transmission plus

efficace des contraintes hygroscopiques au sein du composite. Cette différence s'explique aussi par la rigidité plus élevée du PLA.

Les modèles analytiques applicables sur les poutres élancées en flexion (cf. **Chapitre 2**) de Wang *et al.* [210] et de Timoshenko [209] ont permis de calculer des forces maximales de blocage de 1.83 et 1.82 N ainsi que des variations de courbures maximales de 0.0043 et 0.0047 mm^{-1}, respectivement (cf. Figure 64). La proximité entre les valeurs expérimentales et les résultats issus des modèles démontre que ces phénomènes stationnaires peuvent être prédits correctement.

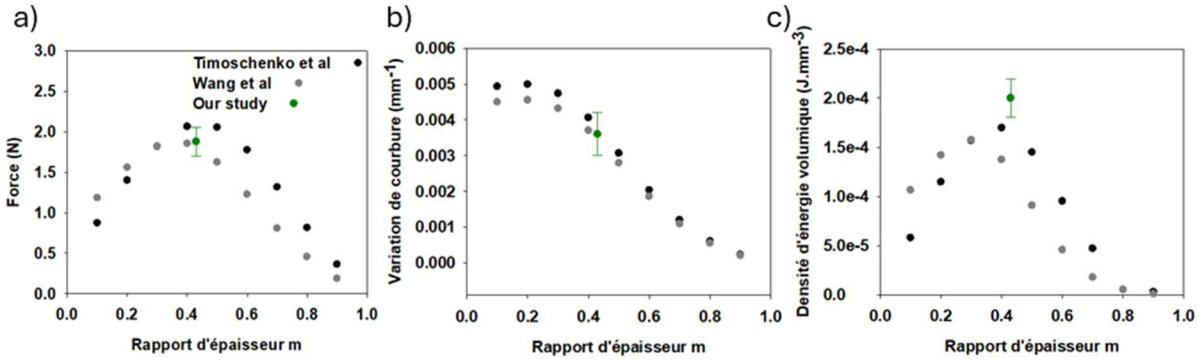


Figure 64 : a) Evolution de la force générée (N) à l'extrémité de la poutre en flexion en fonction du ratio d'épaisseur *m*. b) Evolution de la variation de courbure (mm^{-1}) en fonction du rapport d'épaisseur *m*. c) Evolution de la densité d'énergie volumique ($J.mm^{-3}$) en fonction du rapport d'épaisseur *m*. Les résultats sont issus des modèles de Timoshenko ainsi que de Wang *et al*.[209][210]

Par ailleurs, il convient de souligner que ces modèles constituent des outils pertinents pour orienter la conception en fonction des objectifs d'actionnement visés. Ainsi, dans une optique d'optimisation de la courbure maximale, un rapport d'épaisseur de m = 0.2 s'avère plus favorable. À l'inverse, si l'objectif principal est la génération d'une force maximale, un rapport m = 0.5 sera à privilégier. Si l'objectif de la pièce imprimée est de générer de l'énergie tout en utilisant un minimum de matière, il sera intéressant d'opter pour un ratio d'épaisseur de 0.3 selon Wang *et al.* et de 0.4 selon Timoshenko. Ces deux conceptions permettant de générer 0.16 et 0.17 $\times 10^{-3}$ $J.mm^{-3}$, respectivement.

Il est toutefois essentiel de noter que ces résultats dépendent directement des modules d'élasticité longitudinaux et transverses, eux-mêmes influencés par le taux de fibres et la nature des constituants des HBC. En effet, rappelons qu'à l'instar des fibres discontinues, les composites possédant des renforts continus possèdent des propriétés mécaniques évoluant

avec leur taux de fibres [282]. La teneur en fibre doit donc être considérée comme un levier stratégique pour les évolutions futures en matière d'optimisation des performances mécaniques et fonctionnelles.

2.5. Performances d'actionnement de la géométrie tubulaire stratifiée symétriquement

Rappelons que le choix d'une géométrie tubulaire s'appuie sur les travaux de Le Duigou *et al.* ayant mis en évidence une rigidité d'actionnement et une densité d'énergie significativement supérieures à celles de la géométrie hélicoïdale avec 1, 3, 5 ou 8 brins [174]. Dans le cadre d'une géométrie tubulaire en cFF/PLA, une force tangentielle au périmètre de 1.1 ± 0.1 N ainsi qu'une course maximale de 0.54 ± 0.16 mm ont été relevées pendant une immersion dans de l'eau déminéralisée à température ambiante de 48 heures (cf. Figures 65a et b).

Dans cette configuration, une différence notable est observée entre le temps nécessaire pour atteindre l'optimum de la force générée et celui requis pour atteindre la course maximale en périphérie du tube. La force atteint son pic après environ 9 heures, tandis que la course maximale n'est atteinte qu'au bout de 48 heures. Ce rapport, s'élevant à 5.3, met en évidence l'effet significatif de la mécanosorption sur la capacité du système à soulever des charges au cours de l'hydroexpansion (cf. Figures 65a et b). Si ce rapport est plus élevé que pour la géométrie cubique, c'est également en raison des sollicitations en cisaillement qui s'exercent entre les filaments (orientés à 45 °) constituant la structure. En effet, il est possible d'observer une baisse significative du module de cisaillement de HBC imprimés en cFF/PLA de 1.8 ± 0.2 à 0.9 ± 0.1 GPa lors de l'évolution de la teneur en eau de 0.5 à 6 % MC [269]. A l'inverse, le module de compression des fibres de lin demeure relativement constant lors de l'évolution de la teneur en eau, indiquant une sensibilité moindre en compression aux phénomènes de sorption [281].

L'analyse comparative des trois géométries étudiées (cubique, parallélépipédique et tubulaire) révèle que les forces maximales sont atteintes respectivement après 8, 12 et 9 heures. Ces observations confirment que le temps de plastification des matériaux naturels est directement influencé par le volume de matière engagé, correspondant ici à des épaisseurs de 5, 3 et 0.745 mm et des volumes de 125, 3150 et 667 mm^3 pour la géométrie cubique, la géométrie parallélépipédique élancée et la géométrie tubulaire, respectivement.

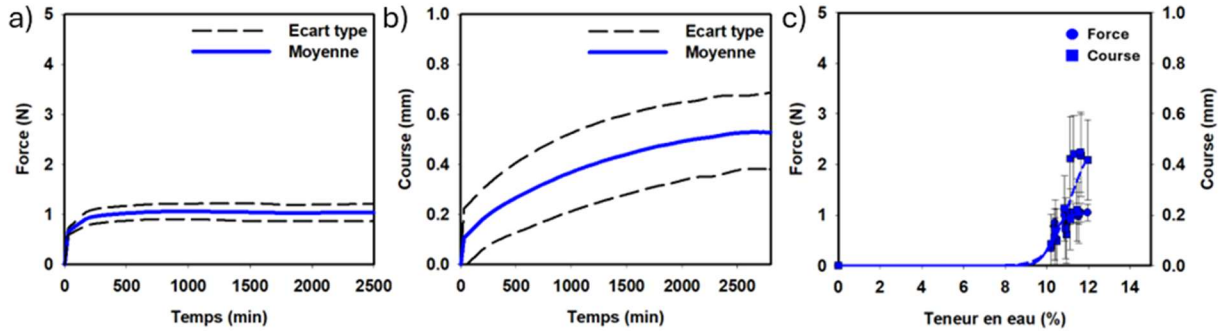


Figure 65 : a) Evolution de la force (N) générée en périphérie en fonction du temps d'immersion (min) des HBC avec une géométrie tubulaire stratifiée symétriquement. b) Evolution de la course (mm) générée en périphérie en fonction du temps d'immersion (min) des HBC avec une géométrie tubulaire stratifiée symétriquement (Ø = 10 mm ; h = 0.745 mm ; L = 55 mm). c) Evolution de la force (N) et de la course (mm) générée en périphérie en fonction de la teneur en eau (%) des HBC avec une géométrie tubulaire stratifiée symétriquement. Les lignes pleines et pointillées représentent un ajustement sigmoïdal.

Après normalisation par la section utile (cf. **Chapitre 2**), la pression de gonflement et l'expansion relative obtenues sont de 0.020 ± 0.002 MPa et de 1.7 ± 0.5 %, respectivement. Josselin *et al.* ont mesuré une pression de gonflement de 0.011 ± 0.001 MPa et une expansion relative de 2.8 % pour des tubes de configuration similaire en cFF/PBAT [188]. En comparaison, l'utilisation du PBAT, dont le module d'élasticité est environ 20 fois inférieur à celui du PLA [283], permet une augmentation significative de l'amplitude du mouvement généré, au détriment d'une diminution des forces exercées [123]. Cette comparaison souligne l'influence déterminante du choix de la matrice sur la pression de gonflement des structures imprimées.

L'utilisation du modèle analytique, adapté par Josselin *et al.* [188] des études concernant les mouvements des parois renforcées par des microfibrilles de cellulose de Burgert *et al.* [214], a permis d'obtenir les déplacements générés par le HBC en cFF/PLA avec un coefficient d'hygroexpansion de β = 0.0013 [49].

Pour les conditions géométriques utilisées lors des essais expérimentaux, à savoir une hauteur de tube de L = 55 mm, un diamètre interne de $Ø_i$ = 10 mm et un angle de filament de α = 45°, il en résulte une course en périphérie de 0.59 mm. L'écart de 9 % observé entre les valeurs théoriques et expérimentales peut s'expliquer par le fait que le modèle analytique ne prend pas en compte ni l'épaisseur du tube, ni les frottements, ni les propriétés mécaniques intrinsèques au matériau.

Tout comme l'ont montré Josselin *et al*.[188], il est possible d'observer ici une augmentation linéaire de la course parcourue en fonction de la hauteur du tube (cf. Figure 66a), avec un coefficient de corrélation de $R^2 = 0.99$ et une pente de $y = 0.0107x$ se révélant être 10 fois plus faible que celle obtenue avec un filament de cFF/PBAT ($y = 0.1046x$). De manière analogue aux résultats obtenus sur des tubes en cFF/PBAT, la variation de l'angle de dépôt des filaments, représentée en Figure 66b, met en évidence un optimum de course périphérique pour un angle α = 45° comme identifié par Burgert *et al*. au sein d'une essence d'épicéa [284]. Selon les auteurs, ce comportement est induit par un compromis entre une maximisation de la section utile et le choix de privilégier un actionnement selon la hauteur du tube. Alors que Josselin *et al*. ont observé une diminution de l'angle de rotation avec l'augmentation du diamètre, les résultats présentés ici indiquent que, concernant la course parcourue, le diamètre n'a pas d'influence significative (cf. Figure 66c).

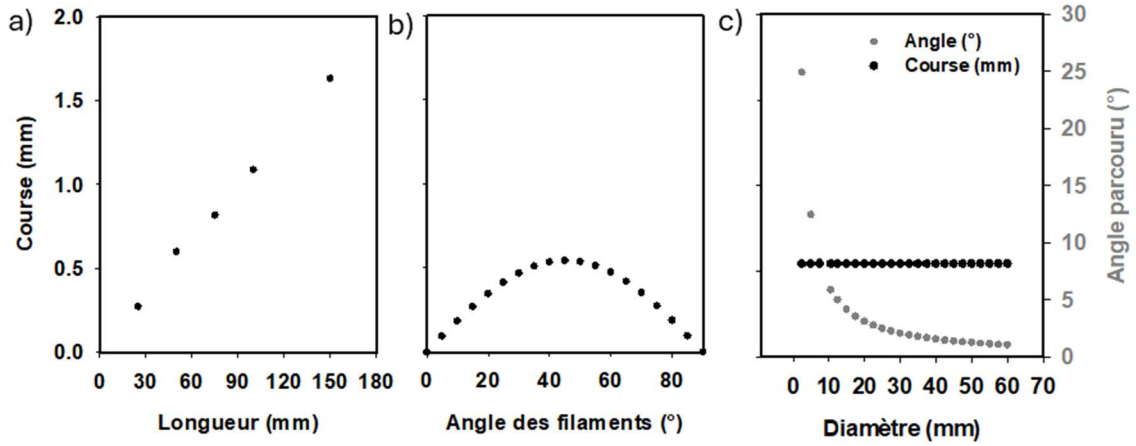


Figure 66 : a) Evolution de la course (mm) en périphérie de tube en cFF/PLA en fonction de la longueur de tube L (mm) (α = 45° et Øi = 10mm). b) Evolution de la course (mm) en périphérie de tube en cFF/PLA en fonction de l'angle des filaments (°)) (L = 55 mm et Øi = 10 mm). c) Evolution de la course (mm) et de l'angle parcouru (°) en périphérie de tube en cFF/PLA en fonction du diamètre (mm) (L = 55 mm et α = 45 °).

Étant donné que le tube étudié présente une paroi épaisse ($\frac{h}{r}$ > 0.1) et que l'angle de dépôt des filaments est α = 45°, il est possible, en première approximation, de considérer un comportement linéaire conformément à la loi de Hooke [285] :

$$\tau_{12} = \gamma_{12} \times G_{12} \quad \text{(Eq. 38)}$$

Où G_{12} = 986 MPa représente le module de cisaillement dans le plan [269] ; τ_{12} (MPa) la contrainte de cisaillement et γ_{12} (%) la déformation de cisaillement pur, estimée par γ_{12} =

$\beta.\Delta MC$. Dans le cas d'un tube à paroi épaisse, le moment de cisaillement induit peut alors être exprimé comme :

$$M_h = \frac{2\pi}{3} G_{12}\gamma_{12}(r^3_{extérieur} - r^3_{intérieur}) \quad \text{(Eq. 39)}$$

Ainsi, pour une variation de teneur en eau de 8.4 % mesurée après 48 heures d'immersion dans de l'eau déminéralisée, il est possible d'estimer une force tangentielle générée à la périphérie du tube de $F = 2.91\ N$.

L'écart observé, d'un facteur approximatif de 3, entre les valeurs théoriques et expérimentales, peut s'expliquer par les hypothèses simplificatrices du modèle analytique : une contrainte de cisaillement supposée uniforme sur l'épaisseur du tube et l'absence de prise en compte de la plasticité du matériau, laquelle peut significativement réduire la capacité de génération de force. Il est intéressant de souligner que cet écart significatif a également été observé dans le cadre de travaux portant sur les graines d'érodium. En effet, Cecchini *et al.* [286] ont rapporté un couple mesuré de 20.7 ± 2.5 µN.m, tandis que le modèle analytique utilisé prédisait une valeur de 57.7 µN.m.

Selon les auteurs, cette divergence s'expliquerait notamment par la présence de déformations non prises en compte dans la partie expérimentale, à savoir une expansion radiale dans leur cas, et, dans le nôtre, une expansion longitudinale du tube.

Ainsi, grâce aux modèles analytiques utilisés dans cette étude, la cohérence des résultats obtenus met en évidence la capacité à prédire les performances d'actionnement, offrant ainsi un outil pertinent pour optimiser en amont la conception des actionneurs tubulaires en cFF/PLA.

2.6. Comparaison d'actionnement

Rappelons que le **chapitre 4** met en évidence l'influence des paramètres de slicing sur les propriétés d'actionnement des HBCs imprimés en 4D. Ces résultats sont en accord avec ceux rapportés par Le Duigou *et al.* [212]. En effet, pour un actionnement transverse aux filaments en cFF/PLA, les paramètres définis sont une hauteur de couche de 0.3 mm et un espacement interfilamentaire de 0.6 mm.

La Figure 67 souligne les densités d'énergies et les rigidités d'actionnement normalisées par le volume global de chacun des échantillons, à savoir 125 mm^3, 3150 mm^3 et 667 mm^3 pour les géométries cubique, parallélépipédique élancée et tubulaire, respectivement. Comme énoncé dans le **chapitre 2**, la densité d'énergie correspond à $E = \int F \, d\delta$ et prend en compte les efforts et les déplacements générés. Ainsi dans cette étude, les densités d'énergie volumique s'élèvent à 2.43 ± 0.41, 0.21 ± 0.02 et 0.43 ± 0.05 × 10^{-3} J.mm^{-3} pour des géométries cubiques stratifiées symétriquement, parallélépipédiques élancées stratifiées asymétriquement et tubulaires stratifiées symétriquement, respectivement. La rigidité d'actionnement, correspondant à la pente de courbes « pression de gonflement - expansion » notée $K = \frac{P}{\varepsilon}$, représente la capacité d'un actionneur à générer un déplacement tout en étant restreint par une charge ou une pression environnementale (vent, pluie, neige). Par conséquent, après normalisation par le volume des géométries cubiques, parallélépipédiques et tubulaires, les rigidités d'actionnement volumique s'élèvent à 4.00 ± 0.68, 0.13 ± 0.01 et 0.17 ± 0.05 × 10^{-4} MPa.mm^{-3}, respectivement.

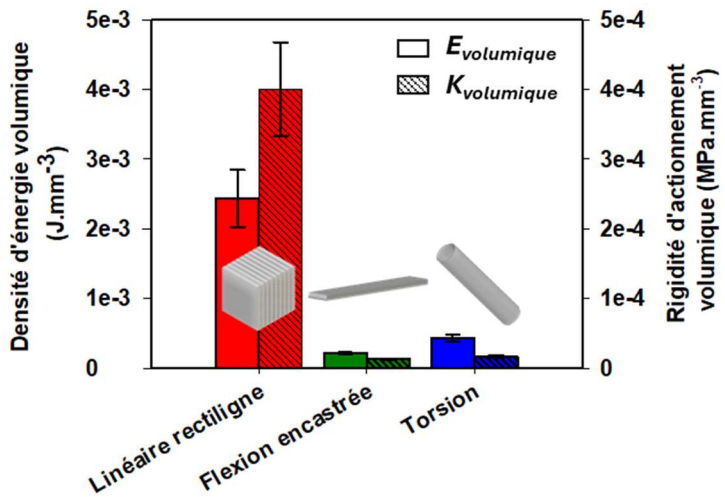


Figure 67 : Evolution de la densité d'énergie (J.mm^{-3}) et de la rigidité d'actionnement (MPa.mm^{-3}) normalisée par le volume intrinsèque des HBC aux géométries cubique (rouge), parallélépipédique élancée (vert) et tubulaire (bleu).

Parmi les géométries étudiées, la géométrie cubique présente un net avantage en termes d'actionnement volumique. Cette performance s'explique par l'absence de sollicitations orthogonales aux filaments imprimés, mobilisant uniquement les propriétés mécaniques en compression et en traction transverses. À l'inverse, les géométries parallélépipédiques élancées et tubulaires reposent principalement sur des sollicitations en cisaillement, dont les propriétés mécaniques sont significativement plus faibles (G_{12} ~986 MPa [269]) comparées aux modules élastiques dans le plan (E_{11} ~16000 MPa et E_{22} ~3000 MPa [123]) en cFF/PLA. Si l'on se focalise sur les géométries permettant des mouvements plus complexes, il est possible d'observer que la géométrie tubulaire possède une densité d'énergie volumique deux fois plus élevée et une rigidité d'actionnement 32 % plus importante que la géométrie parallélépipédique élancée. Cette différence s'explique principalement par l'influence de la géométrie sur la rigidité en flexion ou en torsion des structures. À section identique, le moment quadratique d'un cylindre est nettement supérieur au moment quadratique d'une poutre soumise à la flexion (Figures 68a et b). Il convient de noter que cette hypothèse reste valable pour des diamètres intérieur et extérieur allant jusqu'à 10,4 mm et 11 mm, dans la mesure où l'impression du filament peut théoriquement atteindre une épaisseur minimale de 0,3 mm. Au-delà de ces valeurs, la limite sera dictée par l'épaisseur de filament réellement imprimable.

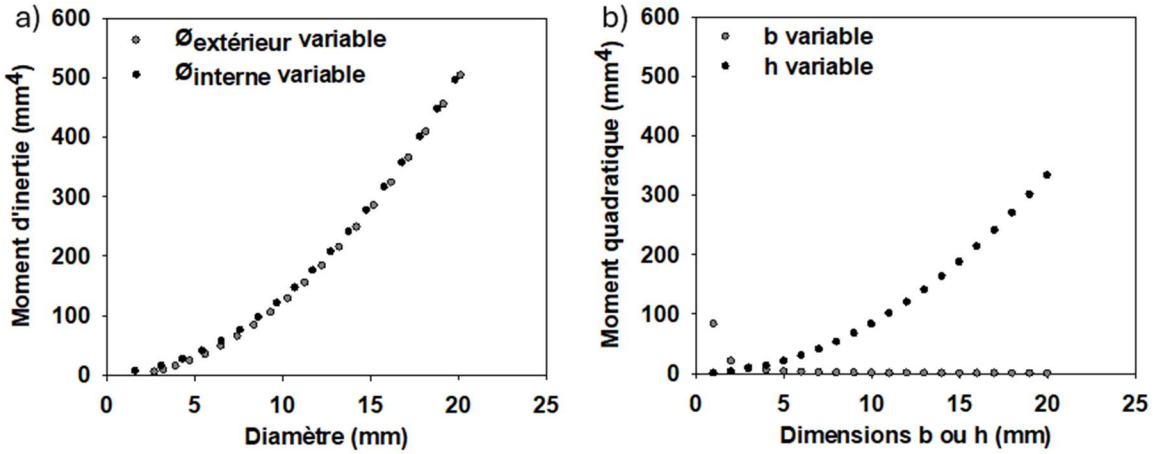


Figure 68 : a) Evolution du moment d'inertie (mm^4) polaire d'un tube creux de section constante de 10 mm^2 en fonction de l'évolution du diamètre (mm). b) Evolution du moment quadratique (mm^4) d'une poutre en flexion de section constante de 10 mm^2 en fonction de l'évolution des dimensions de base b ou de l'épaisseur h (mm).

Dans un second temps, la génération d'hydroexpansion dans des structures stratifiées asymétriquement nécessite une analyse plus fine. En effet, l'équation de Timoshenko

démontre que les facteurs *m* et *n* expriment un compromis à la fois géométrique (rapport d'épaisseur) et mécanique (rapport de module d'élasticité), à l'inverse des géométries symétriques où ces effets sont inexistants.

Ainsi, les résultats de cette étude illustrent l'influence déterminante de la géométrie sur les propriétés fonctionnelles des HBC réalisés en PLA renforcés de fils continus de lin. Ils complètent les observations de Le Duigou *et al.* [24], qui ont montré la supériorité d'actionnement des géométries tubulaires sur les configurations hélicoïdales, ainsi que celles d'Alban *et al.* [193], indiquant une densité d'énergie 58 % supérieure pour une architecture bilame hélicoïdale comparée à une architecture bilame plane.

3. Conclusion

Dans le cadre de ce travail de thèse, l'étude présentée a pour objectif d'évaluer l'influence de la géométrie sur les performances d'actionnement passif de matériaux composites à base de renforts continus de lin (cFF) et de PLA, lors d'une immersion dans l'eau déminéralisée.

Les analyses optiques préliminaires ont permis de confirmer que l'ensemble des pièces imprimées présente une microstructure similaire, assurant ainsi une base de comparaison valide pour les essais fonctionnels.

Chaque géométrie a ensuite été caractérisée à partir de paramètres représentatifs de l'actionnement, tels que la rigidité d'actionnement et la densité d'énergie, tous deux rapportés au volume effectif des structures. L'extraction de ces grandeurs a nécessité le développement de six protocoles expérimentaux distincts, intégrant des mesures de force et d'expansion, afin de permettre une comparaison rigoureuse fondée sur l'efficacité volumique de l'actionnement passif induit par l'eau.

En parallèle, les performances observées pour les géométries parallélépipédique élancée et tubulaire ont été confrontées à des modèles analytiques, utilisés à la fois comme outils de validation des résultats expérimentaux et comme leviers de compréhension des principes de conception optimisée propres à chaque configuration.

Les résultats obtenus ont mis en évidence des valeurs supérieures pour la géométrie cubique en termes de densité d'énergie ($2.43 \pm 0.41 \times 10^{-3}$ J.mm^{-3}) et de rigidité d'actionnement (4.00

± 0.68 × 10^{-4} MPa.mm^{-3}) rapportées au volume. Cette performance est cohérente avec l'absence de sollicitations orthogonales aux trajectoires d'impression des filaments, permettant ainsi de mobiliser pleinement les propriétés mécaniques en compression et en traction transversales durant l'hydroexpansion.

Dans l'optique de consolider le modèle analytique proposé, l'étude des modules de compression des HBC en cFF/PLA apparaît nécessaire.

À l'inverse, les géométries parallélépipédiques et tubulaires, toutes deux élancées, présentent des performances nettement inférieures (- 91 % et - 82 %), principalement en raison de sollicitations majoritairement en cisaillement, pour lesquelles les propriétés mécaniques sont significativement plus faibles que celles observées dans les directions principales du biocomposite. Toutefois, parmi ces deux géométries, la structure tubulaire se distingue par des performances volumiques 2 fois plus élevées. Ce comportement est attribué à un moment d'inertie polaire plus élevé dans une géométrie creuse tubulaire, comparé au moment quadratique d'une poutre sollicitée en flexion.

En intégrant ces principes, il devient envisageable de concevoir des actionneurs bioinspirés capables de répondre à des contraintes multifonctionnelles. Ainsi, une architecture tubulaire pourrait être privilégiée pour la génération de mouvements complexes, tandis qu'une configuration cubique serait plus adaptée aux applications nécessitant un support de charge élevé.

De plus, si l'actionnement a été mesuré ici lors d'immersions en eau déminéralisée, il serait tout autant intéressant de l'étudier en fonction de variations hygroscopiques.

Conclusions générales

Les biocomposites hygromorphes imprimés en 4D à partir de ressources biosourcées peuvent-ils vraiment incarner une nouvelle génération d'actionneurs : architecturés, programmables et compétitifs face aux solutions passives classiques ?

Le **chapitre 1** a posé les fondations théoriques de ce travail en retraçant l'état de l'art relatif aux biocomposites hygromorphes (HBC). Il retrace l'analyse de leurs sources d'inspiration biologique, de leur conception, de leurs procédés de fabrication, de leurs principes de fonctionnement et de leurs champs d'application et a permis de mettre en évidence la richesse et la complexité de ces systèmes. L'étude des mécanismes d'actionnement observés dans le monde végétal, notamment chez certaines essences de bois, a servi de point d'appui au développement de protocoles de mesure, mobilisant des approches issues de la mécanique, de la biologie et des sciences des matériaux.

Ces bases ont permis de mieux comprendre les leviers structurels mobilisés par les systèmes naturels pour produire un mouvement passif efficace, et ont guidé le développement de dispositifs hygromorphes artificiels au cours des dernières décennies. Si la plupart des approches se concentraient principalement sur l'évaluation des amplitudes de déplacement, elles restaient néanmoins limitées dans leur capacité à expliquer les performances d'actionnement globales. Les chapitres expérimentaux de ce manuscrit ont ainsi mis en évidence que les performances d'actionnement, comprenant les forces et les déplacements, dépendent de manière significative des procédés de fabrication détaillés en **chapitre 2**.

Ceux-ci induisent des modifications structurales aux différentes échelles (micro, méso et macro) influençant directement l'efficacité volumique des pièces imprimées. Ce constat a ainsi orienté le cadre méthodologique adopté dans ce travail vers une approche centrée sur la relation entre architecture, matériau et fonction.

Le **chapitre 3** s'est intéressé au procédé de coextrusion pour la fabrication de filaments à fibres continues naturelles (cFF/PLA) adaptés à l'impression 4D. L'étude a évalué l'influence de la vitesse de tirage et de la température de filière sur la structure et les propriétés mécaniques des filaments. Une analyse rhéologique du PLA a montré une diminution de 505 à 130 Pa.s de

la viscosité entre 205 °C et 220 °C, influençant l'imprégnation des fibres de lin et, par conséquent, les performances mécaniques. Les observations optiques ont révélé un contrôle du diamètre et de la compression du fil twisté au-delà de 215 °C, induit par un effet Barus réduit. Ces résultats suggèrent que des paramètres tels que la torsion ou le grammage du fil pourraient être exploités pour optimiser la mise en forme du renfort. Les essais de traction ont confirmé la dépendance des propriétés mécaniques aux conditions de coextrusion, mettant en évidence l'importance du contrôle de la viscosité.

Le **chapitre 4** a porté sur l'impact des paramètres de slicing, régissant l'organisation mésostructurelle, sur la capacité d'actionnement des HBC imprimés 4D. Une méthodologie adaptée pour évaluer l'expansion libre et contrainte a été développée et a pris pour référence une essence d'épicéa. Il a été démontré que la hauteur de couche influence fortement l'hydroexpansion et la pression de gonflement, une hauteur de 0.3 mm offrant un compromis tout en limitant les défauts comme la porosité (1.3 ± 0.1 %). L'orientation des filaments, en raison de l'anisotropie élevée des fibres, impacte significativement les performances d'actionnement, en particulier la densité d'énergie. Des canaux architecturés ont également été introduits, réduisant la masse sans diminuer la performance (~18 $J.cm^{-3}$), ce qui ouvre des perspectives pour la conception inspirée des actionneurs naturels.

Le **chapitre 5** a étudié l'impact de la géométrie, régissant la macrostructure, sur les performances d'actionnement passif de composites cFF/PLA en immersion dans l'eau. Six protocoles expérimentaux ont permis de mesurer l'actionnement, la rigidité et la densité d'énergie volumique des structures imprimées. Les résultats montrent une supériorité nette de la géométrie cubique, exploitant pleinement les propriétés mécaniques en compression. À l'inverse, les géométries parallélépipédiques élancée et tubulaire présentent des performances moindres en termes de densités d'énergie volumique (- 91 % et - 82 %), en raison de sollicitations en cisaillement. Toutefois, la structure tubulaire offre un meilleur compromis grâce à un moment d'inertie polaire plus élevé. Enfin, la phase passive des architectures bilames réduit l'efficacité volumique globale, n'étant pas active dans l'actionnement.

Perspectives

Le procédé de coextrusion ayant démontré son influence sur la composition et les propriétés mécaniques des matériaux obtenus, plusieurs prolongements peuvent être envisagés.

Tout d'abord, l'observation de la composition des filaments pourrait être enrichie par des techniques d'analyse plus fines, telles que la microtomographie, afin de mieux caractériser la répartition et l'imprégnation des fibres dans la matrice. Le taux de fibres actuel, limité par les paramètres de coextrusion (~25–30 %), pourrait être optimisé jusqu'à 60 % en testant des fils de fibres naturelles présentant une composition similaire mais des caractéristiques textiles distinctes (TEX, twist). Ceci permettrait d'évaluer l'influence de la structure textile parallèlement à la réponse des paramètres de coextrusion.

Par ailleurs, l'utilisation d'un montage de traction plus précis dans les faibles gammes d'efforts appliquées aux filaments permettrait de pouvoir déterminer une complaisance du système et *in fine*, d'obtenir les valeurs réelles de propriétés mécaniques en traction. L'étude des contraintes générées lors du procédé pourrait également être complétée par des approches numériques ou expérimentales, par exemple via des mesures utilisant les déformations de fibres optiques, en s'appuyant sur les travaux d'Åstroöm *et al*. [245]. Enfin, une étude sur l'influence de la géométrie de la filière permettrait de mieux comprendre la répartition des contraintes appliquées au fil durant l'extrusion.

Le procédé d'impression 4D a démontré son potentiel de conception aux échelles mésoscopique et macroscopique. Dans la continuité des travaux de Cerbe *et al*. [186] sur l'impression FFF, il serait pertinent de mesurer en temps réel les contraintes générées sur la pièce imprimée en filament à renfort continu en fonction des paramètres de slicing. Ce point peut être mené soit via des capteurs de force placés sous le plateau d'impression, soit par l'intégration de fibres optiques au sein de la tête d'impression.

L'étude des paramètres de slicing a révélé que l'actionnement hors plan est significativement plus important que celui selon l'orientation transverse. Le développement de stratégies de conception et d'impression exploitant cette différence pourrait améliorer les performances globales des HBC. De plus, la réalisation de mesures des modules élastiques E_{22} en traction et

en compression permettrait de préciser le positionnement des HBC au sein de la classification présentée. Rappelons toutefois que pour les chapitres 4 et 5, l'actionnement a été mesuré ici lors d'immersions en eau déminéralisée, il serait tout autant intéressant de l'étudier en fonction de variations hygroscopiques.

Le **chapitre 4** a également montré que l'introduction de cavités architecturées, inspirées des microstructures du bois, permet de réduire le volume de matière tout en conservant les capacités d'actionnement. Une exploration plus large de géométries de cavités et de motifs bioinspirés des disparités de densité des parties adaxiales et abaxiales de la plante de la résurrection pourrait ainsi enrichir les approches futures et développer des mouvements plus complexes, tels que la flexion de tube [66]. Par ailleurs, de futures études sur l'implication de cycles d'actionnement seraient à envisager dans le cadre d'applications concrètes.

Dans un contexte d'évaluation environnementale, il serait intéressant d'analyser les performances d'actionnement issues de la littérature au regard d'indicateurs environnementaux pertinents, notamment les émissions de CO_2 exprimées en $kgCO_2éq$.

En complément, bien que le **chapitre 5** ait étudié plusieurs géométries utilisées pour l'actionnement passif, l'évaluation d'autres formes telles que les spires, les doubles hélices ou les disques apparaît pertinente suivant le domaine d'application. Dans l'optique de consolider les modèles analytiques proposés, l'étude des modules élastiques en traction hors plan et de compression selon les orientations hors plan et transverse des HBC en cFF/PLA apparaît nécessaire. Par la suite, il serait intéressant de mettre en parallèle les capacités des géométries développant des instabilités mécaniques.

Références

[1] K. Calvin *et al.*, “IPCC, 2023: Climate Change 2023: Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Core Writing Team, H. Lee and J. Romero (eds.)]. IPCC, Geneva, Switzerland.,” pp. 35–115, 2023, doi: 10.59327/IPCC/AR6-9789291691647.

[2] L. Casson, *Great Ages Of Man, A History of the World’s Cultures: Ancient Egypt*. New York, 1965.

[3] B. M. El-Sehily, “Fracture Mechanics in Ancient Egypt,” in *Procedia Structural Integrity*, Elsevier B.V., 2016, pp. 2921–2928. doi: 10.1016/j.prostr.2016.06.365.

[4] M. J. Archambeault, “Sourcing of marble used in mosaics at Antioch (Turkey),” 2004, [Online]. Available: http://scholarcommons.usf.edu/etd/942

[5] D. Hazel, “Ancient marble studies: recent research,” *Cambridge Univ. Press*, vol. 58, pp. 459–464, 1988, doi: doi.org/10.1017/S0022226722000044.

[6] M. Allen *et al.*, “GLOBAL WARMING OF 1 . 5 ° C an IPCC special report on the impacts of global,” *Ipcc*, no. October 2018, 2018, [Online]. Available: https://www.ipcc.ch/sr15/chapter/summary-for-policy-makers/

[7] “Agenda 2030.” [Online]. Available: https://www.agenda-2030.fr/17-objectifs-de-developpement-durable/?

[8] AFNOR, “Norme NF EN 13-432,” 2010. [Online]. Available: https://www.boutique.afnor.org/norme/nf-en-13432/emballage-exigences-relatives-aux-emballages-valorisables-par-compostage-et-biodegradation-programme-d-essai-et-criteres-d-evalu/article/726060/fa049121

[9] J. E. Huber, N. A. Fleck, and M. F. Ashby, “The selection of mechanical actuators,” *Proc. R. Soc. London. Ser. A Math. Phys. Eng. Sci.*, vol. 453, no. 1965, pp. 2185–2205, 1997, [Online]. Available: http://rspa.royalsocietypublishing.org/content/453/1965/2185.abstract

[10] I. Busch-Vishniac, *Electromechanical Sensors and Actuators*. 1998. doi: 10.1108/sr.2000.08720aae.002.

[11] B. Kalita, A. Leonessa, and S. K. Dwivedy, “A Review on the Development of Pneumatic Artificial Muscle Actuators: Force Model and Application,” *Actuators*, vol. 11, no. 10, pp. 1–28, 2022, doi: 10.3390/act11100288.

[12] K. Suzumori and A. A. Faudzi, “Trends in hydraulic actuators and components in legged and tough robots: a review,” *Adv. Robot.*, vol. 32, no. 9, pp. 458–476, 2018, doi: 10.1080/01691864.2018.1455606.

[13] S. Tibbits, “4D Printing,” pp. 421–433, 2013, doi: 10.1142/9789811201493_0027.

[14] B. Shin *et al.*, “Hygrobot: A self-locomotive ratcheted actuator powered by environmental humidity,” *Sci. Robot.*, vol. 3, no. 14, 2018, doi: 10.1126/scirobotics.aar2629.

[15] C. Hill, M. Altgen, P. Penttil, and L. Rautkari, *Review : interaction of water vapour with wood and other hygro - responsive materials*, no. 0123456789. 2024. doi: 10.1007/s10853-024-09636-y.

[16] A. D. Poole and J. D. Booker, “Design methodology and case studies in actuator selection,” *Mech. Mach. Theory*, vol. 46, no. 5, pp. 647–661, 2011, doi: 10.1016/j.mechmachtheory.2010.12.009.

[17] M. F. Ashby, “Materials selection in conceptual design,” *Mater. Sci. Technol.*, vol. 5, no. 517, 1989, doi: 10.4324/9781003205920-6.

[18] A. . Hill, “The heat of shortening and the dynamic constants of muscle,” *Proc. R. Soc. London. Ser. B - Biol. Sci.*, vol. 126, no. 843, pp. 136–195, 1938, doi: 10.1098/rspb.1938.0050.

[19] M. Zupan, M. F. Ashby, and N. A. Fleck, “Actuator classification and selection - The development of a database,” *Adv. Eng. Mater.*, vol. 4, no. 12, pp. 933–940, Dec. 2002, doi: 10.1002/adem.200290009.

[20] “Banner Battirien.” [Online]. Available: https://www.bannerbatterien.com/fr/Home

[21] D. Chareyron, “https://culturesciencesphysique.ens-lyon.fr/ressource/bilame.xml - Version du 31/10/24,” pp. 1–10, 2020.

[22] Y. Sakai, Y. Sadaoka, and M. Matsuguchi, “Humidity sensors based on polymer thin films,” *Sensors Actuators, B Chem.*, vol. 35, no. 1–3, pp. 85–90, 1996, doi: 10.1016/S0925-4005(96)02019-9.

[23] S. Gladman, E. A. Matsumoto, R. G. Nuzzo, L. Mahadevan, and J. A. Lewis, “Biomimetic 4D printing,” *Nat. Mater.*, vol. 15, no. 4, pp. 413–418, 2016, doi: 10.1038/nmat4544.

[24] A. Le Duigou *et al.*, “Bioinspired 4D Printed Tubular/Helicoidal Shape Changing Metacomposites for Programmable Structural Morphing,” *Adv. Mater. Technol.*, vol. n/a, no. n/a, p. 2400237, 2024, doi: 10.1002/admt.202400237.

[25] AFNOR, “Norme NF ISO 18458,” 2015.

[26] P. E. Fayemi, K. Wanieck, C. Zollfrank, N. Maranzana, and A. Aoussat, “Biomimetics: Process, tools and practice,” *Bioinspiration and Biomimetics*, vol. 12, no. 1, 2017, doi: 10.1088/1748-3190/12/1/011002.

[27] J. M. Harkness, “A Lifetime of Connections: Otto Herbert Schmitt, 1913-1998,” *Phys.*

Perspect., vol. 4, no. 4, pp. 456–490, 2002, doi: 10.1007/s000160200005.

[28] S. Reichert, M. Achim, and D. Correa, “Meteorosensitive architecture: Biomimetic building skins based on materially embedded and hygroscopically enabled responsiveness,” *Comput. Des.*, vol. 60, no. 1, p. 50/69, 2015, doi: doi.org/10.1016/j.cad.2014.02.010.

[29] J. Hwang, Y. Jeong, J. M. Park, K. H. Lee, J. W. Hong, and J. Choi, “Biomimetics: Forecasting the future of science, engineering, and medicine,” *Int. J. Nanomedicine*, vol. 10, pp. 5701–5713, 2015, doi: 10.2147/IJN.S83642.

[30] M. Pearce, “Mick Peace Biomimicry Architecture”, [Online]. Available: https://www.mickpearce.com/biomimicry.html

[31] M. Helms, S. S. Vattam, and A. K. Goel, “Biologically inspired design: process and products,” *Des. Stud.*, vol. 30, no. 5, pp. 606–622, 2009, doi: 10.1016/j.destud.2009.04.003.

[32] A. Rivas and A. Acuña, “Product Design Methods With Recycled Materials Based on Biomimicry,” no. September, pp. 145–150, 2024, doi: 10.35199/epde.2024.25.

[33] A. V. Hill, “The mechanical efficiency of frog’s muscle,” *R. Soc.*, vol. 127, no. 849, 1939, doi: doi.org/10.1098/rspb.1939.0033.

[34] K. Nakayama *et al.*, “The structure and formation of giant Marimo (Aegagropila linnaei) in Lake Akan, Japan,” *Sci. Rep.*, vol. 11, no. 1, pp. 1–12, 2021, doi: 10.1038/s41598-021-01028-5.

[35] H. Griffiths and J. Males, “Succulent plants,” *Curr. Biol.*, vol. 27, no. 17, pp. R890–R896, 2017, doi: 10.1016/j.cub.2017.03.021.

[36] H. A. Mooney, S. L. Gulmon, and P. J. Weisser, “Environmental Adaptations of the Atacaman Desert Cactus Copiapoa haseltoniana,” *Flora*, vol. 166, no. 2, pp. 117–124, 1977, doi: 10.1016/s0367-2530(17)32124-2.

[37] Y. X. Mo *et al.*, “Strangler fig–host tree associations: Insights into the ecology and management of tropical urban green spaces,” *Plants People Planet*, no. August 2024, pp. 159–175, 2024, doi: 10.1002/ppp3.10572.

[38] E. Darwin, “The power of movements in Plants,” 1880.

[39] A. Arber, “The natural philosophy of plant form,” *Nat. Philos. Plant Form*, vol. 63, no. September, pp. 1–247, 2012, doi: 10.1017/CBO9781139177290.

[40] F. Schweingruber, *Atlas of Woody Plant Stems*, 1st editio. Springer Berlin, Heidelberg, 2008. doi: https://doi.org/10.1007/3-540-32525-5.

[41] G. J. McDougall, I. M. Morrison, D. Stewart, J. D. B. Weyers, and J. R. Hillman, “Plant

fibres: Botany, chemistry and processing for industrial use," *J. Sci. Food Agric.*, vol. 62, no. 1, pp. 1–20, 1993, doi: 10.1002/jsfa.2740620102.

[42] K. Charlet, J. P. Jernot, S. Eve, M. Gomina, and J. Bréard, "Multi-scale morphological characterisation of flax: From the stem to the fibrils," *Carbohydr. Polym.*, vol. 82, no. 1, pp. 54–61, 2010, doi: 10.1016/j.carbpol.2010.04.022.

[43] M. Hyde, "Bois," *Confrontation*, vol. 2017-Fall, no. 122, pp. 11–27, 2017.

[44] P. Fratzl, R. Elbaum, and I. Burgert, "Cellulose fibrils direct plant organ movements," *Faraday Discuss.*, vol. 139, pp. 275–282, 2008, doi: 10.1039/b716663j.

[45] T. I. Baskin, "Anisotropic expansion of the plant cell wall," *Annu. Rev. Cell Dev. Biol.*, vol. 21, pp. 203–222, 2005, doi: 10.1146/annurev.cellbio.20.082503.103053.

[46] A. A. B. A. Mohammed *et al.*, "Corn: Its Structure, Polymer, Fiber, Composite, Properties, and Applications," *Polymers (Basel).*, vol. 14, no. 20, p. 4396, Oct. 2022, doi: 10.3390/polym14204396.

[47] A. Bourmaud, C. Morvan, A. Bouali, V. Placet, P. Perré, and C. Baley, "Relationships between micro-fibrillar angle, mechanical properties and biochemical composition of flax fibers," *Ind. Crops Prod.*, vol. 44, pp. 343–351, 2013, doi: 10.1016/j.indcrop.2012.11.031.

[48] Y. Nishiyama, "Structure and properties of the cellulose microfibril," *J. Wood Sci.*, vol. 55, no. 4, pp. 241–249, 2009, doi: 10.1007/s10086-009-1029-1.

[49] A. Le Duigou, J. Merotte, A. Bourmaud, P. Davies, K. Belhouli, and C. Baley, "Hygroscopic expansion: A key point to describe natural fibre/polymer matrix interface bond strength," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 151, no. October, pp. 228–233, 2017, doi: 10.1016/j.compscitech.2017.08.028.

[50] M. Abida, F. Gehring, J. Mars, A. Vivet, F. Dammak, and M. Haddar, "Hygro-mechanical coupling and multiscale swelling coefficients assessment of flax yarns and flax / epoxy composites," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 136, no. July 2019, 2020, doi: 10.1016/j.compositesa.2020.105914.

[51] A. Zitting, A. Paajanen, L. Rautkari, and P. A. Penttilä, "Deswelling of microfibril bundles in drying wood studied by small-angle neutron scattering and molecular dynamics," *Cellulose*, vol. 28, no. 17, pp. 10765–10776, 2021, doi: 10.1007/s10570-021-04204-y.

[52] B. Choat, W. Sydney, G. A. Gambetta, C. R. Brodersen, and F. Nature, "Water Uptake and Transport in Vascular Plants," *Nat. Educ. Knowl.*, no. 2013, pp. 1–12, 2015, [Online]. Available: http://www.nature.com/scitable/knowledge/library/water-uptake-and-tra

[53] M. J. Canny, "Flow and Transport in Plants," *Annu. Rev. Fluid Mech.*, vol. 9, no. 1, pp. 275–296, 1977, doi: 10.1146/annurev.fl.09.010177.001423.

[54] M. J. Canny, “A new Theory for the ascent of sap—Cohesion supported by tissue pressure,” 1995. doi: 10.1006/anbo.1995.1032.

[55] W. F. Pickard, “The ascent of sap in plants,” *Prog. Biophys. Mol. Biol.*, vol. 37, no. C, pp. 181–229, 1981, doi: 10.1016/0079-6107(82)90023-2.

[56] K. A. McCulloh, J. S. Sperry, and F. R. Adler, “Water transport in plants obeys Murray’s law,” *Nature*, vol. 421, no. 6926, pp. 939–942, 2003, doi: 10.1038/nature01444.

[57] U. Zimmermann, A. Haase, and D. Langbein, “Mechanisms of long-distance water transport in plants: a re-examination of some paradigms in the light of new evidence,” *Philos. Trans. R. Soc. London. Ser. B Biol. Sci.*, vol. 341, no. 1295, pp. 19–31, 1993, doi: 10.1098/rstb.1993.0087.

[58] J. Dumais and Y. Forterre, “Vegetable dynamicks: The role of water in plant movements,” *Annu. Rev. Fluid Mech.*, vol. 44, no. December 2011, pp. 453–478, 2011, doi: 10.1146/annurev-fluid-120710-101200.

[59] V. Charpentier, P. Hannequart, S. Adriaenssens, O. Baverel, E. Viglino, and S. Eisenman, “Kinematic ampli fi cation strategies in plants and engineering,” *Smart Mater. Struct.*, vol. 26, 2017, doi: DOI 10.1088/1361-665X/aa640f.

[60] Y. Forterre, “Slow, fast and furious: Understanding the physics of plant movements,” *J. Exp. Bot.*, vol. 64, no. 15, pp. 4745–4760, 2013, doi: 10.1093/jxb/ert230.

[61] H. C. Spatz, L. Köhler, and K. J. Niklas, “Mechanical behaviour of plant tissues: Composite materials or structures?,” *J. Exp. Biol.*, vol. 202, no. 23, pp. 3269–3272, 1999, doi: 10.1242/jeb.202.23.3269.

[62] T. Proseus, J. Ortega, and J. Boyer, “Cell Enlargement 1,” *Plant Physiol.*, vol. 119, no. February, pp. 775–784, 1999.

[63] C. Dawson, J. F. Vincent, and A.-M. Rocca, “How pine cones open,” Blackwell, 1997. doi: doi.org/10.1038/37745.

[64] Y. Abraham *et al.*, “Tilted cellulose arrangement as a novel mechanism for hygroscopic coiling in the stork’s bill awn,” *J. R. Soc. Interface*, vol. 9, no. 69, pp. 640–647, 2012, doi: 10.1098/rsif.2011.0395.

[65] R. Elbaum, L. Zaltzman, I. Burgert, and P. Fratzl, “The role of wheat awns in the seed dispersal unit,” *Science (80-.).*, vol. 316, no. 5826, pp. 884–886, 2007, doi: 10.1126/science.1140097.

[66] A. Rafsanjani, V. Brulé, T. L. Western, and D. Pasini, “Hydro-responsive curling of the resurrection plant Selaginella lepidophylla,” *Sci. Rep.*, vol. 5, p. 8064, 2015, doi: 10.1038/srep08064.

[67] V. Brulé, “Investigating Water Responsive Actuation using the Resurrection Plant

Selaginella lepidophylla as a Model System," McGill University, Montréal, 2018.

[68] A. Le Duigou and M. Castro, "Evaluation of force generation mechanisms in natural, passive hydraulic actuators," *Sci. Rep.*, vol. 6, no. January, pp. 1–9, 2016, doi: 10.1038/srep18105.

[69] J. Ha, S. M. Choi, B. Shin, M. Lee, W. Jung, and H. Y. Kim, "Hygroresponsive coiling of seed awns and soft actuators," *Extrem. Mech. Lett.*, vol. 38, 2020, doi: 10.1016/j.eml.2020.100746.

[70] H. Quan, A. Pirosa, W. Yang, R. O. Ritchie, and M. A. Meyers, "Hydration-induced reversible deformation of the pine cone," *Acta Biomater.*, vol. 128, pp. 370–383, 2021, doi: 10.1016/j.actbio.2021.04.049.

[71] I. Burgert and P. Fratzl, "Actuation systems in Plants as prototypes for bioinspired devices," *Philos. Trans. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci.*, vol. 367, no. 1893, pp. 1541–1557, Apr. 2009, doi: 10.1098/rsta.2009.0003.

[72] C. A. M. La, M. Chiara, S. Bonfanti, S. Milan, and C. Ferrario, "Metamaterial architecture from a self-shaping carnivorous plant," no. 13, 2019, doi: 10.1073/pnas.1904984116.

[73] D. Luo *et al.*, "Autonomous Self-Drilling Seed Carriers for Aerial Seeding with Superior Success Rates," 2022, doi: doi.org/10.21203/rs.3.rs-1341317/v1 License:

[74] T. Perkitny, "Uber den EinfluB mechanischer Hindernisse auf die Quellung und Schwindung von Kiefernholz," vol. 4, no. 1932, 1938, doi: doi.org/10.1007/BF02608799.

[75] D. Narayanamurti and R. C. Gupta, "Swelling Pressure of Wood," *J. Japan Soc. Test. Mater.*, vol. 10, no. 92, pp. 434–438, 1961, doi: 10.2472/jsms1952.10.434.

[76] R. D. Deegan, "Finessing the fracture energy barrier in ballistic seed dispersal," *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, vol. 109, no. 14, pp. 5166–5169, 2012, doi: 10.1073/pnas.1119737109.

[77] X. Kong *et al.*, "Drosera-Inspired Dual-Actuating Double-Layer Hydrogel Actuator," *Macromol. Rapid Commun.*, vol. 42, no. 21, pp. 1–6, 2021, doi: 10.1002/marc.202100416.

[78] W. Garat, N. Le Moigne, S. Corn, J. Beaugrand, and A. Bergeret, "Swelling of natural fibre bundles under hygro- and hydrothermal conditions: Determination of hydric expansion coefficients by automated laser scanning," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 131, no. December 2019, 2020, doi: 10.1016/j.compositesa.2020.105803.

[79] S. Poppinga, T. Haushahn, M. Warnke, T. Masselter, and T. Speck, "Sporangium exposure and spore release in the peruvian maidenhair fern (Adiantum peruvianum, Pteridaceae)," *PLoS One*, vol. 10, no. 10, pp. 1–20, 2015, doi: 10.1371/journal.pone.0138495.

[80] R. Hedrich and E. Neher, “Venus Flytrap: How an Excitable, Carnivorous Plant Works,” *Trends Plant Sci.*, vol. 23, no. 3, pp. 220–234, 2018, doi: 10.1016/j.tplants.2017.12.004.

[81] A. N. Fernandes *et al.*, “Nanostructure of cellulose microfibrils in spruce wood,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, vol. 108, no. 47, 2011, doi: 10.1073/pnas.1108942108.

[82] “workshopcompanion.” [Online]. Available: https://workshopcompanion.com/know-how/design/nature-of-wood/wood-movement.html

[83] M. Caurie, “Bound water: Its definition, estimation and characteristics,” *Int. J. Food Sci. Technol.*, vol. 46, no. 5, pp. 930–934, 2011, doi: 10.1111/j.1365-2621.2011.02581.x.

[84] M. I. H. Khan, R. M. Wellard, S. A. Nagy, M. U. H. Joardder, and M. A. Karim, “Experimental investigation of bound and free water transport process during drying of hygroscopic food material,” *Int. J. Therm. Sci.*, vol. 117, pp. 266–273, 2017, doi: 10.1016/j.ijthermalsci.2017.04.006.

[85] K. Nakamura, T. Hatakeyama, and H. Hatakeyama, “Studies on Bound Water of Cellulose by Differential Scanning Calorimetry,” *Text. Res. J.*, vol. 51, no. 9, pp. 607–613, 1981, doi: 10.1177/004051758105100909.

[86] W. Simpson, “Sorption Theories Applied To Wood,” *Wood Fiber*, vol. 12, no. 3, pp. 183–195, 1980.

[87] M. Fredriksson and E. E. Thybring, “Scanning or desorption isotherms? Characterising sorption hysteresis of wood,” *Cellulose*, vol. 25, no. 8, pp. 4477–4485, 2018, doi: 10.1007/s10570-018-1898-9.

[88] I. Langmuir, “The role of attractive and repulsive forces in the formation of tactoids, thixotropic gels, protein crystals and coacervates,” *J. Chem. Phys.*, vol. 6, no. 12, pp. 873–896, 1938, doi: 10.1063/1.1750183.

[89] W. Henry, “Experiments on the quantity of gases absorbed by water,” 1802.

[90] C. Hill, A. Norton, and G. Newman, “The Water Vapor Sorption Behavior of Natural Fibers,” *Wiley Intersci.*, vol. 112, pp. 1524–1537, 2009, doi: 10.1002/app.

[91] M. Babiak and J. Kúdela, “A contribution to the definition of the fiber saturation point,” *Wood Sci. Technol.*, vol. 29, no. 3, pp. 217–226, 1995, doi: 10.1007/BF00204589.

[92] W. J. Cousins, “Young’s modulus of hemicellulose as related to moisture content,” *Wood Sci. Technol.*, vol. 12, no. 3, pp. 161–167, 1978, doi: 10.1007/BF00372862.

[93] E. L. Lindh and L. Salmén, “Surface accessibility of cellulose fibrils studied by hydrogen–deuterium exchange with water,” *Cellulose*, vol. 24, no. 1, pp. 21–33, 2017, doi: 10.1007/s10570-016-1122-8.

[94] E. L. Lindh, M. Bergenstråhle-Wohlert, C. Terenzi, L. Salmén, and I. Furó, “Non-

exchanging hydroxyl groups on the surface of cellulose fibrils: The role of interaction with water," *Carbohydr. Res.*, vol. 434, pp. 136–142, 2016, doi: 10.1016/j.carres.2016.09.006.

[95] T. N. Kenkyu, "The assignment of IR absorption bands due to free hydroxyl groups in cellulose," *Cellulose*, vol. 4, pp. 281–292, 1997.

[96] C. Verlhac, J. Dedier, and H. Chanzy, "Availability of surface hydroxyl groups in valonia and bacterial cellulose," *J. Polym. Sci. Part A Polym. Chem.*, vol. 28, no. 5, pp. 1171–1177, 1990, doi: 10.1002/pola.1990.080280517.

[97] M. Wada, Y. Nishiyama, H. Chanzy, T. Forsyth, and P. Langan, "The structure of celluloses. Advances in X-ray," *Analysis*, vol. 51, p. 138, 2008, doi: 10.1154/1.2912442.

[98] H. Kargarzadeh *et al.*, *Advances in cellulose nanomaterials*, vol. 25, no. 4. Springer Netherlands, 2018. doi: 10.1007/s10570-018-1723-5.

[99] A. C. O'sullvian, "Cellulose: the structure slowly unravels," *Cellulose*, vol. 4, no. 3, pp. 173–207, 1997, [Online]. Available: http://link.springer.com/article/10.1023/A:1018431705579

[100] J. F. Matthews *et al.*, "Computer simulation studies of microcrystalline cellulose Iβ," *Carbohydr. Res.*, vol. 341, no. 1, pp. 138–152, 2006, doi: 10.1016/j.carres.2005.09.028.

[101] C. Hill, M. Altgen, P. Penttilä, and L. Rautkari, *Review: interaction of water vapour with wood and other hygro-responsive materials*, vol. 59, no. 18. 2024. doi: 10.1007/s10853-024-09636-y.

[102] Y. R. J. Eichhorn, "The young's modulus of a microcrystalline cellulose," *Cellulose*, vol. 8, no. 3, pp. 197–207, 2001, doi: 10.1023/A:1013181804540.

[103] S. J. Eichhorn *et al.*, *Review: Current international research into cellulose nanofibres and nanocomposites*, vol. 45, no. 1. 2010. doi: 10.1007/s10853-009-3874-0.

[104] S. J. Eichhorn, "Cellulose nanowhiskers: Promising materials for advanced applications," *Soft Matter*, vol. 7, no. 2, pp. 303–315, 2011, doi: 10.1039/c0sm00142b.

[105] T. Huber, J. Müssig, O. Curnow, S. Pang, S. Bickerton, and M. P. Staiger, "A critical review of all-cellulose composites," *J. Mater. Sci.*, vol. 47, no. 3, pp. 1171–1186, 2012, doi: 10.1007/s10853-011-5774-3.

[106] A. J. Benítez and A. Walther, "Cellulose nanofibril nanopapers and bioinspired nanocomposites: A review to understand the mechanical property space," *J. Mater. Chem. A*, vol. 5, no. 31, pp. 16003–16024, 2017, doi: 10.1039/c7ta02006f.

[107] T. C. Mokhena, E. R. Sadiku, M. J. Mochane, S. S. Ray, M. J. John, and A. Mtibe, "Mechanical properties of cellulose nanofibril papers and their bionanocomposites: A review," *Carbohydr. Polym.*, vol. 273, no. May, p. 118507, 2021, doi:

10.1016/j.carbpol.2021.118507.

[108] L. Salmén, J. S. Stevanic, C. Holmqvist, and S. Yu, “Moisture induced straining of the cellulosic microfibril,” *Cellulose*, vol. 28, no. 6, pp. 3347–3357, 2021, doi: 10.1007/s10570-021-03712-1.

[109] S. Zabler, O. Paris, I. Burgert, and P. Fratzl, “Moisture changes in the plant cell wall force cellulose crystallites to deform,” *J. Struct. Biol.*, vol. 171, no. 2, pp. 133–141, 2010, doi: 10.1016/j.jsb.2010.04.013.

[110] O. Faruk, A. K. Bledzki, H. P. Fink, and M. Sain, “Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000-2010,” *Prog. Polym. Sci.*, vol. 37, no. 11, pp. 1552–1596, 2012, doi: 10.1016/j.progpolymsci.2012.04.003.

[111] A. Bourmaud, J. Beaugrand, D. U. Shah, V. Placet, and C. Baley, “Towards the design of high-performance plant fibre composites,” *Prog. Mater. Sci.*, vol. 97, no. May, pp. 347–408, 2018, doi: 10.1016/j.pmatsci.2018.05.005.

[112] E. Marklund and J. Varna, “Modeling the hygroexpansion of aligned wood fiber composites,” *Compos. Sci. Technol.*, vol. 69, no. 7–8, pp. 1108–1114, 2009, doi: 10.1016/j.compscitech.2009.02.006.

[113] W. W. Barkas, *The swelling of wood under stress*. Forest Products Research Laboratory, Princes Risborough, Aylesbury, Bucks., UK, 1949. [Online]. Available: https://www.cabidigitallibrary.org/doi/full/10.5555/19490601860

[114] A. Patera, D. Derome, M. Griffa, and J. Carmeliet, “Hysteresis in swelling and in sorption of wood tissue,” *J. Struct. Biol.*, vol. 182, no. 3, pp. 226–234, 2013, doi: 10.1016/j.jsb.2013.03.003.

[115] V. Placet, O. Cisse, and M. L. Boubakar, “Influence of environmental relative humidity on the tensile and rotational behaviour of hemp fibres,” *J. Mater. Sci.*, vol. 47, no. 7, pp. 3435–3446, 2012, doi: 10.1007/s10853-011-6191-3.

[116] B. Van Voorn, H. H. G. Smit, R. J. Sinke, and B. De Klerk, “Natural fibre reinforced sheet moulding compound,” *Compos. - Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 32, no. 9, pp. 1271–1279, 2001, doi: 10.1016/S1359-835X(01)00085-9.

[117] V. Placet, F. Trivaudey, V. Guicheret-Retel, and M. L. Boubakar, “Modeling the influence of environmental relative humidity on the tensile properties of unitarian hemp fibres,” *ECCM 2012 - Compos. Venice, Proc. 15th Eur. Conf. Compos. Mater.*, no. June, 2012.

[118] A. Stamboulis, C. A. Baillie, and T. Peijs, “Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers,” *Compos. - Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 32, no. 8, pp. 1105–1115, 2001, doi: 10.1016/S1359-835X(01)00032-X.

[119] A. Thuault, S. Eve, D. Blond, J. Bréard, and M. Gomina, “Effects of the hygrothermal environment on the mechanical properties of flax fibres,” *J. Compos. Mater.*, vol. 48,

no. 14, pp. 1699–1707, 2014, doi: 10.1177/0021998313490217.

[120] C. Baley, “Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase,” vol. 33, pp. 939–948, 2002.

[121] V. Placet, O. Cissé, and M. Lamine Boubakar, “Nonlinear tensile behaviour of elementary hemp fibres. Part I: Investigation of the possible origins using repeated progressive loading with in situ microscopic observations,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 56, pp. 319–327, 2014, doi: 10.1016/j.compositesa.2012.11.019.

[122] M. F. Ashby, *Materials and the Environment : Eco-informed Material Choice*. 2013. doi: doi.org/10.1016/C2010-0-66554-0.

[123] T. Fruleux, M. Castro, P. Sauleau, R. Matsuzaki, and A. Le Duigou, “Matrix stiffness: A key parameter to control hydro-elasticity and morphing of 3D printed biocomposite,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 156, no. November 2021, 2022, doi: 10.1016/j.compositesa.2022.106882.

[124] J. P. Correa, M.-N. Juan M, and M. A. Hidalgo-Salazar, “Carbon footprint considerations for biocomposite materials for sustainable products: A review,” *J. Clean. Prod.*, vol. 208, no. 1, pp. 785–794, 2019, doi: doi.org/10.1016/j.jclepro.2018.10.099.

[125] A. Le Duigou, J. Beaugrand, F. Scarpa, and M. Castro, “Natural fibers actuators for smart bio-inspired hygromorph biocomposites,” *ECCM 2018 - 18th Eur. Conf. Compos. Mater.*, pp. 1–22, 2020.

[126] S. Réquilé, A. Le Duigou, A. Bourmaud, and C. Baley, “Deeper insights into the moisture-induced hygroscopic and mechanical properties of hemp reinforced biocomposites,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 123, no. May, pp. 278–285, 2019, doi: 10.1016/j.compositesa.2019.05.006.

[127] D. Stoof and K. Pickering, “Sustainable composite fused deposition modelling filament using recycled pre-consumer polypropylene,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 135, no. June 2017, pp. 110–118, 2018, doi: 10.1016/j.compositesb.2017.10.005.

[128] T. N. Tran *et al.*, “Cocoa Shell Waste Biofilaments for 3D Printing Applications,” *Macromol. Mater. Eng.*, vol. 302, no. 11, pp. 1–10, 2017, doi: 10.1002/mame.201700219.

[129] D. Filgueira, S. Holmen, J. K. Melbø, D. Moldes, A. T. Echtermeyer, and G. Chinga-Carrasco, “3D printable filaments made of biobased polyethylene biocomposites,” *Polymers (Basel).*, vol. 10, no. 3, 2018, doi: 10.3390/polym10030314.

[130] B. Coppola, E. Garofalo, L. Di Maio, P. Scarfato, and L. Incarnato, “Investigation on the use of PLA/hemp composites for the fused deposition modelling (FDM) 3D printing,” *AIP Conf. Proc.*, vol. 1981, pp. 1–5, 2018, doi: 10.1063/1.5045948.

[131] M. Milosevic, D. Stoof, and K. L. Pickering, “Characterizing the mechanical properties of

fused deposition modelling natural fiber recycled polypropylene composites," *J. Compos. Sci.*, vol. 1, no. 1, 2017, doi: 10.3390/jcs1010007.

[132] D. Depuydt *et al.*, "Production and characterization of bamboo and flax fiber reinforced polylactic acid filaments for fused deposition modeling (FDM)," *Polym. Compos.*, vol. 40, no. 5, pp. 1951–1963, 2019, doi: 10.1002/pc.24971.

[133] X. Xiao, V. S. Chevali, P. Song, D. He, and * Hao, Wang a, b, "Polylactide/hemp hurd biocomposites as sustainable 3D printing feedstock," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 184, 2019, doi: doi.org/10.1016/j.compscitech.2019.107887.

[134] J. Šafka, M. Ackermann, J. Bobek, M. Seidl, J. Habr, and L. Běhálek, "Use of composite materials for FDM 3D print technology," *Mater. Sci. Forum*, vol. 862, pp. 174–181, 2016, doi: 10.4028/www.scientific.net/MSF.862.174.

[135] F. Daver, K. P. M. Lee, M. Brandt, and R. Shanks, "Cork–PLA composite filaments for fused deposition modelling," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 168, no. October, pp. 230–237, 2018, doi: 10.1016/j.compscitech.2018.10.008.

[136] M. A. Pop *et al.*, "Structural changes during 3D printing of bioderived and synthetic thermoplastic materials," *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 136, no. 17, pp. 1–11, 2019, doi: 10.1002/app.47382.

[137] J. I. Montalvo Navarrete, M. A. Hidalgo-Salazar, E. Escobar Nunez, and A. J. Rojas Arciniegas, "Thermal and mechanical behavior of biocomposites using additive manufacturing," *Int. J. Interact. Des. Manuf.*, vol. 12, no. 2, pp. 449–458, 2018, doi: 10.1007/s12008-017-0411-2.

[138] H. Liu, H. He, X. Peng, B. Huang, and J. Li, "Three-dimensional printing of poly(lactic acid) bio-based composites with sugarcane bagasse fiber: Effect of printing orientation on tensile performance," *Polym. Adv. Technol.*, vol. 30, no. 4, pp. 910–922, 2019, doi: 10.1002/pat.4524.

[139] N. E. Zander, J. H. Park, Z. R. Boelter, and M. A. Gillan, "Recycled Cellulose Polypropylene Composite Feedstocks for Material Extrusion Additive Manufacturing," *ACS Omega*, vol. 4, no. 9, pp. 13879–13888, 2019, doi: 10.1021/acsomega.9b01564.

[140] J. Girdis, L. Gaudion, G. Proust, S. Löschke, and A. Dong, "Rethinking Timber: Investigation into the Use of Waste Macadamia Nut Shells for Additive Manufacturing," *Jom*, vol. 69, no. 3, pp. 575–579, 2017, doi: 10.1007/s11837-016-2213-6.

[141] M. A. Osman and M. R. A. Atia, "Investigation of ABS-rice straw composite feedstock filament for FDM," *Rapid Prototyp. J.*, vol. 24, no. 6, pp. 1067–1075, 2018, doi: 10.1108/RPJ-11-2017-0242.

[142] A. Le Duigou, D. Correa, M. Ueda, R. Matsuzaki, and M. Castro, "A review of 3D and 4D printing of natural fibre biocomposites," *Mater. Des.*, vol. 194, p. 108911, 2020, doi: 10.1016/j.matdes.2020.108911.

[143] A. Le Duigou, M. Castro, R. Bevan, and N. Martin, “3D printing of wood fibre biocomposites: From mechanical to actuation functionality,” *Mater. Des.*, vol. 96, pp. 106–114, 2016, doi: 10.1016/j.matdes.2016.02.018.

[144] G. Coroller *et al.*, “Effect of flax fibres individualisation on tensile failure of flax/epoxy unidirectional composite,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 51, pp. 62–70, 2013, doi: 10.1016/j.compositesa.2013.03.018.

[145] C. Badouard, F. Traon, C. Denoual, C. Mayer-Laigle, G. Paës, and A. Bourmaud, “Exploring mechanical properties of fully compostable flax reinforced composite filaments for 3D printing applications,” *Ind. Crops Prod.*, vol. 135, no. May, pp. 246–250, 2019, doi: 10.1016/j.indcrop.2019.04.049.

[146] A. Bourmaud, A. Le Duigou, and C. Baley, *Mechanical performance of flax-based biocomposites*, Fourteenth. Elsevier Ltd., 2015. doi: 10.1016/B978-1-78242-373-7.00013-5.

[147] D. Stoof, K. Pickering, and Y. Zhang, “Fused deposition modelling of natural fibre/polylactic acid composites,” *J. Compos. Sci.*, vol. 1, no. 1, 2017, doi: 10.3390/jcs1010008.

[148] H. Bi, Z. Ren, R. Guo, M. Xu, and Y. Song, “Fabrication of flexible wood flour/thermoplastic polyurethane elastomer composites using fused deposition molding,” *Ind. Crops Prod.*, vol. 122, no. May, pp. 76–84, 2018, doi: 10.1016/j.indcrop.2018.05.059.

[149] A. R. Torrado Perez, D. A. Roberson, and R. B. Wicker, “Fracture surface analysis of 3D-printed tensile specimens of novel ABS-based materials,” *J. Fail. Anal. Prev.*, vol. 14, no. 3, pp. 343–353, 2014, doi: 10.1007/s11668-014-9803-9.

[150] A. Le Duigou, G. Chabaud, R. Matsuzaki, and M. Castro, “Tailoring the mechanical properties of 3D-printed continuous flax/PLA biocomposites by controlling the slicing parameters,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 203, Dec. 2020, doi: 10.1016/j.compositesb.2020.108474.

[151] C. Humeau, P. Davies, and F. Jacquemin, “An experimental study of water diffusion in carbon/epoxy composites under static tensile stress,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 107, pp. 94–104, 2018, doi: 10.1016/j.compositesa.2017.12.016.

[152] M. Arhant, P. Y. Le Gac, M. Le Gall, C. Burtin, C. Briançon, and P. Davies, “Effect of sea water and humidity on the tensile and compressive properties of carbon-polyamide 6 laminates,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 91, pp. 250–261, 2016, doi: 10.1016/j.compositesa.2016.10.012.

[153] M. Péron, A. Célino, M. Castro, F. Jacquemin, and A. Le Duigou, “Study of hygroscopic stresses in asymmetric biocomposite laminates,” *Compos. Sci. Technol.*, vol. 169, pp. 7–15, 2019, doi: 10.1016/j.compscitech.2018.10.027.

[154] A. Le Duigou, P. Davies, and C. Baley, “Seawater ageing of flax/poly(lactic acid) biocomposites,” *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 94, no. 7, pp. 1151–1162, 2009, doi: 10.1016/j.polymdegradstab.2009.03.025.

[155] H. Chen, M. Miao, and X. Ding, “Influence of moisture absorption on the interfacial strength of bamboo/vinyl ester composites,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 40, no. 12, pp. 2013–2019, 2009, doi: 10.1016/j.compositesa.2009.09.003.

[156] S. Réquilé, A. Le Duigou, A. Bourmaud, and C. Baley, “Interfacial properties of hemp fiber/epoxy system measured by microdroplet test: Effect of relative humidity,” *Compos. Sci. Technol.*, vol. 181, no. April, p. 107694, 2019, doi: 10.1016/j.compscitech.2019.107694.

[157] V. Popineau, “Flax fibre-reinforced thermoplastic biocomposites for nautical applications: manufacturing under vacuum and behaviour in maritime environments,” 2021.

[158] B. F. Y. Z.N. Azwa and W. K. , A.C. Manalo, “A review on the degradability of polymeric composites based on natural fibres,” *Mater. Des.*, vol. 47, no. 424–442, 2013, doi: doi.org/10.1016/j.matdes.2012.11.025.

[159] A. Chilali, M. Assarar, W. Zouari, H. Kebir, and R. Ayad, “Analysis of the hydro-mechanical behaviour of flax fibre-reinforced composites: Assessment of hygroscopic expansion and its impact on internal stress,” *Compos. Struct.*, vol. 206, no. July, pp. 177–184, 2018, doi: 10.1016/j.compstruct.2018.08.037.

[160] T. Cheng *et al.*, “Bio-Inspired Motion Mechanisms: Computational Design and Material Programming of Self-Adjusting 4D-Printed Wearable Systems,” *Adv. Sci.*, vol. 8, no. 13, pp. 1–12, 2021, doi: 10.1002/advs.202100411.

[161] Y. W. Kim, D. Y. Kim, and J. Y. Sun, “Fracture Toughness and Blocking Force of Temperature-Sensitive PolyNIPAAm and Alginate Hybrid Gels,” *Gels*, vol. 8, no. 5, May 2022, doi: 10.3390/gels8050324.

[162] M. Josselin, N. Di Cesare, M. Castro, T. Colinart, F. Scarpa, and A. Le Duigou, “Hygro-thermal coupling on 4D-printed biocomposites as key for meteosensitive shape-changing materials,” *Virtual Phys. Prototyp.*, vol. 19, no. 1, pp. 1–13, 2024, doi: 10.1080/17452759.2024.2335233.

[163] M. M. Lu, C. A. Fuentes, and A. W. Van Vuure, “Moisture sorption and swelling of flax fibre and flax fibre composites,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 231, no. October 2021, 2022, doi: 10.1016/j.compositesb.2021.109538.

[164] W. R. K. Illeperuma, J. Y. Sun, Z. Suo, and J. J. Vlassak, “Force and stroke of a hydrogel actuator,” *Soft Matter*, vol. 9, no. 35, pp. 8504–8511, 2013, doi: 10.1039/c3sm51617b.

[165] X. Wang, M. Jiang, Z. Zhou, J. Gou, and D. Hui, “3D printing of polymer matrix composites: A review and prospective,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 110, pp. 442–458,

2017, doi: 10.1016/j.compositesb.2016.11.034.

[166] R. Bogue, “3D printing: The dawn of a new era in manufacturing?,” *Assem. Autom.*, vol. 33, no. 4, pp. 307–311, 2013, doi: 10.1108/AA-06-2013-055.

[167] M. Vitale, M. Cotteleer, and J. Holdowsky, “An Overview of Additive Manufacturing, Defense Acquisition University, November–December,” no. December, pp. 6–13, 2016, [Online]. Available: http://dau.dodlive.mil/2016/11/04/an-overview-of-additive-manufacturing/

[168] J. R. C. Dizon, A. H. Espera, Q. Chen, and R. C. Advincula, “Mechanical characterization of 3D-printed polymers,” *Addit. Manuf.*, vol. 20, pp. 44–67, 2018, doi: 10.1016/j.addma.2017.12.002.

[169] T. D. Ngo, A. Kashani, G. Imbalzano, K. T. Q. Nguyen, and D. Hui, “Additive manufacturing (3D printing): A review of materials, methods, applications and challenges,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 143, no. December 2017, pp. 172–196, 2018, doi: 10.1016/j.compositesb.2018.02.012.

[170] A. Mitchell, U. Lafont, M. Hołyńska, and C. Semprimoschnig, “Additive manufacturing — A review of 4D printing and future applications,” *Addit. Manuf.*, vol. 24, no. October, pp. 606–626, 2018, doi: 10.1016/j.addma.2018.10.038.

[171] L. G. Blok, M. L. Longana, H. Yu, and B. K. S. Woods, “An investigation into 3D printing of fibre reinforced thermoplastic composites,” *Addit. Manuf.*, vol. 22, no. November 2017, pp. 176–186, 2018, doi: 10.1016/j.addma.2018.04.039.

[172] B. H. Lee, H. J. Kim, and W. R. Yu, “Fabrication of long and discontinuous natural fiber reinforced polypropylene biocomposites and their mechanical properties,” *Fibers Polym.*, vol. 10, no. 1, pp. 83–90, 2009, doi: 10.1007/s12221-009-0083-z.

[173] A. Le Duigou, A. Barbé, E. Guillou, and M. Castro, “3D printing of continuous flax fibre reinforced biocomposites for structural applications,” *Mater. Des.*, vol. 180, p. 107884, 2019, doi: 10.1016/j.matdes.2019.107884.

[174] A. Le Duigou *et al.*, “Thermomechanical performance of continuous carbon fibre composite materials produced by a modified 3D printer,” *Heliyon*, vol. 9, no. 3, p. e13581, 2023, doi: 10.1016/j.heliyon.2023.e13581.

[175] R. Matsuzaki *et al.*, “Three-dimensional printing of continuous-fiber composites by in-nozzle impregnation,” *Sci. Rep.*, vol. 6, no. February, pp. 1–7, 2016, doi: 10.1038/srep23058.

[176] S. Terekhina, E. b S, T. T, S. I, G. L, and H. M.L., “In-nozzle impregnation of continuous textile flax fiber/polyamide 6 composite during FFF process,” *Compos. Part A*, vol. 153, 2022, doi: doi.org/10.1016/j.compositesa.2021.106725.

[177] J. Kim, J. W. Kim, H. C. Kim, L. Zhai, H. U. Ko, and R. M. Muthoka, “Review of Soft

Actuator Materials," *Int. J. Precis. Eng. Manuf.*, vol. 20, no. 12, pp. 2221–2241, 2019, doi: 10.1007/s12541-019-00255-1.

[178] Z. Han *et al.*, "Dual pH-Responsive Hydrogel Actuator for Lipophilic Drug Delivery," *ACS Appl. Mater. Interfaces*, vol. 12, no. 10, pp. 12010–12017, 2020, doi: 10.1021/acsami.9b21713.

[179] Z. Yang and L. Zhang, "Magnetic Actuation Systems for Miniature Robots: A Review," *Adv. Intell. Syst.*, vol. 2, no. 9, 2020, doi: 10.1002/aisy.202000082.

[180] X. Shen, B. Jia, H. Zhao, X. Yang, and Z. Liu, "Study on 3D printing process of continuous carbon fiber reinforced shape memory polymer composites," *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, vol. 563, no. 2, 2019, doi: 10.1088/1757-899X/563/2/022029.

[181] H. Dou *et al.*, "Effect of process parameters on tensile mechanical properties of 3D printing continuous carbon fiber-reinforced PLA composites," *Materials (Basel).*, vol. 13, no. 17, 2020, doi: 10.3390/ma13173850.

[182] Q. Ding, X. Li, D. Zhang, G. Zhao, and Z. Sun, "Anisotropy of poly(lactic acid)/carbon fiber composites prepared by fused deposition modeling," *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 137, no. 23, pp. 1–11, 2020, doi: 10.1002/app.48786.

[183] P. P. Parlevliet, H. E. N. Bersee, and A. Beukers, "Residual stresses in thermoplastic composites-A study of the literature-Part I: Formation of residual stresses," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 37, no. 11, pp. 1847–1857, 2006, doi: 10.1016/j.compositesa.2005.12.025.

[184] A. W. Riggins and M. D. Dadmun, "Controlling residual stress in material extrusion 3D printing through material formulation," *Addit. Manuf.*, vol. 73, no. June, p. 103678, 2023, doi: 10.1016/j.addma.2023.103678.

[185] T. Van Manen, S. Janbaz, and A. A. Zadpoor, "Programming 2D/3D shape-shifting with hobbyist 3D printers," *Mater. Horizons*, vol. 4, no. 6, pp. 1064–1069, 2017, doi: 10.1039/c7mh00269f.

[186] F. Cerbe, D. Mahlstedt, M. Sinapius, C. Hühne, and M. Böl, "Relationship between programming stress and residual strain in FDM 4D printing," *Prog. Addit. Manuf.*, vol. 9, no. 1, pp. 123–132, 2024, doi: 10.1007/s40964-023-00477-w.

[187] M. D. Monzón *et al.*, "4D printing: processability and measurement of recovery force in shape memory polymers," *Int. J. Adv. Manuf. Technol.*, vol. 89, pp. 1827–1836, 2017, doi: doi.org/10.1007/s00170-016-9233-9.

[188] M. Josselin, M. Castro, N. Di Cesare, F. Scarpa, and A. Le Duigou, "Sustainable 4D Printed Meta Biocomposite Materials for Programmable Structural Shape Changing," vol. 2418656, pp. 1–14, 2025, doi: 10.1002/adma.202418656.

[189] A. Holstov, B. Bridgens, and G. Farmer, "Hygromorphic materials for sustainable

responsive architecture," *Constr. Build. Mater.*, vol. 98, pp. 570–582, 2015, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2015.08.136.

[190] J. Liu *et al.*, "Dual-Gel 4D Printing of Bioinspired Tubes," *ACS Appl. Mater. Interfaces*, vol. 11, no. 8, pp. 8492–8498, Feb. 2019, doi: 10.1021/acsami.8b17218.

[191] G. M. Spinks, "Advanced Actuator Materials Powered by Biomimetic Helical Fiber Topologies," *Adv. Mater.*, vol. 32, no. 18, pp. 1–13, 2020, doi: 10.1002/adma.201904093.

[192] R. C. Byxbee and D. R. Lott, "Passive solar array orientation system/thermal heliotrope/Final report," 1969.

[193] C. . Alban and C. . Perry, "Maximum-Work Bimetals," *Mach. Des. Pent. Publ.*, pp. 145–148, 1959.

[194] Chace. M, "Thermostatic Bimetal," 1938.

[195] N. Najafi, M. C. Heuzey, P. Carreau, and D. Therriault, "Quiescent and shear-induced crystallization of linear and branched polylactides," *Rheol. Acta*, vol. 54, no. 9–10, pp. 831–845, 2015, doi: 10.1007/s00397-015-0874-7.

[196] A. Vedernikov, A. Safonov, F. Tucci, P. Carlone, and I. Akhatov, "Pultruded materials and structures: A review," *J. Compos. Mater.*, vol. 54, no. 26, pp. 4081–4117, 2020, doi: 10.1177/0021998320922894.

[197] B. T. Åström, "Development and application of a process model for thermoplastic pultrusion," *Compos. Manuf.*, vol. 3, no. 3, pp. 189–197, 1992, doi: 10.1016/0956-7143(92)90082-6.

[198] B. J. Devlin, M. D. Williams, J. A. Quinn, and A. G. Gibson, "Pultrusion of unidirectional composites with thermoplastic matrices," *Compos. Manuf.*, vol. 2, no. 3–4, pp. 203–207, 1991, doi: 10.1016/0956-7143(91)90141-3.

[199] K. Charlet and A. Beakou, "Mechanical properties of interfaces within a flax bundle – Part I: Experimental analysis," *Int. J. Adhes. Adhes.*, vol. 31, pp. 875–881, 2011, doi: doi:10.1016/j.ijadhadh.2011.08.008.

[200] AFNOR, "DIN 53835-4," 1981.

[201] V. Placet, P. Perré, and A. Bouali, "The possible role of microfibril angle of Hemp fibre during fatigue tests and its determination using Wide-Angle X-ray diffraction," *Matériaux Tech.*, vol. 99, pp. 683–689, 2011, doi: doi.org/10.1051/mattech/2011120.

[202] A. Lefeuvre, A. Bourmaud, C. Morvana, and C. Baley, "Elementary flax fibre tensile properties: Correlation between stress–strain behaviour and fibre composition," *Ind. Crops Prod.*, vol. 52, pp. 762–769, 2014, doi: doi.org/10.1016/j.indcrop.2013.11.043.

[203] E. Huguet, S. Corn, N. Le Moigne, and P. Ienny, “Single-fibre tensile testing of plant fibres: Set-up compliance as a key parameter for reliable assessment of their mechanical behaviour,” *Ind. Crops Prod.*, vol. 222, 2024, doi: 10.1016/j.indcrop.2024.119762.

[204] A. Gleadall, “FullControl GCode Designer: Open-source software for unconstrained design in additive manufacturing,” *Addit. Manuf.*, vol. 46, pp. 1–25, 2021, doi: 10.1016/j.addma.2021.102109.

[205] T. Fruleux, D. Correa, M. Castro, S. Poppinga, K. Wang, and A. Le Duigou, “Controlling the Water Diffusion Inside Smart 4D-Printed HBC by Functional Channels,” *Adv. Funct. Mater.*, vol. 34, no. 4, pp. 1–10, 2024, doi: 10.1002/adfm.202310122.

[206] B. S. H. Royce, “Differential Thermal Expansion in Microelectronic Systems,” *IEEE Trans. Components, Hybrids, Manuf. Technol.*, vol. 11, no. 4, pp. 454–463, 1988, doi: 10.1109/33.16683.

[207] Kanthal, “Kanthal Thermostatic Bimetal Handbook,” p. 136, 2008.

[208] Y. Wang and X. Li, “4D-printed bi-material composite laminate for manufacturing reversible shape-change structures,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 219, no. April, p. 108918, 2021, doi: 10.1016/j.compositesb.2021.108918.

[209] B. Y. S. Timoshenko, “Analysis of bi-metal thermostats,” *J. Opt. Soc. Am. 11*, no. l, pp. 233–255, 1925.

[210] Q. Wang, X. Tian, L. Huang, D. Li, A. V. Malakhov, and A. N. Polilov, “Programmable morphing composites with embedded continuous fibers by 4D printing,” *Mater. Des.*, vol. 155, pp. 404–413, 2018, doi: 10.1016/j.matdes.2018.06.027.

[211] B. Balakrisnan, A. Nacev, and E. Smela, “Design of bending multi-layer electroactive polymer actuators,” *Smart Mater. Struct.*, vol. 24, no. 4, Apr. 2015, doi: 10.1088/0964-1726/24/4/045032.

[212] A. Le Duigou, T. Fruleux, R. Matsuzaki, G. Chabaud, M. Ueda, and M. Castro, “4D printing of continuous flax-fibre based shape-changing hygromorph biocomposites: Towards sustainable metamaterials,” *Mater. Des.*, vol. 211, p. 110158, 2021, doi: 10.1016/j.matdes.2021.110158.

[213] C. De Kergariou, B. C. Kim, A. Perriman, A. Le Duigou, S. Guessasma, and F. Scarpa, “Design of 3D and 4D printed continuous fibre composites via an evolutionary algorithm and voxel-based Finite Elements: Application to natural fibre hygromorphs,” *Addit. Manuf.*, vol. 59, no. PA, p. 103144, 2022, doi: 10.1016/j.addma.2022.103144.

[214] I. Burgert, K. Frühmann, J. Keckes, P. Fratzl, and S. Stanzl-Tschegg, “Properties of chemically and mechanically isolated fibres of spruce (Picea abies [L.] Karst.). Part 2: Twisting phenomena,” *Holzforschung*, vol. 59, no. 2, pp. 247–251, 2005, doi: 10.1515/HF.2005.039.

[215] C. T. Rueden *et al.*, “ImageJ2: ImageJ for the next generation of scientific image data,” *BMC Bioinformatics*, vol. 18, no. 1, pp. 1–26, 2017, doi: 10.1186/s12859-017-1934-z.

[216] C. H. Shen and G. S. Springer, “Moisture Absorption and Desorption of Composite Materials,” *J. Compos. Mater.*, vol. 10, no. 1, pp. 2–20, 1976, doi: 10.1177/002199837601000101.

[217] A. Le Duigou and M. Castro, “Evaluation of force generation mechanisms in natural, passive hydraulic actuators,” *Sci. Rep.*, vol. 6, Jan. 2016, doi: 10.1038/srep18105.

[218] J. Kim, Y. Kang, and S. Yun, “Blocked force measurement of electro-active paper actuator by micro-balance,” *Sensors Actuators, A Phys.*, vol. 133, no. 2 SPEC. ISS., pp. 401–406, Feb. 2007, doi: 10.1016/j.sna.2006.04.019.

[219] C. E. Bakis *et al.*, “Fiber-Reinforced Polymer Composites for Construction _ State-of-the-Art Review,” *ASCE*, vol. 6, no. 2, 2002, doi: doi.org/10.1061/(ASCE)1090-0268(2002)6:2(73).

[220] S. J. P. Callens and O. K. Bergsma, “Two-matrix composites: Carbon fiber micropultrusions embedded in flexible epoxy matrices,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 114, no. May, pp. 1–12, 2018, doi: 10.1016/j.compositesa.2018.08.008.

[221] A. Passos, R. de Aguiar, H. Costa, E. Sampaio, and S. de Barros, “Adherence of geopolymer and pultruded composite substrates: influence of adhesive type and surface treatment,” *J. Adhes. Sci. Technol.*, vol. 35, no. 16, pp. 1723–1733, 2021, doi: 10.1080/01694243.2020.1859240.

[222] S. M. F. Kabir, K. Mathur, and A. F. M. Seyam, “A critical review on 3D printed continuous fiber-reinforced composites: History, mechanism, materials and properties,” *Compos. Struct.*, vol. 232, no. September 2019, p. 111476, 2020, doi: 10.1016/j.compstruct.2019.111476.

[223] K. Minchenkov, A. Vedernikov, A. Safonov, and I. Akhatov, “Thermoplastic pultrusion: A review,” *Polymers (Basel).*, vol. 13, no. 2, pp. 1–36, 2021, doi: 10.3390/polym13020180.

[224] S. Wiedmer and M. Manolesos, “An experimental study of the pultrusion of carbon fiber-polyamide 12 yarn,” *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 19, no. 1, pp. 97–112, 2006, doi: 10.1177/0892705706055448.

[225] A. Carlsson and B. Tomas Åström, “Experimental investigation of pultrusion of glass fibre reinforced polypropylene composites,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 29, no. 5–6, pp. 585–593, 1998, doi: 10.1016/S1359-835X(97)00115-2.

[226] P. Bates and I. Ekhator, “Continuous consolidation of commingled glass and polypropylene roving,” *J. Reinf. Plast. Compos.*, vol. 23, no. 13, pp. 1409–1424, 2004, doi: 10.1177/0731684404038604.

[227] C. Budiyantoro, H. S. B. Rochardjo, and G. Nugroho, “Effects of processing variables of extrusion–pultrusion method on the impregnation quality of thermoplastic composite filaments,” *Polymers (Basel).*, vol. 12, no. 12, pp. 1–24, 2020, doi: 10.3390/polym12122833.

[228] M. Talimi, *Characterization of natural fibre reinforced biodegradable composites.* 2012.

[229] L. Hans and M. Bo, “and the related performance of composites NATURAL COMPOSITES : STRENGTH , PACKING ABILITY AND MOISTURE SORPTION OF CELLULOSE FIBRES , AND THE RELATED PERFORMANCE OF COMPOSITES,” vol. 5, no. 2, pp. 22–23, 2012.

[230] L. Z. Linganiso, R. Bezerra, S. Bhat, M. John, R. Braeuning, and R. D. Anandjiwala, “Pultrusion of flax/poly(lactic acid) commingled yarns and nonwoven fabrics,” *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 27, no. 11, pp. 1553–1572, 2014, doi: 10.1177/0892705713486137.

[231] C. Baley *et al.*, “Flax / PP manufacture by automated fi bre placement (AFP),” vol. 94, pp. 207–213, 2016, doi: doi.org/10.1016/j.matdes.2016.01.011.

[232] A. Broido and M. Weinstein, “Low Temperature Isothermal Pyrolysis of Cellulose,” *Therm. Anal.*, vol. 3, pp. 285–296, 1973, doi: 10.1007/978-3-0348-5775-8_25.

[233] R. Kotilainen, “Chemical changes in wood during heating at 150-260 C,” UNIVERSITY OF JYVASKYLA, 2000.

[234] A. Memon and A. Nakai, “Mechanical Properties of Jute Spun Yarn / PLA Tubular Braided Composite by Pultrusion Molding,” vol. 34, pp. 818–829, 2013, doi: 10.1016/j.egypro.2013.06.818.

[235] C. C. M. Ma, M. S. Yn, J. L. Han, C. J. Chang, and H. D. Wu, “Pultruded fibre-reinforced furfuryl alcohol resin composites: 1. Process feasibility study C.,” *Compos. Manuf.*, vol. 6, no. 1, pp. 45–52, 1995.

[236] A. Nakai and K. Morino, “Molding condition for shortening molding time during pultrusion molding of thermoplastic composites,” *ICCM Int. Conf. Compos. Mater.*, vol. 2017-Augus, no. August, pp. 20–25, 2017.

[237] INRS, “Acide polylactique PLA,” pp. 1–4, 2023.

[238] Y. R. Kim, S. P. McCarthy, and J. P. Fanucci, “Compressibility and relaxation of fiber reinforcements during composite processing,” *Polym. Compos.*, vol. 12, no. 1, pp. 13–19, 1991, doi: 10.1002/pc.750120104.

[239] M. Evstatiev, I. Angelov, and K. Friedrich, “Structure and Properties of Microfibrillar-Reinforced Composites Based on Thermoplastic PET/LDPE Blends After Manufacturing by Means of Pultrusion,” *Society*, vol. 51, no. 7, pp. 1–10, 2006, doi: 10.1002/pen.

[240] C. Baley, Y. Perrot, F. Busnel, H. Guezenoc, and P. Davies, “Transverse tensile behaviour of unidirectional plies reinforced with flax fibres,” *Mater. Lett.*, vol. 60, no. 24, pp. 2984–2987, 2006, doi: 10.1016/j.matlet.2006.02.028.

[241] A. Le Duigou *et al.*, “A multi-scale study of the interface between natural fibres and a biopolymer,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 65, pp. 161–168, 2014, doi: 10.1016/j.compositesa.2014.06.010.

[242] A. R. Colon, D. O. Kazmer, A. M. Peterson, and J. E. Seppala, “Characterization of die-swell in thermoplastic material extrusion,” *Addit. Manuf.*, vol. 73, no. July, p. 103700, 2023, doi: 10.1016/j.addma.2023.103700.

[243] Y. R. Fanucci, J. P., Nolet, S. C., Koppernaes, C., & Kim, “Measurement of internal die pressure distributions during pultrusion of thermoplastic composites,” *Int. SAMPE Tech. Conf.*, p. (pp. 50-64)., 1990, [Online]. Available: https://ui.adsabs.harvard.edu/abs/1990sampesymp...50F/abstract

[244] J. Gril, “Modelling mechano-sorption in wood through hygro-locks and other approaches,” *Int. Symp. Wood Sci. Technol.*, 2015, [Online]. Available: https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01295470

[245] B. T. Åstroöm and R. B. Pipes, “A modeling approach to thermoplastic pultrusion. II: Verification of models,” *Polym. Compos.*, vol. 14, no. 3, pp. 184–194, 1993, doi: 10.1002/pc.750140303.

[246] M. Aslan, S. Mehmood, and M. Bo, “Effect of consolidation pressure on volumetric composition and stiffness of unidirectional flax fibre composites,” *J. Mater. Sci.*, vol. 48, pp. 3812–3824, 2013, doi: https://doi.org/10.1007/s10853-013-7182-3.

[247] W. Michaeli and D. Jürss, “Thermoplastic pull-braiding: Pultrusion of profiles with braided fibre lay-up and thermoplastic matrix system (PP),” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 27, no. 1, pp. 3–7, 1996, doi: 10.1016/1359-835X(95)00004-L.

[248] B. Shin, S. Jung, M. Choi, K. Park, and H. Y. Kim, “Plant - inspired soft actuators powered by water,” *MRS Bull.*, vol. 49, no. February, pp. 1–14, 2024, doi: 10.1557/s43577-024-00663-3.

[249] M. Rüggeberg and I. Burgert, “Bio-Inspired wooden actuators for large scale applications,” *PLoS One*, vol. 10, no. 4, Apr. 2015, doi: 10.1371/journal.pone.0120718.

[250] T. Perkitny and R. S. T. Kingston, “Review of the sufficiency of research on the swelling pressure of wood,” *Wood Sci. Technol.*, vol. 6, no. 3, pp. 215–229, 1972, doi: 10.1007/BF00351579.

[251] E. Roszyk, R. Kropaczewski, and P. Mania, “Swelling Behaviour of Bamboo (Phyllostachys pubescens),” *Forests*, vol. 15, no. 118, 2024, doi: doi.org/10.3390/f15010118.

[252] W. J. Usab, J. Hardin, and A. J. Bilanin, “Bioinspired delayed stall propulsor,” *IEEE J. Ocean. Eng.*, vol. 29, no. 3, pp. 756–765, 2004, doi: 10.1109/JOE.2004.833112.

[253] J. D. W. Madden *et al.*, “Application of polypyrrole actuators: Feasibility of variable camber foils,” *IEEE J. Ocean. Eng.*, vol. 29, no. 3, pp. 738–749, 2004, doi: 10.1109/JOE.2004.833128.

[254] A. Le Duigou and D. Correa, “4D printing of natural fiber composite,” in *Smart Materials in Additive Manufacturing, volume 1: 4D Printing Principles and Fabrication*, Elsevier, 2022, pp. 297–333. doi: 10.1016/B978-0-12-824082-3.00028-3.

[255] A. Le Duigou, S. Réquilé, J. Beaugrand, F. Scarpa, and M. Castro, “Natural fibres actuators for smart bio-inspired hygromorph biocomposites,” vol. 26, 2017, doi: DOI 10.1088/1361-665X/aa9410.

[256] A. Le Duigou and M. Castro, “Hygromorph BioComposites: Effect of fibre content and interfacial strength on the actuation performances,” *Ind. Crops Prod.*, vol. 99, pp. 142–149, 2017, doi: 10.1016/j.indcrop.2017.02.004.

[257] D. Correa and A. Menges, “3D printed hygroscopic programmable material systems,” *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, vol. 1800, no. May, pp. 24–31, 2015, doi: 10.1557/opl.2015.644.

[258] T. Cheng, D. Wood, X. Wang, P. F. Yuan, and A. Menges, “Programming material intelligence: an additive fabrication strategy for self-shaping Biohybrid components,” *Lect. Notes Comput. Sci. (including Subser. Lect. Notes Artif. Intell. Lect. Notes Bioinformatics)*, vol. 12413 LNAI, no. December, pp. 36–45, 2021, doi: 10.1007/978-3-030-64313-3_5.

[259] A. Palacios, L. Chiriatti, S. Poppinga, T. Speck, and V. Le Houérou, “Smart Bioinspired Material-Based Actuators: Current Challenges and Prospects,” *Adv. Intell. Syst.*, 2024, doi: 10.1002/aisy.202400396.

[260] M. Plötze and P. Niemz, “Porosity and pore size distribution of different wood types as determined by mercury intrusion porosimetry,” *Eur. J. Wood Wood Prod.*, vol. 69, no. 4, pp. 649–657, 2011, doi: 10.1007/s00107-010-0504-0.

[261] W. Rybarczyk and R. Ganowicz, “A theoretical description of the swelling pressure of wood,” *Wood Sci. Technol.*, vol. 8, no. 3, pp. 233–241, 1974, doi: 10.1007/BF00352027.

[262] P. Hoffmeyer and R. W. Davidson, “Mechano-sorptive creep mechanism of wood in compression and bending,” *Wood Sci. Technol.*, vol. 23, no. 3, pp. 215–227, 1989, doi: 10.1007/BF00367735.

[263] M. Zauer, J. Porath, R. Krüger, and A. Wagenführ, “Investigations into the swelling pressure of wood as a function of the anatomical direction,” *Phys. Open*, vol. 22, no. November 2024, pp. 19–22, 2025, doi: 10.1016/j.physo.2024.100244.

[264] H. Westerlind, L. Breseghello, and J. Silfwerbrand, “Design of Porous Structures in 3D Concrete Printing Using Procedural Print Patterns,” no. March, 2025.

[265] T. Fruleux, M. Castro, D. Correa, K. Wang, R. Matsuzaki, and A. Le Duigou, “Geometric limitations of 3D printed continuous flax-fiber reinforced biocomposites cellular lattice structures,” *Compos. Part C Open Access*, vol. 9, no. July, pp. 0–4, 2022, doi: 10.1016/j.jcomc.2022.100313.

[266] C. De Kergariou, A. Le Duigou, A. Perriman, and F. Scarpa, “Design space and manufacturing of programmable 4D printed continuous flax fibre polylactic acid composite hygromorphs,” *Mater. Des.*, vol. 225, p. 111472, 2023, doi: 10.1016/j.matdes.2022.111472.

[267] G. Pelliccia, F. Bianconi, M. Filippucci, and D. Correa, “Four-Dimensional Multistep Vertical Printing for Hygroresponsive Shape Change with Nonplanar Rest-State Geometries,” *3D Print. Addit. Manuf.*, Oct. 2024, doi: 10.1089/3dp.2023.0337.

[268] M. F. Pucci, P. J. Liotier, D. Seveno, C. Fuentes, A. Van Vuure, and S. Drapier, “Wetting and swelling property modifications of elementary flax fibres and their effects on the Liquid Composite Molding process,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 97, pp. 31–40, 2017, doi: 10.1016/j.compositesa.2017.02.028.

[269] C. De Kergariou, H. Saidani-Scott, A. Perriman, F. Scarpa, and A. Le Duigou, “The influence of the humidity on the mechanical properties of 3D printed continuous flax fibre reinforced poly(lactic acid) composites,” *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 155, no. September 2021, p. 106805, 2022, doi: 10.1016/j.compositesa.2022.106805.

[270] Z. Zhao *et al.*, “Actuation and locomotion driven by moisture in paper made with natural pollen,” *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.*, vol. 117, no. 16, pp. 8711–8718, 2020, doi: 10.1073/pnas.1922560117.

[271] X. Chen, L. Mahadevan, A. Driks, and O. Sahin, “Bacillus spores as building blocks for stimuli-responsive materials and nanogenerators,” *Nat. Nanotechnol.*, vol. 9, no. 2, pp. 137–141, 2014, doi: 10.1038/nnano.2013.290.

[272] N. Shinjo and G. W. Swain, “Use of a shape memory alloy for the design of an oscillatory propulsion system,” *IEEE J. Ocean. Eng.*, vol. 29, no. 3, pp. 750–755, 2004, doi: 10.1109/JOE.2004.833104.

[273] J. D. W. Madden *et al.*, “Artificial muscle technology: Physical principles and naval prospects,” *IEEE J. Ocean. Eng.*, vol. 29, no. 3, pp. 706–728, 2004, doi: 10.1109/JOE.2004.833135.

[274] M. A. Meyers, J. McKittrick, and P. Y. Chen, “Structural biological materials: Critical mechanics-materials connections,” *Science (80-.).*, vol. 339, no. 6121, pp. 773–779, 2013, doi: 10.1126/science.1220854.

[275] J. W. Paquette and K. J. Kim, “Ionomeric electroactive polymer artificial muscle for naval

applications," *IEEE J. Ocean. Eng.*, vol. 29, no. 3, pp. 729–737, 2004, doi: 10.1109/JOE.2004.833132.

[276] Y. Ma and J. Sun, "Humido- and thermo-responsive free-standing films mimicking the petals of the morning glory flower," *Chem. Mater.*, vol. 21, no. 5, pp. 898–902, 2009, doi: 10.1021/cm8031708.

[277] Y. Ma, Y. Zhang, B. Wu, W. Sun, Z. Li, and J. Sun, "Polyelectrolyte multilayer films for building energetic walking devices," *Angew. Chemie - Int. Ed.*, vol. 50, no. 28, pp. 6254–6257, 2011, doi: 10.1002/anie.201101054.

[278] R. C. P. Verpaalen, M. G. Debije, C. W. M. Bastiaansen, H. Halilović, T. A. P. Engels, and A. P. H. J. Schenning, "Programmable helical twisting in oriented humidity-responsive bilayer films generated by spray-coating of a chiral nematic liquid crystal," *J. Mater. Chem. A*, vol. 6, no. 36, pp. 17724–17729, 2018, doi: 10.1039/c8ta06984k.

[279] C. De Kergariou *et al.*, "Measure of porosity in flax fibres reinforced polylactic acid biocomposites," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 141, no. October 2020, p. 106183, 2021, doi: 10.1016/j.compositesa.2020.106183.

[280] A. Kaboorani, "Characterizing water sorption and diffusion properties of wood / plastic composites as a function of formulation design," *Constr. Build. Mater.*, vol. 136, pp. 164–172, 2017, doi: 10.1016/j.conbuildmat.2016.12.120.

[281] A. Chevallier *et al.*, "Moisture effects on the transverse compressive behaviour of single flax fibres," *Compos. Part A*, vol. 188, 2025, doi: doi.org/10.1016/j.compositesa.2024.108509.

[282] B. Zuccarello, C. Militello, and F. Bongiorno, "Influence of the anisotropy of sisal fibers on the mechanical properties of high performance unidirectional biocomposite lamina and micromechanical models," *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, vol. 143, no. October 2020, p. 106320, 2021, doi: 10.1016/j.compositesa.2021.106320.

[283] J. Ludwiczak, S. Frąckowiak, and K. Leluk, "Study of thermal, mechanical and barrier properties of biodegradable pla/pbat films with highly oriented mmt," *Materials (Basel).*, vol. 14, no. 23, 2021, doi: 10.3390/ma14237189.

[284] I. Burgert, M. Eder, N. Gierlinger, and P. Fratzl, "Tensile and compressive stresses in tracheids are induced by swelling based on geometrical constraints of the wood cell," *Planta*, vol. 226, no. 4, pp. 981–987, 2007, doi: 10.1007/s00425-007-0544-9.

[285] R. Hooke, "Explaining the power of springing bodies," *Lect. Potentia Restitutiva springs*, 1678.

[286] L. Cecchini, S. Mariani, M. Ronzan, A. Mondini, N. M. Pugno, and B. Mazzolai, "4D Printing of Humidity-Driven Seed Inspired Soft Robots," *Adv. Sci.*, vol. 10, no. 9, pp. 1–12, 2023, doi: 10.1002/advs.202205146.

Titre : Contribution à l'étude des forces et des énergies générées par des actionneurs biocomposites fabriqués par impression 4D

Mots clés : Biocomposites, Fibres de lin, Impression 4D, Actionneur passif

Résumé : Les biocomposites hygromorphes (HBC) constitués de PLA renforcé de fibres de lin continues (cFF/PLA), sont des actionneurs passifs bioinspirés performants. Le filament composite, préalablement coextrudé, permet la fabrication d'architectures programmables dont les propriétés dépendent directement de l'orientation et de l'organisation spatiale de la matière. L'étude du procédé de coextrusion a montré que l'augmentation de la vitesse de tirage et de la température accroît la rigidité du filament, mais favorise l'apparition de microdéfauts comme la porosité.
L'analyse des paramètres de slicing met en évidence leur influence sur la capacité d'actionnement, aussi bien en direction transverse que hors plan. Les performances obtenues, normalisées par la densité d'énergie spécifique, se révèlent comparable à celles d'actionneurs naturels, tels que le bois.
À l'échelle macroscopique, six méthodes expérimentales ont été développées pour évaluer les efforts et déplacements générés. Les géométries cubiques se montrent les plus efficaces pour les efforts rectilinéaires, tandis que les géométries tubulaires offrent un bon compromis pour les mouvements complexes.
Ces résultats soulignent l'importance de la conception multi-échelle, intégrant à la fois les paramètres de procédé, de matériau et de géométrie. Ainsi, le couplage du biomimétisme et de l'impression 4D ouvre la voie à la création de systèmes passifs adaptatifs, durables et énergétiquement efficaces.

Title : Contribution to the study of forces and energies generated by biocomposite actuators manufactured using 4D printing

Keywords : Biocomposites, Flax fibers, 4D Printing, Soft-Actuators

Abstract: Hygromorphic biocomposites (HBCs) made of PLA reinforced with continuous flax fibres (cFF/PLA) are high-performance bio-inspired passive actuators. The composite filament, which is co-extruded previously, enables the fabrication of programmable architectures whose properties depend directly on the orientation and spatial organization of the material. The study of the co-extrusion process has shown that increasing the pulling speed and temperature increases the rigidity of the filament but promotes the appearance of microdefects such as porosity.
Analysis of the slicing parameters highlights their influence on the actuation capacity, both in the transverse and out-of-plane directions.
The performance obtained, normalized by specific energy density, is comparable to that of natural actuators, such as wood.
On a macroscopic scale, six experimental methods have been developed to evaluate the forces and displacements generated. Cubic geometries are the most effective for rectilinear forces, while tubular geometries provide a good compromise for complex movements.
These results highlight the importance of multi-scale design, integrating process, material and geometry parameters. Thus, the combination of biomimicry and 4D printing paves the way for the creation of passive adaptive systems that are sustainable and energy efficient

.