



HAL
open science

Mécanismes de dégradation sous sollicitations hydrothermomécaniques de biocomposites et renforts en fibres végétales : application au développement de mobiliers urbains ultralégers et mobiles

Michael Berges

► To cite this version:

Michael Berges. Mécanismes de dégradation sous sollicitations hydrothermomécaniques de biocomposites et renforts en fibres végétales : application au développement de mobiliers urbains ultralégers et mobiles. Matériaux. Université Bourgogne Franche-Comté, 2018. Français. NNT : 2018UBFCK053 . tel-02108351

HAL Id: tel-02108351

<https://theses.hal.science/tel-02108351v1>

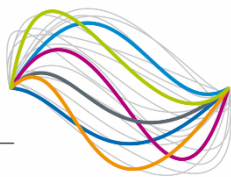
Submitted on 24 Apr 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UBFC

UNIVERSITÉ
BOURGOGNE FRANCHE-COMTÉ



DRIVE



IMT Mines Alès
École Mines-Télécom

femto-st
SCIENTES &
TECHNOLOGIES

THESE DE DOCTORAT DE L'ETABLISSEMENT UNIVERSITE BOURGOGNE FRANCHE-COMTE

PREPAREE AU DRIVE, AU C2MA ET AU FEMTO-ST

Ecole doctorale n°37

Ecole Doctorale Sciences Pour l'Ingénieur et Microtechniques (ED SPIM)

Doctorat de Mécanique et Energétique

Par

M BERGES Michael

Mécanismes de dégradation sous sollicitations hydrothermomécaniques de biocomposites
et renforts en fibres végétales : application au développement de mobiliers urbains
ultralégers et mobiles

Thèse présentée et soutenue à Alès, le 10/12/2018

Composition du Jury :

| | | |
|----------------------|---------------------------------------|----------------------|
| M Loïc DARIDON | Professeur, LMGC | Président |
| M Pierre DUMONT | Professeur, INSA Lyon | Rapporteur |
| M Marco GIGLIOTTI | Professeur, ENSMA | Rapporteur |
| Mme Amandine CELINO | Maître de conférences, Institut GeM | Examinatrice |
| M Stéphane FONTAINE | Professeur, ENSAM Metz | Directeur de thèse |
| M Patrick IENNY | Professeur, IMT Mines Alès | Codirecteur de thèse |
| M Vincent PLACET | Ingénieur de Recherche, FEMTO-ST | Examinateur |
| M Romain LEGER | Maître de conférences, IMT Mines Alès | Examinateur |
| Mme Véronique PERSON | Maître de conférences, DRIVE | Invitée |
| M Benoît PIEZEL | Maître de conférences, DRIVE | Invité |
| M Stéphane CORN | Maître de conférences, IMT Mines Alès | Invité |

Remerciements

Cette thèse représente beaucoup pour moi. C'est avant tout un travail important, qui demande beaucoup de temps et d'énergie, mais qui peut également peser lourd sur le moral. Tout n'a pas été rose, mais pourtant, tous les gens que j'ai rencontré au cours de ma thèse et mes proches m'ont soutenu et m'ont donné le courage de continuer, et surtout de terminer, cette thèse. Il sera donc difficile de rendre compte de toute ma gratitude envers toutes ces personnes en ces quelques mots, mais je me dois d'essayer.

Premièrement, je tiens à remercier les membres du jury, Loïc DARIDON, Amandine CELINO, Pierre DUMONT et Marco GIGLIOTTI, d'avoir accepté d'être présent pour juger mon travail. Un remerciement particulier aux deux rapporteurs, Pierre DUMONT et Marco GIGLIOTTI, pour le soin et l'attention qu'ils ont portés à mes travaux. La pertinence des remarques et des questions de tous les membres du jury a permis d'établir un dialogue scientifique très intéressant, et je leur suis très reconnaissant.

Deuxièmement, je remercie également les membres de mon équipe d'encadrement. Tout d'abord, merci à Stéphane et Patrick pour votre direction de thèse. Benoît, Véronique et Vincent, merci pour votre implication à la fois lors de mon séjour à Nevers et à Besançon, mais également pour le suivi et l'aide que vous m'avez apporté tout au long de ma thèse, avec un encadrement scientifique toujours d'une grande pertinence. Et enfin, merci à Patrick, Romain et Stéphane, déjà pour m'avoir offert l'opportunité de rejoindre vos rangs lors de mon PFE, mais aussi d'avoir rendu tout le reste possible, que ce soit du point de vue scientifique avec votre encadrement de qualité, mais aussi du point de vue humain, avec le soutien que vous m'avez offert et qui m'a permis d'avoir assez de force pour venir à bout du pavé qu'est ce manuscrit. Merci à tous pour m'avoir permis d'acquérir tant des connaissances sur de nombreux domaines sur ces composites que l'on a étudiés et sur la rédaction des articles et documents scientifiques.

Troisièmement, je veux remercier les membres des différents laboratoires que j'ai visités, notamment Sylvain, Jérôme et Olivier pour le DRIVE, Alain et Lydie au C2MA, et Emmanuel et Xavier au FEMTO-ST. Mais il faut surtout que je remercie Thomas, au FEMTO-ST, sans qui la campagne de fatigue n'aurait sans doute pas pu avoir lieu, et encore moins en immersion. Et enfin, Solange, qui a fait la mère-poule des doctorants du C2MA et qui m'a aidé à de nombreuses reprises : merci beaucoup !

Quatrièmement, il y a des collègues qui ne sont pas seulement des collègues, mais aussi des amis. Thomas, merci pour ces journées entières à fabriquer en ma compagnie et ces soirées de détente en ligne bien méritées. Loïc, merci pour les nombreuses discussions, les repas et les fameux mots croisés ! Ayoub, merci pour les discussions fort intéressantes que nous avons eues et pour la motivation d'aller courir. PB et Marie, merci de m'avoir accueilli dès mon PFE dans le laboratoire et d'avoir mis une bonne ambiance parmi les doctorants du C2MA. Merci aussi à tous les doctorants, pour les discussions, les rires et tout le reste !

Magalie et Charlotte, merci pour ces soirées série et ces rires que nous avons partagés. Charlotte, un grand GRAND merci aussi pour tout le reste, tu sais de quoi je parle (je préfère ne le partager qu'avec toi) !

Kévin, merci pour nos discussions gaming et série ! On verra si je te remercierai de m' enrôler dans certains jeux d' ailleurs... l' avenir nous le dira, mais j' ai toujours été vraiment content de pouvoir bavarder et qu' on se retrouve. Passe mes amitiés à Marianne. En espérant vous revoir tous les deux très bientôt, peut-être chez nous à Paris cette fois !

Merci enfin à mes amis, Jordi et Paul, malgré le fait qu' on se voit si rarement, mais toujours dans la bonne humeur, comme au lycée ! Et Hugo, ça fait une longue route depuis la prépa ! Merci d' être venu me voir et d' avoir gardé le contact, discuté et pris des nouvelles quand j' en avais besoin, d' être un ami à qui je peux tout dire et tout confier. Passe aussi le bonjour à Camille de ma part.

Il fallait aussi que je te remercie Gabriel, mon Emaneth, pour ton soutien dans certains moments sombres, mais aussi dans ces fameux moments très lumineux qui nous ont réunis. Merci pour ces discussions profondes qui m' ont permis de mieux me comprendre moi-même et de mieux comprendre le monde qui nous entoure. Et merci pour la motivation d' écrire et de lire Daehra ! Tu as fait ressortir le meilleur de ma plume et je ne saurais t' en remercier assez.

Enfin, la meilleure des meilleurs ! Ma bestie, So ! Comment te remercier assez ? Fort heureusement, je n' ai pas besoin de réussir, juste d' essayer. Tu sauras lire entre mes lignes. Tu me connais par cœur, et tu sais ce que cette thèse représente. Tu as toujours été une oreille attentive et une épaule réconfortante. Il y a beaucoup de choses à dire, mais je les garderai entre nous. Merci Solène !

Je souhaite aussi vous remercier, Papa, Maman, Ade, pour votre soutien indéfectible. Vous savoir derrière moi m' a toujours aidé et donné de la force. Merci aussi à Mamie Josette, et une pensée aussi à Fernand et Mamie Paulette, qui auraient été ravis de me voir réussir cette thèse.

Et enfin, pour Aline, tu as été mon cœur, ma force, mon moteur. Sans toi, je ne serai jamais arrivé au bout de la thèse. Ça n' a pas été facile pourtant, trois ans si loin de toi, mais on a réussi. Je ne saurai te remercier assez, mais j' essaierai de m' y efforcer tous les jours, à chaque instant passé à tes côtés, qui seront aussi nombreux que possible désormais, je l' espère. Love you, Lili.

Table des matières

| | |
|---|----|
| Introduction générale | 7 |
| Chapitre 1 – Les fibres végétales et la fabrication des composites associés..... | 13 |
| 1.1 – Fibres naturelles | 13 |
| 1.1.1 – Fibres végétales | 13 |
| 1.1.2 – Fibre de lin | 15 |
| 1.2 – Fabrication de composites à fibres végétales | 20 |
| 1.2.1 – Paramètres de fabrication..... | 20 |
| 1.2.2 – Procédés de fabrication..... | 24 |
| 1.3 – Conclusion | 25 |
| Chapitre 2 – Durabilité de composites à fibres végétales..... | 27 |
| 2.1 – Vieillissement par exposition à l’eau..... | 27 |
| 2.1.1 – Loi de Fick | 28 |
| 2.1.2 – Modèle de Langmuir | 28 |
| 2.1.3 – Phénoménologies | 29 |
| 2.1.4 – Vieillissement par exposition à l’eau des composites..... | 32 |
| 2.2 – Vieillissement thermique | 35 |
| 2.2.1 – Vieillissement thermique de la résine thermodurcissable | 35 |
| 2.2.2 – Vieillissement thermique des fibres..... | 36 |
| 2.3 – Vieillissement par sollicitations mécaniques | 37 |
| 2.3.1 – Fluage | 37 |
| 2.3.2 – Fatigue | 39 |
| 2.4 – Sollicitations couplées | 45 |
| 2.4.1 – Vieillissement par sollicitation eau-température..... | 45 |
| 2.4.2 – Vieillissement par sollicitations couplées eau-température-mécanique | 47 |
| 2.5 – Conclusion | 50 |
| Chapitre 3 – Approches numériques de la durabilité des composites à fibres végétales..... | 53 |
| 3.1 – Approches numériques de la durabilité des composites à fibres synthétiques | 53 |
| 3.2 – Approches numériques des fibres perméables..... | 55 |
| 3.3 – Approche numérique de la durabilité des composites à fibres végétales caractérisée expérimentalement..... | 57 |
| 3.4 – Conclusion | 59 |
| Positionnement de l’étude..... | 61 |
| Chapitre 4 – Méthodes..... | 65 |

| | |
|--|-----|
| 4.1 – Techniques d’analyse microstructurale | 65 |
| 4.1.1 – Mesure par pesée : masse et taux volumiques..... | 65 |
| 4.1.2 – Mesure des taux surfaciques par microscopie électronique à balayage | 66 |
| 4.1.3 – Extraction de données morphologiques par microscopie électronique à balayage | 67 |
| 4.2 – Techniques de suivi des propriétés mécaniques | 69 |
| 4.2.1 – Analyse modale en vibrations libres | 69 |
| 4.2.2 – Traction monotone..... | 71 |
| 4.2.3 – Suivi de la déformation par corrélation d’images..... | 74 |
| 4.2.4 – Fatigue | 75 |
| Chapitre 5 – Matériaux et Fabrication | 77 |
| 5.1 – Matériaux | 77 |
| 5.1.1 – Fibres de lin | 77 |
| 5.1.2 – Résine époxyde..... | 77 |
| 5.2 – Thermocompression..... | 77 |
| 5.3 – Influence des paramètres de fabrication sur le comportement longitudinal à 0°..... | 79 |
| 5.3.1 – Paramètres étudiés et nomenclature | 79 |
| 5.3.2 – Influence du conditionnement des fibres | 81 |
| 5.3.3 – Influence de la pression de fabrication | 82 |
| 5.3.4 – Compléments d’étude : influence de la cuisson et de la température de post-cuisson..... | 83 |
| 5.3.5 – Influence de la durée de post-cuisson | 84 |
| 5.3.6 – Bilan de l’étude du procédé | 85 |
| 5.3.7 – Procédé de fabrication retenu | 89 |
| 5.3.8 – Nomenclature et préparation des échantillons | 90 |
| Chapitre 6 – Caractérisation expérimentale du comportement monotone en conditions hydro-thermiques | 95 |
| 6.1 – Caractérisation à l’état conditionné..... | 95 |
| 6.1.1 – Analyse morphologique | 95 |
| 6.1.2 – Comportement statique à l’état conditionné | 100 |
| 6.2 – Protocole de saturation en immersion | 105 |
| 6.3 – Evolution des propriétés au cours de la saturation | 106 |
| 6.4 – Comportement statique à l’état saturé | 111 |
| 6.4.1 – Comportement longitudinal..... | 112 |
| 6.4.2 – Caractérisation de la viscoélasticité | 116 |
| 6.4.3 – Comportement transverse et en cisaillement | 118 |

| | |
|---|-----|
| 6.4.4 – Observations de la microstructure à saturation | 121 |
| 6.5 – Conclusions..... | 123 |
| Chapitre 7 – Modélisation du comportement statique en conditions hydrothermiques | 127 |
| 7.1 – Méthodologie | 127 |
| 7.1.1 – Méthodologie globale | 128 |
| 7.1.2 – Génération de microstructures 2D sous Digimat® | 129 |
| 7.1.3 – Méthodologie d’implémentation sous COMSOL Multiphysics® | 131 |
| 7.2 – Hypothèses de diffusion sur une géométrie 2D..... | 133 |
| 7.3 – Identification des paramètres de modélisation | 137 |
| 7.3.1 – Convergence du maillage | 137 |
| 7.3.2 – Définition de la surface d’étude | 141 |
| 7.3.3 – Identification du coefficient de diffusion des fibres | 144 |
| 7.3.4 – Identification du coefficient de gonflement hygroscopique des fibres..... | 146 |
| 7.3.5 – Identification de l’évolution du module élastique des fibres au cours de la diffusion | 147 |
| 7.4 – Application du modèle résultant à l’analyse locale | 149 |
| 7.4.1 – Évolution locale du module..... | 149 |
| 7.4.2 – Etude de l’état de contraintes internes | 152 |
| 7.4.3 – Bilan du modèle diffusif recalé..... | 159 |
| 7.5 – Modèle de pression hydrique | 160 |
| 7.5 – Conclusions et Perspectives | 165 |
| Chapitre 8 – Couplage hydromécanique : fatigue en immersion | 169 |
| 8.1 – Comportement en fatigue à l’état conditionné | 169 |
| 8.1.1 – Courbe de Wöhler | 169 |
| 8.1.2 – Évolution des propriétés mécaniques au cours de la fatigue | 171 |
| 8.2 – Comportement en fatigue à saturation | 184 |
| 8.2.1 – Courbe de Wöhler | 185 |
| 8.2.2 – Évolution des propriétés mécaniques au cours de la fatigue | 186 |
| 8.3 – Conclusions et Perspectives | 198 |
| Chapitre 9 – Comportement statique au cours d’un vieillissement hygrothermique cyclique | 199 |
| 9.1 – Méthode de vieillissement cyclique en conditions hygrothermiques | 199 |
| 9.2 – Suivi des propriétés au cours du vieillissement | 201 |
| 9.3 – Evolution des propriétés mécaniques après 4 et 9 cycles de vieillissement | 205 |
| 9.4 – Conclusion : application à du mobilier urbain..... | 208 |

Introduction générale

Progressivement, les matériaux composites ont remplacé les matériaux traditionnels dans de nombreux domaines, que ce soit les domaines du nautisme, de l'aéronautique, de l'automobile, le mobilier urbain et bien d'autres encore. En effet, leurs propriétés mécaniques spécifiques et leur résistance à la corrosion entre autres en font de bons candidats pour ces domaines d'application. Les plus utilisés pour remplacer les matériaux traditionnels sont fabriqués, à l'heure actuelle, à base de fibres de verre et de carbone.

Ces matériaux composites ont été les sujets de nombreuses publications scientifiques durant ces dernières décennies. Ces recherches se sont orientées sur l'étude de la dégradation des propriétés des composites à renforts fibreux en environnement de service (humidité, température, rayonnements UV) et occupent désormais une place de plus en plus grande dans la littérature scientifique, ce qui témoigne d'efforts concentrés pour lever les verrous scientifiques et technologiques associés à cette problématique, autant pour les académiques que pour les industriels. La littérature sur les applications des composites conventionnels ainsi que leur vieillissement en milieu humide ou aqueux est abondante. De nombreux auteurs ont décrit le comportement à long terme de ces composites pour comprendre l'effet des vieillissements suite à des expositions prolongées dans l'eau, à de fortes températures ou à des sollicitations mécaniques sur leurs propriétés mécaniques et physicochimiques.

Plus récemment, la recherche industrielle et académique, dans différents secteurs d'application, s'est intéressée à de nouveaux matériaux permettant de répondre aux mesures européennes et mondiales concernant la politique de développement durable. Motivé par les mesures gouvernementales, mais aussi par la prise de conscience générale sur l'environnement, l'intérêt pour l'application de matériaux biosourcés pour remplacer les composites conventionnels a pris de l'ampleur. Dans ce cadre, ce sont les fibres végétales, comme le lin, le chanvre ou le jute, qui sont le centre de l'attention depuis plusieurs années maintenant. Leurs propriétés mécaniques spécifiques, élevées pour certaines variétés, pouvant concurrencer les fibres de verre attirent fortement les communautés industrielle et académique. Progressivement, les fibres de lin remplacent les fibres de verre dans certaines applications, par exemple des raquettes de tennis, avec des fibres longues, ou des pièces d'intérieur de voitures, avec des fibres courtes. La présence de fibres végétales dans un polymère, qu'il soit lui-même biosourcé ou non, apporte des avantages, que ce soit au niveau de leur faible densité, de leurs bonnes propriétés mécaniques, du coût énergétique de production faible, comme des inconvénients, avec une durabilité fortement impactée par les phénomènes de vieillissement en environnement humide ou en immersion ainsi qu'aucune solution en vue de leur recyclabilité pour le moment.

Il est important de remarquer que les solutions technologiques proposées comme alternatives aux composites conventionnels doivent être, selon une norme internationale (ISO 14062 : 2002), de performances techniques équivalentes ou supérieures en plus d'un prix correspondant au marché, de meilleures performances environnementales et d'une empreinte écologique plus faible. Passer d'un composite conventionnel à un composite biosourcé (biocomposite) doit donc prendre en compte les aspects environnementaux et techniques pour répondre à cette attente. Pour y répondre, le champ de recherche se dirige vers le renforcement des performances mécaniques des biocomposites à travers l'optimisation des procédés de fabrication et vers l'amélioration de leur durabilité en service.

Ainsi, les procédés de fabrication utilisés pour les composites traditionnels nécessitent d'être reconsidérés et adaptés aux spécificités des biocomposites et de leurs constituants. En

premier lieu, la section et la longueur des fibres naturelles sont variables et les tissus réalisés comportent également des variations dans le tissage. D'autre part, leur caractère hydrophile, leur géométrie variable et leur température de dégradation sont à prendre en compte. Récemment, il a été mis en avant que les conditions de stockage et de mise-en-œuvre doivent être optimisées pour convenir aux fibres naturelles et produire ainsi des matériaux aussi performants que possible.

Bien sûr, la mise en œuvre est une étape clef dans la conception de structures composites. La pression, la température, le temps de maintien en pression et température, et les conditions initiales des matières premières (étuvage ou non), la réalisation ou non d'un dégazage en cours de procédé et autres paramètres influencent la qualité du matériau produit. L'impact des paramètres du procédé sur les caractéristiques mécaniques des biocomposites est finalement mal connu. En conséquence, les performances mécaniques du matériau composite final peuvent être relativement variables selon le procédé utilisé et ne sont généralement pas optimales. L'arrangement des fibres naturelles n'est pas le même que celui des fibres de verre dans la résine lors de la fabrication, du fait de l'orientation des fibres naturelles induite par leur microstructure et de leur état de surface variable, ce qui induit un biais lors de la mise en œuvre, soit en termes d'imprégnation, soit en termes d'orientation du renfort, d'où la difficulté de produire des tissus unidirectionnels par exemple. De plus, certaines techniques de mise-en-œuvre emploient des températures élevées, qui ne conviennent pas aux fibres naturelles, et le procédé doit alors être repensé dans sa globalité. C'est pour cela que l'optimisation des paramètres de fabrication est une étape nécessaire pour la fabrication de biocomposites.

Un autre facteur tendant à ralentir le développement industriel des biocomposites est leur faible durabilité, notamment lors d'une exposition à de l'eau. D'autres conditions environnementales comme la température, les rayonnements UV, les sollicitations mécaniques, les attaques biologiques ou même une combinaison de ces sollicitations et expositions peuvent jouer un rôle important dans la durabilité globale de ces matériaux. Les fibres de verre ont habituellement une résistance élevée aux sollicitations hydriques sur le long terme, car elles sont hydrophobes. *A contrario*, la présence de fibres végétales hydrophiles par nature, opère un changement drastique sur les mécanismes de vieillissement à l'échelle des composites. L'eau génère une dégradation plus importante des propriétés mécaniques et physicochimiques des biocomposites que dans le cas des composites conventionnels, que ce soient lors d'expositions courtes, avec des mécanismes de dégradation qui peuvent être assimilés à ceux rencontrés dans les composites à fibres synthétiques, ou d'expositions longues, avec notamment des mécanismes de dissolution de certains composés propres aux fibres végétales. Cet aspect des fibres naturelles est considéré à l'heure actuelle comme la principale limite à leur utilisation. Il est donc primordial de compléter les connaissances actuelles sur les mécanismes de dégradations de la structure et l'évolution de ses performances lorsqu'elle est soumise à des sollicitations environnementales séparées ou combinées.

Les deux aspects (optimisation du procédé et amélioration de la durabilité) ne sont d'ailleurs pas disjoints. En effet, l'étude de la microstructure permet d'optimiser les performances mécaniques, mais peut également aider à comprendre les mécanismes de vieillissement. Dans ce cadre, deux paramètres microstructuraux ressortent de la littérature comme primordiaux : l'interface fibre / matrice et les porosités, qui prennent leur origine au niveau de la mise-en-œuvre, et jouent un rôle primordial tant dans l'aspect d'optimisation des performances mécaniques que dans la durabilité. Ces caractéristiques microstructurales

influent non seulement sur la vitesse du vieillissement, mais aussi sur les mécanismes mis en jeu lors de celui-ci.

Cette thèse s'inscrit dans une collaboration entre trois laboratoires français : le DRIVE, EA1859, Univ. Bourgogne Franche-Comté, Nevers, le C2MA, IMT Mines Alès, Univ. Montpellier, Alès, et l'institut FEMTO-ST, Univ. Bourgogne Franche-Comté, UFC/CNRS/ENSMM/UTBM, Département de Mécanique Appliquée, Besançon. L'expertise de chaque laboratoire a été ainsi sollicitée sur les problématiques de cette thèse, avec le contrôle du procédé qui a été effectué au DRIVE, les vieillissements hydrothermique et hygrothermique cyclique ainsi que la caractérisation sous chargement monotone au C2MA et le vieillissement hydrothermomécanique au FEMTO-ST. Une approche numérique de la durabilité des composites étudiés a été également effectuée à l'aide du cluster de calcul du FEMTO-ST et l'expertise spécifique à l'approche numérique de la microstructure de fibres végétales du C2MA.

Pour cela, le travail de thèse a été segmenté en 4 périodes distinctes :

- première année au DRIVE : mise en place du procédé de fabrication et fabrication de tous les échantillons nécessaires aux études de la thèse
- deuxième année au C2MA : étude des vieillissements hydrothermique et hygrothermique cyclique avec essais sous chargement monotone
- 6 premiers mois de la troisième année au FEMTO-ST : campagne de fatigue avec étude du vieillissement hydrothermomécanique et implémentation du modèle
- 6 derniers mois de la troisième année au C2MA : implémentation du modèle et rédaction du manuscrit

Cette collaboration a été initiée par le consortium BioLam qui a pour but de réunir des compétences diverses, réparties dans différents laboratoires, afin de contribuer à l'étude de verrous scientifiques ou afin de développer des projets industriels. Cette thèse a donc été lancée dans le but de répondre à des problématiques urbaines. Les villes souhaitent investir de plus en plus dans des projets permettant de mettre en avant des solutions technologiques avec un impact environnemental positif. Dans ce cadre-là, l'idée d'étudier du mobilier urbain ultraléger et mobile a émergé. Cette thèse a donc pour but d'analyser et comprendre des problématiques diverses quant à l'utilisation de composites à fibres végétales avec pour objectif final la production de structures composites dans le domaine du mobilier urbain.

Ainsi, l'objectif principal de la thèse est de contribuer à la réalisation d'une structure en composite biosourcée qui serait utilisée en extérieur. Le travail d'étude et de conception étant lourd, la contribution de cette thèse se porte donc sur l'étude de la durabilité de ces composites, avec pour aboutissant une modélisation numérique prédictive de la durabilité pour la conception de structures en biocomposite.

Tout d'abord, un protocole de mise-en-œuvre a été établi pour permettre une répétabilité de fabrication du matériau, mais également pour permettre par la suite de produire un matériau avec de nouveaux constituants via une méthodologie prédéfinie, permettant de faire une optimisation plus rapide du procédé. La mesure des propriétés mécaniques a permis de valider le procédé.

Ensuite, les différents vieillissements ont été étudiés, avec une mise en corrélation des paramètres microstructuraux, comme le taux volumique de fibres et l'agencement de la microstructure, avec la dégradation des propriétés du composite au cours des différents phénomènes de vieillissement.

Des essais sous chargement monotone, dynamique et cyclique ont été effectués afin de caractériser ces vieillissements.

Enfin, cette étude a ensuite fait l'objet d'une modélisation qui traite de la microstructure à l'échelle des résultats obtenus avec pour objectif de contribuer à l'étude numérique de la durabilité des composites à fibres végétales.

Le manuscrit est organisé en quatre parties : une étude bibliographique, une présentation des méthodes de caractérisation et une étude du procédé de fabrication, une étude de la durabilité des composites sous chargement monotone et enfin une étude de sollicitations hydrothermomécaniques et hygrothermiques cycliques permettant de se rapprocher des conditions de service envisagées pour ces composites.

La première partie est scindée en 3 chapitres, qui traiteront respectivement de la structure et des propriétés des fibres, ainsi que des problématiques de fabrication associées à ces fibres, de la durabilité sous exposition à de l'eau, à de la température et à des sollicitations mécaniques, et des avancées de la modélisation de la durabilité des composites à fibres végétales.

La seconde partie présente tout d'abord les méthodes de caractérisation des composites au cours de la thèse, y compris lors de l'étude du procédé qui est présentée ensuite.

La troisième partie permet d'étudier le comportement mécanique sous chargement monotone des composites soumis à un vieillissement hydrothermique lors d'une campagne d'essais, qui permet d'implémenter un modèle numérique pour étudier la durabilité de ces composites.

La dernière partie traite de sollicitations se rapprochant des conditions de service, avec une campagne d'essais de fatigue pour étudier un vieillissement couplé hydrothermomécanique, puis une campagne d'essais sous chargement monotone pour étudier un vieillissement en conditions hygrothermiques cycliques.

Partie 1 – Synthèse bibliographique

Cette partie bibliographique est dédiée à l'état de l'art nécessaire à la compréhension des travaux de cette thèse. Elle est divisée en trois chapitres.

Le premier présente les fibres végétales, leur structure et leurs propriétés mécaniques, ainsi que leur mise en œuvre en tant que renforts de composites structuraux au regard de plusieurs paramètres de fabrication.

Le deuxième chapitre traite de la durabilité des composites à fibres végétales, où différentes sollicitations sont étudiées quant au vieillissement qu'elles induisent, qu'il s'agisse d'une exposition à de l'eau et/ou à de la température ou bien qu'il s'agisse des sollicitations mécaniques couplées à cet effet de l'environnement.

Le troisième chapitre permet de mettre en évidence les verrous liés à la modélisation de la durabilité des composites à fibres végétales.

Enfin, une synthèse est faite afin de présenter les renforts, le procédé de fabrication et la méthodologie d'étude expérimentale et numérique qui ont été choisis au regard de la littérature.

Chapitre 1 – Les fibres végétales et la fabrication des composites associés

Les composites sont désormais des matériaux courants dans les secteurs de l'aérospatiale, de l'aéronautique, du ferroviaire, du naval, de l'automobile et du loisir. Ce sont des matériaux qui présentent de très bonnes propriétés mécaniques, qui permettent entre autres l'allègement des structures ou l'isolation thermique et électrique. Les renforts synthétiques couramment utilisés sont très énergivores à produire. Ainsi, avec la prise de conscience environnementale, des solutions plus propres font l'objet de l'attention générale, comme l'utilisation de renforts naturels.

Les fibres naturelles, par rapport aux fibres synthétiques, présentent une origine naturelle et une structure complexe. Leur comportement mécanique et leurs propriétés sont bien différents des renforts classiquement utilisés dans l'industrie. De plus, leur mise en œuvre présente également des problématiques différentes. Ainsi, ce chapitre est consacré à la présentation des fibres naturelles, dont les fibres végétales et en particulier les fibres de lin, puis à la fabrication de composites renforcés de fibres végétales.

1.1 – Fibres naturelles

Les fibres naturelles présentent certains avantages comparées aux fibres synthétiques comme les fibres de verre ou de carbone, comme un coût énergétique de production plus faible [1], [2]. Il existe des fibres minérales, animales et végétales. Cette section est consacrée à la présentation des fibres végétales dans un premier temps, et dans un second temps à celle des fibres de lin en particulier.

1.1.1 – Fibres végétales

Les fibres végétales, du fait de leur grande disponibilité en Europe [3] et de leurs propriétés intéressantes (bonnes propriétés mécaniques, faible densité, ...) [4], font l'objet de nombreuses études en vue de développer des matériaux composites biosourcés ou partiellement biosourcés.

Cependant, l'utilisation de fibres végétales en tant que renfort de composites structuraux soulève plusieurs questions, notamment sur l'analyse du cycle de vie, sur la valorisation des ressources et des déchets agricoles [5], mais surtout au regard de la durabilité sur le long terme des composites au sein desquels elles sont intégrées. En effet, la durabilité de composites à fibres végétales est encore peu connue à l'heure actuelle et également difficilement quantifiable du fait de la complexité de l'observation des phénomènes mis en jeu. L'endommagement hygro(hydro)thermique constitue notamment un facteur prépondérant susceptible de limiter drastiquement la durée de vie des composites à fibres végétales [6].

Les fibres végétales peuvent avoir différentes origines dans les plantes dont elles sont issues. La **figure 1.1.1.1** [7] récapitule les différents types de fibres par leur origine dans la plante. Par exemple, les fibres de lin sont issues de la tige des plantes. La classification en fibres primaires ou secondaires se fait de la manière suivante : les fibres primaires sont issues d'une plante cultivée spécifiquement pour ses fibres, tandis que les fibres secondaires sont des sous-produits ou des déchets. Par exemple, la bagasse est issue de la canne à sucre, qui est cultivée pour la production du sucre.

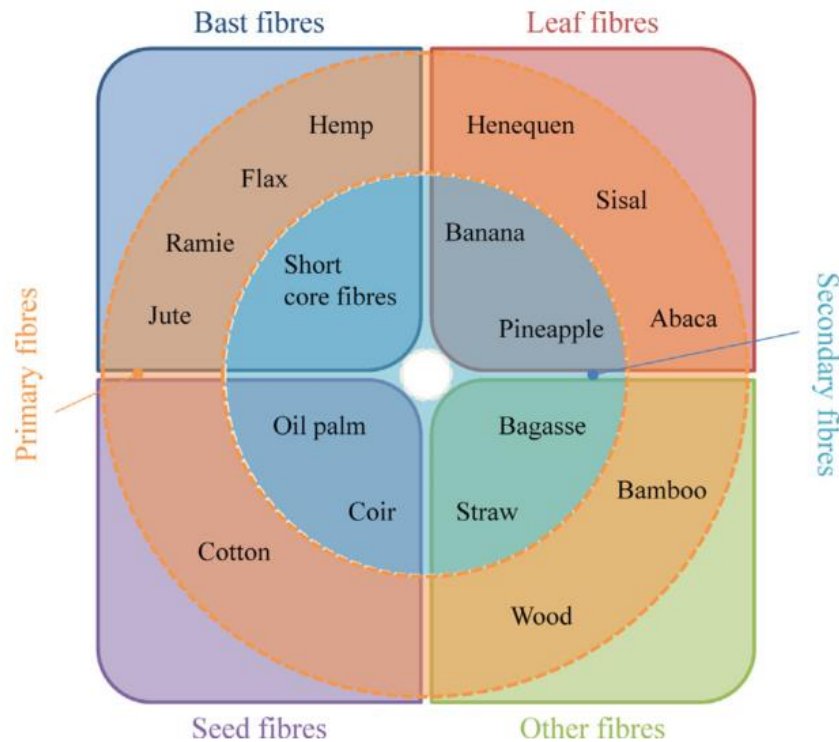


Figure 1.1.1.1 : Classification des fibres végétales par origine au sein de la plante (bast : tige, leaf : feuille, seed : graine) et par produits ou sous-produits (primary : primaire, secondary : secondaire) [7]

Le **tableau 1.1.1.1** [6], [8]–[11] récapitule les propriétés mécaniques spécifiques des fibres végétales de la littérature. La représentation graphique de la **figure 1.1.1.2** proposée par Shah [7] est également intéressante pour mieux appréhender l'intérêt des fibres végétales comme remplacement potentiel des fibres de verre. Sur le graphique de gauche, les fibres de verre ne sont pas représentées, car elles présentent un module de 78.5 GPa et une contrainte à rupture de 1956 MPa. Cependant, sur le graphique de droite, les contraintes à rupture spécifiques des fibres végétales s'avèrent inférieures à celles des fibres de verre E, tandis que les modules d'Young spécifiques peuvent être bien supérieurs selon la nature des fibres végétales considérées. Il sera noté que la **figure 1.1.1.2** utilise des données différentes du **tableau 1.1.1.1**, comme il peut être remarqué par rapport au module des fibres de lin ou de chanvre.

| Fibre | Densité (g/cm ³) | Diamètre (µm) | Contrainte à rupture (MPa) | Contrainte à rupture spécifique (σ/ρ) | Module d'Young (GPa) | Module d'Young spécifique (E/ρ) |
|---------|------------------------------|---------------|----------------------------|---------------------------------------|----------------------|---------------------------------|
| Verre E | 2.5 | 20 | 2300 - 2500 | 920 - 1000 | 72 - 74 | 28 - 29 |
| Lin | 1.5 | 40 - 600 | 345 - 1300 | 230 - 867 | 39 - 79 | 47 |
| Chanvre | 1.5 | 25 - 500 | 454 - 1200 | 303 - 800 | 65 | 43 |
| Jute | 1.3 - 1.5 | 25 - 200 | 393 - 800 | 208 - 570 | 15 - 35 | 12 - 23 |
| Kenaf | - | - | 930 | - | 53 | - |
| Ramie | 1.5 | - | 400 - 938 | 266 - 625 | 31 - 70 | 21 - 46 |
| Sisal | 1.4 | 50 - 200 | 468 - 700 | 334 - 500 | 9 - 22 | 7 - 15 |

Tableau 1.1.1.1 : Propriétés mécaniques spécifiques des fibres végétales [6], [8]–[11]

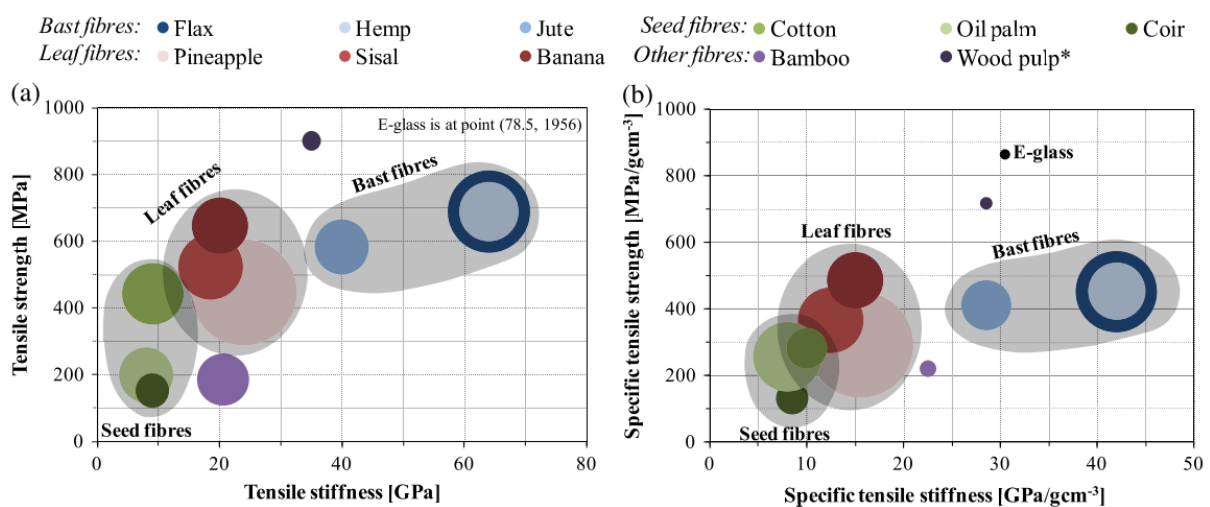


Figure 1.1.1.2 : Représentation graphique des propriétés spécifiques des fibres végétales [7]

1.1.2 – Fibre de lin

Les fibres de lin présentent une densité faible de l'ordre de 1,5 g/cm³ [12]. Ainsi, même si leurs résistance et rigidité peuvent paraître modérées [13], leurs propriétés spécifiques n'en demeurent pas moins intéressantes. De plus, ces fibres sont avantageuses pour leur bilan carbone réduit [9], [10], [14]–[16], comparativement aux fibres de verre [17], [18]. Elles ont une grande résistance en fatigue, une bonne absorption de l'énergie lors d'un impact et confèrent aux composites un meilleur amortissement des vibrations [3], [19], [20].

Une fibre de lin a une structure complexe et hiérarchisée [21]. Elle est prismatique à section polygonale arrondie, avec 5 à 7 faces et constituée de deux parois principales: la primaire et la secondaire. Sa structure multi échelle est proche de celle d'un matériau composite nanostructuré, constitué d'une matrice hémicellulosique et pectique renforcée par des microfibrilles de celluloses enroulées selon un angle, dit microfibrillaire, autour de l'axe de la fibre [10], [12]. Cette structure est très bien décrite par C. Baley [12] sur la [figure 1.1.2.1](#). Les microfibrilles se trouvent dans la couche S2 de la paroi secondaire, qui représente 80% de la section totale de la fibre. L'angle microfibrillaire varie de 9 à 11° [10], [22]–[24] et le diamètre d'une microfibrille varie entre 2 et 30 nm [25]. Au centre de la fibre se trouve une cavité, appelée lumen, dont le diamètre est de l'ordre de 5 µm [10], [26], [27]. La longueur d'une fibre varie entre 4 et 60 mm et son diamètre entre 8 et 21 µm [28].

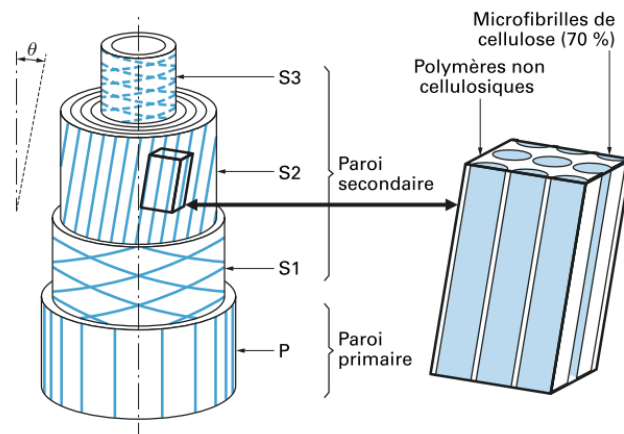


Figure 1.1.2.1 : Structure complète d'une fibre de lin [12]

De plus, des hétérogénéités structurales locales, généralement qualifiées de « défauts », sont présentes le long des fibres. Il s'agit de genoux (« knees »), nœuds, bandes ou des dislocations (« kinkbands »), qui sont issus de la pousse naturelle de la plante (genoux, nœuds, bandes) ou du procédé de décortication (dislocations) [29].

D'autre part, la composition chimique des fibres est variable d'une fibre à l'autre. Elle contient entre 65 et 72 % de cellulose, 10 à 21 % d'hémicellulose, 2 à 3% de pectine, 2 à 5 % de lignine, 1.5 à 2 % de cires et 8 à 12 % d'eau [3], [30], [31]. Cette composition dépend notamment de la variété du lin, de la qualité du sol, des conditions climatiques, de la maturité des plantes ou encore des conditions de rouissage [10], [23], [26].

La cellulose (de module d'Young voisin de 140 GPa) est le composant responsable de la forte rigidité de la fibre végétale [32] et est également fortement hydrophile. Les hémicelluloses sont amorphes, avec une masse moléculaire faible [10] et un très fort pouvoir hygroscopique [29]. Le comportement mécanique des hémicelluloses est non-linéaire [29]. Comme elles sont un composé soluble dans l'eau, leur module d'élasticité est très variable en fonction du taux d'humidité qu'elles contiennent (8 GPa en atmosphère sèche, 0.01 GPa en approchant de 100 %HR) [33]. La lignine est un liant qui assure la cohésion des faisceaux de microfibrilles [26] et réduit également le caractère hydrophile de la fibre [34]. Elle peut d'ailleurs être synthétiquement ajoutée aux fibres par traitement, ce qui a aussi pour effet d'augmenter les capacités d'adhésion entre les fibres et la matrice [35]. La variabilité de leur origine biologique (dont les facteurs environnementaux lors de la culture et industriels lors de la mise en forme des renforts), de leur composition, de leur morphologie (longueur, angle microfibrillaire, diamètre, ...) [9], [10], [36], [37] et de leur état hygrothermique peuvent être à l'origine de changements importants dans les propriétés mécaniques. En effet, dans le **tableau 1.1.2**, les propriétés mécaniques de fibres de lin présentent des variabilités très importantes. Cela constitue un verrou important pour leur caractérisation et pour leur utilisation fiable dans des matériaux composites aux performances contrôlées.

Dans la suite de ce manuscrit, la variété des plantes dont sont issues les fibres de lin ne sera plus précisée, car les fournisseurs de fibres techniques à usage de renforts dans des composites mélangent les fibres de différentes origines et d'années de récolte dans le but d'homogénéiser les propriétés et ainsi d'assurer une stabilité de leurs produits dans le temps.

De plus, le module d'Young peut être difficile à déterminer. Ceci est dû à plusieurs phénomènes. Tout d'abord, les fibres de lin ont un comportement non linéaire, ce qui peut

rendre la mesure du module délicate à cause d'une réorientation des microfibrilles suivant l'axe de sollicitation, qui engendre une augmentation du module [38]. Ensuite, la section des fibres utilisée dans les calculs de contrainte est souvent définie comme le diamètre moyen, or les fibres présentent des sections variables et des lumens qui rendent cette mesure contestable. Aussi, les fibres ont une longueur variable, et certaines propriétés mécaniques dépendent de cette longueur. L'écart-type peut donc être important. Enfin, la mesure des propriétés mécaniques est souvent effectuée sur des faisceaux, car un essai de traction sur une fibre seule est un essai difficile à mettre en place. Il peut donc y avoir des glissements de fibres les unes par rapport aux autres et induire des déformations additionnelles à celles dues à la déformation des fibres élémentaires.

La **figure 1.1.2.2** [26] présente des courbes de traction classiques de fibres de lin. Elles peuvent donc avoir un comportement linéaire (a), bilinéaire (b) ou bien trinéaire (c). Ce dernier cas a également été observé par C. Baley [10], qui décrit ce comportement comme typique des fibres de lin. Entre les trois comportements différents [26], la mesure du module d'Young est complexe, puisqu'un module moyen de 63 GPa et un écart-type de 36 GPa sont trouvés. La première partie de la courbe trinéaire correspond à un comportement quasi linéaire [39] tandis que le coude et la réaugmentation de la pente ont des origines plus complexes. Une hypothèse classique dans la littérature attribue les non-linéarités à des déformations viscoélastoplastiques [10], [26], [28], [40]–[42], dont des réarrangements des parties amorphes et la réorientation des microfibrilles. La réorientation de microfibrilles a été étudiée par de nombreux auteurs, dont C. Baley [10] et K. Charlet [26], et pourrait être à l'origine du coude (lorsque les microfibrilles sont en mouvement, le matériau subit donc une perte de rigidité associée à ce mouvement relatif) et la réaugmentation du module correspondrait alors à une traction sur une fibre disposant de microfibrilles alignées à l'axe de chargement, rendant l'ensemble de la fibre plus rigide. En revanche, cette hypothèse reste difficile à prouver en considération de la complexité de l'analyse *in situ* nécessaire pour comprendre les phénomènes mis en jeu [43].

De plus, lors d'un chargement cyclique, les fibres de lin voient leur module augmenter avec le nombre de cycles subis [10], avec des déformations résiduelles dès le premier cycle. Cette augmentation est, de plus, dépendante du niveau de contrainte appliqué lors du chargement cyclique.

L'évolution des propriétés hygrothermiques et des propriétés mécaniques dépendant de leur état hygrothermique sera discutée dans le **chapitre 2** relatif au vieillissement.

| Variété des fibres | Année de récolte | Taux de cellulose (%) | Diamètre moyen (μm) | Module d'Young (GPa) | Contrainte à rupture (MPa) | Allongement à rupture (%) | Référence |
|--------------------|------------------|-----------------------|----------------------------------|----------------------|----------------------------|---------------------------|---|
| Hermès | - | 84 ± 3.5 | - | 68 ± 36 | 1450 ± 840 | - | [44] |
| Olivier | - | 77 ± 2.5 | - | 38 ± 13 | 720 ± 290 | - | |
| - | - | 75.9 à 86.2 | - | ≈ 135 | - | - | [45] |
| Hermès | 2003 | - | 19.6 ± 6.7 | 68.2 ± 35.8 | 1454 ± 835 | 2.3 ± 0.6 | [9], [10], [46] |
| Ariane | 2003 | - | 23.0 ± 5.7 | 54.1 ± 15.1 | 1339 ± 486 | 3.3 ± 0.8 | |
| Agatha | 2003 | - | 21.3 ± 6.3 | 57.0 ± 29.0 | 865 ± 143 | 1.8 ± 0.7 | |
| Everest | 2005 | - | 16.9 ± 4.9 | 41 ± 12.5 | 663 ± 307 | 1.8 ± 0.4 | |
| Everest | 2008 | - | 15.4 ± 5.1 | 75 ± 21.6 | 1232 ± 554 | 2.1 ± 0.8 | |
| Alaska | 2006 | - | 15.3 ± 5.4 | 46.3 ± 12.1 | 691 ± 253 | 1.8 ± 0.6 | |
| Hivernal | 2006 | - | 12.9 ± 3.3 | 67.5 ± 23.7 | 1119 ± 490 | 1.9 ± 0.5 | |
| Oliver | 2003 | - | 17.5 ± 3.6 | 47.2 ± 21.3 | 751 ± 414 | 1.7 ± 0.6 | |
| - | - | - | - | 26 à 103 | 343 à 2000 | 1.2 à 3.4 | [3], [22], [26], [29], [37], [38], [47], [48] |

Tableau 1.1.2 : Propriétés mécaniques du lin rencontrées dans la littérature

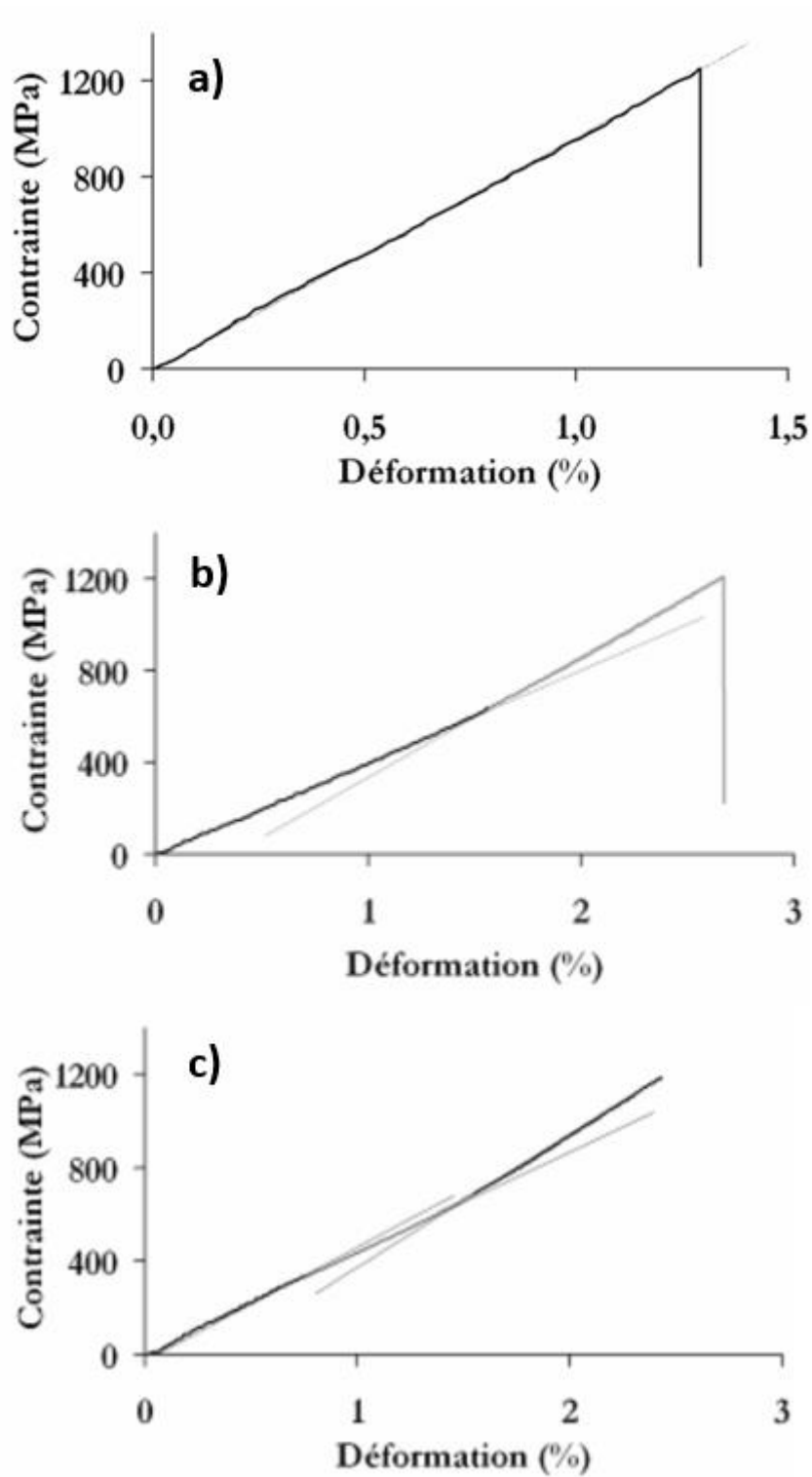


Figure 1.1.2.2 : Comportements classiques de fibres de lin en traction [26] – linéaire (a), bilinéaire (b) ou trinéaire (c)

1.2 – Fabrication de composites à fibres végétales

Les fibres végétales, au-delà de leurs propriétés mécaniques non linéaires, représentent un défi en termes de fabrication de composites, du fait de leur caractère hydrophile ou encore de leur variabilité dimensionnelle. Cette section aura donc pour objectif de guider le choix du procédé de fabrication pour l'utilisation visée, soit une pièce structurale réalisable de manière industrielle.

Les différents paramètres de fabrication sont donc étudiés en premier lieu pour étudier leur influence sur les fibres de lin et sur les composites fabriqués. Ensuite, des procédés de fabrication sont présentés afin de déterminer leur compatibilité avec les résultats des différents paramètres pour des fibres végétales.

1.2.1 – Paramètres de fabrication

Il est important de prêter une attention particulière aux paramètres utilisés à chaque étape de la fabrication pour contrôler et optimiser les propriétés microstructurales et mécaniques finales des composites produits [49].

Les paramètres de fabrication qui peuvent être modulés sont globalement les mêmes pour les différents procédés de fabrication : traitement des renforts, pression, température et éventuelle post-cuisson en sus. Dans cette partie sont donc étudiées les influences de ces paramètres de fabrication sur les composites produits : le conditionnement de fibres avant fabrication, la pression de consolidation, la température de cuisson et la post-cuisson.

1.2.1.1 – Conditionnement des fibres

La cellulose est hydrophile, ce qui peut provoquer une baisse des propriétés d'adhésion lors de l'imprégnation avec une résine hydrophobe, bien que cela ne soit pas forcément rédhibitoire. Du fait de ce caractère hydrophile des fibres végétales, leur préparation ou leur conditionnement avant la fabrication est une étape importante. Leur teneur en eau dépend en effet des conditions de stockage et/ou de traitement.

Des auteurs ont montré une diminution de l'adhésion fibre/matrice liée à la teneur en eau [50], [51]. De ce fait, les différences de teneur en eau dans les fibres avant fabrication induisent de la variabilité de propriétés mécaniques dans les composites à fibres végétales.

De plus, sur la [figure 1.2.1.1](#) [51], les composites lin/époxy fabriqués avec des fibres séchées à 103 °C (teneur en eau MC = 1.8 %) présentent des propriétés mécaniques différentes de celles issues de composites fabriqués avec des fibres conditionnées à 23°C et 55 %HR au sein d'un composite. En effet, le séchage des fibres avant la fabrication tend aussi à dégrader les fibres, en les rendant plus fragiles [51], [52].

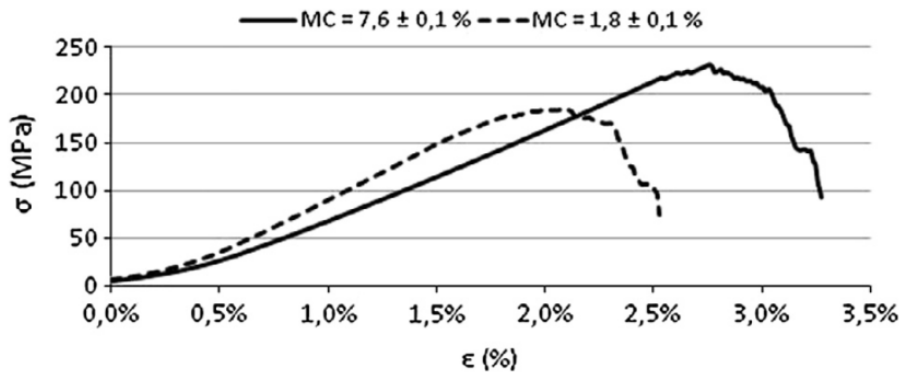


Figure 1.2.1.1 : Courbes de traction de composites lin/époxy conditionnés à 23°C, 55 %HR (MC 7.6%) et séché à 103°C (MC 1.8%) – MC : Moisture Content [51]

Comme il est difficile de contrôler l'état initial lors du stockage, de nombreux auteurs choisissent tout de même sécher les fibres végétales avant la fabrication avec des températures au-delà de 100 °C [53]–[62]. Ce choix permet d'assurer la répétabilité des propriétés mécaniques des composites sans avoir à stocker les fibres dans un environnement contrôlé.

1.2.1.2 – Pression de consolidation

La pression de consolidation, qui est la pression appliquée permettant la mise en forme du composite, a également un effet important sur la qualité des composites fabriqués. Elle modifie notamment les taux volumiques de fibres et de vide. Plus la pression appliquée est importante, plus le taux volumique de fibres est important [63], [64] et, si les fibres ne sont pas dégradées par la pression tout en garantissant la présence de suffisamment de résine pour lier les fibres entre elles, plus les propriétés mécaniques du composite produit sont élevées. Ce paramètre permet d'atteindre des taux volumiques plus ou moins importants. Par exemple, par thermocompression, le taux volumique de fibres maximal pour des composites époxy à fibres végétales unidirectionnelles est autour de 65% [51], [53], [62], [65]–[68]. Pour un composite polypropylène renforcé d'un tissu de lin, une pression de 20 bars a permis d'atteindre un taux volumique de fibres entre 57 et 60 % dans les travaux de Wolfahrt *et al.* [56]. Shah *et al.* [69] ont trouvé, quant à eux, un taux volumique de fibres maximal théorique d'environ 60 % pour des composites renforcés de fibres de jute unidirectionnels.

La dégradation des fibres par la pression reste peu documentée. En revanche, la dégradation de la structure du composite résultant de la compaction a été étudiée.

Une augmentation du taux volumique de porosités peut induire une diminution des propriétés mécaniques [53], [70]. Une augmentation de la pression de consolidation permet de diminuer le taux volumique de porosités [70] jusqu'à un certain niveau de pression [53]. Madsen et Liholt ont étudié cet effet dans leurs travaux [71]. La **figure 1.2.1.2.1** présente les variations des propriétés mécaniques de composites de papier Kraft et de résine aqueuse de phénol-formaldéhyde en fonction du taux massique de fibres papetières. Les résultats montrent un taux volumique de fibres optimal en termes de rigidité. En revanche, au-delà de cette pression optimale où la porosité est minimale, la qualité de l'imprégnation est affectée: la résine ne peut plus remplir les vides présents dans la structure fibreuse trop compactée, entraînant un partitionnement des zones de vide par les fibres qui deviennent des zones inaccessibles, et conduisant potentiellement à une augmentation du taux volumique de vide

[71]. Le manque de résine autour des fibres (mauvaise interface ou zone non imprégnée) ainsi que la proximité des fibres les unes par rapport aux autres rend inefficace le transfert de charge entre les fibres et la matrice [69], [71]–[73]. Ce phénomène ne semble cependant avoir lieu que pour des taux volumiques déjà élevés, mais peut dépendre de la complexité de la structure des renforts.

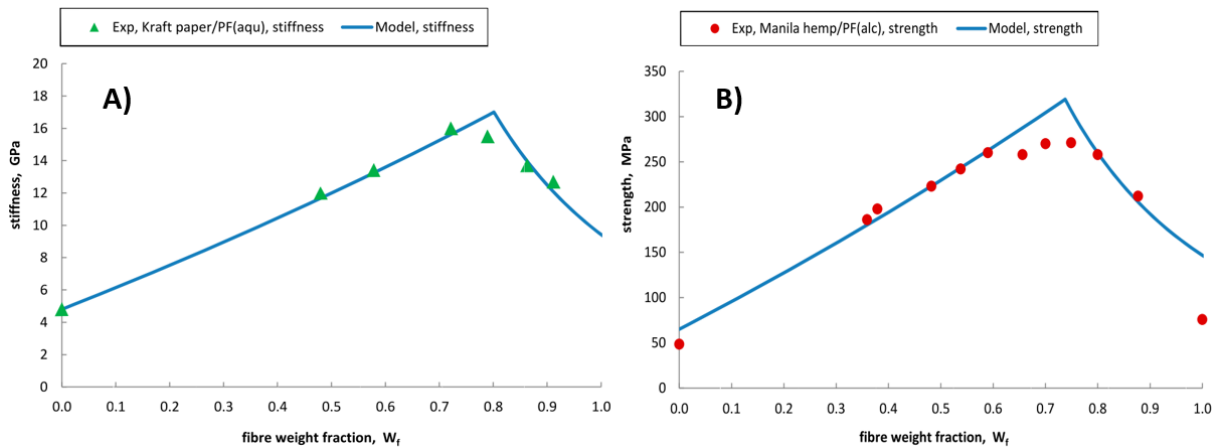


Figure 1.2.1.2.1 : Modélisation de : A) l'évolution du module d'Young (stiffness) en fonction de la fraction massique de fibres [71] ; B) l'évolution de la contrainte à rupture en fonction de la fraction massique de fibres [71]

1.2.1.3 – Température de cuisson

La température de cuisson est un paramètre qui permet, pour les résines thermodurcissables, de réticuler la matrice ou, pour les résines thermoplastiques, de fluidifier la matrice. Ce paramètre, avec la pression de consolidation, permet la mise en forme de la pièce composite.

Qu'il s'agisse d'une résine thermoplastique ou thermodurcissable, la température peut permettre de fluidifier la résine. Dans le cas d'une résine thermoplastique, cette étape est directement celle permettant la mise en forme. Un refroidissement sera donc ensuite appliqué. Dans le cas d'une résine thermodurcissable, la fluidification se fait à une température inférieure à la température de cuisson [74], [75] et dépend des propriétés thermiques et rhéologiques de la résine, dont la viscosité et le temps de gel à différentes températures [76].

Comme la vaporisation de l'eau peut provoquer l'apparition de porosités, il est nécessaire de garantir une température de cuisson inférieure à 120 °C, température à laquelle toute l'eau présente dans les fibres est considérée comme vaporisée [77]. Un composite fabriqué au-delà de cette température pourrait présenter des porosités importantes, puisque les porosités sont produites par les constituants gazeux produits lors de la fabrication et peuvent dégrader les propriétés mécaniques [70]. Or, les résines thermoplastiques nécessitent une température entre 200 °C et 400 °C [78], tandis que les résines thermodurcissables peuvent notamment être réticulées à l'ambiante. L'utilisation de résines thermoplastiques peut donc être difficile pour des composites à fibres végétales et les résines thermodurcissables peuvent leur être privilégiées.

En revanche, l'influence de la température de réticulation sur les propriétés finales des composites à fibres végétales n'a pas été autant étudiée que dans les cas des résines

thermoplastiques, généralement du fait de la faible dégradation pour les températures utilisées.

Souvent, des polyesters insaturés ou des époxy sont employés [20], [63], [74], [79]–[81]. Dans la littérature, les conditions de cuisson rencontrées vont de la température ambiante pendant 24 heures [79]–[81] à 130°C pendant 2 heures [20], [63], [74]. Le premier cas implique un temps de fabrication très long qui ne convient pas aux problématiques de production industrielle tandis que la seconde peut induire des endommagements thermiques des fibres et/ou des créations de bulles par vaporisation de l'eau. Il s'agit donc d'une étape importante qu'il faut étudier avec soin si un optimum doit être atteint, ou même approché.

1.2.1.4 – Post-cuisson

Le but d'une post-cuisson est de permettre l'aboutissement de la réticulation de la résine et de libérer les contraintes internes qui apparaissent lors de la réticulation initiale. Les fournisseurs de résine indiquent généralement que la température et la durée de post-cuisson devraient être les mêmes que lors de la réticulation.

Certains auteurs ne prennent pas en compte les dégradations possibles des fibres végétales et effectuent une post-réticulation à haute température (>150°C) [82], tandis que d'autres préfèrent employer des températures inférieures à 70°C afin de minimiser la dégradation thermique des fibres végétales [79], [81]. Les durées de post-cuisson rencontrées dans la littérature vont de 45 minutes à 24h [79], [81], [83] et sont souvent issues des fiches techniques des résines.

Néanmoins, peu de travaux sont réalisés sur ce paramètre de fabrication pour les composites à fibres végétales. Dans les travaux de C. Campana [84], des composites lin/époxy quasi-UD ont été fabriqués par infusion sous vide avec une réticulation à 80 °C pendant 24 h. Une post-cuisson a ensuite été réalisée pendant 2 h à 100 °C, 120 °C ou 150 °C. Il a été constaté plusieurs phénomènes en fonction de l'augmentation de la température de post-cuisson : la température de transition vitreuse augmente, la densité diminue, la contrainte à rupture diminue, la déformation à rupture diminue et le module augmente. Les deux premiers effets témoignent d'une meilleure réticulation, tandis que les modifications des propriétés mécaniques impliquent un comportement plus fragile du composite. Des observations similaires ont été réalisées sur les fibres seules soumises aux mêmes conditions de température. La baisse de propriétés mécaniques (contrainte à rupture et déformation à rupture) a été plus marquée de 120 °C à 150 °C, ce qui a été attribué à la dégradation thermique de composés des fibres à partir de 120 °C. De ce fait, le compromis choisi entre réticulation et propriétés mécaniques a été fixé à une post-cuisson de 2 h à 120 °C. L'objectif n'est donc pas uniquement d'appliquer une haute température pendant une longue durée. Cette étude est intéressante, car elle met en évidence l'importance de l'étude de la post-cuisson pour les composites à fibres végétales.

À des fins industrielles, il est important de minimiser l'énergie nécessaire pour effectuer la post-cuisson tout en garantissant des propriétés optimales. Pour cela, une étude détaillée de la température et de la durée de post-cuisson peut donc être nécessaire pour des renforts et une matrice donnés.

1.2.2 – Procédés de fabrication

Le procédé de fabrication nécessite généralement plusieurs étapes, qui ne sont pas toutes forcément obligatoires. Il y a le mélange des constituants, la mise en forme de la pièce (pression, cuisson, moule, ...) et les traitements des pièces fabriquées (post-cuisson, gel-coat, peinture, ...).

Il existe de nombreux procédés différents, qui nécessitent que les étapes citées précédemment soient réalisées de manière spécifique à chaque procédé. Puisque les fibres végétales présentent une compatibilité avec les résines thermodurcissables liée à la température de cuisson, plusieurs procédés de fabrication dédiés à ces résines seront présentés succinctement dans cette section [85].

Pour le moulage au contact, des fibres déposées manuellement dans un moule sont imprégnées, également manuellement, de résine par le passage d'un rouleau ou d'une brosse.

La projection simultanée constitue une évolution du procédé de moulage au contact. Des fibres coupées sont projetées simultanément avec de la résine. Après projection, un rouleau ou une brosse assure la compaction, à l'instar du procédé précédent.

Le moulage sous vide (infusion) consiste à placer le renfort entre un moule et une membrane déformable dans laquelle le vide est réalisé. Ce vide va permettre l'imprégnation progressive du renfort par la résine et la membrane prendra alors la forme du moule, assurant ainsi la fonction de contre-moule.

Le moulage par injection basse pression (RTM) : les renforts sont disposés dans un moule fermé et rigide qui est ensuite rempli de résine par un ou plusieurs points d'entrée par une basse pression.

Le moulage par compression à basse pression : les renforts et la résine sont disposés entre un moule et son contre-moule. Le poids du contre-moule ou une presse à basse pression sert à l'imprégnation à froid.

Le moulage en autoclave : les renforts et la résine sont disposés dans un moule rigide et une membrane déformable les recouvre. Un fluide au-dessus de la membrane applique une pression hydrostatique sur la membrane et un vide peut être utilisé pour l'évacuation des porosités.

La compression à chaud : les renforts et la résine sont placés entre un moule et son contre-moule. L'ensemble est ensuite placé sous une presse chaude. La presse applique la pression nécessaire à l'imprégnation des renforts.

L'injection : plusieurs possibilités existent : des fibres courtes mélangées à de la résine thermodurcissable dans une vis-à-vis froide ou des préproduits co-mêlés (renforts + thermoplastique) chauffés dans une vis-à-vis chaude sont injectées à très haute pression dans un moule chaud (thermodurcissable) ou froid (thermoplastique).

L'enroulement filamentaire : des bobines sont enroulées autour d'un moule pour la mise en œuvre de pièces creuses. Le tout est ensuite mis dans un bac d'imprégnation ou bien imprégné manuellement à l'aide d'un rouleau ou d'une brosse.

Les différentes propriétés et variables de ces procédés sont présentées dans le **tableau 1.2.2**. Dans le cadre de cette thèse, ce tableau permettra de choisir le procédé de fabrication par rapport aux renforts choisis, de la température, du taux de fibres atteignable, etc. La température et la pression doivent donc être des variables afin de pouvoir étudier différentes microstructures et de pouvoir rendre compte d'une fabrication industrialisable.

Les renforts continus seront privilégiés pour cette thèse. De plus, afin d'obtenir des résultats pour des composites structuraux, le taux volumique de fibres atteignable doit être élevé. L'autoclave et la compression à chaud semblent donc de bons candidats.

1.3 – Conclusion

Les fibres de lin ayant été étudiées dans de précédents travaux et, comme présenté dans ce chapitre, sont des candidates de choix comme renforts de composites dans le but de remplacer les fibres synthétiques. Les travaux de cette thèse porteront donc sur l'étude de composites renforcés de fibres de lin.

De plus, les problématiques soulevées quant à la fabrication des composites devront également être étudiées afin de pouvoir mettre en œuvre un composite robuste et de fabrication répétable, puisque l'utilisation structurale de ces composites est visée.

Cependant, pour envisager l'utilisation structurale des fibres végétales, l'étude de leur durabilité reste essentielle. Le chapitre suivant sera donc consacré à l'étude des différents phénomènes de vieillissement des constituants et des composites renforcés de fibres végétales.

| | Moulage au contact | Projection simultanée | Sous vide | RTM | Compression basse pression | Autoclave | Compression à chaud | Injection | Enroulement filamentaire |
|---|---------------------------------|------------------------------|-----------------------------------|--|--------------------------------------|---|---|------------------------------------|-----------------------------------|
| Pression | manuelle | manuelle | pression atmosphérique max | jusqu'à quelques bars | jusqu'à quelques bars | Jusqu'à quelques dizaines de bars | Jusqu'à quelques dizaines de bars | 150 à 180 bars | manuelle |
| Température | ambiante | ambiante | Jusqu'à plusieurs centaines de °C | Jusqu'à plusieurs centaines de °C | ambiante | Jusqu'à plusieurs centaines de °C | Jusqu'à plusieurs centaines de °C | > 150 °C | Jusqu'à plusieurs centaines de °C |
| Type de renforts | fibres continues, mats, rovings | fibres coupées | fibres continues, mats | fibres continues, mats, fibres courtes | fibres longues, mats, fibres courtes | fibres longues, courtes, mats, préimprégnés | fibres longues, courtes, mats, préimprégnés | fibres courtes | rovings |
| Taux volumique de renforts atteignable | 40% | 40% | 50% | < 50 % | < 50 % | maximum de compaction | maximum de compaction | 25% | non renseigné |
| Taille des pièces | grande taille | grande taille | grande taille | petite à moyenne taille | petite à moyenne taille | petite à moyenne taille | petite à moyenne taille | petite à moyenne taille | moyenne à grande taille |
| Forme | simple | simple | simple | simple | simple | simple | simple | simple ou complexe | simple et creuse |
| Bel aspect | une seule face | une seule face | une seule face | deux faces | deux faces | une seule face | deux faces | deux faces | face intérieure |
| Rq | - | - | - | - | - | coût élevé | - | dégradation potentielle des fibres | - |

Tableau 1.2.2 : Propriétés et variables de différents procédés de fabrication dédiés aux résines thermodurcissables

Chapitre 2 – Durabilité de composites à fibres végétales

Le vieillissement relève d'une évolution lente d'une ou plusieurs propriétés du matériau à travers une modification de la structure, de la composition ou de la morphologie des constituants. Il peut s'agir de phénomènes réversibles ou irréversibles. La durabilité d'un matériau est donc sa capacité à résister au vieillissement.

Dans le cadre des composites renforcés de fibres de lin, plusieurs mécanismes de vieillissement entrent en jeu, à des échelles différentes suivant les constituants : le vieillissement en présence d'eau, thermique, mécanique, chimique, par rayonnements, etc. À la différence des composites à fibres synthétiques, la nature des fibres végétales induit des phénomènes de vieillissement différents, notamment par exposition à l'eau. Les fibres végétales, de par leur nature, sont en effet hydrophiles et l'absorption d'eau modifie significativement leurs propriétés. L'absorption est également plus rapide que pour les composites à fibres synthétiques. Les constantes de temps mises en jeu lors des dégradations liées à cette absorption peuvent donc également être différentes. Plusieurs échelles temporelles peuvent être considérées, comme une durée de saturation ou une durée d'exposition bien plus longue.

Des microorganismes peuvent également être à l'origine de dégradation des fibres végétales en présence d'humidité. Ces microorganismes ne seront cependant pas étudiés au cours de cette thèse.

Dans le cadre de cette thèse, les sollicitations étudiées sont les sollicitations par exposition à l'eau, thermiques et mécaniques. Cette section permet de présenter les phénoménologies observées dans la littérature pour ce type de matériaux. Le vieillissement par exposition à l'eau est présenté en premier, puis le vieillissement sous sollicitation thermique. Ensuite, le vieillissement sous sollicitations mécaniques est explicité selon deux modes de sollicitations : la fatigue et le fluage. Pour finir, les couplages entre ces différentes sollicitations sont traités. L'influence du temps d'exposition à l'eau est discutée dans la section dédiée aux couplages, car la durée nécessaire pour atteindre des endommagements est grande, et, s'agissant de phénomènes de dégradation généralement thermoactivés, les essais de laboratoire nécessitent ainsi une exposition à la température pour accélérer les cinétiques d'endommagements en présence d'eau.

2.1 – Vieillissement par exposition à l'eau

Pour un vieillissement par exposition à l'eau, l'eau peut se présenter sous forme liquide dans le cas de l'immersion ou de vapeur dans le cas d'un environnement humide. Dans de nombreux domaines, il s'agit d'un vieillissement dont la quantification est primordiale pour l'utilisation des composites renforcés de fibres végétales dans des pièces structurales, comme le domaine nautique par exemple.

Deux modèles classiques de diffusion seront évoqués : la diffusion de Fick et la diffusion de Langmuir. Ensuite, les phénoménologies des constituants, séparés, sont présentées. Enfin, le vieillissement par exposition à l'eau des composites, qui peut induire des phénomènes supplémentaires via des interactions fibres/matrice, est abordé.

2.1.1 – Loi de Fick

La loi de Fick est le modèle le plus répandu et le plus simple permettant de décrire la diffusion libre de molécules d'eau au sein du réseau de polymère [86]. Ce modèle est composé de deux paramètres principaux : le coefficient de diffusion, qui définit la cinétique du phénomène, et le palier de saturation, qui correspond à la quantité maximale d'eau que le matériau peut absorber dans les conditions d'étude. Dans sa forme unidirectionnelle, la loi de Fick est alors donnée par l'équation suivante [87] :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (\text{Eq. 2.1.1.1})$$

Avec c : concentration locale en eau, x : abscisse dans l'épaisseur (en m), D : coefficient de diffusion (en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)

Le coefficient de diffusion est indépendant de l'hygrométrie [13], mais dépend de la température selon une loi d'Arrhenius.

On peut ainsi intégrer l'équation différentielle 2.1.1.1. Pour un domaine plan d'épaisseur constante h , la teneur en eau est sensiblement proportionnelle à la racine carrée du temps d'exposition pour un gain de masse jusqu'à 60% du gain de masse à saturation. Le coefficient de diffusion est obtenu selon la formule suivante :

$$D = \frac{\pi}{(4m_\infty)} \left(\frac{m_t h}{\sqrt{t}} \right)^2 = \pi \left(\frac{k}{4m_\infty} \right)^2 \quad (\text{Eq 2.1.1.2})$$

Avec m_∞ le gain de masse à saturation, m_t le gain de masse à l'instant t , h l'épaisseur de l'échantillon et k la pente de la portion linéaire de la courbe $m_t = f\left(\frac{\sqrt{t}}{h}\right)$.

2.1.2 – Modèle de Langmuir

Le modèle de Langmuir est un modèle proposé par Carter et Kibler [88] basé sur le mécanisme de Langmuir utilisé pour décrire les interactions entre l'eau et le polymère. Deux types d'eaux ont été définis : l'eau libre et l'eau liée. Ces deux types correspondent respectivement à l'eau pouvant se déplacer librement entre les chaînes macromoléculaires et à l'eau formant une liaison réversible avec le réseau de polymère. Une molécule d'eau libre peut devenir liée et inversement avec une fréquence respective α et β . Des liaisons chimiques entre l'eau et le réseau de polymère (liaison covalente) ou des microporosités peuvent être à l'origine de l'eau liée [89]. La diffusion de Langmuir peut donc être formulée selon les deux équations suivantes :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \frac{\partial^2 n}{\partial x^2} - \frac{\partial N}{\partial t} \quad (\text{Eq 2.1.2.1})$$

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \alpha n - \beta N \quad (\text{Eq 2.1.2.2})$$

Avec n le nombre de molécules d'eau libre et N le nombre de molécules d'eau liée.

Pour un domaine plan d'épaisseur constante h , l'expression du coefficient de diffusion dans l'épaisseur est obtenue selon la formule suivante :

$$D = \frac{h^2 k}{\pi^2} \text{ (Eq 2.1.2.3)}$$

Avec k calculé à partir de l'équation suivante, approchée pour des temps courts ($kt < 0.7$) :

$$m_t = \frac{4}{\pi^2} \left(\frac{\beta}{\gamma + \beta} m_\infty \right) \sqrt{kt} \text{ (Eq 2.1.2.4)}$$

Le ratio $\frac{\beta}{\gamma + \beta}$ peut être calculé à partir d'une équation à pseudo-saturation ($kt \approx 5$) :

$$m_1 = \frac{\beta}{\gamma + \beta} m_\infty \text{ (Eq 2.1.2.5)}$$

2.1.3 – Phénoménologies

2.1.3.1 – Vieillessement par exposition à l'eau de la résine

Plusieurs phénomènes sont en compétition lors d'un vieillissement par exposition à l'eau : la diffusion, la dissolution et le transport d'eau à travers les défauts.

Tout d'abord, l'eau se dissout dans le matériau, à partir de la surface extérieure, de la surface des défauts ouverts dans lesquels l'eau s'insinue par capillarité, et progresse ensuite dans le matériau par diffusion. Pour des températures inférieures à la température de transition vitreuse, la diffusion est plus lente que la dissolution, pour des épaisseurs suffisantes comme pour un composite multiplis, un gradient de diffusion apparaît et la diffusion contrôle la cinétique globale d'absorption.

Lors de la diffusion, l'eau progresse entre les chaînes macromoléculaires de la résine. L'eau peut circuler librement de site hydrophile en site hydrophile [90], et peut également s'y fixer pour former une liaison covalente. Cette eau entre les chaînes macromoléculaires provoque ce qu'on appelle communément une plastification qui correspond à une augmentation de la mobilité de ces chaînes macromoléculaires les unes par rapport aux autres (**Figure 2.1.3.1.1**). La diffusion peut être notamment décrite par le modèle de Fick (**section 2.1.1**) ou par le modèle de Langmuir (**section 2.1.2**).

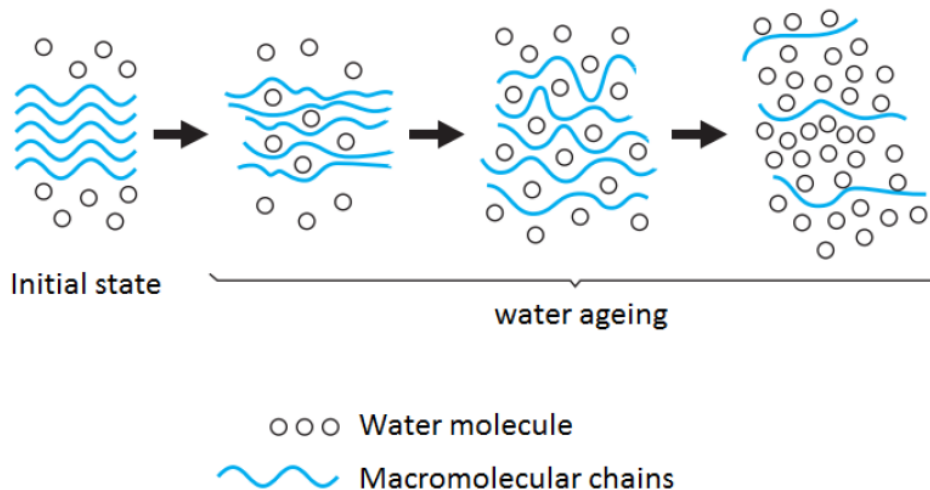


Figure 2.1.3.1.1 : Représentation de l'effet plastifiant de l'eau, adapté de [87]

De plus, l'absorption d'eau peut provoquer une hydrolyse, qui consiste en des coupures de chaînes macromoléculaires de la structure interne du polymère [6]. Aussi, le comportement devient plus déformable et la température de transition vitreuse diminue [91].

L'eau absorbée se présente sous plusieurs formes : l'eau libre, qui se trouve dans les cavités et pores du matériau, et l'eau liée, qui se fixe de manière réversible ou irréversible aux macromolécules. L'eau liée augmente la distance entre les chaînes macromoléculaires et l'eau libre remplit les défauts comme les porosités. L'absorption entraîne donc une augmentation de la masse du matériau ainsi qu'un gonflement. La **figure 2.1.3.1.2** présente une cinétique de gonflement mettant en évidence le remplissage du volume libre qui induit un gain de masse sans prise de volume [6]. Effectivement, le matériau gagnera de la masse par remplissage des espaces libres (volumes libres, porosités, fissures, lumens), sans que le volume ne soit altéré.

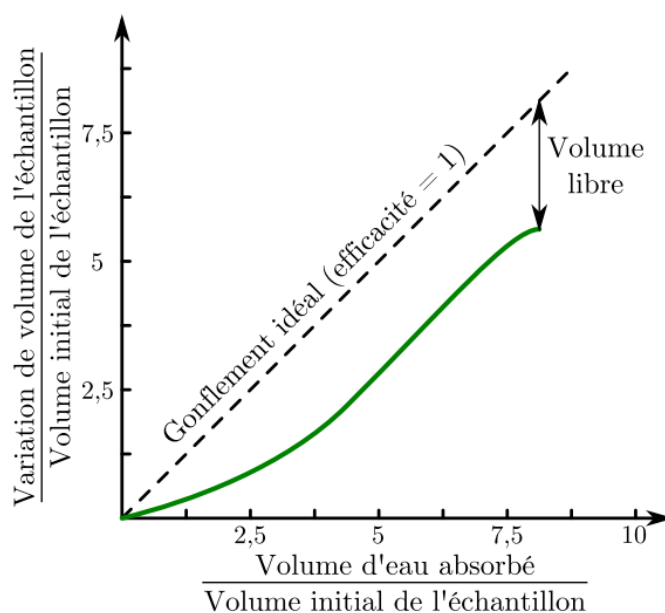


Figure 2.1.3.1.2 : Cinétique de gonflement avec mise en évidence du remplissage du volume libre [92]

2.1.3.2 – Vieillissement par exposition à l’eau des fibres végétales

Les fibres de lin sont poreuses, non homogènes et présentent une surface d’échange importante [93]. L’eau peut donc pénétrer plus facilement dans le volume libre de leur structure. De plus, leur caractère hydrophile, issu de leur composition chimique, les rend d’autant plus sensibles à l’absorption d’eau [94]. Le mécanisme d’absorption ne se limite donc plus ici à de la diffusion, mais s’étend aussi à de la capillarité dans les pores de la fibre, mais également dans le lumen présent au centre des fibres [27].

Les fibres de lin étant organisées en différentes couches, composées de polymères lignocellulosiques différents, des gonflements différentiels apparaissent au sein des fibres [95]. L’absorption d’eau peut, dans certaines conditions, endommager leur structure avec des fissurations des couches externes et des décohésions entre les microfibrilles et leur matrice constituée d’hémicellulose et de pectines [95], principalement par l’eau liée. L’eau libre remplit les pores de ces fibres perméables et le lumen. Des effets de capillarité peuvent donc se produire. L’eau liée entraîne des pertes de rigidité, qui peuvent provoquer des endommagements [95] et des modifications chimiques des fibres [96]. Effectivement, l’eau liée provoque une plastification de certains constituants macromoléculaires de la paroi des fibres [27], qui augmente leur déformabilité, mais diminue également leur rigidité et leur résistance [95]. Cette plastification induit aussi une mobilité accrue des microfibrilles dans la paroi des fibres [97].

Le **tableau 2.1.3.2** présente des propriétés de diffusion relevées dans la littérature [27], [95], [98] pour différents composites et différentes conditions de sollicitations, et selon des modèles de diffusion différents (voir **sections 2.1.1 et 2.1.2**).

| Type de fibres | Modèle de diffusion | Conditions d’exposition | Paramètres de diffusion | | Référence |
|----------------|---------------------|-------------------------|-------------------------|----------------------|-----------|
| | | | D (m ² /s) | M _{sat} (%) | |
| Jute | Fick | Immersion à 23 °C | 1.2 .10-12 | 67.8 | [98] |
| | Langmuir | | 5.9 .10-12 | | |
| | Fick | 80 %HR, 23 °C | 4.0 .10-10 | 12.3 | |
| Sisal | Fick | Immersion à 23 °C | 2.2 .10-12 | 60.6 | |
| | Langmuir | | 9.1 .10-12 | | |
| | Fick | 80 %HR, 23 °C | 1.2 .10-10 | 11.2 | |
| Lin | Fick | Immersion à 23 °C | 1.2 .10-12 | 62.5 | |
| | Langmuir | | 6.8 .10-12 | | |
| | Fick | 80 %HR, 23 °C | 2.0 .10-10 | 12 | |
| Lin | Fick | 75 %HR, 23 °C | 3.7 .10-10 | - | [95] |
| Lin | Fick | 66 %HR, 23 °C | 4.0 .10-10 | 15 | [27] |

Tableau 2.1.3.2 : Propriétés de diffusion des fibres végétales [27], [95], [98]

2.1.4 – Vieillissement par exposition à l'eau des composites

L'utilisation de fibres végétales dans des applications en extérieur, voire en contact direct avec l'eau, nécessite la compréhension des phénomènes de vieillissement que ce soit en immersion ou en conditions humides. De nombreuses études ont déjà souligné l'importance du rôle que jouent les fibres dans ce vieillissement, du fait de leur caractère hydrophile [67], [94], [96], [99], [100].

2.1.4.1 – Phénoménologies

Plusieurs mécanismes d'absorption se produisent simultanément : la diffusion de l'eau dans le polymère [101], [102], la capillarité dans les défauts et l'interface fibre-matrice [19], [100] et l'absorption d'eau par les fibres végétales. Comme précisé précédemment, la diffusion a une cinétique plus faible que les autres phénomènes. De ce fait, l'absorption globale du composite va grandement dépendre de la cinétique de diffusion plutôt que de la capillarité.

En effet, dans la littérature, la diffusion semble piloter l'absorption globale dans les composites lin / époxy selon une loi de Fick [65], [103], parfois un modèle de Langmuir [86], [98] ou encore des modèles plus complexes comme une combinaison des modèles de Langmuir et de Henry [104].

Cette absorption d'eau provoque une altération des propriétés des matériaux composites. En effet, des diminutions nettes du module d'Young avec la saturation en eau des composites lin / époxy ont été observées [65], [67]. Cette diminution, dans les travaux de Le Duigou *et al.* [57], est linéaire en fonction de la prise en masse et réversible après séchage, car elle dépend principalement de la modification sans endommagement des propriétés des composants avec l'absorption d'eau.

Les courbes obtenues lors d'essais de traction présentent une inflexion (coude) au début de la courbe similaire à celle rencontrée pour le comportement des fibres, avec une portion linéaire ensuite ou bien une portion non linéaire suivie d'une portion linéaire (voir [section 1.1.1](#)). Pour des composites avant vieillissement, des auteurs ont ainsi pu observer ces différents comportements sur des composites de lin unidirectionnels [65], [105]. En revanche, dans de précédents travaux [65], le comportement bilinéaire observé avant vieillissement a subi une altération pour rejoindre le comportement en trois phases après vieillissement hygrothermique. Cet effet a été attribué à la plastification de la résine époxy et des fibres par les molécules d'eau.

En revanche, l'effet sur la contrainte à rupture sous chargement de traction simple monotone reste dépendant de la structure du matériau et des conditions de sollicitations. Des observations contradictoires ont en effet été observées dans la littérature [57], [65], [67], [106]. Parfois une augmentation de la contrainte maximale (ou UTS pour Ultimate Tensile Strength) avec la saturation a été observée, attribuée à un phénomène de frettage des fibres gonflées par l'absorption d'eau, améliorant ainsi les propriétés de l'interface fibres-matrice. Dans d'autres cas, une diminution a été constatée, attribuée à des microfissures provoquées par le gonflement excessif des fibres dans la résine et par une dégradation de l'interface fibre-matrice ainsi que des propriétés des constituants.

Une augmentation de l'allongement à rupture avec la saturation est également constatée, issue également de la plastification des composites [57], [65], [67], [106].

2.1.4.2 – Vieillissement par exposition cyclique à l'eau

Dans le cas d'une exposition à des conditions hygrothermiques / hydrothermiques évolutives, telles que par exemple celles rencontrées pour une utilisation extérieure, où le matériau subit alors des cycles de sollicitations hydrothermiques. Des phases d'absorption suivies de phases de désorption peuvent ainsi provoquer des endommagements additionnels.

Il est donc important de comprendre les phénomènes qui se produisent lors d'une de ces phases qu'est le séchage. Les fibres perdent du volume plus rapidement que la résine par désorption. Ainsi, le séchage peut provoquer un retrait important des fibres et créer des décohésions fibres-matrices importantes [107].

De ce fait, l'alternance entre une phase d'absorption et de désorption entraîne de fortes décohésions en plus des endommagements de la résine liée au gonflement des fibres lors de la phase d'absorption. Les mécanismes en jeu peuvent donc se résumer en 3 étapes, présentées sur la [figure 2.1.4.2.1](#) [107]. Tout d'abord, la fibre gonfle et peut provoquer des endommagements dans la résine (microfissures), l'eau peut ainsi circuler plus facilement à travers ces microfissures et à l'interface dégradée, puis le séchage provoque un retrait important des fibres qui laisse l'interface fibre-matrice fortement endommagée [62], [93]. Dans les travaux de Le Duigou *et al.* [57], une baisse de l'UTS a en effet été observée après un séchage d'éprouvettes de composite lin / époxy saturées.

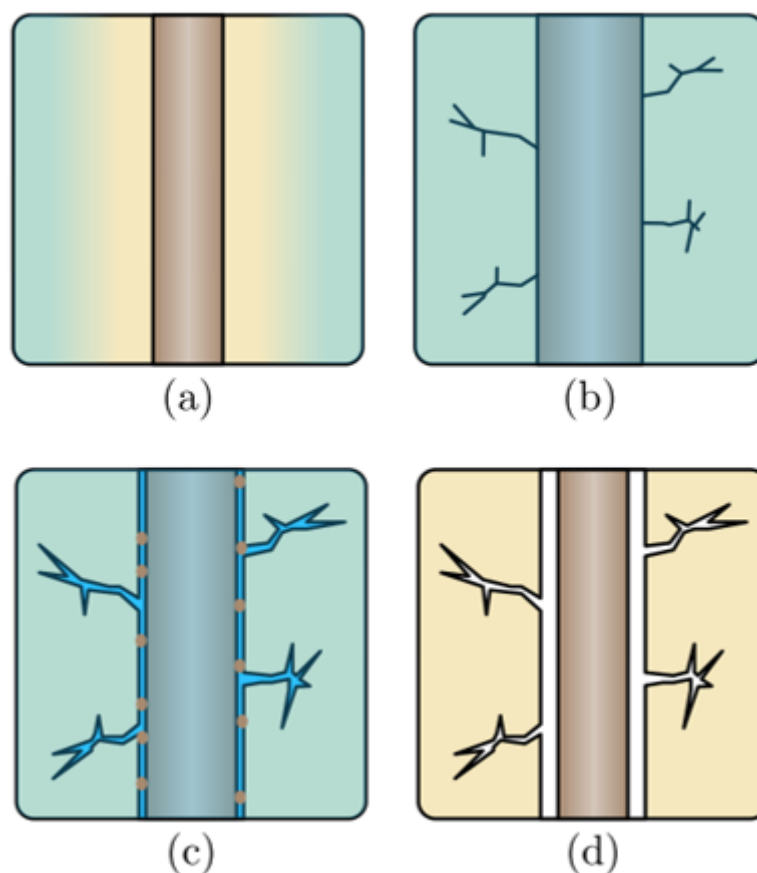


Figure 2.1.4.2.1 : Endommagements de composites lignocellulosique lors d'un cycle d'absorption - désorption, adapté de [107]

Des sollicitations cycliques peuvent donc provoquer des endommagements de plus en plus importants lors des cycles successifs, puisque les endommagements accélèrent eux-mêmes les phénomènes d'absorption ou de désorption d'eau.

Dans les travaux de Newman [62], l'épaisseur résiduelle des composites augmente progressivement avec l'augmentation du nombre de cycles subis, tandis que la masse résiduelle diminue par rapport à la masse initiale, ce qui a été attribué à de l'érosion de morceaux de résine.

Sur la [figure 2.1.4.2.2](#) [60], une altération de la diffusion est observée pour des composites sisal/époxy lors de cycles de sollicitations hydrothermiques (immersion à 20 °C pour la phase d'absorption et séchage à 50 °C), avec une augmentation de la masse à saturation ainsi qu'une augmentation du coefficient de diffusion, jusqu'à une dizaine de cycles suivis d'une stabilisation. Ces observations ont également été faites pour des matériaux composites lin / époxy [62]. Cela traduit que les endommagements accélèrent ensuite la diffusion, ce qui provoque davantage d'endommagements. Pourtant, pour des fibres de jute seules, la masse à saturation diminue légèrement en fonction du nombre de cycles d'absorption / désorption du fait d'endommagement des fibres par hydrolyse (donc une possible perte d'éléments) et la cristallinité des constituants diminue irréversiblement [61].

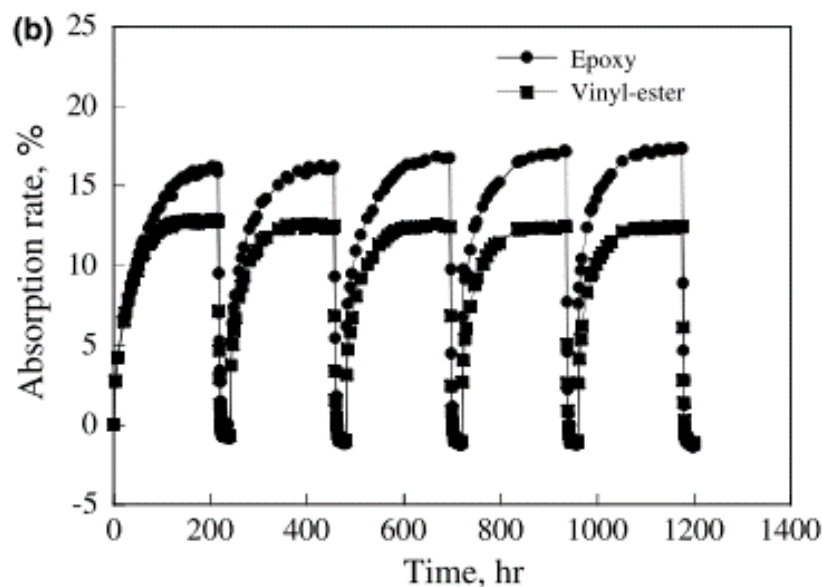


Figure 2.1.4.2.2 : Diffusion lors de cycles d'absorption - désorption avec endommagements de composite sisal / époxy et sisal / vinyl-ester [60] sous sollicitations hydrothermiques (immersion à 20 °C pour la phase d'absorption et séchage à 50 °C)

Pour les composites et sollicitations cités précédemment, toutes ces modifications altèrent la structure des fibres et du composite et provoquent une baisse des propriétés mécaniques. L'UTS et le module sont ainsi diminués tandis que l'allongement à rupture augmente avec le nombre de cycles. Ces modifications de propriétés apparaissent clairement sur la [figure 2.1.4.2.3](#) [60]. Le comportement à rupture a été modifié à partir du 4^e cycle, témoignant de la plastification des constituants et de l'endommagement du composite. Des observations similaires ont été faites par Gassan et Bledzki [61] sur un composite jute / époxy, mais une stabilisation du module d'Young après 3 cycles a été également constatée.

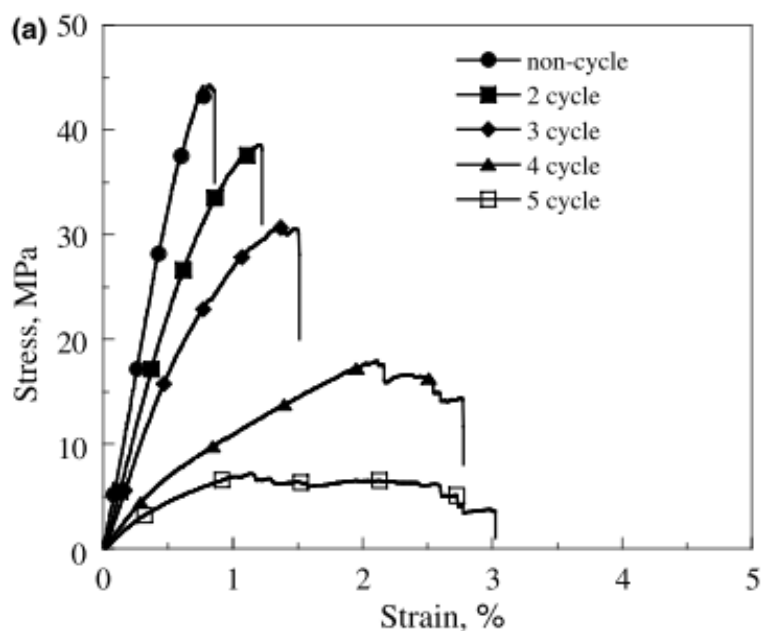


Figure 2.1.4.2.3 : Courbes de traction monotone sur composites sisal / époxy après des cycles d'absorption / désorption [60] sous sollicitations hydrothermiques (immersion à 20 °C pour la phase d'absorption et séchage à 50 °C)

2.2 – Vieillessement thermique

Dans des conditions classiques d'utilisation des composites, les structures peuvent également être confrontées à des températures variables. Il est donc nécessaire d'étudier les phénomènes de vieillissement liés à la température. En revanche, dans cette section, les dégradations à haute température ne sont pas présentées, afin de se concentrer sur les conditions d'utilisation et de mise en œuvre des composites (<105°C pour des composites à fibres végétales [108]).

2.2.1 – Vieillessement thermique de la résine thermodurcissable

La température peut induire deux phénomènes de vieillissement pour une matrice polymérique dans des conditions d'utilisation : la relaxation structurale et la thermo oxydation.

2.2.1.1 – Relaxation structurale

La relaxation structurale dépend des conditions de refroidissement lors de la mise en forme du composite. En effet, durant le refroidissement, la matrice durcit, ce qui diminue la mobilité des molécules la composant. La mise en place de la configuration du réseau macromoléculaire prend cependant trop de temps par rapport au refroidissement, le matériau se trouve donc figé dans un état métastable, qui est à l'origine de la relaxation structurale.

Cette relaxation structurale augmente la contrainte au seuil de plasticité et fragilise le matériau [6]. Elle ne dépend que de la température et de la contrainte appliquée au matériau, mais l'environnement extérieur n'a pas d'influence. De plus, elle n'entraîne aucune variation de masse ou de composition.

2.2.1.2 – Thermo oxydation

La thermo oxydation consiste en une altération par l'oxygène présent dans l'air d'une couche de résine. Cette transformation est une réaction chimique qui dépend fortement de la composition de la matrice [109]. Elle se repère visuellement par un changement de couleur de la résine, comme il a été observé sur des échantillons de polymères époxy dans les travaux de Buch et Shanahan [110].

La thermo oxydation implique une variation de la densité et de la masse à cause de l'évacuation des produits volatils, qui proviennent des réactions chimiques mises en jeu.

Elle impacte le comportement des polymères par fragilisation des surfaces altérées [109]. En effet, la thermo oxydation induit des microfissures, du micro délaminage et des décohésions fibres-matrice, constituant des amorces d'endommagements qui ont pour effet de diminuer les propriétés à rupture des polymères.

2.2.2 – Vieillessement thermique des fibres

Dans les conditions d'utilisation, les fibres de lin sont susceptibles de se dégrader sous l'effet de la température. Pour un séchage en étuve à partir de 105°C, pour des expositions de plusieurs heures, une diminution des propriétés mécaniques apparait [108]. Au-delà de 120°C, des pertes de graisses en surface sont observées et, à 180°C, les pectines se détériorent [77]. En revanche, autour de 320 °C et de 410 °C, des dégradations des autres composants sont observées sur la [figure 2.2.2](#) par analyse thermogravimétrique d'une fibre de lin [111].

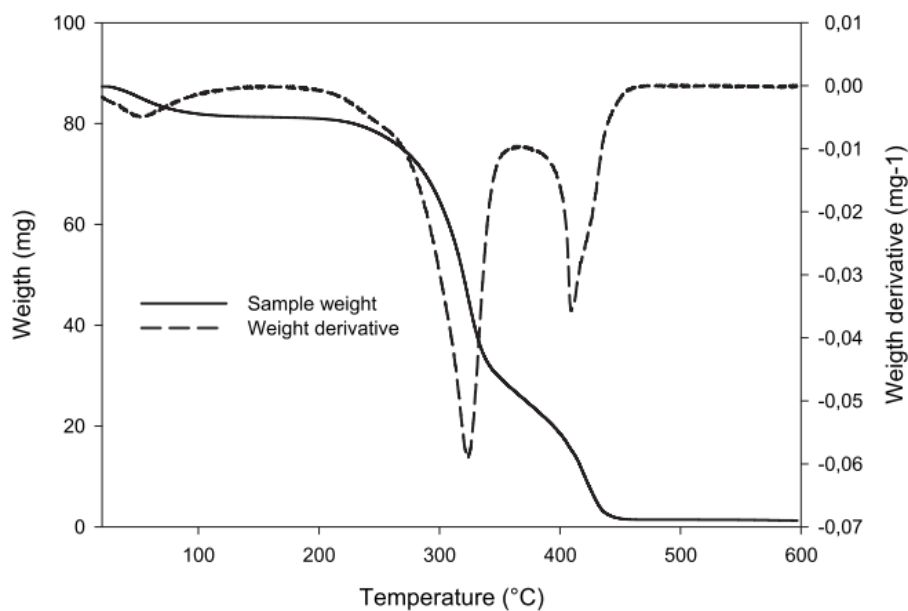


Figure 2.2.2 : Courbe thermogravimétrique d'une fibre de lin [111]

En revanche, ces dégradations de composés sont à corrélérer avec l'évolution de propriétés mécaniques, puisque la dégradation de différents composés induit des changements de propriétés mécaniques différents.

Ainsi, une augmentation de la température dans les travaux de B. Wielage *et al.* [112] a entraîné une forte diminution de la résistance en traction. Il est important de noter que la température étudiée dans ces travaux était supérieure à 180°C, or les dégradations observées correspondaient principalement à de l'oxydation de régions amorphes de la cellulose.

Pour se focaliser sur les conditions d'utilisation et de mise en œuvre d'un composite à fibres végétales (<100 °C), cette dégradation ne sera pas considérée.

2.3 – Vieillessement par sollicitations mécaniques

Le vieillissement induit par des sollicitations mécaniques peut apparaître sous plusieurs types de sollicitations : une sollicitation cyclique, une sollicitation statique ou toute combinaison de sollicitations cycliques et statiques.

La sollicitation statique (fluage) induit un vieillissement, mais sur des échelles temporelles généralement très longues. Dans le cas de structures utilisées en ingénierie, le fluage provoque peu de ruptures par ses seuls effets. Les altérations des propriétés peuvent en revanche être responsables d'une rupture pour d'autres modes de sollicitations.

La sollicitation cyclique (fatigue) est la principale cause de rupture des pièces et structures utilisées en ingénierie du fait d'une accumulation d'endommagements au cours du temps de vie [113], [114]. Cela fait de la fatigue un aspect primordial à étudier pour envisager une utilisation industrielle de tout matériau. Elle dépend du nombre de cycles effectués, ce qui peut se produire à différentes échelles temporelles.

Les phénomènes de fluage se retrouvent partiellement dans le comportement en fatigue et seront donc étudiés de manière succincte. Ainsi, dans cette section, le fluage est évoqué en premier lieu et la fatigue est traitée en second lieu.

2.3.1 – Fluage

Lorsque les matériaux présentent une réponse viscoélastique, la variation de déformation au cours du temps sous une sollicitation statique est majoritairement réversible dans le temps. Sinon, il s'agira d'un comportement viscoplastique, lequel présente alors une partie de la déformation irréversible. Dans tous les cas le fluage est un comportement dépendant du temps et de la température. La **figure 2.3.1** propose une synthèse du comportement en fluage de composites à fibres végétales. En effet, sur la courbe **A**, la déformation est représentée en fonction du temps de fluage [115].

Trois zones distinctes sont observables. La première consiste en une forte augmentation de la déformation, la seconde en une stabilisation de la vitesse de déformation (augmentation légère et constante de la déformation) et la troisième précède la rupture avec une forte augmentation de la déformation avec des endommagements liés au fluage qui apparaissent [115]. Il est important de noter que la zone tertiaire n'apparaît que pour de longues durées ou bien de fortes contraintes de fluage.

Sur les courbes **B)** et **C)**, la déformation et le module évoluent en fonction du temps de fluage en fonction de la température d'essai [116]. Les résultats des courbes **B)** et **C)** montrent donc que le fluage induit une augmentation de la déformation moyenne et une diminution du module [6], [116].

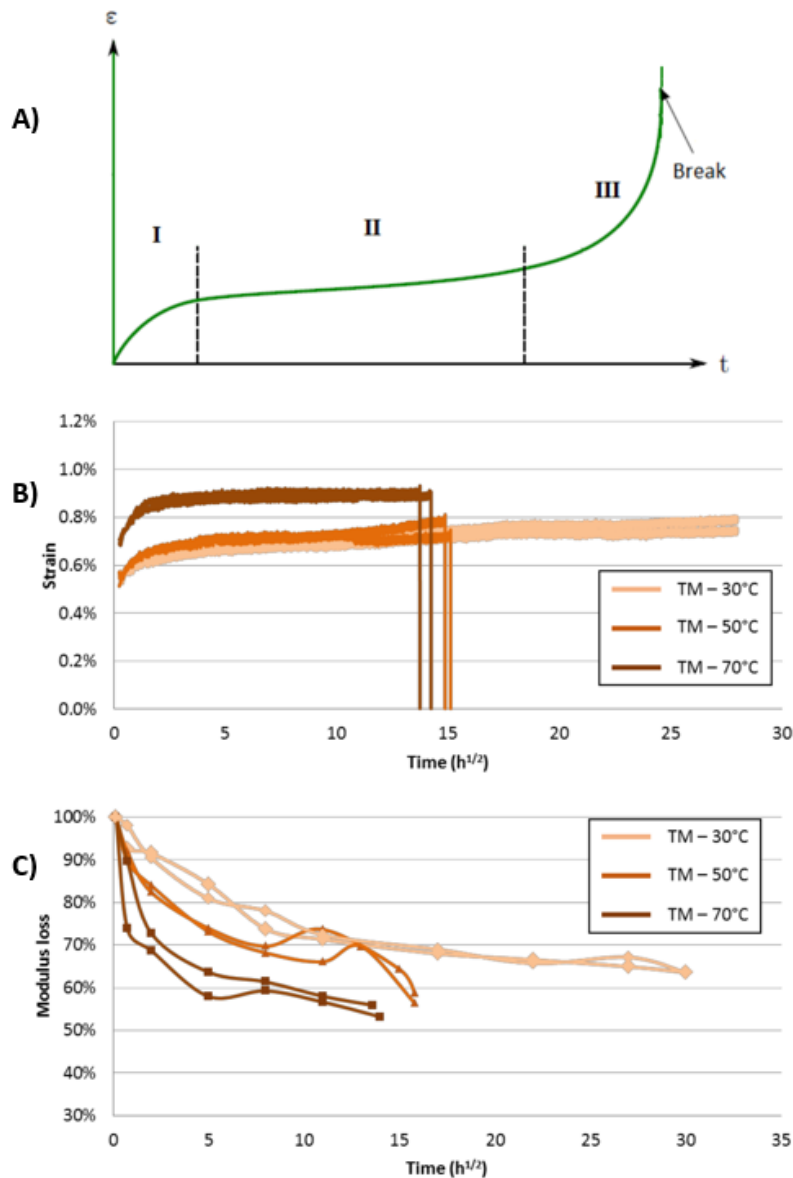


Figure 2.3.1 : Comportement en fluage de composites : **A)** Déformation théorique en fonction du temps de fluage [115] ; **B)** Déformation en fonction du temps de fluage d'un composite à fibres de lin sous différentes températures d'essai (TM) [116] ; **C)** Rigidité en fonction du temps de fluage d'un composite à fibres de lin sous différentes températures d'essai (TM) [116]

2.3.2 – Fatigue

Dans cette section, la majorité des études sur des composites à fibres végétales mentionnées ont été réalisées en amplitude de contraintes fixe sous chargement uniaxial en traction-traction à 5 Hz et un ratio de chargement $R = 0.1$ [43]. Si rien n'est spécifié, ce sont donc ces paramètres qui ont été utilisés dans les références citées ici, et tout changement par rapport à ces conditions de référence est notifié.

Ces paramètres jouent un rôle important puisqu'une variation de fréquence, par exemple, aura un effet non négligeable (cf. [figure 2.3.2](#) [117]). De 0.5 Hz à 2 Hz, des différences majeures peuvent être observées sur la rigidification au cours des cycles, qui correspond à une augmentation de la pente de chaque cycle de fatigue, du fait de la viscoélasticité des composites testés provoquant une rigidification dépendante de la vitesse de sollicitations. Ceci a été attribué au fait que cette rigidification est principalement due à la durée de chargement et non pas au nombre de cycles. En revanche, dans la même étude [117], aucune différence de comportement n'est obtenue à 2 Hz et à 5 Hz, la durée de chargement étant faible, avec l'hypothèse émise, la différence est donc non significative. De plus, le ratio de chargement R a également un impact significatif sur la durée de vie en fatigue [118], [119]. Effectivement, une augmentation du ratio implique une diminution de l'amplitude dynamique de contraintes [118] ce qui induit une augmentation de la contrainte moyenne appliquée, ce qui peut accélérer l'apparition d'endommagements.

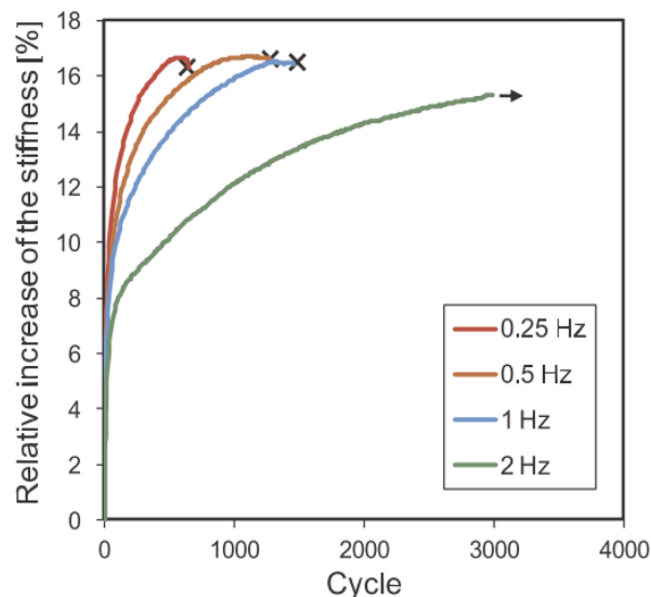


Figure 2.3.2 : Influence de la fréquence de sollicitations en fatigue de composites lin/époxy unidirectionnels [117]

De plus, il est important de noter que les chargements sont uniaxiaux tandis que pour une utilisation réelle, une structure peut subir des chargements multiaxiaux. Cette multiaxialité ne sera cependant pas discutée ici.

2.3.2.1 – Mécanismes d'endommagement

Tout d'abord, il est important de noter que les mécanismes d'endommagement liés à la fatigue sont indépendants du type de plante utilisée dans les composites [118], du moins pour des fibres issues de la tige des plantes, comme pour le lin, le jute ou le chanvre.

Les endommagements et les modes de rupture sont les mêmes que ceux identifiés lors d'essais quasi statiques sur ces composites (c'est-à-dire des fissures dans les parois des fibres, des fissures interfaisceaux, des décohésions fibre/matrice, des pull-out de fibres, des ruptures de fibres et du délaminage) [120]–[122]. En revanche, des fissures dans les zones riches en résine ne sont pas usuellement observées [121].

Sur la **figure 2.3.2.1** [120], des observations au MEB ont mis en évidence les phénomènes de fissuration. Des endommagements à l'intérieur des faisceaux de fibres apparaissent dès le premier tiers de la durée de vie totale en fatigue (a). Cela peut correspondre à une rupture de l'interface pectique entre les fibres au sein des faisceaux [120]. Après 2/3 de la durée de vie totale en fatigue, des fissures à l'interface fibre/matrice apparaissent (b). Cela traduit que l'adhésion fibre/matrice est meilleure que l'adhésion fibre/fibre au sein d'un faisceau [43]. À la rupture du composite (c), les fissures se sont propagées à l'interface fibre/fibre et dans la résine.

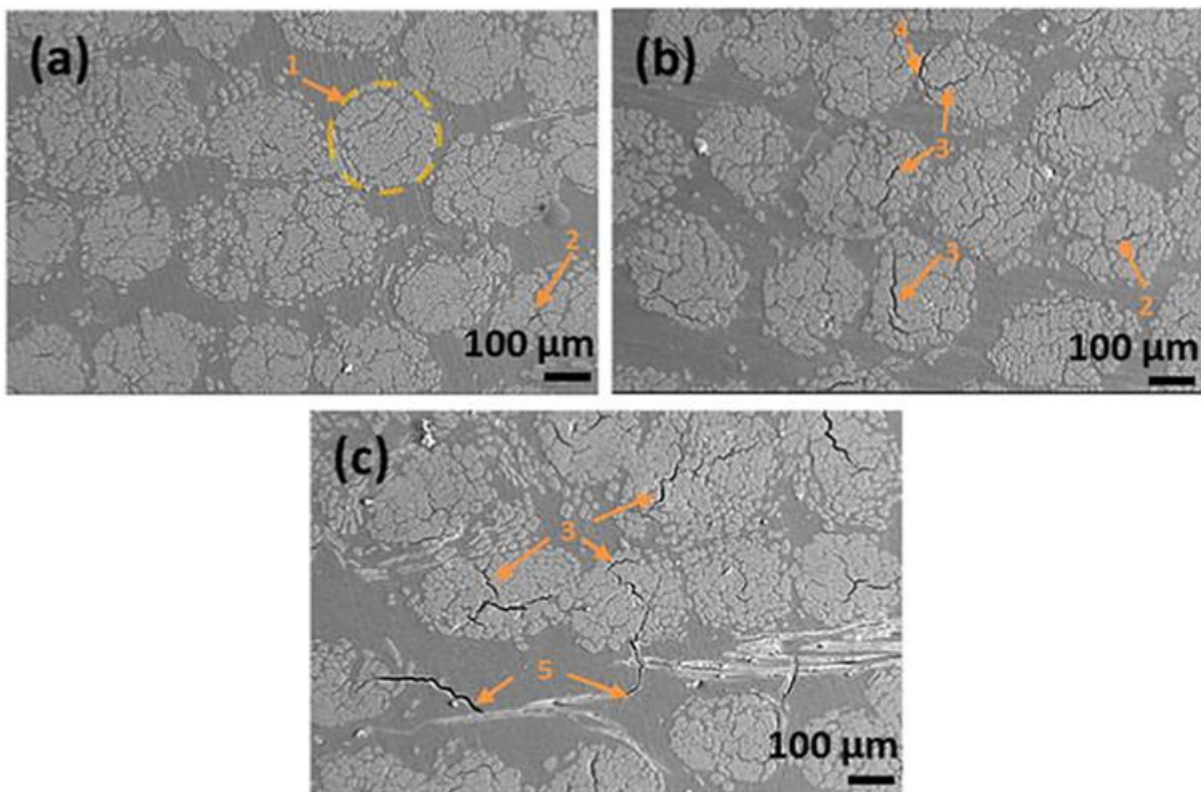


Figure 2.3.2.1 : Clichés au MEB de composites lin/époxy unidirectionnels (a à c) respectivement après un tiers, deux tiers et la totalité de la durée de vie en fatigue [120]
1 : faisceau de fibres, 2 : début de fissure intrafaisceau, 3 : propagation de fissures intrafaisceau, 4 : fissure à l'interface faisceaux - matrice, 5 : propagation de fissures dans la résine

Lors d'essais instrumentés avec des capteurs d'émission acoustique, des auteurs [120], [121] ont déterminé que les endommagements pouvaient être classés en fonction de

l'amplitude maximale des salves avec : fissure de la résine (ici de l'époxy) entre 35 et 53 dB, fissure à l'interface fibre/matrice entre 58 et 63 dB et rupture des fibres entre 66 et 100 dB. Néanmoins ces approches de classification par méthode monoparamétrique sont à considérer avec prudence [123]. Ces endommagements sont apparus principalement dans deux phases extrêmes de la durée de vie, soit les 20 premiers pourcents et les 20 derniers pourcents [120], [121].

De plus, la densité de fissures dans le composite est corrélée aux déformations du matériau [120], [121], ce qui permet d'avoir accès à un indicateur de ces endommagements au cours de l'essai [43].

Aussi, les paramètres microstructuraux ont une influence sur le comportement en fatigue des matériaux. Un taux volumique de fibre élevé permet d'augmenter la durée de vie en fatigue [118], [124], [125], du moins jusqu'à un Vf de 40 % a minima. L'orientation des plis dans l'empilement a également un impact [105], [118], [120], [121], [126], mais seulement au-delà de la limite d'endurance [105], à environ 30 % de l'UTS. Il a donc été déterminé que les stratifications [$\pm 45^\circ$] se déforment moins en fatigue que les stratifications [$0^\circ/90^\circ$] [121], [126], [127], mais les stratifications unidirectionnelles [0°] sont celles qui mènent à des déformations résiduelles les plus faibles [105], [128].

2.3.2.2 – Évolution des propriétés mécaniques

Les matériaux composites à fibres végétales suivent, dans la majorité des cas [43], une loi logarithmique quant à l'évolution du nombre de cycles avec la contrainte appliquée, mais peuvent parfois suivre davantage une loi puissance. Dans le cas d'une loi logarithmique, une loi de Wöhler est utilisée :

$$\log(N_f) = A + B \cdot \sigma_{max} \quad (\text{Eq 2.3.2})$$

Avec N_f : durée de vie en fatigue, σ_{max} : la valeur maximale de contrainte appliquée. A et B sont des paramètres qui seront déterminés à des fins de comparaisons dans le [tableau 2.3.2.2](#) [43]. Les paramètres des courbes de Wöhler associés à des composites unidirectionnels y sont référencés.

| Type de fibre | Résine | Taux vol. de fibres | A | B |
|--------------------|----------------------------|---------------------|-------|--------|
| Sisal | Epoxy | environ 70 % | 9.724 | -0.029 |
| Lin, Jute et Sisal | Polyester | entre 32 et 38 % | 9.470 | -0.037 |
| Chanvre | Polyester | environ 36 % | 10.98 | -0.062 |
| Chanvre | Polyéthylène haute densité | environ 14 % | 9.224 | -0.268 |
| Lin | Epoxy | entre 43 et 49 % | 8.881 | -0.025 |

Tableau 2.3.2.2 : Paramètres des courbes de Wöhler pour différents types de composites unidirectionnels avec un empilement [0°] à fibres végétales [43]

En couplant ces sollicitations de fatigue avec des conditions hygrothermiques ambiantes, les composites lin/époxy ont de bonnes performances mécaniques, avec des

pentés de courbe de Wöhler comparables à celles de composites renforcés de fibres de verre [105], [117]–[122], [126].

Ensuite, la limite en fatigue n'a pas été clairement identifiée puisque la plupart des essais ont été arrêtés à un maximum de 1 ou 2 millions de cycles.

Lors d'essais de potentiel restant après 500.000 cycles en fatigue à 30 % de l'UTS, Bensadoun [105], [128] n'a pas observé de différence avec le comportement quasi-statique sans fatigue préalable. Cela a été attribué à un endommagement par fatigue de la matrice et des interfaces. Effectivement, puisque la rupture quasi-statique se produit principalement par rupture des fibres dans ses travaux, les endommagements issus de la fatigue n'ont pas impacté le mode de rupture, donc n'ont pas conduit en la rupture prématurée des fibres.

Cela signifie qu'il peut y avoir une possibilité de déterminer plus rapidement une limite d'endurance, si elle existe pour les composites à fibres végétales, à l'aide de critères d'endommagements, par exemple la contrainte pour laquelle le comportement sous chargement monotone (CM) après 2 millions de cycles sans rupture reste le même que sans fatigue [43].

Cependant, la détermination de la durée de vie en fatigue, ou la limite en fatigue, ne suffit pas pour caractériser les performances d'un composite. En effet, même pour des composites avec une durée de vie en fatigue similaire, l'évolution du comportement des composites (déformation et rigidité) n'est pas toujours la même puisqu'elle va dépendre du type de fibres notamment [43].

Pour les composites à fibres de lin dans une matrice époxy, le comportement en fatigue ne se conforme pas au comportement classiquement observé pour les composites renforcés de fibres longues de verre ou de carbone [105], [120], [121], [126], [128]. Ce comportement classique est rapporté sur la [figure 2.3.2.2.1](#) [129]. En effet, pour les composites à fibres de lin, une forte augmentation de la rigidité est observée dans un premier temps, puis une stabilisation, ou une augmentation légère, jusqu'à environ 80 % à 90 % de la durée de vie en fatigue, puis la rigidité diminue juste avant la rupture [43] (cf. [figure 2.3.2.2.2](#) [120]). Cette rigidité est parfois mesurée comme la pente entre les points extrêmes des cycles de chargement, comme la pente à l'origine lors de la phase de chargement de chaque cycle ou bien comme la pente à l'origine lors de la phase de déchargement de chaque cycle.

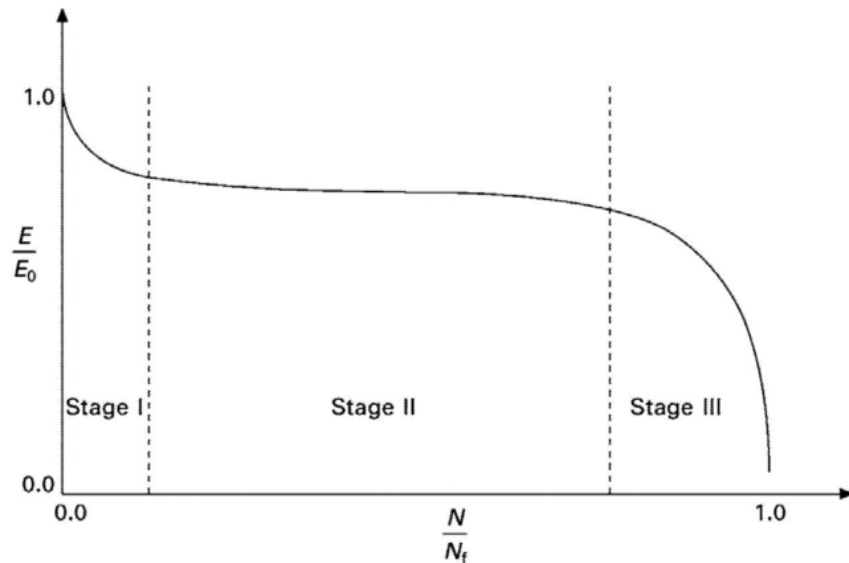


Figure 2.3.2.2.1 : Perte de rigidité classiquement observée dans les composites renforcés par des fibres synthétiques au cours d'un essai de fatigue (N étant la durée de vie en fatigue et Nf la durée de vie totale en fatigue de l'échantillon) [129]

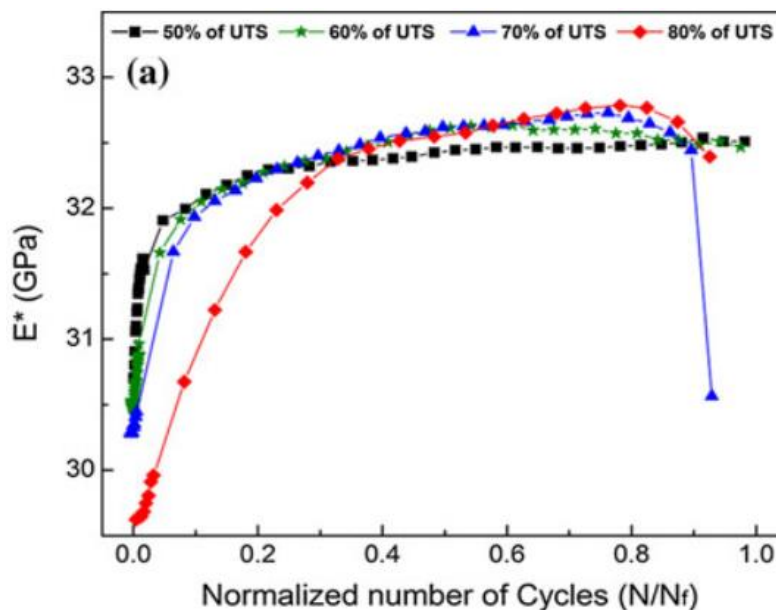


Figure 2.3.2.2.2 : Évolution de rigidité classiquement observée dans les composites renforcés par des fibres végétales au cours d'un essai de fatigue (N étant la durée de vie en fatigue et Nf la durée de vie totale en fatigue de l'échantillon) [120]

Cette rigidification dépend également du niveau de chargement (NC) appliqué. En revanche, Liang *et al.* [121] observent une augmentation de rigidité plus faible pour des niveaux de contraintes (NC) élevés, tandis que El Sawi *et al.* [120] observent un effet inverse. Il est important de noter que, dans le cas de Liang *et al.* [121], la déformation a été estimée à partir du déplacement de traverse tandis que, pour les travaux de El Sawi *et al.* [120], un extensomètre a été utilisé et les mesures peuvent donc être considérées plus fiables [43]. De plus, dans de précédents travaux [65], pour des hauts NC, une légère diminution du module

dynamique a précédé une augmentation de la rigidité et, pour des NC plus faibles, la rigidité a rapidement augmenté pour atteindre un plateau jusqu'à la rupture.

Cette rigidification au cours de la fatigue est souvent attribuée à une réorganisation microstructurale (réorientation de microfibrilles, cristallisation de la cellulose amorphe due à la déformation) qui a pour conséquence cette augmentation de rigidité [105], [118], [120], [121], [126], [128]. Ces changements sont partiellement irréversibles et entraînent une déformation permanente dans le sens des fibres. Cependant, ces hypothèses sont à considérer avec beaucoup de précautions, car elles n'ont pas pu être démontrées à l'heure actuelle, l'analyse *in situ* de ces phénomènes étant d'une grande complexité [43].

Aussi, la déformation moyenne mesurée est en augmentation permanente au cours des essais de fatigue selon une évolution en trois étapes : une première augmentation rapide et importante au début de l'essai, une augmentation faible pour le reste de l'essai, puis de nouveau une augmentation rapide avant rupture [65]. Cette évolution peut être observée sur la **figure 2.3.2.2.3** [121]. C'est dans la première étape que la déformation permanente s'accumule le plus [105]. De plus, la déformation résiduelle est d'autant plus grande que la rigidification est importante [117]. Cette augmentation de la déformation moyenne peut être attribuée à des comportements dépendant du temps. En effet, les composites à fibres végétales ont un comportement viscoélastique qui peut induire un tel comportement dépendant du temps lors d'essais de traction monotone [130], [131]. En plus, des endommagements et des effets de fluage peuvent se produire et augmenter la déformation moyenne [65], [120].

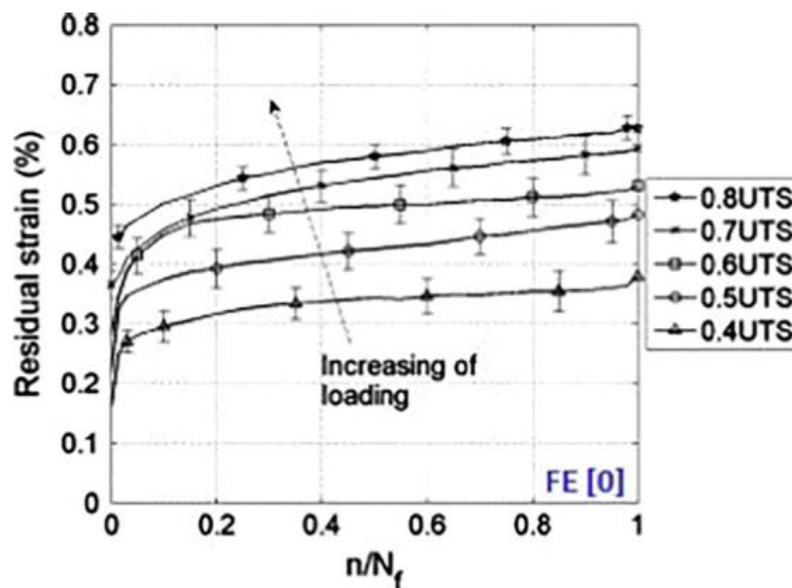


Figure 2.3.2.2.3 : Courbe déformation résiduelle = $f(\text{fraction de vie})$ illustrant l'évolution de la déformation au cours de l'essai de fatigue [121]

Suivant les publications, différentes déformations sont mesurées : la déformation totale [126], [132], la déformation permanente ou résiduelle [105], [117], [121], [128], la déformation moyenne [120] et la déformation minimale du chaque cycle [126], [132].

L'énergie dissipée diminue au cours de la fraction de vie en fatigue [121], [133], [134]. Cette énergie est calculée à l'aide de l'aire des boucles d'hystérésis de la contrainte en fonction de la déformation au cours de chaque cycle. Cette énergie est proportionnelle au

niveau de chargement appliqué [121]. Elle peut également servir d'indicateur d'endommagement [132].

De nombreux phénomènes ont donc pu être identifiés à l'heure actuelle, mais d'autres essais sont nécessaires, notamment à différents rapports de chargement R, et des essais supplémentaires permettraient de confirmer l'évolution des propriétés des matériaux ainsi que les indicateurs d'endommagement [43]. Aussi, l'évolution de l'amplitude de déformation est rarement analysée dans les études de fatigue [43]. En effet, cette amplitude de déformation semble augmenter au cours de la fatigue et peut avoir une influence sur les propriétés mesurées du composite. Mahboob et Bougherara [43] conseillent donc de la mesurer et de l'analyser dans les prochains travaux réalisés.

2.4 – Sollicitations couplées

Si une température de vieillissement inférieure à 100°C a un effet sur la résine et sur les fibres, elle n'a pas les mêmes cinétiques ou le même impact que l'exposition à de l'eau. En effet, à température d'utilisation, les dégradations thermiques du matériau prennent plus de temps que celles liées à l'absorption d'eau à apparaître. Les cinétiques d'un vieillissement par exposition à l'eau sont cependant impactées par la température, puisque le coefficient de diffusion de la loi de Fick dépend de la température. De plus, la fatigue peut induire des endommagements, qui peuvent ensuite être à l'origine d'une modification de l'absorption ou des effets des vieillissements par exposition à l'eau et à la température. Ceci met en évidence des couplages qui existent entre les différentes sollicitations, qui induisent des phénomènes de vieillissement plus importants ou avec des cinétiques plus rapides. Pour une structure réelle, de nombreuses sollicitations existent, ainsi que toutes les combinaisons de celles-ci. Au regard de ce qui a été présenté dans ce chapitre, le but de cette section est d'étudier les couplages qui existent entre le vieillissement par exposition à l'eau, le vieillissement thermique et le vieillissement sous sollicitations mécaniques.

Tout d'abord, le couplage de sollicitations eau-thermique est étudié, avec l'effet de la température sur l'absorption d'eau et l'utilisation de ce couplage pour étudier les phénomènes de vieillissement liés à une exposition prolongée à l'eau. Ensuite, les couplages hydro-thermo-mécanique sont traités.

2.4.1 – Vieillissement par sollicitation eau-température

2.4.1.1 – Effet de la température sur la sorption d'eau

La température intervient dans l'absorption d'eau puisque le coefficient de diffusion dépend de la température selon une loi d'Arrhenius.

En revanche, ce n'est pas le seul effet de la température sur l'absorption d'eau. De nombreux travaux [67], [68], [81], [94] ont mis en évidence une dépendance entre la température et le palier de saturation, pour une différence de température lors d'un vieillissement par sollicitations hygrothermiques (atmosphère humide) ou d'un vieillissement par sollicitations hydrothermiques (immersion) (cf. [figure 2.4.1.1](#) et [tableau 2.4.1.1](#)). Avec une température croissante, des cinétiques plus rapides et des paliers de saturation plus hauts

sont observés, ce qui peut indiquer des dégradations plus importantes causées par une interaction plus importante entre l'eau et les constituants [67].

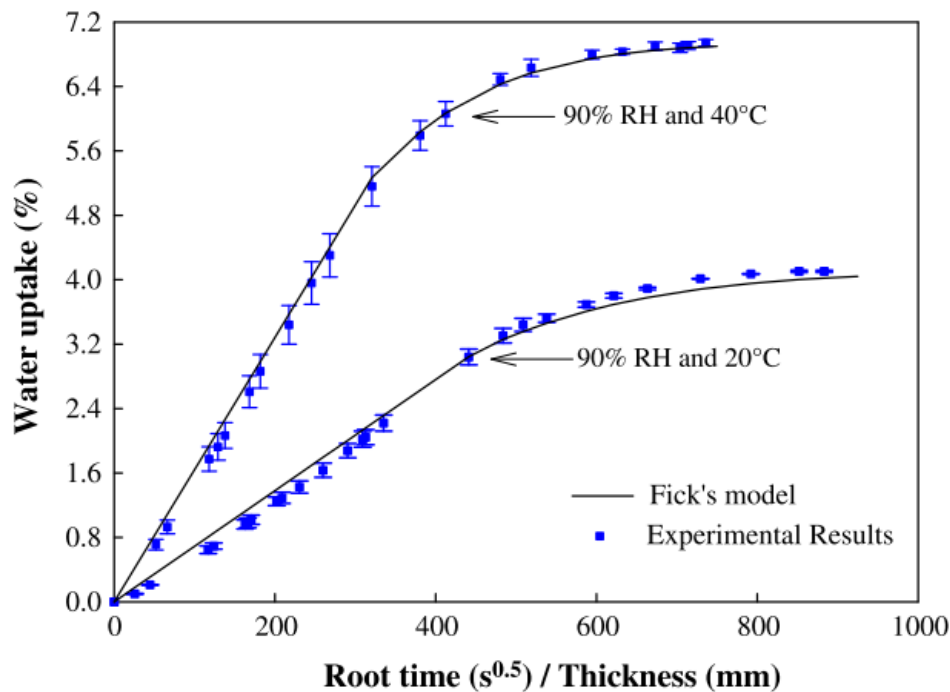


Figure 2.4.1.1 : Prise de masse d'un composite lin / époxy lors de deux vieillissements par sollicitations hygrothermiques : (20 °C, 90 %HR) et (40 °C, 90 %HR) [67]

| Température | Gain de masse à saturation (%) | Coefficient de diffusion $D \times 10^{-6}$ (mm ² /s) |
|-------------|--------------------------------|--|
| 23°C | 7,245 | 1,414 |
| 37,8°C | 8,652 | 3,525 |
| 60°C | 9,365 | 11,924 |

Tableau 2.4.1.1 : Gain de masse à saturation et coefficient de diffusion pour des composites lin / époxy lors d'immersions à 23 °C, 37.5 °C et 60 °C [68]

De ce fait, les endommagements liés au vieillissement par exposition à l'eau apparaissent plus rapidement et de manière exacerbée avec une température plus haute, et les propriétés mécaniques en sont affectées en conséquence. La température ne change cependant pas le comportement à saturation, mais amplifie seulement les phénomènes mis en jeu. Ainsi, le module diminue linéairement en fonction de la prise de masse lors de l'immersion [67].

Il est important de noter que dans les travaux de Li et Xue [68], l'UTS après séchage des échantillons vieillis à 23°C pendant 2 heures à 120 °C est équivalente à l'UTS initiale, ce qui traduit ici la réversibilité des phénomènes en jeu. En revanche, dès 37.8 °C, les phénomènes ne sont plus entièrement réversibles à cause de fissurations et du pelage des fibres.

Ainsi, à saturation, le vieillissement sous sollicitations couplées eau-thermique n'induit pas d'endommagement supplémentaire par rapport au vieillissement par exposition à l'eau seul, mais permet d'accélérer l'apparition des endommagements, comme la plastification

réversible des composants, la réorientation des fibres dans le composite et des microfibrilles dans la paroi des fibres ainsi que des fissurations et autres endommagements irréversibles.

De ce fait, l'utilisation d'un tel couplage eau-thermique est très employée afin de réaliser des essais de vieillissement accélérés, pour atteindre des endommagements correspondant supposément à un vieillissement de longue durée en conditions réelles en un temps réduit. Malheureusement, il reste difficile de mettre en place un protocole de vieillissement accéléré permettant de traduire parfaitement les endommagements d'un vieillissement réel de longue durée. Un protocole de vieillissement dans des conditions sévères permet au moins d'exacerber les phénomènes et permet ainsi de surdimensionner, ce qui reste, pour des utilisations industrielles, acceptable dans une certaine mesure.

2.4.1.2 – Exposition prolongée : couplage temps-température-eau

Une immersion prolongée consiste à atteindre le palier de saturation initial, puis à laisser le matériau dans l'eau pour une durée importante. Cela peut être d'une importance cruciale lorsque les matériaux sont utilisés ensuite dans le milieu maritime, ou exposé à l'eau sur de longues durées. En laboratoire, l'étude des endommagements qu'induit l'immersion longue n'est atteignable qu'avec l'application de température pour accélérer les cinétiques mises en jeu.

Une exposition prolongée provoque des endommagements supplémentaires par rapport à une simple saturation, notamment une dissolution des pectines, des hémicelluloses et de la cellulose peu cristalline, lorsque la température est suffisamment élevée. Ces endommagements ont été observés par Li et Xue [68] pour une durée d'immersion longue à 60 °C d'un composite lin / époxy. Après séchage, les fibres présentaient des diamètres plus faibles que celles du composite avant vieillissement, ce qui traduit la perte de composants dans les fibres. Cette dissolution entraîne une perte d'UTS, du fait d'un transfert de charge aux microfibrilles moins efficace [16], et de contrainte à rupture en cisaillement interlaminaire [68].

Ces phénomènes n'ont pas été observés pour des températures plus faibles (23 °C et 37.8 °C). Cela signifie que la température induit des dommages supplémentaires qui n'apparaissent pas à des températures peu élevées. Ces endommagements sur une longue durée ne traduisent donc pas des phénomènes réels sur un composite utilisé pour des températures ambiantes.

2.4.2 – Vieillissement par sollicitations couplées eau-température-mécanique

2.4.2.1 – Vieillissement par sollicitations couplées eau-température-fluage

La réponse viscoélastique/viscoplastique des matériaux lors du fluage est exacerbée par la présence l'eau et la température. La [figure 2.4.2.1.1](#) [116] présente l'évolution de la déformation en fonction du temps pour des échantillons testés en atmosphère contrôlée et des échantillons testés en immersion [6], [116]. La déformation est donc plus importante en présence d'eau. De même, sur la [figure 2.4.2.1.2](#) [116], le module relatif décroît plus rapidement en présence d'eau, bien que la valeur atteinte à la fin du fluage soit équivalente pour les différents échantillons [6], [116].

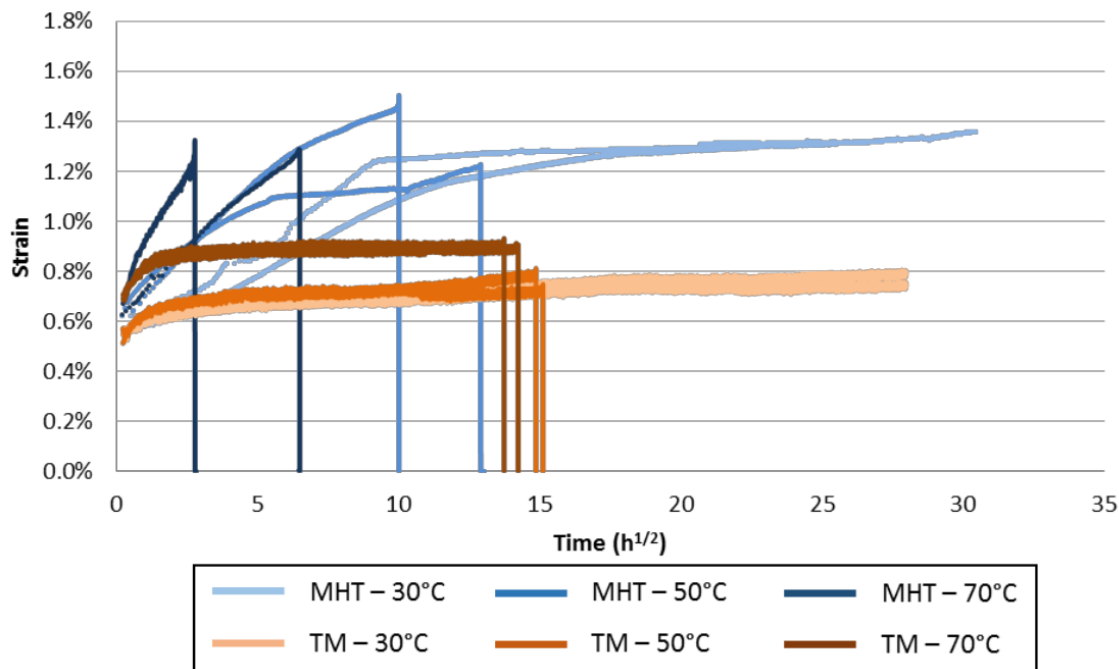


Figure 2.4.2.1.1 : Déformation en fonction du temps de fluage d'un composite à fibres de lin sous différentes conditions environnementales (TM : thermomécanique ; MHT : hydrothermomécanique) [116]

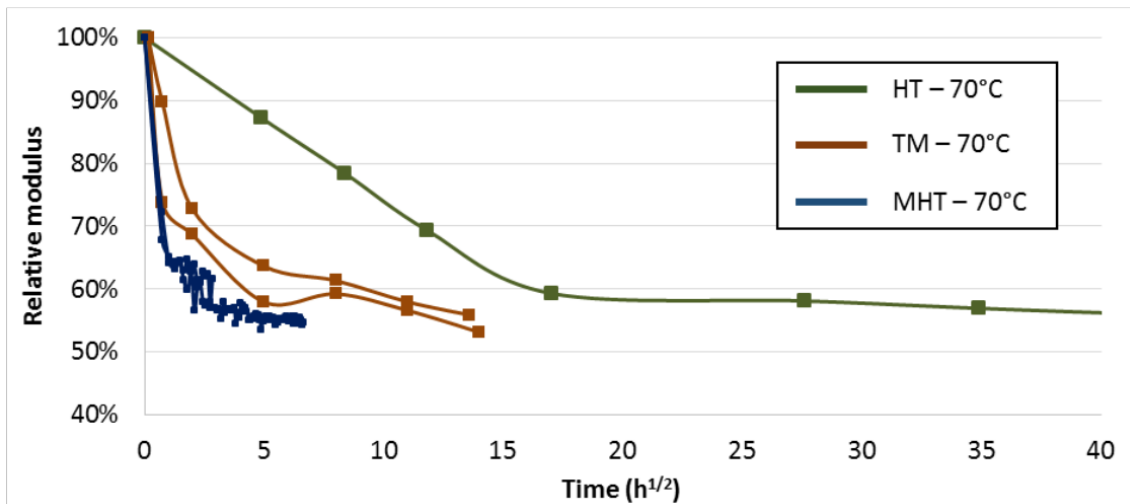


Figure 2.4.2.1.2 : Rigidité en fonction du temps de fluage d'un composite à fibres de lin sous différentes températures d'essai et humidité (TM : thermomécanique; MHT : hydrothermomécanique ; HT : hydrothermique) [116]

2.4.2.2 – Vieillessement par sollicitations couplées eau-température-fatigue

Le couplage hydrothermomécanique reste à ce jour peu documenté dans la littérature. Certains auteurs [124], [132], [135] ont observé une augmentation de l'activité d'endommagement avec de l'humidité dans les fibres. L'eau a ainsi diminué la durée de vie en fatigue et l'énergie dissipée par déformation a été augmentée également. Cela a été attribué,

après analyse par émissions acoustiques [132] ou par observations microscopiques post-mortem [124], [125], à une perte d'adhésion fibre/matrice liée à la présence d'eau.

En revanche, dans de précédents travaux [65], la contrainte nécessaire pour atteindre 1 million de cycles pour des échantillons vieillis en environnement humide a été trouvée plus importante que celle pour des échantillons non vieillis, respectivement 155 et 140 MPa. Ainsi sur la **figure 2.4.2.2.1** [65], pour les NC les plus élevés, la durée de vie des échantillons vieillis (WVS) est réduite par rapport aux échantillons non vieillis (DRY), mais cette tendance s'inverse aux NC plus faibles [65].

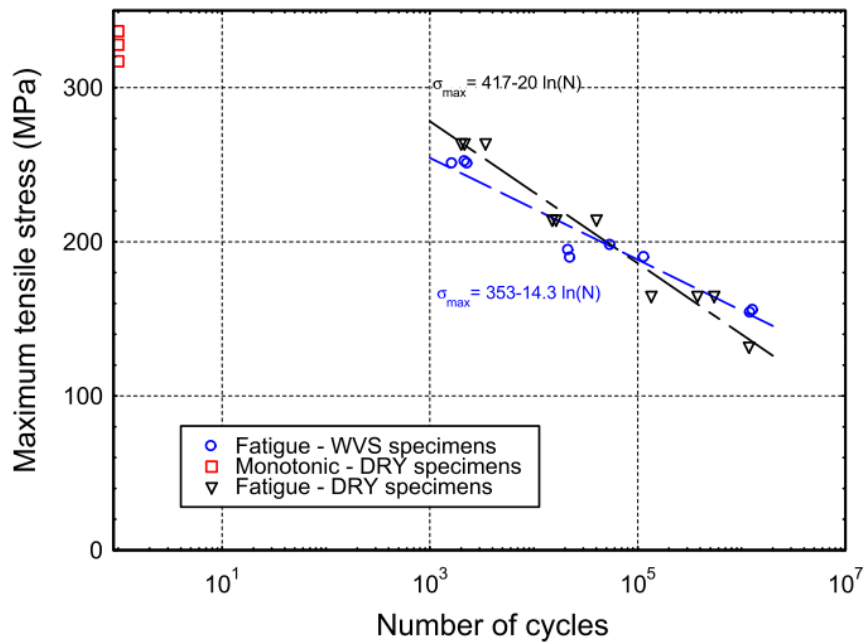


Figure 2.4.2.2.1 : Courbe contrainte = f(nombre de cycles) pour des éprouvettes lin/époxy avant vieillissement (DRY) et à saturation (WVS) [65]

De plus, le phénomène de rigidification observé en fatigue en l'absence de vieillissement est plus important que pour le matériau testé en fatigue après vieillissement (cf. **figure 2.4.2.2.2** [65]). L'énergie dissipée (proportionnelle à l'aire de l'hystérésis) est également plus importante pour les éprouvettes vieilles (b) que pour les éprouvettes non vieilles (a) [65].

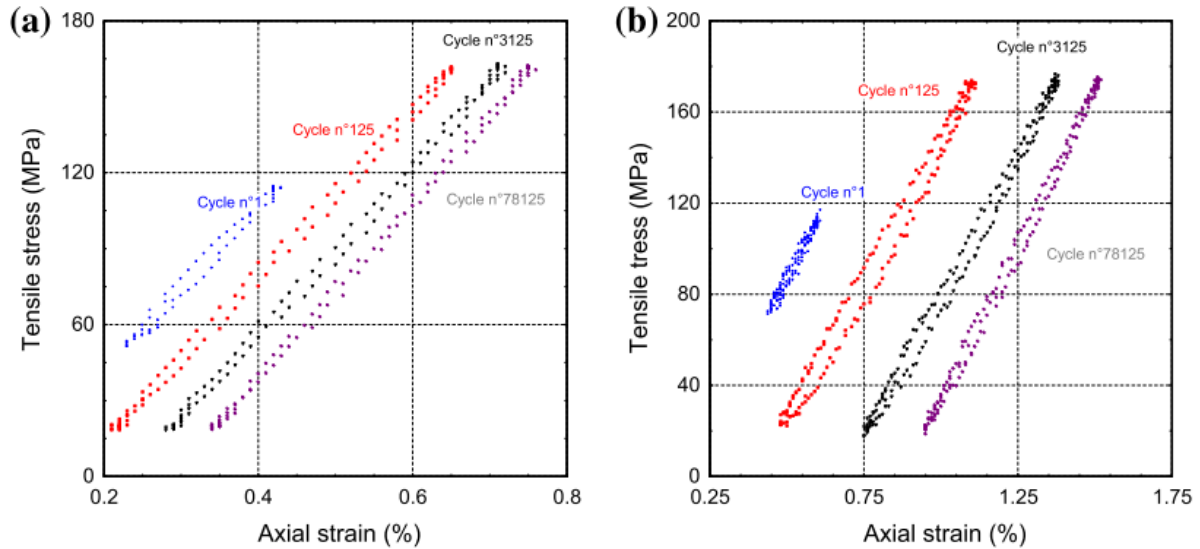


Figure 2.4.2.2.2 : Cycles contrainte = f(déformation) pour les cycles 1, 125, 3125 et 78125 pour les échantillons non vieillis (DRY) (a) et les échantillons vieillis (WVS) (b) [65]

De plus, dans ces travaux [65], des fissures à l'interface faisceaux/matrice ont été observées, sans fissure à l'intérieur des faisceaux. Ces fissures ont été attribuées à un gonflement induit par l'absorption d'eau, provoquant ainsi une meilleure adhésion fibre matrice par un phénomène similaire à du frettage [65]. Ainsi, la limite en fatigue a pu être augmentée.

Il est important de noter que dans ces travaux [65], le vieillissement s'est fait en conditions hygrothermiques, pour une absorption massique du composite de l'ordre de 3% à 3.5% (par rapport à l'état d'équilibre pour le matériau conditionné à 23 °C, 50 %HR), ce qui reste modéré comparé aux vieillissements en immersion, qui pourraient donc induire des endommagements plus importants, ce qui peut justifier les différences de phénoménologies observées.

On peut donc en conclure que des effets contradictoires ont été observés, qui peuvent dépendre des conditions de sollicitations. Il est cependant indéniable que l'eau affecte les propriétés en fatigue de manière non négligeable et des études supplémentaires doivent être menées pour une analyse plus fine des phénomènes mis en jeu et de leurs effets lors d'essais de fatigue.

2.5 – Conclusion

Au regard des phénomènes de vieillissement présentés dans ce chapitre, il est possible de positionner les travaux de cette thèse. Une utilisation de ces composites est envisagée pour du mobilier urbain, en extérieur. De ce fait, l'exposition à l'eau, à la température et aux sollicitations mécaniques sera inévitable. Le but de cette thèse sera donc d'étudier des composites lin/époxy dans le cadre d'un vieillissement sous sollicitations couplées en immersion ou en conditions humides avec de la température et une éventuelle sollicitation en fatigue.

Cependant, il faut être conscient du fait que la structure réelle sera également exposée à des sollicitations plus complexes, que ce soit par le caractère multiaxial de la sollicitation

mécanique, par des conditions complexes (atmosphère humide et présence d'eau liquide selon des cycles météorologiques) ou par leur pluralité (exposition aux UV, au fluage, à la fatigue, à l'eau, à des microorganismes...). Il sera donc considéré ici que la fatigue, l'eau et la température seront les facteurs principaux de vieillissement, ce qui reste discutable. Les vieillissements en conditions réelles sont longs et difficiles à étudier, car la littérature ne permet pas d'avoir assez de recul sur les phénomènes de vieillissement avec des couplages moins complexes, comme le vieillissement sous sollicitations hydrothermomécaniques, afin d'envisager une compréhension des phénomènes de vieillissement sous couplage complet des sollicitations réelles. Ces travaux seront donc une première étape dans la caractérisation du vieillissement des composites à fibres végétales.

Dans l'optique de produire industriellement des matériaux composites renforcés de fibres végétales, la modélisation de leur durabilité est également importante pour la conception et l'estimation de la durée de vie des structures. Le chapitre suivant sera donc dédié à l'état de l'art sur les problématiques d'approches numériques de prédiction du comportement lors de vieillissement pour des composites à fibres végétales.

Chapitre 3 – Approches numériques de la durabilité des composites à fibres végétales

L'approche numérique des composites renforcés de fibres synthétiques a été beaucoup étudiée dans la littérature pour répondre à des problématiques de résistance mécanique et de conception de structures. En revanche, l'approche numérique de la durabilité est encore confrontée à des verrous, dont la complexité morphologique du matériau et, plus spécifiquement, la prise en compte de l'interphase entre les fibres et la matrice et son rôle dans la diffusion ainsi que sur l'endommagement.

Les fibres perméables présentent des problématiques supplémentaires. La diffusion dans les fibres ne peut donc plus être négligée et les contraintes internes liées au gonflement des différents constituants en sont largement modifiées. Par ailleurs, les fibres végétales, en plus d'être perméables, présentent une grande variabilité dimensionnelle, ce qui complexifie la modélisation numérique réaliste du vieillissement des composites.

Ces différents aspects de la littérature sont donc abordés dans ce chapitre. Tout d'abord, la durabilité de composites à fibres synthétiques est abordée au regard de la microstructure et de la taille des interphases entre la matrice et les fibres. Ensuite, l'approche numérique de la perméabilité des fibres au sein d'un composite est explicitée. Enfin, les différentes approches numériques visant à comparer une modélisation à une campagne expérimentale sont discutées.

3.1 – Approches numériques de la durabilité des composites à fibres synthétiques

Le but de cette section est de présenter les travaux de la littérature qui traitent de l'approche numérique durabilité des composites à fibres synthétiques.

Tout d'abord, la distribution des fibres au sein du composite joue un rôle important sur la diffusion d'eau et sur l'endommagement que les composites subissent. D'abord, la résistance de l'interface fibre-matrice avec l'absorption d'eau diminue [136], [137]. Ensuite, les contraintes internes dépendent du gonflement hygroscopique induit par l'absorption d'eau [86], [138]. Ainsi, une perte de performance est observée dans la littérature [86], [138], [139], en modélisant un endommagement de l'interface par traction-séparation dans les travaux d'Abhilash *et al.* [139] et en modélisant le gonflement hygroscopique dans les travaux de Peret *et al.* [86], [138].

Ensuite, le couplage entre les propriétés de diffusion et les contraintes a été étudié [138]. Un chargement en traction augmente la cinétique d'absorption tandis qu'une compression la diminue [140], [141]. Les équations de Doolittle [142], [143] lient la diffusivité d'un matériau à son état de contraintes. Ces équations, associées à des équations liant la diffusivité à l'état de déformation du matériau, permettent de modéliser les relations non linéaires entre l'état du matériau et la diffusivité [144], [145]. De plus, les propriétés mécaniques des constituants dépendent de leur teneur en eau [146]. Il existe donc un couplage fort. La **figure 3.3.1** illustre l'effet des contraintes sur la diffusivité [140] et la **figure 3.3.2** [138] illustre les effets des contraintes internes (compression en négatif, traction

en positif) sur la prise en masse et de la déformation sur la prise en masse. Sur la **figure 3.3.2**, les valeurs de contraintes internes (a) ou de déformation (b) appliquées varient et on observe donc la modification de la diffusion associée. Avec ce couplage, la réduction de diffusivité du modèle dans le cas des composites étudiés dans ces travaux [138] est de l'ordre de 10% par rapport au modèle sans ce couplage et correspond mieux aux données expérimentales.

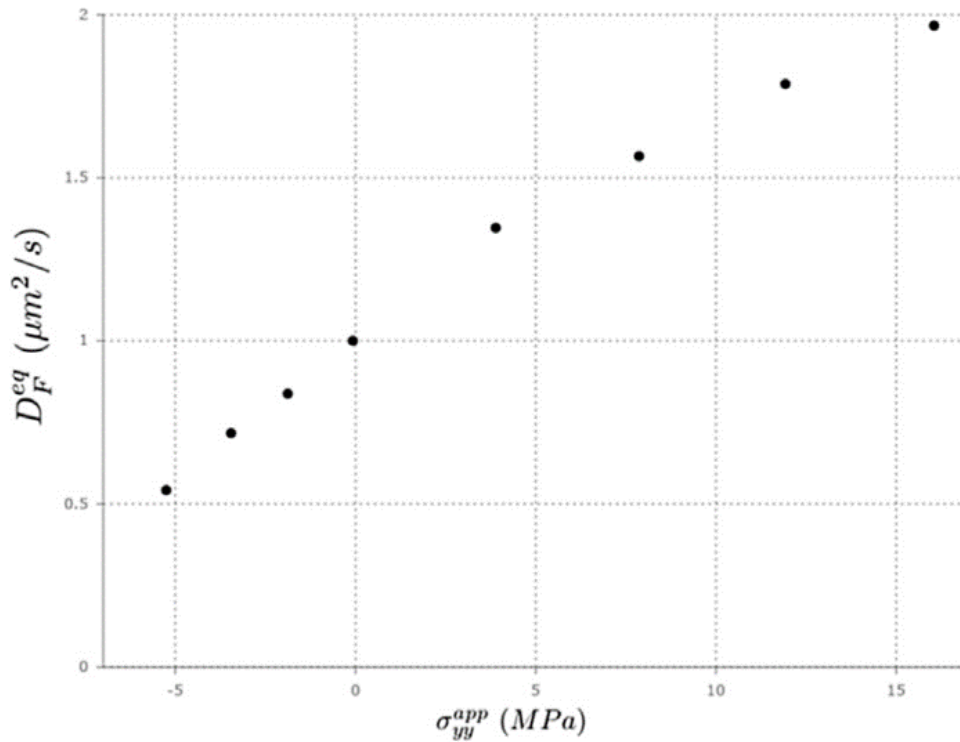


Figure 3.3.1 : Relation entre l'état de contrainte et la diffusivité dans l'époxy [140]

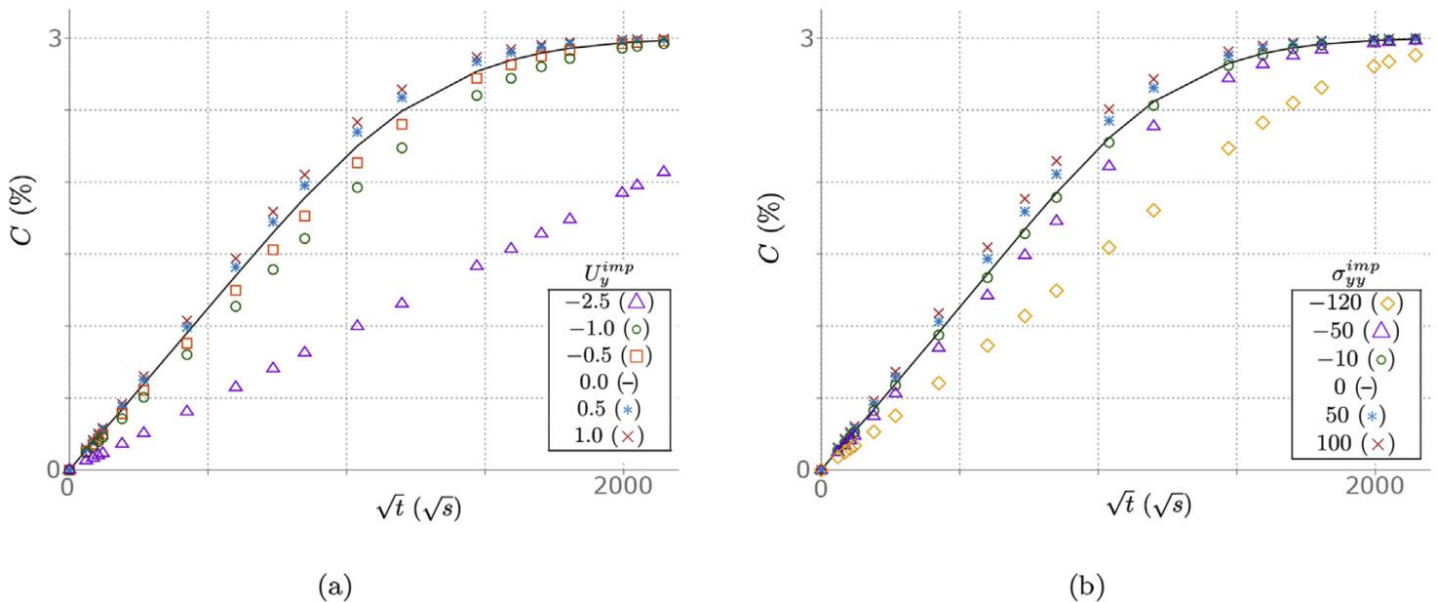


Figure 3.3.2 : Relations déformation - diffusion (a) où U_y^{imp} un déplacement imposé en μm et contrainte - diffusion (b) où σ_{yy}^{imp} une contrainte imposée en MPa pour un modèle de composite à fibres hydrophobes (carbone ou verre) [138]

Enfin, l'approche numérique de la durabilité des composites repose sur un autre aspect : les interphases existant entre la matrice et les fibres. En effet, les pertes de propriétés mécaniques sont souvent attribuées à des dégradations de l'interface ou de l'interphase des composites [147]–[149]. Dans les différents travaux de Joliff *et al.* [103], [150], [151], la modification de propriétés de la résine autour de fibres de verre a été étudiée à travers des analyses de température de ramollissement de l'époxy pour définir la taille de cette interphase. Une interphase d'environ 10 μm a ainsi été observée autour d'une fibre par AFM, ce qui correspond, dans le cas du composite étudié, à la totalité de la résine du composite [151], avec un impact significatif sur la température de ramollissement [103] selon une loi non linéaire [150]. Par approche inverse, le coefficient de diffusion de l'eau dans l'interphase a été déterminé comme étant 5 fois supérieur au coefficient de diffusion de l'eau dans la résine non modifiée. Rocha *et al.* [152] ont observé une augmentation du coefficient de diffusion dans le sens longitudinal des fibres qu'ils ont attribuée à l'interphase. Une baisse importante et graduelle des propriétés mécaniques de l'interphase a été mise en place et les résultats ont alors été bien corrélés avec les données expérimentales [150].

Ces différentes problématiques sont donc présentes également pour les fibres végétales, cependant les fibres végétales impactent plus radicalement la durabilité des composites comme il a été évoqué dans le [chapitre 2](#), notamment du fait de leur perméabilité.

3.2 – Approches numériques des fibres perméables

La perméabilité des fibres végétales provient de leur composition et de leur structure. Les fibres végétales sont complexes (cf. [chapitre 1](#)) et la modélisation de leur structure et de leurs propriétés peut donc être une problématique importante pour modéliser leur comportement perméable au cours de la diffusion d'eau, du fait de leurs variabilités dimensionnelles externes, mais également de leur structure interne hydrophile.

Les fibres végétales peuvent donc être modélisées, hors du composite, selon plusieurs approches.

La première approche consiste à modéliser les fibres végétales comme des parois cylindriques concentriques [153], en accord avec la microstructure réelle des fibres. Dans leurs travaux, Gassan *et al.* [154] ont pu considérer l'influence de l'angle microfibrillaire et de la teneur en cellulose des fibres sur les propriétés mécaniques de fibres.

Une seconde approche consiste à modéliser les fibres végétales comme des matériaux homogènes, sans défaut et sans lumen [10]. La validité de cette modélisation a été étudiée par l'analyse du module d'Young lors d'un essai de traction monotone sur une fibre. Le modèle a donc pu être corrélé correctement avec les résultats expérimentaux, à un phénomène près, se produisant au début de l'essai et attribué à la présence de kink-band (nœud dans les fibres de lin) et d'un seuil de plasticité [10]. En revanche, le module d'Young est souvent calculé, lors d'essais de traction sur des fibres seules, par la section externe des fibres sans prise en compte du lumen. Le même biais est donc présent sur les résultats expérimentaux et sur le modèle. Cette approche est donc à considérer avec prudence, mais permet la simplification des modèles de composites puisque la première approche reste difficile à implémenter dans un modèle de composite.

Ensuite, le modèle diffusif Fickien appliqué aux composites à fibres imperméables (fibres synthétiques) est altéré par la présence de ces fibres perméables. Les travaux de Rao *et al.* [155], [156] ont permis d'établir les équations diffusives adaptées aux composites à fibres perméables. Ensuite, les travaux de Gueribiz *et al.* [157], via une approche numérique, ont permis de déterminer des formules semi-empiriques permettant de calculer les propriétés de diffusion des fibres au sein du composite. Il est important de noter que dans ces travaux, une continuité du flux à l'interface fibre/matrice a été utilisée, puisqu'une continuité de concentration d'eau contenue dans les milieux n'était pas possible compte tenu de l'absorption d'eau bien plus grande pour les fibres que pour la résine (autant en cinétique qu'en quantité à saturation). Le saut de concentration a donc été représenté par la formule suivante [157] :

$$C_f = \alpha C_m \quad (\text{Eq 3.2.1})$$

Avec C_f la concentration en eau dans les fibres, C_m la concentration en eau dans la matrice et α une constante représentative du saut de concentration en eau.

Ainsi, les formules suivantes ont pu être établies, où M_f est la teneur en eau des fibres dans le composite et D_f le coefficient de diffusion des fibres dans le composite [157] :

$$M_f = \alpha \frac{M_m \rho_{m \text{ sec}}}{\rho_{f \text{ sec}}} \quad (\text{Eq 3.2.2})$$

$$D_f = D_m \frac{\psi}{\alpha} \quad (\text{Eq 3.2.3})$$

Avec M_m la teneur en eau de la matrice, $\rho_{m \text{ sec}}$ la masse volumique de la résine à l'état sec, $\rho_{f \text{ sec}}$ la masse volumique des fibres à l'état sec, D_m le coefficient de diffusion de la matrice et ψ un paramètre assimilé à un indice de perméabilité des fibres [157].

La problématique liée à l'interphase associée aux fibres perméables a été peu étudiée. Dans les travaux de Liu *et al.* [158], une modélisation d'un composite à fibres perméables a été implémentée en concentration relative. Ils ont utilisé une méthode HHME (heterogeneous hybrid moisture element). Elle consiste à modéliser les interphases et les fibres comme des matériaux multicouches, avec chaque couche considérée comme un matériau homogène différent avec des propriétés spécifiques. Cette méthode a été validée par comparaison avec une méthode par éléments finis. Elle permet notamment de rendre compte de la modification de propriétés au sein des éléments (interphase et fibres perméables) plus simplement que par une méthode classique.

La durabilité influant sur de nombreuses propriétés, il peut également être intéressant d'étudier plus en détail la modélisation de la durabilité des composites à fibres végétales au regard de la durabilité caractérisée expérimentalement.

3.3 – Approche numérique de la durabilité des composites à fibres végétales caractérisée expérimentalement

Des travaux existent sur l'absorption d'eau et le couplage mécanique sur les composites à fibres végétales, mais la prise en compte de la microstructure reste peu étudiée à ma connaissance.

Pour une prise en compte de la microstructure issue d'une campagne expérimentale, quatre grandes approches semblent émerger :

- la modélisation 3D homogénéisée sans représentation directe des fibres
- la modélisation 2D simplifiée des fibres, représentées par des ellipses pouvant produire une microstructure avec un agencement aléatoire, avec des paramètres d'ellipse en accord ou non à des observations microscopiques
- la modélisation 2D reconstituée des fibres, aux contours modélisés par des fonctions polynomiales, pour produire des microstructures avec un agencement aléatoire et une forme des fibres / des faisceaux aléatoire et représentative de la microstructure réelle observée par microscopie.
- la modélisation 2D réaliste, par analyse directe de clichés microscopiques

Dans la première approche, la diffusion de l'eau est mesurée lors de la campagne expérimentale et intégrée par la mise en place d'une diffusion 3D orthotrope en approche macroscopique homogénéisée. Dans les travaux de Saidane *et al.* [80], des cubes de 15 mm de côté de composites ont été couverts sur 4 faces selon la [figure 3.3.1](#). Ce protocole leur a permis de déterminer les coefficients de diffusion dans les différentes directions d'orthotropie du composite afin d'alimenter le modèle 3D macroscopique homogénéisé. Il est intéressant de noter que dans ces travaux, la diffusion dans le sens des fibres est environ 2 fois plus rapide que dans le sens perpendiculaire aux fibres pour les composites quasi-UD.

Selon un protocole similaire, une campagne d'essais mécaniques pourrait être intéressante pour alimenter une partie mécanique du modèle et ainsi déterminer la durabilité de la structure en 3D.

Cette modélisation 3D macroscopique homogénéisée ne représente cependant pas les fibres au sein du composite.

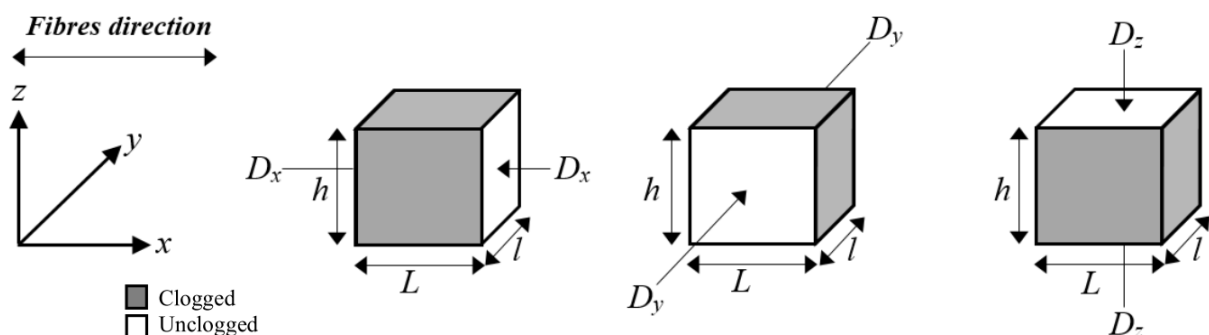


Figure 3.3.1 : Schéma des cubes de composites couverts sur 4 côtés (clogged) selon 3 configurations – côtés libres (unclogged) opposés pour diffusion d'eau

L'étude des contraintes internes par le biais du gonflement relatif des fibres dans la résine est difficile dans le cas d'un modèle 3D homogénéisé et ne serait pas forcément représentative des concentrations de contraintes liées aux artefacts de la microstructure

(angles des fibres, proximité de fibres, etc). Pour pallier ce problème, des microstructures 2D peuvent être utilisées dans un modèle diffusif. Dans ce cas, comme évoqué précédemment, il reste plusieurs possibilités.

Une modélisation multiéchelle des fibres par génération aléatoire d'une microstructure par ellipses représentatives de la géométrie des fibres observées par microscopie a notamment été réalisée dans les travaux de G. Apolinario Testoni [116]. Effectivement, des observations microscopiques ont été analysées au regard de différents paramètres morphologiques et les ellipses générées étaient alors statistiquement représentatives de la réalité du composite selon plusieurs paramètres étudiés : la surface, le grand diamètre et le petit diamètre. Deux échelles ont pu être définies de par la présence de mèches dans le composite : une échelle macroscopique (représentation des mèches) et une échelle microscopique (représentation des fibres unitaires au sein des mèches). L'analyse à l'échelle microscopique a permis une homogénéisation des mèches. L'échelle macroscopique a donc conduit à un modèle de répartition de ces mèches, de taille millimétrique. Il sera noté que cette approche multiéchelle n'est pas pertinente si le composite étudié ne comporte pas de mèches, mais des fibres modélisées par des ellipses représentatives de l'analyse morphologique d'observations microscopique restent intéressantes.

Des recherches s'orientent également vers la description avec plus de précision des fibres dans les composites, rendue difficile par l'agencement aléatoire des fibres, faisceaux et/ou mèches dans une section, ainsi que des tailles et des formes très variables [116], [159]. Cette représentation elliptique reste cependant simplifiée, en considération de la complexité de la morphologie réelle des fibres végétales.

Ainsi, dans les travaux de Mattrand *et al.* [159], des reconstructions de forme de fibres en 2D par Transformée de Fourier Discrète (TFD) ont été étudiées afin de créer des géométries plus simples que les géométries réelles, mais plus fines qu'une approche par génération d'ellipses. Le matériau composite présentait une répartition aléatoire des fibres dans l'épaisseur, sans orientation privilégiée. En une dizaine d'images au microscope optique, les auteurs [159] ont pu analyser 849 fibres élémentaires et 174 faisceaux. Les contours de ces objets ont ensuite été décrits comme un vecteur de coordonnées, contours qui ont été discrétisés et reproduits à l'aide de TFD. La reconstruction de formes a donc été possible à l'aide d'une TFD inverse. La [figure 3.3.2](#) montre une forme réelle d'une fibre unitaire et d'un faisceau ainsi que la reconstruction par TFD avec une troncature à partir du coefficient de Fourier M_e (fibres élémentaires) et M_b (faisceaux) [159].

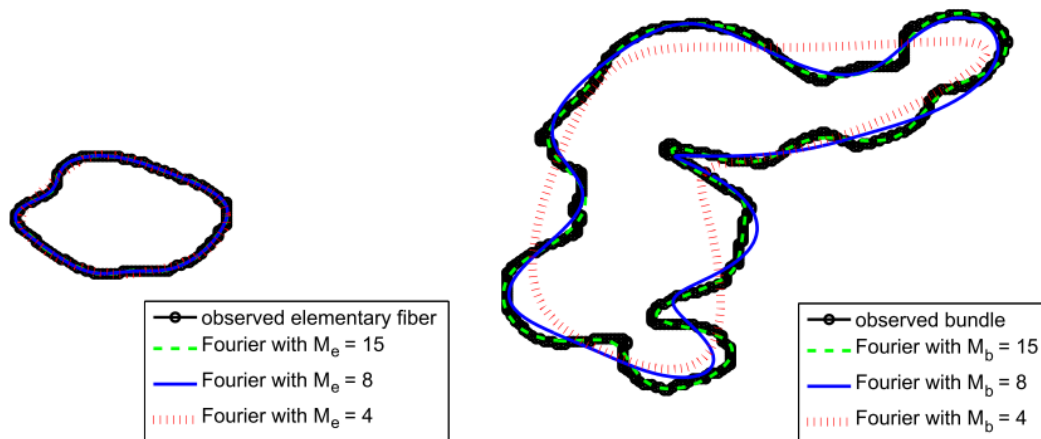


Figure 3.3.2 : Reconstruction du contour d’une fibre (à gauche) et d’un faisceau (à droite) à l’aide d’une TFD – troncature à partir du coefficient de Fourier M_e (fibres élémentaires) et M_b (faisceaux) [159]

À partir de la modélisation de formes aléatoires [160] issue d’une décomposition Karhunen-Loeve, une base chaotique de polynômes permet l’identification de vecteurs aléatoires [159]. Ainsi, la simulation aléatoire de polynômes de coordonnées donne des microstructures aléatoires représentatives de l’analyse morphologique réalisée. Dans ces travaux [159], il reste tout de même à étudier l’influence d’un tel modèle morphologique sur les comportements mécanique et diffusionnel du matériau.

Cette approche-ci n’est cependant pas incompatible avec l’approche multiéchelles présentée précédemment, en remplaçant le modèle elliptique des fibres par le modèle de reconstitution de la géométrie complexe présentée ici.

Enfin, dans les travaux de G. Apolinario Testoni [116], des images microscopiques réelles ont pu être importées et maillées pour obtenir une surface numérique réaliste. Les résultats sont donc plus précis quant à la diffusion et aux propriétés mécaniques, mais le temps de calcul est très long du fait de la finesse du maillage nécessaire, compte tenu de la complexité de la microstructure réelle. Cette approche semble donc difficile à mettre en place pour une utilisation industrielle.

Dans ces différentes approches, il est donc important de considérer l’échelle à laquelle le matériau doit être étudié en fonction de sa morphologie (présence de mèches ou non, agencement complexe des fibres, taille de la structure).

3.4 – Conclusion

Dans ce chapitre, de nombreuses problématiques ont été évoquées pour l’approche numérique de la durabilité de composites, et d’autant plus que les composites à fibres végétales présentent des géométries et arrangements plus complexes. Il reste donc de nombreux verrous à lever, comme l’intégration d’une microstructure représentative de la réalité extrapolable en 3D, en prenant en compte la variabilité longitudinale des fibres végétales. La problématique d’interphase, évoquée pour les composites à fibres synthétiques, est encore complexe à mettre en place pour des microstructures à fibres végétales, puisque la représentation de la microstructure des composites à fibres végétales est encore discutée et en développement dans la littérature.

S'agissant d'un composite unidirectionnel, la modélisation 2D par reconstruction des contours de fibres semble prometteuse, puisqu'elle permet une représentation plus réaliste à l'échelle des fibres tout en étant plus simple qu'un modèle réalisé à partir d'un cliché microscopique qui nécessite un maillage très fin et augmente ainsi les temps de calcul. Cependant, cette méthode de reconstruction requiert des algorithmes spécifiques d'analyse. Les modèles macroscopiques homogénéisés 3D et les modèles 2D avec fibres elliptiques restent cependant des approches numériques envisageables et cohérentes avec les objectifs de cette thèse. Cependant, afin de simplifier l'étude, la fabrication d'un matériau quasi isotrope transverse est visée.

Positionnement de l'étude

L'objectif est de produire un composite robuste et répétable pour une utilisation structurale en extérieur. Pour cela, le choix des renforts pour remplacer les fibres synthétiques doit être mené avec précautions. Les fibres de lin unidirectionnelles sans fils de trame ont donc été choisies pour leurs caractéristiques mécaniques, pour le fait que les différents collaborateurs liés à cette thèse avaient déjà une expérience des fibres de lin et aussi pour leur disponibilité en France avec un marché et des entreprises capables de fournir les quantités nécessaires avec le type de tissu voulu. Les renforts unidirectionnels sans fils de trame sont un moyen d'étudier les phénomènes fondamentaux mis en jeu et d'éviter des couplages de tissage (pas d'effet du tissage, de la torsion de fils, des fils de couture, etc) tout en simplifiant l'approche numérique de leur durabilité, qui n'a pas à être multiéchelle.

Ensuite, afin de déterminer l'influence réelle de la microstructure sur les propriétés mécaniques et leur évolution au cours d'un vieillissement sous sollicitations thermiques et aqueuses (immersion ou atmosphère humide), le procédé de fabrication doit permettre de générer des composites différents. Ces composites doivent cependant être cohérents avec l'utilisation structurale, c'est pourquoi la mise au point du procédé de fabrication reste importante.

Ensuite, une campagne d'essais de traction monotone (avec sollicitations longitudinales, transverses ou en cisaillement) est réalisée afin de caractériser les propriétés mécaniques des différents composites fabriqués. Un vieillissement thermique et aqueux est donc appliqué pour étudier la durabilité de ces composites.

Cette campagne donne lieu à une modélisation qui permet, à défaut de pouvoir aider la conception d'une structure en vue de l'application, de contribuer à l'étude des verrous scientifiques actuels, comme la représentation de la microstructure et l'évolution des propriétés mécaniques des composites modélisés.

Enfin, pour répondre à des problématiques industrielles, des sollicitations se rapprochant de celles mises en œuvre dans des conditions de service, voire plus sévères, sont étudiées, avec une campagne en fatigue permettant d'analyser et comprendre les phénomènes mis en jeu lors d'essais en immersion *in situ* pour les différents composites, et une campagne d'essais de traction monotone sur des échantillons vieillis par une exposition cyclique à des conditions atmosphériques sèches et humides en alternance.

Partie 2 – Matériaux et Méthodes

Dans cette partie, les matériaux et les méthodes expérimentales seront présentés. Les matériaux ont fait l'objet d'une étude détaillée du procédé qui a nécessité la caractérisation de propriétés mécaniques des différents composites fabriqués selon des paramètres de fabrication divers.

Ainsi, les méthodes de caractérisation employées dans cette thèse sont présentées dans un premier chapitre.

Ensuite, un second chapitre traite de la fabrication et qui présente les paramètres sélectionnés pour cette étude du procédé ainsi que les composites que ces paramètres ont permis d'obtenir.

Chapitre 4 – Méthodes

Ce chapitre est présenté en deux grandes parties : les techniques d'analyse microstructurale et les techniques de suivi des propriétés mécaniques.

La première partie est donc dédiée à la caractérisation de la microstructure en vue de la compréhension des phénomènes mis en jeu lors des différents essais qui ont été réalisés et en vue de la mise en place d'un modèle numérique du composite. La mesure du suivi des vieillissements par pesée est donc présentée, puis la mesure des taux surfaciques de fibres par analyse de clichés microscopiques, et enfin l'extraction de données morphologiques de ces analyses de clichés.

La seconde partie permet d'exposer les différentes techniques expérimentales de caractérisation mécanique, avec de l'analyse modale non destructive par vibrations libres qui constitue le moyen de suivi des propriétés mécaniques lors de vieillissement, de la traction monotone avec un suivi de la déformation dans le plan (tenseur plan) par corrélation d'images et des essais de fatigue.

4.1 – Techniques d'analyse microstructurale

4.1.1 – Mesure par pesée : masse et taux volumiques

Des pesées ont été effectuées sur une balance Kern PRS (précision de 0.1 g) pour déterminer les taux volumiques de fibres et de porosités dans les composites lors de la mise en place du procédé de fabrication ([section 5.3](#)).

Cette détermination emploie une méthode inspirée de la norme ASTM D 3171 - 99. Des échantillons de composites de 100 mm x 250 mm ont été pesés. Les dimensions ont été mesurées avec un pied à coulisse (précision de 0.01 mm) pour la largeur et l'épaisseur, et avec une règle (précision de 0.5 mm) pour la longueur.

Les densités des fibres, de la résine et des composites ont été mesurées en utilisant le principe d'Archimède. Des échantillons ont été pesés successivement dans l'air et dans une solution de dodécane. Le dodécane a été choisi afin d'éviter une absorption du solvant par les fibres. La masse volumique des échantillons (d) a été calculée à l'aide de l'équation suivante :

$$d = \frac{m_{air} \times d_{dod} - m_{dod} \times d_{air}}{m_{air} - m_{dod}} \quad (\text{Eq. 4.1.1.1})$$

Avec m_{air} : masse de l'échantillon mesurée dans l'air (g) ; m_{dod} : masse de l'échantillon mesurée dans le dodécane (g) ; d_{air} : densité de l'air (6.10^{-4} à 21°C dans les conditions de l'analyse) ; d_{dod} : densité du dodécane (0.7487 à 21 °C dans les conditions de l'analyse).

Ensuite, les taux volumiques de fibres, résine et porosités ont été calculés à l'aide des équations suivantes :

$$Mf = Ms \times N \times L \times l \quad (\text{Eq. 4.1.1.2})$$

$$Vf = \frac{Mf}{\rho_f \times V} \times 100 \quad (\text{Eq. 4.1.1.3})$$

$$Vr = \frac{Mc - Mf}{\rho r \times V} \times 100 \quad (\text{Eq. 4.1.1.4})$$

$$Vp = 100 - Vf - Vr \quad (\text{Eq. 4.1.1.5})$$

avec M_f : masse de fibres (g); M_s : masse surfacique des fibres (g/m^2); N : nombre de plis; L : longueur de l'échantillon (m); l : largeur de l'échantillon (m); V_f : taux volumique de fibres (%); p_f : masse volumique des fibres (g/m^3); V : volume de l'échantillon (m^3); V_r : taux volumique de résine (%); M_c : masse de l'échantillon (g); ρ_r : masse volumique de la résine (g/m^3); V_p : taux volumique de porosités (%).

Cette méthode est sensible à la dispersion des valeurs des grandeurs intervenant dans les formules. La dispersion des mesures dimensionnelles ainsi que celle de la mesure de la densité des renforts ont donc été prises en compte, ce qui a permis de définir un écart-type pour les différents taux volumiques.

Des pesées ont également été effectuées pour suivre la prise en masse des échantillons au cours des différents vieillissements.

4.1.2 – Mesure des taux surfaciques par microscopie électronique à balayage

Un microscope électronique à balayage (MEB) FEI Quanta 200 FEG a été utilisé pour l'acquisition des images. Pour obtenir ces clichés, la surface des échantillons a été polie et métallisée avec un fil de carbone par un métalliseur Balzers CED030.

Une mesure surfacique des taux de fibres, résine et porosités est effectuée à l'aide du logiciel Aphelion™ sur les clichés MEB. Chaque cliché, similaire à celui présenté sur la [figure 4.1.2](#), a une surface de 1.2 mm^2 . Entre 192 et 235 clichés ont été analysés pour chaque détermination du taux surfacique de fibres et de porosités des composites, représentant une surface totale de 231.7 à 283.6 mm^2 par type de composite et état de vieillissement.

Une analyse statistique a été menée afin de déterminer le nombre de clichés nécessaire pour que les résultats convergent. Il a été trouvé que l'écart-type devient stable à partir d'environ 70 clichés analysés pour les fibres (84 mm^2) et d'environ 110 clichés analysés (132 mm^2) pour les porosités. Les surfaces analysées ont été supposées suffisamment importantes pour considérer les taux surfaciques mesurés comme étant représentatifs des taux volumiques. Faisant l'hypothèse que toute tranche aléatoire du matériau découpée normalement au sens des fibres contiendra le même taux surfacique de fibres et de porosité, il est possible d'extrapoler ces résultats en termes de taux surfaciques à des taux volumiques de fibres et de porosités.

Un seuillage des images en noir et blanc a été effectué afin de séparer les différentes phases (phase fibreuse pour exemple sur la [Figure 4.1.2](#)): vide, résine et fibres. Grossièrement, les porosités apparaissent noires, les fibres gris clair et la résine gris foncé. Ainsi, on peut comptabiliser les pixels de chaque phase et en les ramenant au nombre total de pixels, on peut en déduire le taux surfacique de chaque phase, pour chaque cliché. On remonte alors pour un nombre suffisant d'images à un taux moyen de chacune d'elles. Concernant les zones qui se situent entre une porosité et la résine, elles peuvent apparaître de la même nuance de gris qu'une fibre, mais le nombre de pixels considéré est négligeable par rapport au nombre de pixels de la phase fibreuse effective. On peut donc négliger cet effet.

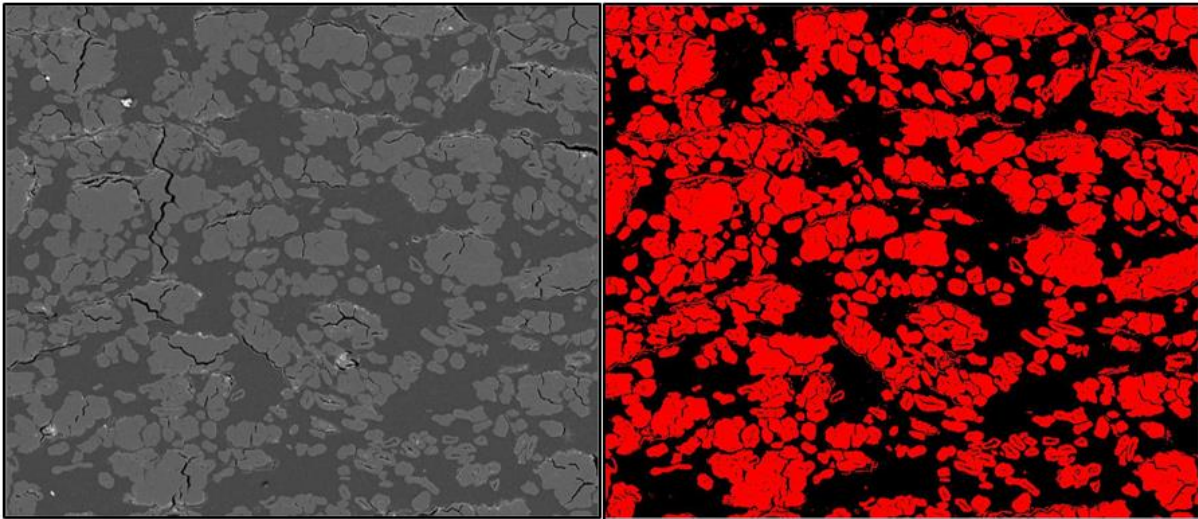


Figure 4.1.2 : Cliché MEB à gauche et phase fibreuse extraite à droite après seuillage

4.1.3 – Extraction de données morphologiques par microscopie électronique à balayage

Les données morphologiques de la phase fibreuse qui sont analysées par la suite se résument principalement en quatre grandeurs : le diamètre maximal, le diamètre minimal, la surface et la circularité. Elles sont extraites en vue de réaliser une modélisation des fibres. Cette modélisation sera détaillée dans le **chapitre 7**.

Parmi la phase fibreuse, le logiciel Aphelion™ identifie des objets comme étant l'ensemble de pixels d'une même phase qui sont en contact. Ainsi, des objets sont définis et analysés : il s'agit des sections des faisceaux et des fibres isolées (représentées par une bordure rouge sur la **Figure 4.1.3.1**).

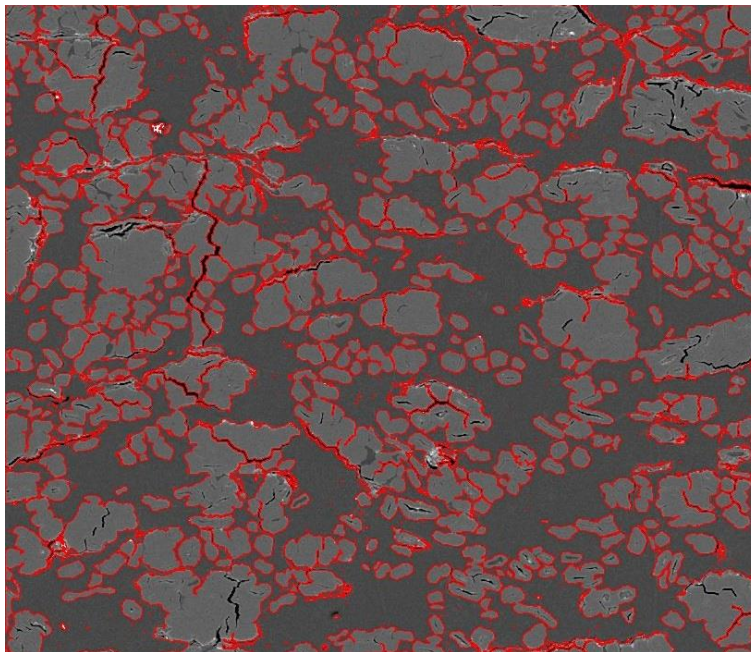


Figure 4.1.3.1 : Cliché MEB analysé avec définition d'objets définis par les bordures rouges

Des mesures sont effectuées sur chacun de ces objets afin d'en déterminer les caractéristiques morphologiques recherchées. Tous les objets fibreux définis par le logiciel à cette étape ne sont pas des fibres ou des faisceaux entiers. En effet, des parasites présents sur la surface (issus du procédé de polissage) ont été éliminés numériquement à l'aide du logiciel, provoquant des défauts sur certains objets. Un tri est donc fait afin de définir des classes différentes pour les faisceaux et les fibres, et afin d'éliminer les objets avec des défauts. Une sélection des objets avec des défauts (liés à la présence excessive de parasites) a permis d'établir la circularité (paramètre du logiciel valant 1 pour un cercle parfait et se rapprochant de zéro lorsqu'on s'éloigne de la forme circulaire par tortuosité de la surface) minimale des objets à sélectionner (0.25 pour les fibres unitaires et 0.03 pour les faisceaux). Seul le cas où les parasites étaient trop importants est considéré par ces circularités minimales, car les fibres et faisceaux peu parasités ont été étudiés, en considérant que la morphologie globale est peu impactée. De plus, les fibres unitaires et les faisceaux ont fait l'objet d'une analyse de la distribution de taille. Par la bimodalité de cette distribution, les fibres isolées ont été définies comme étant les objets fibreux ayant une surface de 30 à 60 μm^2 (critère de surface de 30 à 120 μm^2 sur la [figure 4.1.3.2](#)) et avec une circularité supérieure à 0.25 (critère de circularité de 0.5 à titre d'exemple sur la [figure 4.1.3.2](#)). Les faisceaux ont été définis comme les objets fibreux ayant une surface supérieure à 60 μm^2 et avec une circularité supérieure à 0.03. Et enfin, les défauts apparaissent blancs et sont donc aisément éliminés par seuillage sur les niveaux de gris.

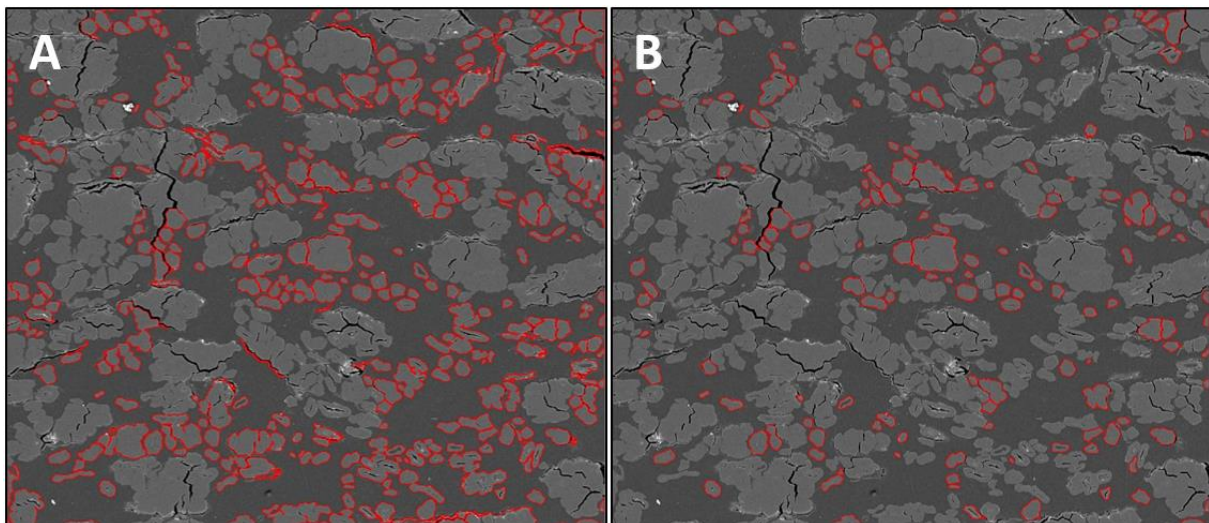


Figure 4.1.3.2 : Objets de la [figure 4.1.3.1](#) triés par taille (30 à 60 μm^2) (A) puis circularité (0.5 à 1) (B)

Il y a également des objets qui n'entrent pas dans les familles d'objets définis par les précédents critères ou, car ces objets sont coupés sur le bord des images. Sur toutes les images analysées, les fibres non retenues par ces critères représentent 23 % à 31% de la surface totale des fibres.

Ces objets laissés de côté sont principalement des objets incomplets (coupés sur le bord de l'image), et ensuite des objets ayant eu des parasites lors de l'observation, ce qui a eu pour effet de masquer une partie de la fibre ou des faisceaux et donc impacte la circularité ainsi que les données morphologiques que l'on pourrait en extraire. Ce pourcentage est élevé, car les fibres et faisceaux sur les bords sont nombreux, et des parasites sont également

observés sur des faisceaux de grande taille, provoquant ainsi l'élimination d'un pourcentage important des fibres. Cependant, il est important de noter que comme la quantité de fibres analysées est très importante (voir [section 4.1.2](#)), l'élimination de 30 % de ces fibres n'entraîne pas de modification significative de l'analyse statistique associée.

Il est important de noter que si ces objets ont été éliminés de l'analyse morphologique à cause de problèmes de détection d'objets qui n'ont pas pu être résolus pour l'heure, la détermination des taux volumiques n'utilise pas la séparation en objets. Le taux de fibres prend donc bien en compte tous les pixels associés aux fibres.

À l'avenir, afin de ne pas éliminer des objets conformes de l'étude, il faudrait obtenir des clichés MEB sans parasites issus du polissage (ou avec moins de parasites) via une analyse de la préparation des échantillons. Le polissage a été effectué en utilisant une pâte diamantée pour la dernière étape (poli miroir) et a pu laisser ces parasites. Un protocole de polissage sans cette étape peut être envisagé pour pallier ce problème. De plus, si possible, le développement de nouvelles méthodes de traitement sur Aphelion™ afin de mieux séparer les différents objets peut être considéré, avec notamment plus de paramètres morphologiques impliqués dans le tri des objets.

Les données morphologiques qui seront présentées sont donc extraites des objets obtenus par les critères cités précédemment.

4.2 – Techniques de suivi des propriétés mécaniques

4.2.1 – Analyse modale en vibrations libres

L'analyse modale en vibrations libres constitue un essai non destructif permettant d'accéder à la valeur de module dynamique aux faibles déformations grâce au contenu vibratoire de la réponse impulsionnelle de l'échantillon générée par exemple à l'aide d'un impacteur.

L'échantillon, qui est ici une éprouvette de traction de dimensions 250 mm x 25 mm, est suspendu à des élastiques afin de pouvoir le solliciter en vibrations libres et de considérer dans le modèle de calcul des conditions aux limites de poutre libre libre. Un marteau de choc est utilisé pour impacter l'éprouvette et générer une impulsion. Un accéléromètre, placé à l'autre bout de l'éprouvette, enregistre la réponse impulsionnelle de l'échantillon (voir [Figure 4.2.1.1](#)).

Afin d'identifier la fréquence de résonance et le taux d'amortissement du mode 1 de traction-compression (voir [Figure 4.2.1.2](#)), le logiciel ModalView est utilisé. Ce logiciel emploie une technique d'extraction des paramètres modaux basée sur le lissage de la courbe de réponse fréquentielle.

Cette fréquence est reliée au module de l'échantillon selon la formule suivante :

$$E = 4 * \rho * \pi^2 * L^2 * \left(\frac{f}{\beta}\right)^2 \quad (\text{Eq 4.2.1.1})$$

avec ρ la masse volumique de l'échantillon, L sa longueur, f la fréquence de résonance mesurée (voir [Figure 4.1.2.2](#)) et β la plus petite solution de l'équation transcendante :

$$\tan \beta = -\frac{M}{m} \beta \quad (\text{Eq 4.2.1.2})$$

Où m la masse de l'échantillon et M la masse de l'accéléromètre.

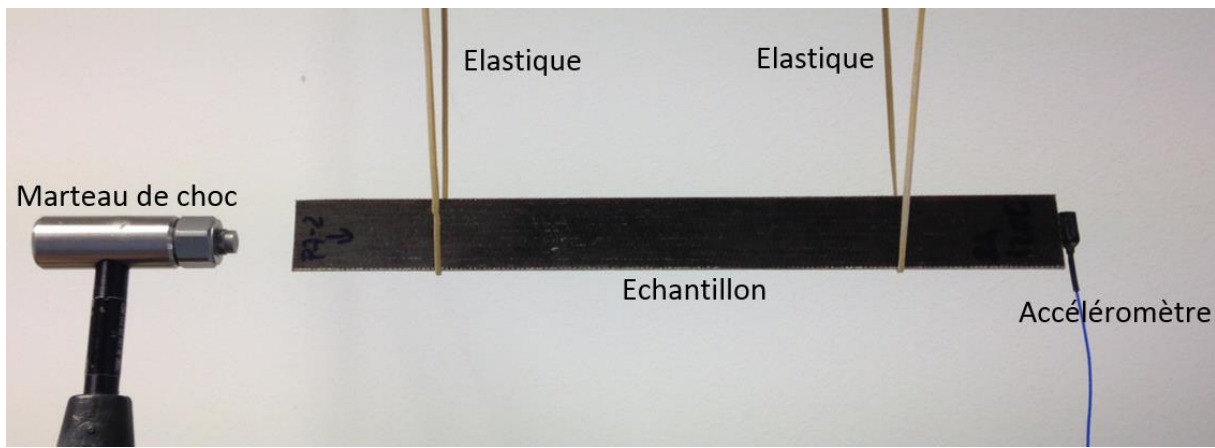


Figure 4.2.1.1 : Montage d'analyse modale en vibrations libres

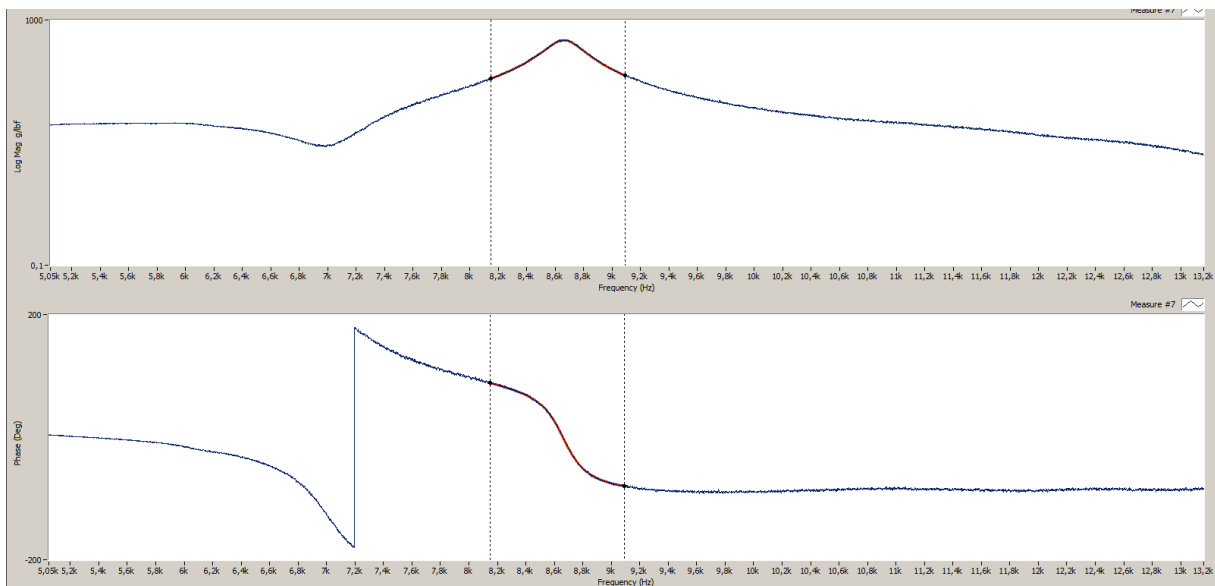


Figure 4.2.1.2 : Réponse fréquentielle (en amplitude et en phase) visualisée sur ModalView. En rouge, la synthèse modale autour de la résonance du mode 1 de traction-compression

4.2.2 – Traction monotone

4.2.2.1 – Traction monotone transverse (90°)

Ces essais ont été réalisés sur une presse Zwick Z010/TH2S équipée de mors pneumatiques et d'un capteur de force de 2.5 kN (**Figure 4.2.2.1**). La vitesse de déplacement de la traverse a été fixée à 1 mm/min et l'écart entre les mors est de 50 mm. Le rapport d'élanement n'est que de 2 (largeur de 25mm), mais on a considéré que ce facteur avait un impact non significatif sur la rupture dans cet essai, du fait de la direction des fibres. D'ailleurs, les ruptures sont apparues indifféremment au centre ou vers les mors sans différence significative observable sur les propriétés à rupture. Par matériau et durée de vieillissement, 4 éprouvettes ont été testées. La déformation a été mesurée par corrélation d'images, selon un protocole décrit dans la **section 4.2.4**. Le module d'Young dans cette direction (E_T) a été mesuré sur la plage de déformation préconisée par la norme NF EN ISO 527-4, soit entre 0.05 et 0.25 % de déformation. La contrainte maximale a également été mesurée.

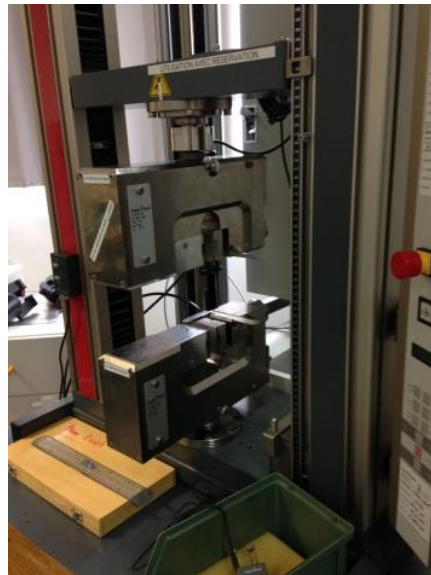


Figure 4.2.2.1 : Presse Zwick équipée des mors pneumatiques de traction

4.2.2.2 – Traction monotone longitudinale (0°) et hors axes (45°)

Ces essais ont été réalisés en accord avec la norme NF EN ISO 527-4 sur une presse MTS Criterion C45 équipée d'un capteur de force de 100 kN (**Figure 4.2.2.2.1**) et de mors trapézoïdaux à serrage manuel. La vitesse de déplacement de la traverse a été fixée à 1 mm/min et l'écart entre les mors à 150 mm.

Ici, la vitesse de déplacement est la même que pour les essais de traction à 90° présentés dans la section précédente, mais les échantillons ont une longueur entre les mors 3 fois supérieure. La vitesse de déformation est donc 3 fois inférieure. Ces matériaux sont sensibles à la vitesse de déformation, mais des différences significatives de comportement n'apparaissent qu'avec des changements de vitesse de déformation d'au moins une décade. On considère donc que cette différence de vitesse de déformation n'aura pas d'impact significatif sur les propriétés mécaniques mesurées.

Pour chaque matériau et état de vieillissement, 4 éprouvettes ont été testées.



Figure 4.2.2.2.1 : Presse MTS et dispositif de corrélation d'images

Dans le cas des échantillons utilisés lors de la mise en place du procédé de fabrication (**chapitre 5**), un extensomètre à couteaux de longueur de jauge 50 mm a été utilisé pour mesurer la déformation longitudinale. L'extensomètre a été retiré avant rupture. Ainsi, la dernière partie de la courbe de traction ne sera pas disponible. Pour ces essais seules la contrainte à rupture et la mesure des modules sont exploitées.

Pour tous les autres échantillons (**chapitres 6 à 9**), la déformation a été mesurée par corrélation d'images, selon le même protocole que pour les essais de traction longitudinale (voir **section 4.2.4**). Les courbes sont donc complètes, avec accès aux champs de déformation longitudinale et transverse jusqu'à rupture.

Lors d'essais préliminaires, les ruptures avec et sans talons étaient du même type (au centre ou au ras des talons) sans changements significatifs du comportement à rupture imputés à la présence ou non des talons. Par ailleurs, la tenue du collage lors du vieillissement ou la durée de collage, si le collage a lieu après le vieillissement, ont posé problème dans le comportement à rupture. En effet, soit le collage était altéré par le vieillissement et ne tenait donc pas durant l'essai, soit le collage post-vieillissement prenait trop de temps, du fait du temps de séchage, pour que l'échantillon soit considéré dans le même état que lors de sa sortie de l'enceinte ou du bain de vieillissement. Ainsi, afin d'assurer une reproductibilité dans les conditions d'essais sans altérer le comportement mécanique observé, les échantillons ont été testés sans talons.

En accord avec la norme NF EN ISO 527-4, le module d'Young pour les composites renforcés de fibres unidirectionnelles est mesuré sur la plage de déformation de 0.05 % à 0.25 %. Cette plage de déformation est adaptée aux composites à fibres synthétiques où un comportement linéaire est généralement observé, mais ne l'est pas pour les composites renforcés de fibres de lin, du fait de leur réponse non linéaire en traction. Sur la **figure 4.2.2.2**, la partie bleue représente la zone sur laquelle une régression linéaire est appliquée pour déterminer E_1 et la partie rouge celle sur laquelle est déterminé E_2 .

Un coude apparaît sur la courbe de traction, entre 0.001 et 0.0015 de déformation sur la **figure 4.2.2.2**, mais sa position dépend de nombreux paramètres comme la nature des fibres utilisées ou la microstructure du composite. De ce fait, afin de garder des critères

identiques pour tous les composites, aucune plage de déformation fixe n'a été utilisée pour ces mesures. Une régression linéaire a été employée en prenant un coefficient de corrélation maximum.

Pour la section avant le coude, la première valeur (point N_1) a été choisie après stabilisation des premiers points chaotiques (qui correspondent à des rattrapages de jeux). Pour la section après le coude, il a suffi de tracer la dérivée locale pour déterminer la fin du coude (point N_2) et d'effectuer ensuite la régression linéaire pour trouver, comme précédemment, la régression avec le coefficient de corrélation maximum. Ce maximum de coefficient de corrélation des régressions linéaires a été déterminé avec un nombre de points supérieur à 10.

Ainsi, avec le premier point numéro N_i déterminé de la façon explicitée précédemment, la régression linéaire a été effectuée pour toutes les plages de numéro de points $[N_i ; x]$ avec x variant de $N_i + 1$ jusqu'au dernier point de la courbe. Ainsi, en comparant les coefficients de corrélation de chaque régression linéaire, un maximum a été déterminé. Ce maximum correspond donc à une portion la plus linéaire possible à partir du point numéro N_i . Pour la section avant le coude, ce dernier aura pour effet de diminuer le coefficient de corrélation, ce qui permet de garantir que l'on mesure bien la zone bleue sur la figure 4.2.2.2. Il en va de même pour la zone rouge lorsque des non-linéarités apparaissent en fin de courbe de traction.

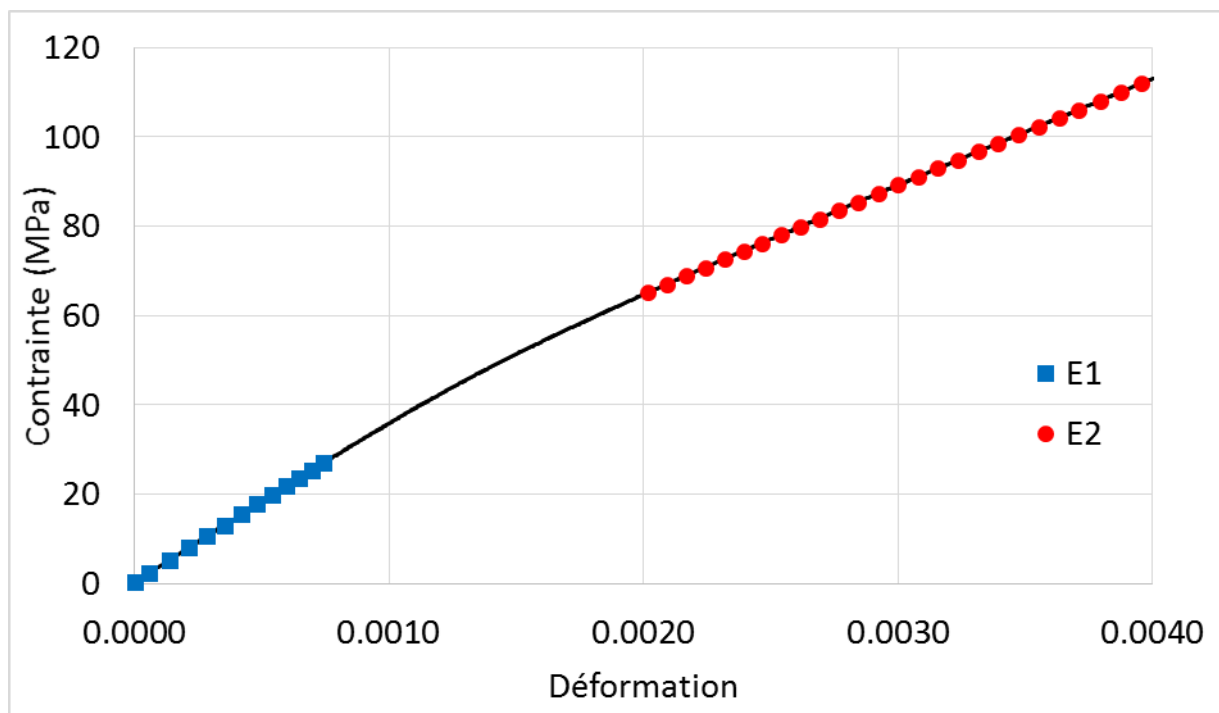


Figure 4.2.2.2 : Courbe de traction et zones de mesure des modules E_1 et E_2 (respectivement en bleu et en rouge)

Dans le cas de la traction avec des fibres orientées à 45° par rapport à l'axe de traction, la courbe apparaît perturbée sur une première section et le module apparent a donc été déterminé par régression linéaire après stabilisation. Pour chaque composite et état de vieillissement, la régression linéaire correspond à la zone de mesure de E_2 des essais du même composite dans le même état de vieillissement.

Pour déterminer le module de cisaillement G_{LT} sur les échantillons avec une orientation de fibres à 45° , la formule suivante a été utilisée [161] :

$$\frac{1}{G_{LT}} = \frac{1}{E_{45}} - \frac{1}{E_L} - \frac{1}{E_T} + 2 \cdot \frac{\nu_{LT}}{E_L} \quad (\text{Eq. 4.2.2.2})$$

Avec : E_{45} le module apparent sur éprouvette avec fibres à 45° , E_L le module longitudinal sur éprouvette avec fibres à 0° , E_T le module longitudinal sur éprouvette avec fibres à 90° et ν_{LT} Le coefficient de Poisson sur éprouvette avec fibres à 0° .

Le module E_2 a été utilisé comme valeur de E_L , pour garder les valeurs E_{45} et E_L sur des plages de déformation équivalentes.

4.2.3 – Suivi de la déformation par corrélation d’images

L’avantage du suivi de la déformation par corrélation bidimensionnelle d’images est que l’on obtient, sans aucun contact avec l’éprouvette, les champs des déplacements locaux et globaux, permettant de mesurer le tenseur plan des déformations.

Une caméra est placée face à l’échantillon sur lequel un mouchetis aléatoire a été projeté. CinEMA, un logiciel, développé au C2MA, permet de traiter à postériori les images de l’échantillon acquises au cours de l’essai. Un maillage virtuel est attaché à l’image de référence. Les nœuds de ce maillage, représentés par des points verts sur la **figure 4.2.3**, sont espacés dans les directions horizontales et verticales d’une distance G_s (Grid step) choisie par l’utilisateur. À chaque nœud du maillage virtuel est associé un motif élémentaire unique, de côté de taille C_s (Correlation size), du mouchetis aléatoire. En suivant l’évolution de ces motifs d’une image à l’autre, on peut remonter aux déplacements (u_x et u_y) des nœuds du maillage et aux déformations associées (locales). Des valeurs de G_s de 20 pixels et de C_s de 20 pixels ont été utilisées pour les différents essais de traction. On peut aussi déterminer la déformation globale en évaluant la déformation d’une jauge de longueur $G_L = n \cdot G_s$ (G_L pour gage length). Plus n est grand, plus on « moyenne » la déformation sur une surface importante, ce qui permet de remonter à des mesures comparables à ce qu’on pourrait réaliser en extensométrie à contact. Dans notre cas, le G_L de 1400 pixels a été choisi. Cela correspond à la surface de l’échantillon sans les bords (148 mm x 23 mm) afin d’éviter de perturber les mesures avec des effets de bords.

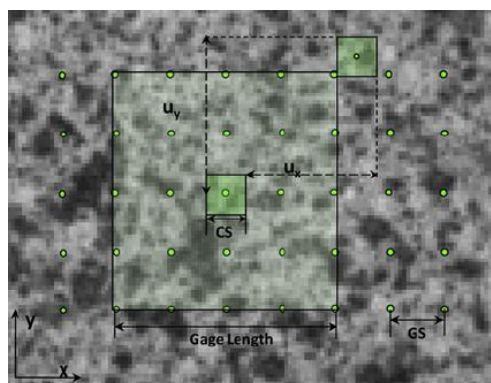


Figure 4.2.3 : Maillage virtuel à l’aide des motifs élémentaires uniques

4.2.4 – Fatigue

Les essais de fatigue sont réalisés sur une presse hydraulique Instron 8501 (Figure 4.2.4.1), équipée d'un capteur de force de 100 kN. Les essais sont pilotés en force selon un signal triangulaire à une fréquence de 5 Hz et un rapport R (force minimale sur force maximale) de 0.1. L'éprouvette est donc continuellement sollicitée en traction. Un extensomètre à couteaux et deux capteurs d'émissions acoustiques ont été utilisés pour mesurer respectivement la déformation longitudinale et les énergies des ondes acoustiques provoquées par des perturbations internes (rupture de fibres, de résine, autre) de l'éprouvette au cours de l'essai.



Figure 4.2.4.1 : Presse hydraulique Instron 8501 équipée d'un capteur de force de 100 kN

Des essais ont été réalisés avant et après immersion pour les composites fabriqués sous des pressions de 1 bar et 3 bars.

Les échantillons fabriqués sous des pressions de 1 bar et 3 bars puis stockés à 23 °C et 50 %HR, ont été testés sans talons.

En revanche, les échantillons en immersion ont été testés avec des talons en composite unidirectionnel lin / époxy, les fibres des talons étant positionnées perpendiculairement à la direction des fibres de l'éprouvette testée. Pour ces essais cycliques avec vieillissement, ces talons sont rendus nécessaires afin de résoudre des problèmes d'arrachement de la surface des composites. En effet, à saturation du composite, les mordaches indentent et cisailent la surface.

De plus, un dispositif a été mis en place afin de réaliser des essais de fatigue en immersion *in situ*. Un mors en acier inoxydable a été monté sur une rallonge fixée au vérin hydraulique. Le bac, dans lequel les mors et l'éprouvette sont immergés au cours de l'essai, est solidaire de la rallonge (Figure 4.2.4.2). Les éprouvettes, saturées dans un bain

thermostaté à 70°C par ailleurs, ont été testées dans un bain d'eau à température ambiante permettant de conserver l'état hydrique des éprouvettes pendant l'essai de fatigue.

Des capteurs d'émissions acoustiques sont présents sur la [figure 4.2.4.2](#), mais l'analyse de ces résultats n'a pas été possible suite à des problèmes d'acquisition des signaux.

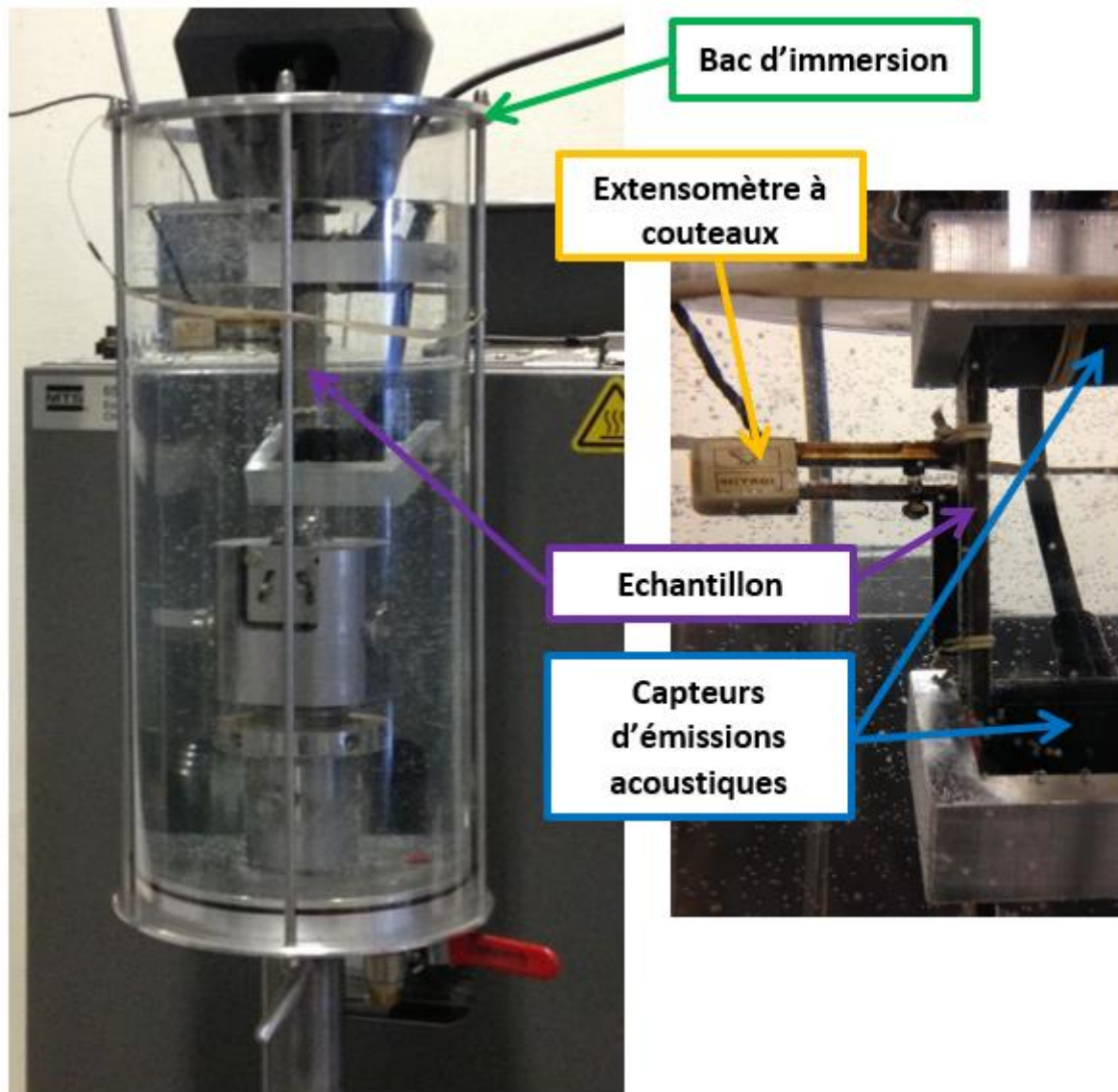


Figure 4.2.4.2 : Dispositif de fatigue en immersion

Chapitre 5 – Matériaux et Fabrication

Dans ce chapitre, le procédé de fabrication et sa mise au point en vue de produire des composites robustes permettant une utilisation structurale sont étudiés. Les matériaux constitutifs du composite sont donc présentés dans un premier temps, puis le procédé de fabrication choisi : la thermocompression. Les différents paramètres de fabrication étudiés sont ensuite détaillés et discutés dans l'ordre suivant : le conditionnement des fibres, la pression de consolidation, la cuisson (température et durée) et la température de post-cuisson, ainsi que la durée de post-cuisson. L'influence de la cuisson et de la température de post-cuisson a été étudiée par Thomas Cadu dans le cadre de sa thèse. L'étude de la fabrication a d'ailleurs fait l'objet d'un article coécrit avec Thomas Cadu [162].

Enfin, un bilan de l'étude du procédé est dressé et le chapitre se termine sur le procédé de fabrication retenu ainsi que sur la présentation des deux composites fabriqués pour les travaux de cette thèse et la nomenclature qui leur sont associés dans le reste du manuscrit.

5.1 – Matériaux

5.1.1 – Fibres de lin

Les fibres de lin utilisées pour cette étude se présentent sous la forme d'un voile FlaxTape™ continu, unidirectionnel et hydrolié (sans fils de couture) fourni par la société Lineo®. La fiche technique de ce produit indique un grammage surfacique de 110 g/m². La masse volumique de ces fibres, mesurée par pycnométrie à hélium, est de 1.517 g/cm³.

La fiche technique indique des propriétés mécaniques pour un composite unidirectionnel fabriqué par RTM avec les fibres Flaxtape™ 110 g/m² et une résine époxy, avec un taux volumique de 50 %, de 35 GPa pour le module, de 365 MPa pour la contrainte à rupture et de 1.35 % d'allongement à rupture dans le sens longitudinal.

5.1.2 – Résine époxyde

La résine utilisée pour cette étude est une résine DGEBA SR 8500® associée à un durcisseur SZ 8525® fournis par Sicomin®, avec un ratio massique résine / durcisseur de 4 : 1. La masse volumique de cette résine réticulée, mesurée par pycnométrie à hélium, est de 1.177 g/cm³. À 80 °C, pour une cuisson d'une heure, la température de transition vitreuse donnée par la fiche technique est de 102 °C avec une mesure selon la norme ISO 11357-2 : 1999 avec une plage de température de -5 °C à 180 °C sous azote. Aucune information sur la fiche technique ne figure quant au taux de réticulation de la résine associée à une telle cuisson.

5.2 – Thermocompression

Le procédé de thermocompression consiste en une compression des éléments constitutifs (renforts et matrice) par une presse avec des plateaux chauffants. La compression permet la compaction des fibres tandis que la température appliquée permet de réticuler la résine.

Dans le cadre de la fabrication des composites lin / époxy étudiés lors de cette thèse, une presse de thermocompression Fontijne Grotnes TPC 321 a été utilisée (**Figure 5.2**). Les plateaux chauffants ont une dimension de 350 mm x 350 mm et disposent d'un système de refroidissement interne. Lors des phases de refroidissement, de l'air réfrigéré circule à l'intérieur de canaux parcourant les plateaux et permet de contrôler la vitesse de refroidissement.

Le moule utilisé est constitué d'un bac de récupération en acier de 350 mm x 350 mm, d'un moule en acier avec deux bords libres opposés de 300 mm x 300 mm de zone utile et d'un contre-moule en acier de 300 mm x 300 mm. Les rebords du moule ont une hauteur de 10 mm de hauteur.

Le bac de récupération permet à la résine de s'écouler librement sans dégrader la presse de thermocompression. Le moule a été recouvert de téflon afin de protéger toutes les surfaces et assemblages, et également afin de faciliter le démoulage des plaques de composites après fabrication. Les rebords seront toujours disposés dans le sens des fibres, ainsi l'écoulement de la résine par les bords libres se fera dans le sens des fibres. Non seulement cela permet un écoulement plus rapide, mais également d'éviter le déplacement des fibres dans le sens transverse qui se produit en l'absence de rebords.



Figure 5.2 : Presse de thermocompression Fontijne Grotnes TPC 321 avec groupe de refroidissement sur la gauche

5.3 – Influence des paramètres de fabrication sur le comportement longitudinal à 0°

5.3.1 – Paramètres étudiés et nomenclature

Cette étude a été réalisée en collaboration avec Thomas Cadu, doctorant du DRIVE et de l'IFSTTAR travaillant sur des composites constitués de la même résine et des mêmes fibres. Ces travaux ont fait l'objet d'une publication [162].

Des plaques de composites ont été fabriquées avec différents paramètres de fabrication afin d'étudier l'influence de ces paramètres de fabrication sur la qualité et la performance des composites. Les paramètres étudiés sont les suivants :

- Conditionnement des fibres
- Pression de consolidation
- Température de cuisson*
- Vitesse de refroidissement*
- Température de sortie du moule*
- Température de post-cuisson*
- Durée de post-cuisson

*paramètres étudiés par Thomas Cadu dans le cadre de sa thèse.

Pour l'étude du conditionnement, deux lots ont été utilisés. Le premier lot n'a pas subi de conditionnement (Not Conditionned : NC) et a été stocké en conditions ambiantes non contrôlées. Pendant ce stockage, un dispositif de mesure d'humidité et de température Völcraft DL-141TH a été placé avec les fibres avec un enregistrement de données toutes les 10 minutes. La température et l'humidité ont été mesurées, sur la période de stockage, à $22 \pm 2^\circ \text{C}$ et $30 \pm 5 \text{ \%HR}$. Le second lot a été conditionné (Conditionned : C) dans une enceinte climatique Vötsch VC 7100 à $23 \pm 1^\circ \text{C}$ et $50 \pm 1 \text{ \%HR}$ pendant au moins 7 jours avant fabrication.

Les fibres ont été imprégnées manuellement à chaque pli jusqu'à obtenir l'empilement souhaité (purement unidirectionnel constitué de 12 ou 20 plis).

Un cycle de cuisson de référence est présenté sur la [figure 5.3.1](#). Dans un premier temps, la température augmente de 20°C à 40°C en 10 minutes ($2^\circ \text{C}/\text{min}$). Cette étape permet une diminution de la viscosité de la résine. La pression (Consolidation Pressure : CP) est ensuite appliquée et sera maintenue jusqu'à la fin de la cuisson. Un palier à 40°C est appliqué pendant 15 minutes afin de permettre à la résine d'imprégner les fibres. La pression est ajustée automatiquement par la presse. Dans un second temps, la température augmente jusqu'à la température de cuisson (Curing Temperature : CT) souhaitée (60°C ou 80°C) en 15 minutes. La température de cuisson est alors maintenue pendant 1 heure. Ensuite, le moule est refroidi à une vitesse de refroidissement (Cooling Speed : CS) (naturel à environ $0.083^\circ \text{C}/\text{min}$, contrôlée à $1^\circ \text{C}/\text{min}$ ou contrôlée à $2^\circ \text{C}/\text{min}$) jusqu'à la température de sortie (Exit Temperature : ET) (20°C , 40°C ou 60°C). Entre la cuisson et la post-cuisson, les plaques ont été stockées en conditionnement dans les conditions citées précédemment. La post-cuisson est réalisée dans les 60 heures après la cuisson dans un four Memmert UN 450+ à une température (Post-Curing Temperature : PCT) de 60°C ou 80°C pendant une durée (Duration of Post-Curing : $\Delta t \text{ PC}$) de 1h, 2h ou 4h.

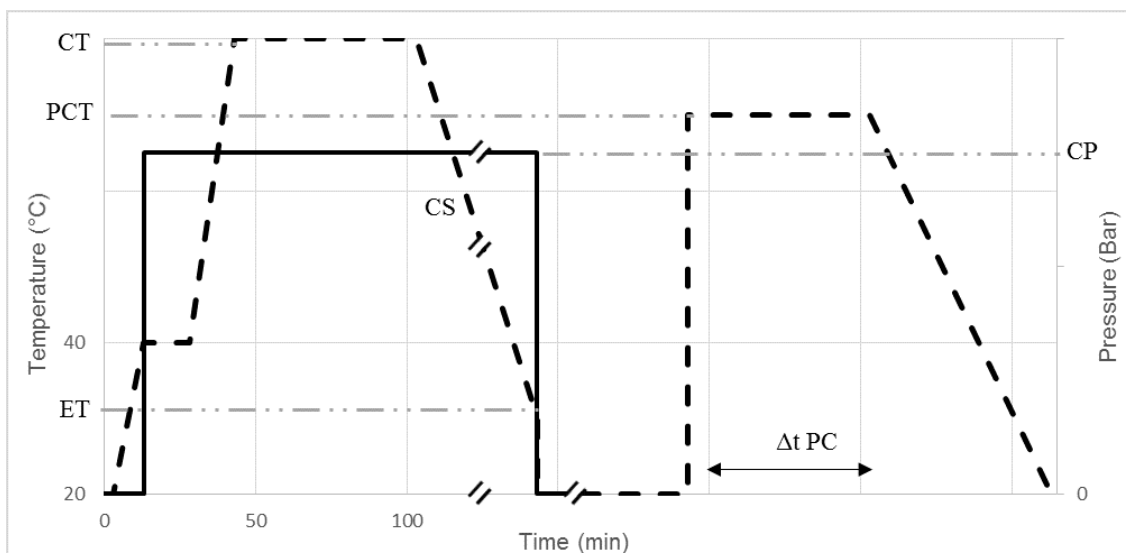


Figure 5.3.1 : Cycle de cuisson et paramètres de fabrication associés – température en pointillés, pression en trait plein

Les combinaisons de paramètres de fabrication qui ont été étudiées sont résumées dans le **tableau 5.3.1**. Chaque ligne représente une combinaison. La nomenclature utilisée pour ces plaques y est également décrite.

| Paramètres de fabrication | Conditionnement des fibres (NC - C) | Nombre de plis (NP) | Pression de consolidation (CP) | Température de cuisson (CT) | Vitesse de refroidissement (CS) | Température de sortie (ET) | Température de post-cuisson (PCT) | Durée de post-cuisson (Δt PC) | |
|---------------------------|-------------------------------------|---------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|---|-------------------------------|-----------------------------------|--|-------------------------|
| Nomenclature | NC ou C | 12P 20P | 1 B (bar) 3 B (bar) 5 B (bar) | 60 (°C) 80 (°C) | Nat (Naturel) 1 (1°C/min) 2 (2°C/min) | 20 (°C) 40 (°C) 60 (°C) | X (sans) 60 (°C) 80 (°C) | X (sans) 1 (h) 2 (h) 4 (h) | |
| Valeurs étudiées | NC | 12 | 3 B (bar) | 80 (°C) | Nat | 20 (°C) | x | x | |
| | | 20 | | 60 (°C) | | 60 (°C) | | | 80 (°C) |
| | C | 12 | | 80 (°C) | | 2 (°C/min) | 40 (°C) | 80 (°C) | 1 (h) 2 (h) 4 (h) |
| | | | | | | | 20 (°C) | x | x |
| | | | | | | | 1 (°C/min) | 20 (°C) | x |
| | | 20 | | 1 B (bar) 3 B (bar) 5 B (bar) | 80 (°C) | Nat | 40 (°C) | x | x |
| | | | | | | | 40 (°C) | | |
| | | | | | | | 40 (°C) | | |

Tableau 5.3.1 : Récapitulatif des combinaisons de paramètres de fabrication étudiées et nomenclature associée

L'objectif de cette étude est d'atteindre un composite avec un module E_1 supérieur à 30 GPa et une contrainte à rupture supérieure à 300 MPa.

Les résultats qui seront présentés ont fait l'objet d'une classification de l'influence des paramètres sur les propriétés mécaniques à l'aide d'une analyse statistique de la variance (ANOVA). Le rapport $\frac{F}{F_{crit}}$ représente l'importance de la variation entre les valeurs moyennes de deux groupes d'échantillons. F est le rapport entre la variance intergroupe (variance totale de tous les échantillons considérés) et la variance intragroupe (moyenne des variances des deux groupes d'échantillons pris séparément). F_{crit} est déterminé à partir d'une table de Snedecor à 95% de sûreté. Ces paramètres sont calculés de manière automatique à l'aide de la fonction ANOVA du logiciel Excel. Si le rapport $\frac{F}{F_{crit}}$ est supérieur à 1, l'hypothèse nulle du test ANOVA est invalide, ce qui signifie que les échantillons n'appartiennent pas à la même population, ou encore que les différences entre les deux groupes d'échantillons sont significatives.

Des rangs d'influence ont été définis à partir des moyennes des propriétés mécaniques (E_1 , E_2 et contrainte à rupture) et de la valeur du rapport $\frac{F}{F_{crit}}$:

- rang 1 : influence majeure (écart entre les moyennes supérieur à 15 % et $\frac{F}{F_{crit}} > 1$)
- rang 2 : influence moyenne (écart entre les moyennes entre 10 et 15% et $\frac{F}{F_{crit}} > 1$)
- rang 3 : influence faible (écart entre les moyennes inférieur à 10 % et $0.5 < \frac{F}{F_{crit}} < 1$)
- rang X : influence négligeable

5.3.2 – Influence du conditionnement des fibres

Dans le **tableau 5.3.2.1** sont récapitulées les propriétés mécaniques des composites fabriqués avec fibres non conditionnées et conditionnées avec 12 et 20 plis. Dans le **tableau 5.3.2.2**, on constate que les modules sont impactés par le conditionnement tandis que la contrainte à rupture n'est pas significativement altérée. Le conditionnement a donc un effet de rang 2 sur le module E_1 et de rang 1 sur le module E_2 . Il y a également une tendance observée sur les contraintes à rupture qui sont inversées pour les 12 plis et les 20 plis, cependant les écarts-types sont tels que le test statistique ANOVA réalisé indique une non-significativité de ces écarts.

Ici, le conditionnement semble avoir un effet positif sur ces modules. Il est donc raisonnable de penser que les fibres de lin ont une hygrométrie optimale de stockage afin d'optimiser leurs modules. Des essais supplémentaires avec des fibres conditionnées à différents niveaux d'hygrométrie à température ambiante devraient être menés pour la détermination de la valeur optimale.

L'avantage principal du conditionnement comparé à un stockage non contrôlé reste la reproductibilité. Malheureusement, il est difficile de voir cet effet ici, car les fibres non conditionnées ont été utilisées à peu près en même temps (même période de l'année), or, au cours de l'année, des variations importantes pourraient être observées. Ainsi, le conditionnement devrait assurer une reproductibilité tout au long de l'année, quelles que soient les conditions hygrothermiques.

| Conditionnement des fibres | Module E ₁ (GPa) | | Module E ₂ (GPa) | | Contrainte à rupture (MPa) | |
|----------------------------|--------------------------------|------------|--------------------------------|------------|-------------------------------|------------|
| | moyenne | écart-type | moyenne | écart-type | moyenne | écart-type |
| NC/12P/3B/80/NAT/20/X/X | 28,9 | 1,7 | 17,7 | 1,0 | 364,9 | 18,0 |
| C/12P/3B/80/NAT/20/X/X | 32,2 | 1,4 | 22,1 | 0,9 | 343,1 | 10,1 |
| NC/20P/3B/80/NAT/20/X/X | 30,7 | 1,2 | 19,0 | 0,8 | 343,0 | 20,6 |
| C/20P/3B/80/NAT/20/X/X | 32,4 | 2,1 | 22,8 | 1,9 | 370,5 | 20,6 |

Tableau 5.3.2.1 : Propriétés mécaniques des composites fabriqués avec des fibres non conditionnées (NC) ou conditionnées (C) avec 12 ou 20 plis

| | | Conditionnement |
|---------------------|------------------|-----------------|
| Rang d'influence | E ₁ | 2 |
| | E ₂ | 1 |
| | σ _{max} | X |

Tableau 5.3.2.2 : Récapitulatif des rangs du conditionnement sur les différentes propriétés mécaniques

5.3.3 – Influence de la pression de fabrication

La pression a une influence très importante sur les propriétés mécaniques des composites, comme on peut le constater dans le [tableau 5.3.3.1](#). On peut voir que les modules et la contrainte à rupture augmentent significativement entre 1 et 3 bars, mais qu'entre 3 et 5 bars, avec les écarts types associés, la différence semble relativement faible ou inexistante.

Ces résultats sont attendus entre 1 et 3 bars, puisque la pression augmente le taux volumique de fibres. En revanche, le palier entre 3 et 5 bars, comme on a pu le voir dans l'état de l'art concernant la fabrication, peut être dû à une augmentation du taux volumique de porosités et/ou à une dégradation des fibres par compaction non naturelle, qui dégrade les propriétés globales du composite par concentration de contraintes, réduction de la section utile par rapport à la section mesurée et diminution des propriétés des fibres. Il est donc important d'étudier les taux volumiques associés. En revanche, l'analyse de la dégradation des fibres n'a pas été réalisée à cette étape.

Ainsi, les taux volumiques de fibres pour les « 1 bar », « 3 bars » et « 5 bars » sont respectivement d'environ 38%, 45% et 51% et leurs taux volumiques de porosités sont respectivement d'environ 2.4%, 2.5% et 3.1%. On constate donc une légère augmentation du taux volumique de porosités pour les « 5bars », mais la valeur reste faible comparée aux données de la littérature. En effet, les porosités pour des composites lin/époxy sont de l'ordre de 5 à 10 % [65], [163].

De ce fait, une pression de 3 bars semble plus adaptée qu'une pression de 5 bars puisque les propriétés mécaniques sont équivalentes, mais le taux de porosité à 5 bars est plus important, témoignant d'une moins bonne qualité d'imprégnation.

La pression est donc un paramètre de rang 1, car elle pilote le taux volumique de fibres. Un optimum devrait être trouvé comme étant le point où les propriétés mécaniques sont importantes et le taux volumique de porosité est le plus faible possible, tout en obtenant un taux volumique de fibres élevé. Il est important de noter qu'une pression de 3 bars est ici plus adaptée qu'une pression de 5 bars, mais, pour autant, on ne peut pas conclure qu'il s'agit de

la pression optimale. Pour une optimisation, des essais supplémentaires devraient être réalisés afin d'effectuer cette détermination. Par ailleurs les objectifs de cette étude du procédé ont permis d'atteindre les critères initiaux (Module $E_1 > 30$ GPa et contrainte à rupture > 300 MPa).

Le **tableau 5.3.3.2** récapitule le rang d'influence de la pression sur les différentes propriétés étudiées.

| Pression | Module E_1 (GPa) | | Module E_2 (GPa) | | Contrainte à rupture (MPa) | |
|-------------------------------|-----------------------|------------|-----------------------|------------|-------------------------------|------------|
| | moyenne | écart-type | moyenne | écart-type | moyenne | écart-type |
| C/20P/1B/80/NAT/40/X/X | 27,9 | 1,1 | 18,9 | 0,3 | 314,8 | 14,9 |
| C/20P/3B/80/NAT/40/X/X | 32,4 | 2,1 | 22,8 | 1,9 | 370,5 | 20,6 |
| C/20P/5B/80/NAT/40/X/X | 34,3 | 1,5 | 22,8 | 0,8 | 382,6 | 18,6 |

Tableau 5.3.3.1 : Propriétés mécaniques des composites fabriqués sous une pression de 1, 3 ou 5 bars

| Pression | | Pressure |
|---------------------|----------------|----------|
| Rang d'influence | E_1 | 1 |
| | E_2 | 1 |
| | σ_{max} | 1 |

Tableau 5.3.3.2 : Récapitulatif des rangs de la pression sur les différentes propriétés mécaniques

5.3.4 – Compléments d'étude : influence de la cuisson et de la température de post-cuisson

Dans cette section, les résultats issus des travaux de thèse de Thomas Cadu seront présentés brièvement. Ces résultats ayant fait l'objet d'une publication, le détail des résultats y est disponible [162].

Les paramètres suivants ont été analysés : la température de cuisson (entre 60 et 80°C), la vitesse de refroidissement (Nat pour naturel – soit 0.083°C/min environ – 1°C/min et 2°C/min), la température de sortie (20°C, 40°C et 60°C) et la température de post-cuisson (60°C et 80°C). Les combinaisons analysées sont reportées dans le **tableau 5.3.4**.

Il en a été conclu que la température de cuisson de 80°C menait à une réticulation complète, comme pour 60°C, mais de légères variations sur les propriétés mécaniques des composites ont été observées. Elles ont été classées comme non significatives au regard du test ANOVA effectué.

Aussi, plus la vitesse de refroidissement est importante, plus la contrainte à rupture diminue. Cependant, pour des raisons de durée de fabrication et de reproductibilité, une vitesse contrôlée a été choisie pour la suite des fabrications puisqu'un refroidissement naturel prenait beaucoup de temps (environ 12h) donc une monopolisation de la presse longue et dépendait de la température de la salle de fabrication (donc des variations possibles au cours de l'année). Ce choix a été réalisé, car la vitesse de refroidissement imposée reste relativement faible.

De plus, la température de sortie de la plaque hors du moule a un impact fort sur les modules et un impact faible sur la contrainte à rupture. Une sortie du moule à 20°C plutôt qu'à 60°C améliore les propriétés mécaniques. Des contraintes internes peuvent en effet se relâcher pendant un refroidissement lent et les chaînes macromoléculaires constitutives de la résine finissent de se figer. Une sortie à 60°C est donc néfaste de ce point de vue là, car la vitesse de refroidissement de la plaque hors du moule, à l'air libre, est très grande. Cette vitesse de refroidissement n'a pas été mesurée, mais on constate qu'elle est au-delà des limites acceptables.

Enfin, il n'y a pas eu de différence significative entre les deux températures de post-cuisson (même en comparaison avec des plaques sans post-cuisson). Une faible influence a été observée sur le module E_2 où la température de 80°C était plus performante. C'est donc cette température qui a été sélectionnée.

Les influences de chaque paramètre sont donc consignées dans [le tableau 5.3.4](#).

| | | Température de cuisson | Vitesse de refroidissement | Température de sortie | Température de post-cuisson |
|------------------|----------------|------------------------|----------------------------|-----------------------|-----------------------------|
| Rang d'influence | E_1 | X | X | 1 | X |
| | E_2 | X | X | 1 | 3 |
| | σ_{max} | X | 2 | 3 | X |

Tableau 5.3.4 : Récapitulatif des rangs des paramètres de cuisson et de la température de post-cuisson sur les différentes propriétés mécaniques

5.3.5 – Influence de la durée de post-cuisson

La durée de post-cuisson est un paramètre de rang 2, mais pour une raison non couverte par la définition initiale des différents rangs. Dans le [tableau 5.3.5.1](#), on constate une décroissance légère des moyennes avec une augmentation de la durée de post-cuisson. Cet effet est négligeable lorsque l'on considère le test ANOVA. En revanche, l'écart-type est drastiquement réduit à partir de 2h de post-cuisson. Nous avons donc choisi de considérer ce paramètre comme étant de rang 2, comme indiqué sur le [tableau 5.3.5.2](#), puisqu'il permet une meilleure reproductibilité des propriétés mécaniques. En revanche, aucune différence notable d'écart-type n'a été observée entre une durée de 2h et de 4h de post-cuisson à 80°C. Pour des raisons d'énergie et de temps de production, une post-cuisson de 2h a été choisie pour la fabrication des échantillons pour la suite de la thèse même si ce choix pénalise légèrement les modules et la contrainte à rupture.

Des analyses thermogravimétriques réalisées par Thomas Cadu dans le cadre de sa thèse ont montré que la réticulation avant et après la post-cuisson est identique ($T_g = 110$ °C) et présumée complète puisque le fabricant de la résine donne une T_g de 106 °C pour une résine parfaitement réticulée. La réticulation n'est donc pas à l'origine de cette réduction d'écart-type. De ce fait, cette réduction a été attribuée à un relâchement des contraintes internes.

En revanche, seulement 4 échantillons ont été testés. Même si la reproductibilité est globalement bonne pour chaque série d'échantillons, on ne peut que rester prudent quant aux conclusions sur une telle réduction d'écart-type.

| Durée de post-cuisson à 80°C | Module E ₁ (GPa) | | Module E ₂ (GPa) | | Contrainte à rupture (MPa) | |
|------------------------------|-----------------------------|------------|-----------------------------|------------|----------------------------|------------|
| | moyenne | écart-type | moyenne | écart-type | moyenne | écart-type |
| C/12P/3B/80/2/40/X/X | 30,5 | 2,5 | 20,6 | 1,6 | 329,8 | 42,7 |
| C/12P/3B/80/2/40/80/1 | 29,6 | 3,3 | 20,5 | 1,8 | 331,3 | 44,4 |
| C/12P/3B/80/2/40/80/2 | 28,3 | 0,9 | 19,7 | 0,8 | 317,4 | 9,7 |
| C/12P/3B/80/2/40/80/4 | 28,2 | 1,0 | 19,4 | 0,6 | 310,1 | 16,6 |

Tableau 5.3.5.1 : Propriétés mécaniques des composites fabriqués sans post-cuisson ou avec post-cuisson à 80°C pendant 1, 2 ou 4 heures

| | | Durée de post-cuisson |
|------------------|------------------|-----------------------|
| Rang d'influence | E ₁ | 2 (ec-type) |
| | E ₂ | 2(ec-type) |
| | σ _{max} | 2 (ec-type) |

Tableau 5.3.5.2 : Récapitulatif des rangs de la durée de post-cuisson sur les différentes propriétés mécaniques

5.3.6 – Bilan de l'étude du procédé

Ainsi, on peut résumer les différents impacts de chaque paramètre sur chaque propriété mécanique. Les **figures 5.3.6.1, 5.3.6.2 et 5.3.6.3** présentent respectivement les modules E₁, les modules E₂ et les contraintes à rupture des plaques analysées, avec les différents paramètres de fabrication. Les paramètres de fabrication analysés sont, dans l'ordre de la gauche vers la droite, pour chaque figure : le conditionnement, la pression, la température de cuisson, la vitesse de refroidissement, la température de sortie, la température de post-cuisson et enfin la durée de post-cuisson. Les rangs de chaque paramètre y sont également représentés.

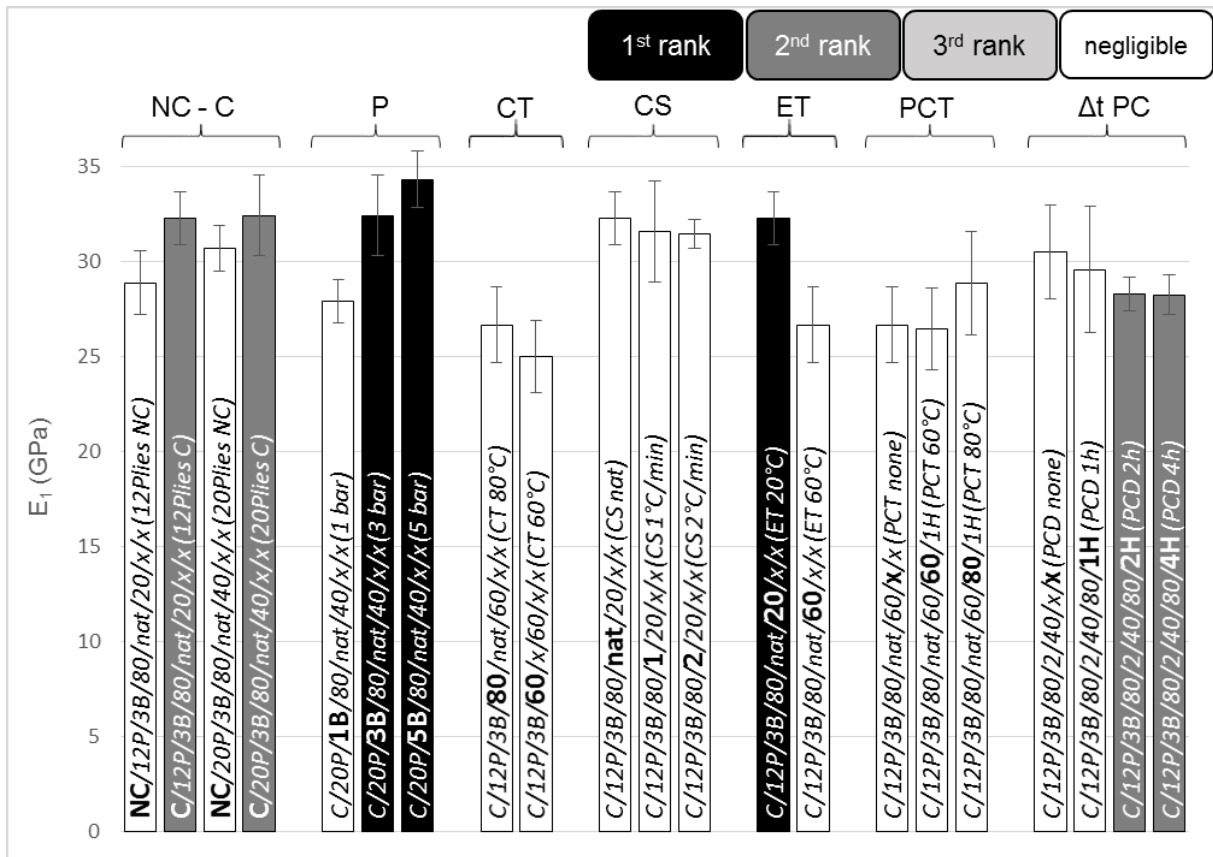


Figure 5.3.6.1 : Effet des paramètres de fabrication sur le module E_1

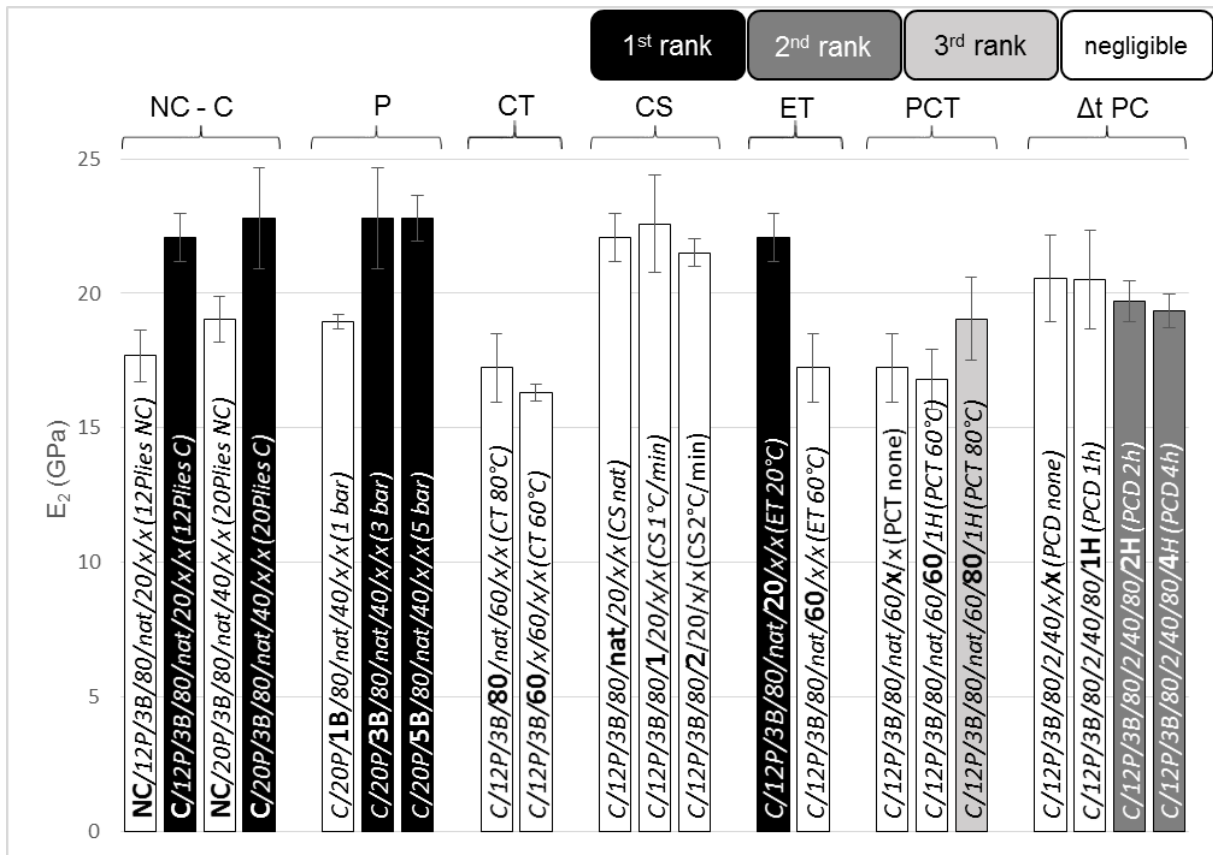


Figure 5.3.6.2 : Effet des paramètres de fabrication sur le module E_2

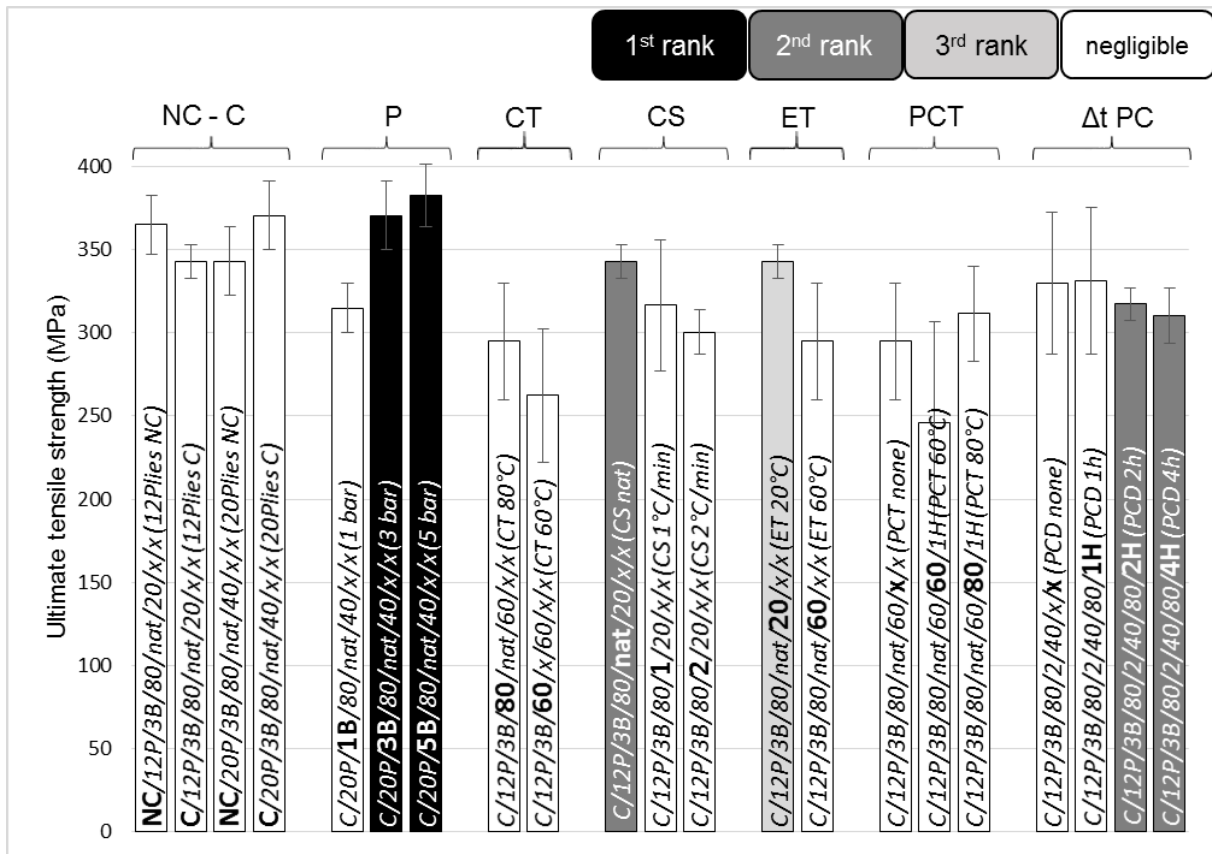


Figure 5.3.6.3 : Effet des paramètres de fabrication sur la contrainte à rupture

On obtient ainsi le [tableau 5.3.6](#) qui récapitule les rangs de chaque paramètre pour chaque propriété mécanique.

De plus, les paramètres de fabrication sont présentés selon la chronologie du procédé en [figure 5.3.6.4](#). On y retrouve les paramètres qui ont été testés ainsi que les choix qui ont été faits pour la réalisation des plaques dédiées aux différentes études qui suivront dans cette thèse. Certains paramètres n'ont pas pu être analysés, cependant les objectifs définis ont été atteints avec un module supérieur à 30 GPa et une contrainte à rupture supérieure à 300 MPa. Les propriétés mécaniques des composites fabriqués avec le cycle définitif de cuisson, présenté dans la [section 5.3.7](#), seront discutées dans le [chapitre 6](#).

| | | Conditionnement | Pression | Temp. cuisson | Vitesse refroid. | Temp. sortie | Temp. post-cuisson | Durée post-cuisson |
|------------------|------------------|-----------------|----------|---------------|------------------|--------------|--------------------|--------------------|
| Rang d'influence | E ₁ | 2 | 1 | X | X | 1 | X | 2 (ec-type) |
| | E ₂ | 1 | 1 | X | X | 1 | 3 | 2(ec-type) |
| | σ _{max} | X | 1 | X | 2 | 3 | X | 2 (ec-type) |

Tableau 5.3.6 : Récapitulatif des rangs des paramètres de fabrication sur les différentes propriétés mécaniques

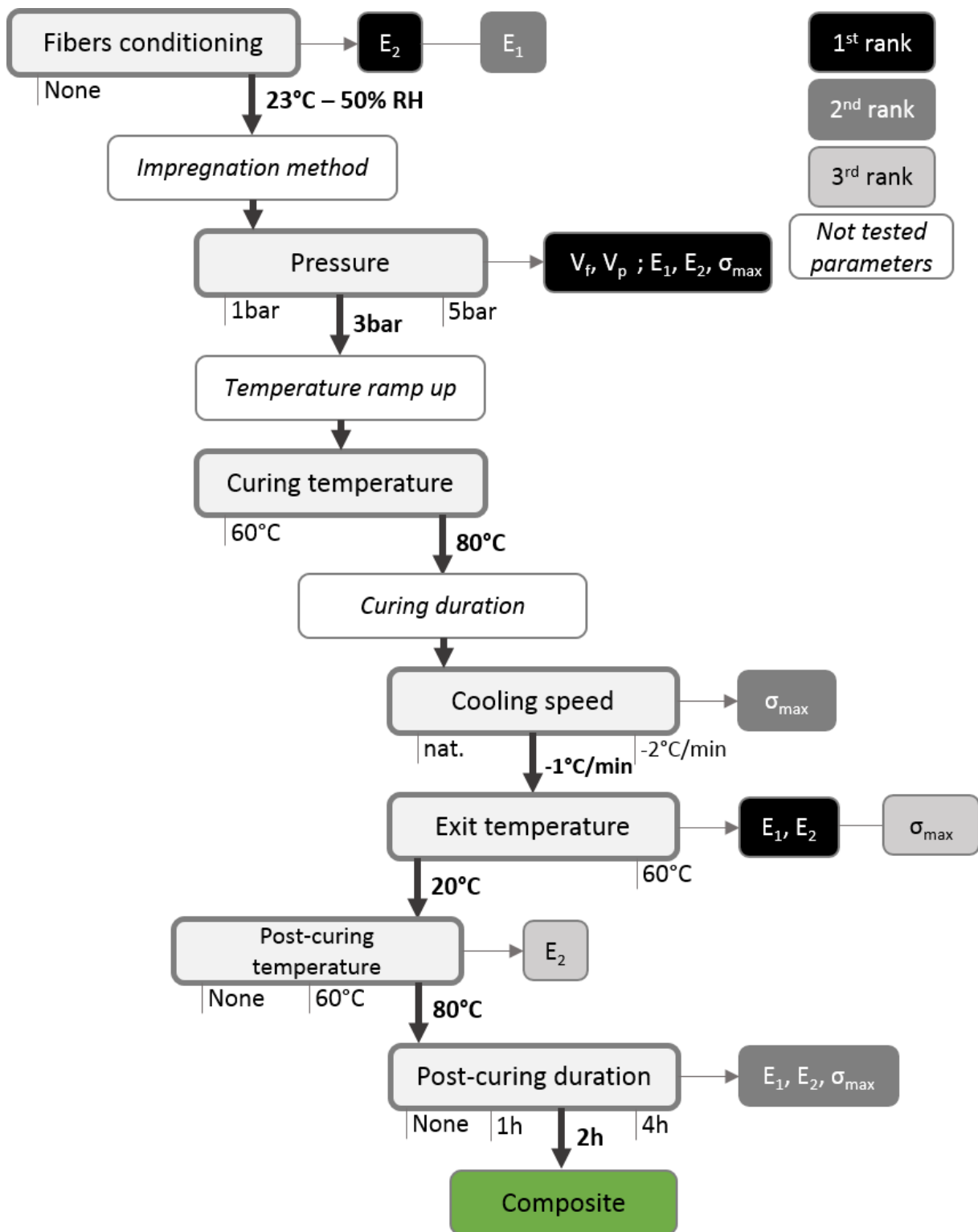


Figure 5.3.6.4 : Les différentes étapes de la fabrication et les rangs d'influence sur les propriétés mécaniques résultantes

5.3.7 – Procédé de fabrication retenu

Vingt plis de fibres de 350 mm x 350 mm, stockés dans un environnement ambiant non contrôlé, ont été conditionnés dans une enceinte climatique Vötsch® VC 7100. Les conditions hygrométriques, de 50 % HR et 23 °C, ont été appliquées au moins 7 jours avant fabrication afin de garantir la répétabilité de l'état des renforts ainsi que de celle des composites fabriqués.

Les 20 plis ont été empilés et imprégnés manuellement dans un moule fermé sur deux côtés et revêtu de Téflon. Les plis ont été déposés dans le même sens, afin d'obtenir un composite unidirectionnel. Les deux bords libres du moule ont été placés perpendiculairement au sens des fibres, afin de favoriser la sortie de l'excès de résine dans le sens des fibres.

La procédure de drapage, d'une durée comprise entre 50 minutes et 1h pour une durée de vie en pot de la résine donnée par le fabricant de 80 minutes à 23°C, suit les étapes suivantes :

1. étalement d'une fine couche de résine sur le moule
2. positionnement d'un pli de fibres
3. application d'une couche de résine, sous forme d'une bande perpendiculaire à l'alignement des fibres, au centre du pli ([figure 5.3.7.1](#)).
4. répétition des étapes 2 et 3 jusqu'à obtention d'un empilement de 20 plis
5. fermeture du moule
6. positionnement du moule dans une presse de thermocompression Fontjine Grotnes TPC 321



Figure 5.3.7.1 : Imprégnation manuelle d'un pli de résine dans le moule

Le cycle de cuisson et post-cuisson retenu est présenté sur la [Figure 5.3.7.2](#).

Tout d'abord, un palier de 15 minutes à 40 °C permet de diminuer la viscosité de la résine (avec une montée à 40 °C en 10 min). La pression est donc appliquée au début de ce palier, avec une valeur de 1 bar ou de 3 bars. Ensuite, la température augmente pendant 15 minutes jusqu'à atteindre le palier de cuisson à 80 °C. Cette température est maintenue pendant une heure avant de redescendre à 20 °C avec une diminution de 1 °C/min contrôlée par air réfrigéré à l'intérieur des plateaux de la presse. La pression est enlevée après retour à 20°C.

La post-cuisson a été réalisée dans un four Memmert UN 450+ à 80 °C pendant 2 h. Entre la cuisson et la post-cuisson, les plaques de composites ont été stockées en enceinte climatique, à 23 °C et 50 % HR.

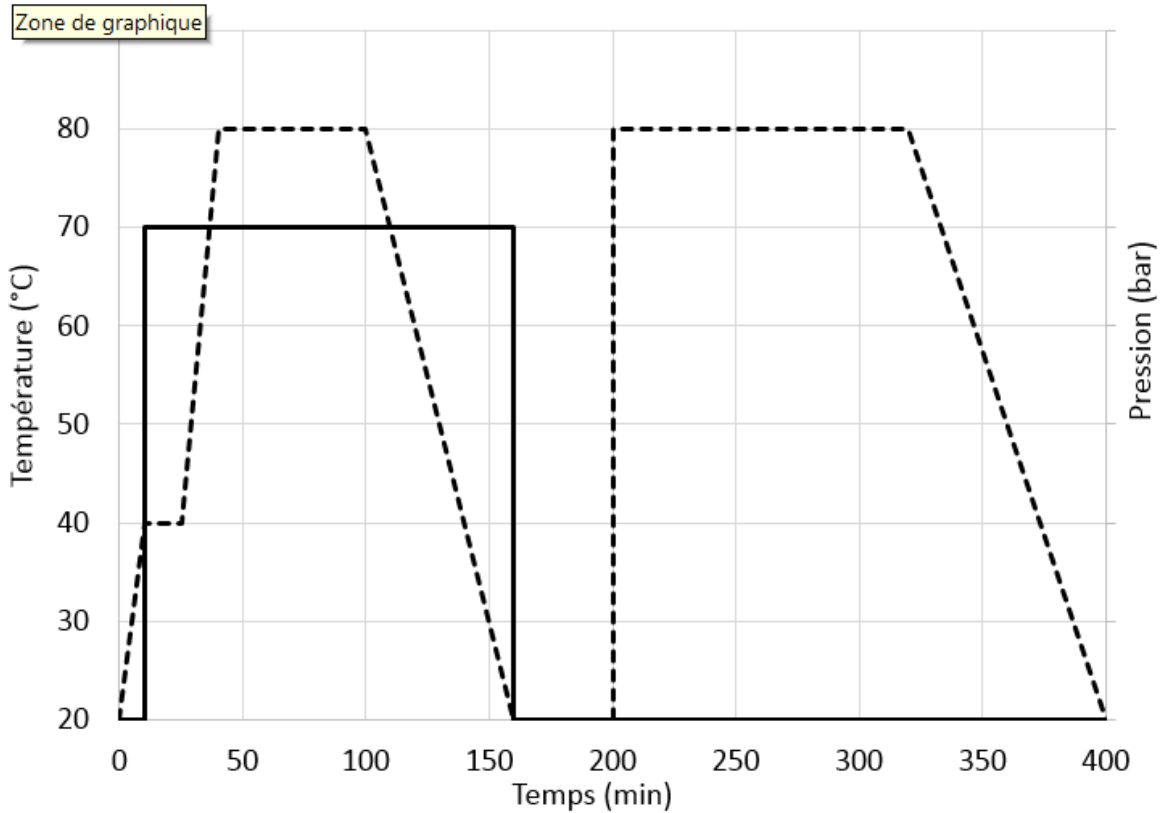


Figure 5.3.7.2 : Cycle de cuisson et de post-cuisson – Température en pointillés, pression de 1 ou 3 bars en trait plein

5.3.8 – Nomenclature et préparation des échantillons

Afin d'étudier l'influence de la morphologie des composites sur le vieillissement, deux types de plaques ont été réalisés, à des pressions différentes. Le [tableau 5.3.8.1](#) récapitule les taux volumiques de fibres et de vide pour les deux types de composites, ainsi que les taux massiques de fibres associés (à l'aide d'une loi des mélanges calculée à l'aide des masses volumiques des constituants données précédemment).

Ces données diffèrent des résultats obtenus par pesée lors de l'analyse des paramètres de fabrication, mais avec la pesée, la sensibilité aux différents facteurs (dimensions, masses volumiques) est très importante. Pour la détermination des taux volumiques de fibres et surtout de vide, la technique d'observation microscopique reste apparemment plus fiable et c'est pourquoi ces valeurs seront retenues.

| Pression (bar) | Taux volumique de fibres (%) | Taux volumique de vide (%) | Taux massique de fibres (%) |
|----------------|------------------------------|----------------------------|-----------------------------|
| 1 | 37.7 ± 1.0 | 1.7 ± 0.3 | 43.8 ± 1.2 |
| 3 | 51.1 ± 1.4 | 2.1 ± 0.3 | 57.4 ± 1.5 |

Tableau 5.3.8.1 : Taux volumiques de fibres et de vide pour les composites fabriqués sous 1 bar et sous 3 bars

Ces taux volumiques ont été mesurés à l'aide d'une analyse surfacique de clichés MEB décrite dans la [section 4.1.2](#). Des clichés utilisés pour cette détermination sont présentés dans la [section 6.1.1](#).

Pour le reste de cette thèse, les nomenclatures suivantes seront utilisées :

- composite fabriqué sous 1 bar stocké à 23°C, 50 %HR : « 1 bar conditionné »
- composite fabriqué sous 3 bars stocké à 23°C, 50 %HR : « 3 bars conditionné »
- composite fabriqué sous 1 bar après saturation en immersion à 70°C : « 1 bar saturé »
- composite fabriqué sous 3 bars après saturation en immersion à 70°C : « 3 bars saturé »
- composite fabriqué sous 3 bars après Y cycles de vieillissement hygrothermique : « 3 bars vieilli Y »

Des éprouvettes ont été coupées à l'aide d'une scie circulaire lubrifiée à l'eau. Une attention particulière a été portée lors de la découpe quant au temps d'exposition des échantillons à l'eau de lubrification. Immédiatement après la découpe, les échantillons ont été séchés à l'aide de papier absorbant afin de limiter toute absorption d'eau.

Les dimensions des différentes éprouvettes sont indiquées dans le [tableau 5.3.8.2](#).

| Orientation des renforts | Longueur (mm) | Largeur (mm) | Epaisseur « 1 bar conditionné » (mm) | Epaisseur « 3 bars conditionné » (mm) |
|--------------------------|---------------|--------------|--------------------------------------|---------------------------------------|
| 0° | 249.3 ± 2.0 | 25.1 ± 0.5 | 3.98 ± 0.11 | 3.08 ± 0.10 |
| 45° | 254.4 ± 1.6 | 24.9 ± 0.7 | | |
| 90° | 81.1 ± 0.6 | 25.4 ± 0.4 | | |
| 0° (ILSS) | 25.2 ± 0.2 | 10.6 ± 0.2 | | |
| DMA | 80.8 ± 0.4 | 11.1 ± 0.1 | | |

Tableau 5.3.8.2 : Dimensions des éprouvettes suivant l'orientation des renforts

Tous les échantillons ont été stockés ensuite dans un environnement contrôlé à 23 °C et 50 % HR pendant au moins 7 jours avant essais.

Les éprouvettes de traction monotone (avant ou après vieillissement) ainsi que les éprouvettes de fatigue avant vieillissement n'ont pas été équipées de talons. Des ruptures au centre des éprouvettes et des ruptures au ras des mors sont alors apparues, sans changement significatif imputé à l'absence de talons.

En revanche, les échantillons « 1 bar saturé » ont été testés en fatigue avec des talons en composite unidirectionnel lin / époxy, les fibres des talons étant positionnées perpendiculairement à la direction des fibres de l'éprouvette testée. Ces talons ont été utilisés pour résoudre des problématiques d'arrachement de la surface des composites saturés en eau par indentation et cisaillement de la peau du composite par les mordaches. Ce problème n'a pas eu lieu pour les essais statiques.

Partie 3 – Comportement statique en conditions hydrothermiques

Cette partie a pour objectif de présenter la caractérisation de la durabilité des composites au cours d'une immersion à 70 °C. L'étude est constituée d'une campagne expérimentale et d'une approche numérique de la durabilité de ces composites.

Dans un premier temps, les propriétés mécaniques statiques et morphologiques des composites à l'état conditionné sont présentées. Ensuite, le protocole de saturation est explicité, pour donner lieu à la mesure de l'évolution des propriétés au cours de la saturation. Enfin, le comportement statique à l'état saturé est discuté. Cela permet d'établir la relation entre le taux volumique de fibres et la durabilité de ces composites.

Dans un second temps, la méthodologie de l'approche numérique de la durabilité de ces composites est identifiée. Les hypothèses utilisées pour la modélisation sont discutées. Les paramètres de modélisation de la diffusion, du gonflement hygroscopique et du comportement mécanique des constituants en fonction de la teneur en eau sont définis par approche inverse assistée numériquement à l'aide des résultats de la campagne expérimentale. Enfin, le modèle résultant est exploité et discuté.

Chapitre 6 – Caractérisation expérimentale du comportement monotone en conditions hydrothermiques

L'objectif de ce chapitre est de caractériser deux lots de composites différenciés par leur taux volumique de fibres afin d'étudier l'évolution de leurs propriétés au cours du vieillissement. En outre, l'impact du taux de fibres sur les phénomènes de vieillissement en conditions hydrothermiques est étudié. L'application industrielle en extérieur de ces composites dépend fortement des problématiques de vieillissement en conditions réelles. Ce chapitre permet donc d'établir l'employabilité de ces composites pour une utilisation sous sollicitations statiques environnementales.

Pour cela, les deux lots de composites sont étudiés à l'état conditionné, avec une étude de la microstructure à l'aide de clichés microscopiques et une caractérisation en traction monotone longitudinale, transverse et en cisaillement. Le protocole de vieillissement est présenté, ainsi que son impact sur certaines propriétés au cours du vieillissement. Ensuite, le bilan en traction monotone longitudinale pour les échantillons saturés est dressé, avec une caractérisation du caractère viscoélastique par des décharges en sollicitations monotones. Des tractions transverses et en cisaillement sont également présentées pour les échantillons saturés. Les endommagements structuraux liés à la saturation sont analysés via des observations de la microstructure. Pour finir, un bilan des propriétés permet de conclure quant aux problématiques liées à l'utilisation industrielle en extérieur de ces composites.

6.1 – Caractérisation à l'état conditionné

La caractérisation avant immersion a plusieurs objectifs. Tout d'abord, elle permet de dresser un bilan complet sur le matériau. Il faut donc comparer les deux lots de composites, qui se distinguent, au minimum, par leurs taux volumiques de fibres. Il reste important, pour analyser les résultats de manière exhaustive et complète, d'identifier avec précision les différences microstructurales qui séparent les deux lots. Ensuite, le comportement mécanique pourra être discuté à travers des essais de traction monotone en sollicitations longitudinales, transverses et en cisaillement (45°) afin de caractériser la résistance dans le sens des fibres, mais aussi la résistance des interfaces pendant les essais transverses.

Cette section présentera donc l'analyse morphologique des « 1 bars » et des « 3 bars », puis le comportement mécanique, d'abord longitudinal puis transverse et en cisaillement.

6.1.1 – Analyse morphologique

Pour commencer la caractérisation des composites avant immersion, des clichés MEB ont été observés et analysés afin de déterminer les différences morphologiques entre les deux types de composites à l'état « conditionné ». Il est important de rappeler que le renfort utilisé ne présente pas de fils de trame ou de mèches.

Les [figures 6.1.1.1 et 6.1.1.2](#) contiennent respectivement 4 clichés MEB des composites « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné ». Ces observations sont représentatives de la microstructure dans les composites, de par le choix du renfort.

Des différences visuelles marquées apparaissent. Le composite « 1 bar » contient beaucoup plus de résine que le « 3 bars ». Avant fabrication, la quantité de fibres et de résine

était identique. La pression chasse donc de la résine du moule et il est donc logique que le composite « 3 bars » contienne moins de zones riches en résine. L'espace entre les fibres est donc considérablement réduit dans le cas du « 3 bars ».

Les taux surfaciques de fibres et de porosités ont donc été déterminés comme décrit dans la [section 4.1.2](#). Le nombre de clichés observés sera donc considéré suffisant pour que les observations surfaciques réalisées permettent d'obtenir un taux surfacique statistiquement représentatif d'un taux volumique. Les taux volumiques de fibres sont donc de 37.7 et 51.1 % respectivement pour les « 1 bar » et les « 3 bars » et les taux volumiques de porosités sont de 1.7 et 2.1 % respectivement.

Aucune séparation entre les plis n'apparaît clairement pour les « 3 bars » et des zones riches en résine sont visibles horizontalement, ce qui pourrait être une séparation de plis, mais ce phénomène n'est pas présent entre chaque pli. Les deux composites possèdent des faisceaux et des fibres. Il est donc intéressant d'étudier la répartition de ces faisceaux et fibres isolées afin de mieux analyser les microstructures de ces composites.

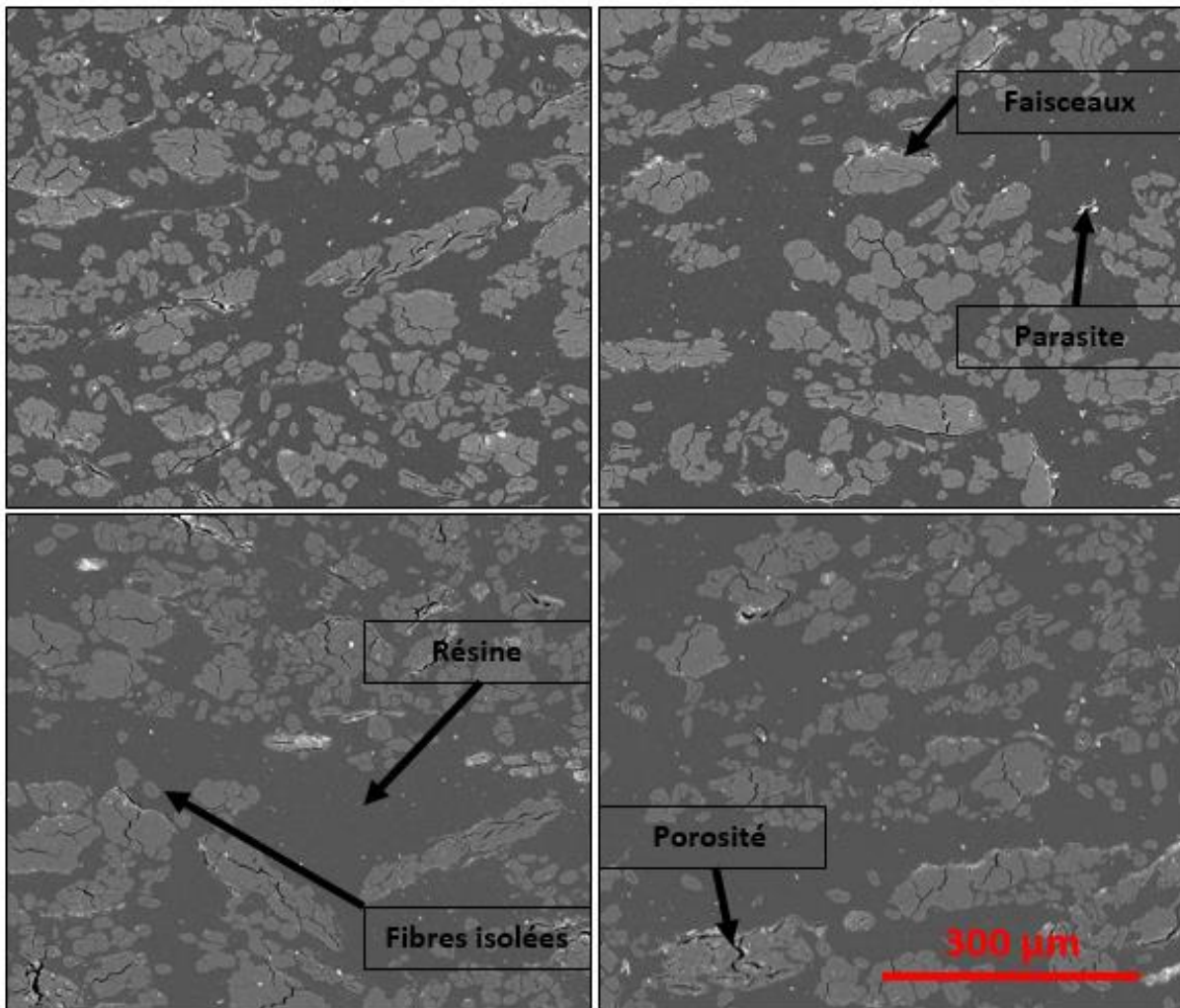


Figure 6.1.1.1 : Observations au MEB du composite « 1 bar conditionné »

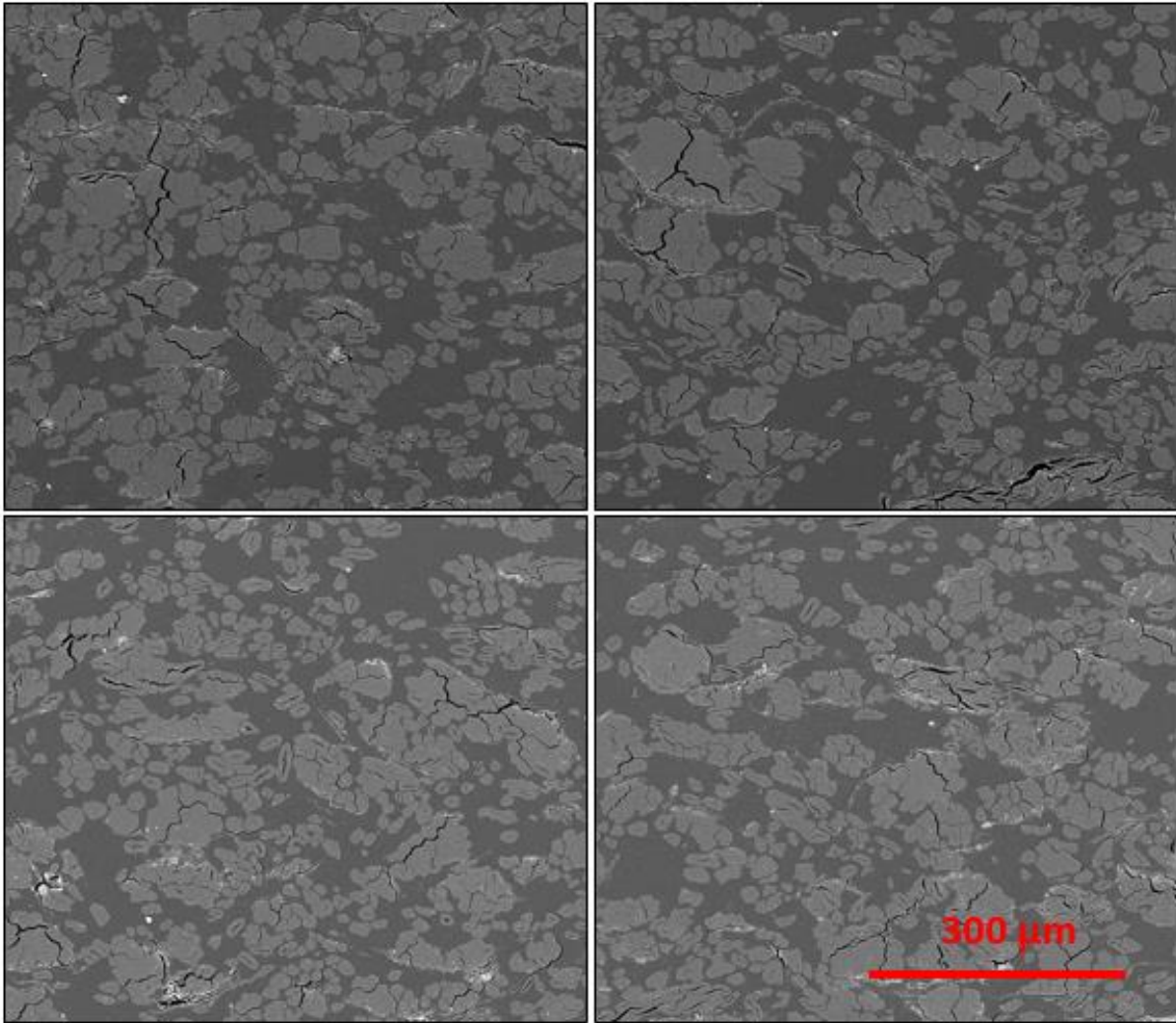


Figure 6.1.1.2 : Observations au MEB du composite « 3 bars conditionné »

À partir des données morphologiques extraites selon la [section 4.1.3](#), des histogrammes ont pu être tracés. [Les figures 6.1.1.3 et 6.1.1.4](#) présentent les gammes de taille des fibres isolées en fonction de leur diamètre maximal et des faisceaux en fonction de leur diamètre maximal également, respectivement pour les composites « 1 bar » et « 3 bars ».

Les fibres isolées, ainsi que les faisceaux, présentent une distribution identique pour les composites « 1 bar » et « 3 bars ». Cela signifie que la pression n'a pas eu d'impact sur la distribution des tailles des fibres isolées et donc que les fibres ne sont pas écrasées lors de la thermocompression. La pression, dans la limite des valeurs étudiées, joue donc un rôle majeur dans la microstructure en influant sur le taux volumique de fibres, mais ne joue pas de rôle prépondérant sur la distribution des tailles des fibres et des faisceaux. Cela signifie également que les faisceaux restent intègres même en appliquant jusqu'à 3 bars de pression de consolidation.

Cependant, si l'augmentation de pression de 1 bar à 3 bars ne change pas la taille des fibres et des faisceaux, un autre paramètre peut être important sur les caractéristiques mécaniques résultantes. En effet, la répartition en faisceaux ou fibres isolées peut être étudiée. Sur les histogrammes ci-dessous, les occurrences de taille maximale de fibres isolées et de taille de faisceaux, normalisées en fonction du nombre total de fibres isolées et de faisceaux respectivement, ne donnent pas d'information quant à la surface occupée par

chacune de ces phases (qui dépend aussi de l'éclatement, de la circularité...), donc sur le taux de fibres isolées et de faisceaux.

Dans le **tableau 6.1.1**, ces taux volumiques de fibres isolées et de faisceaux sont donnés pour les composites « 1 bar » et « 3 bars ». Les valeurs sont différentes, cependant il est important de considérer la normalisation par rapport au taux volumique total de fibres dans chacun des cas. Les faisceaux représentent donc 64.4 et 64.2 % des fibres présentes dans chaque composite, respectivement pour les « 1 bar » et les « 3 bars ». Ainsi, les faisceaux représentent la même fraction de fibres dans les deux composites. Il en va donc de même pour les fibres isolées. Cela signifie que cet aspect de la microstructure ne pourra pas expliquer les différences dans les comportements mécaniques observés par la suite, que ce soit dans ce chapitre ou dans les suivants.

| Taux volumiques (%) | 1 bar | 3 bars |
|--------------------------------|--------------|---------------|
| moyen total de fibres | 37.7 | 51.1 |
| moyen de faisceaux | 24.3 | 32.8 |
| moyen de fibres isolées | 13.4 | 18.3 |

Tableau 6.1.1 : taux volumiques de fibres isolées et de faisceaux dans les composites « 1 bar » et « 3 bars » à l'état conditionné

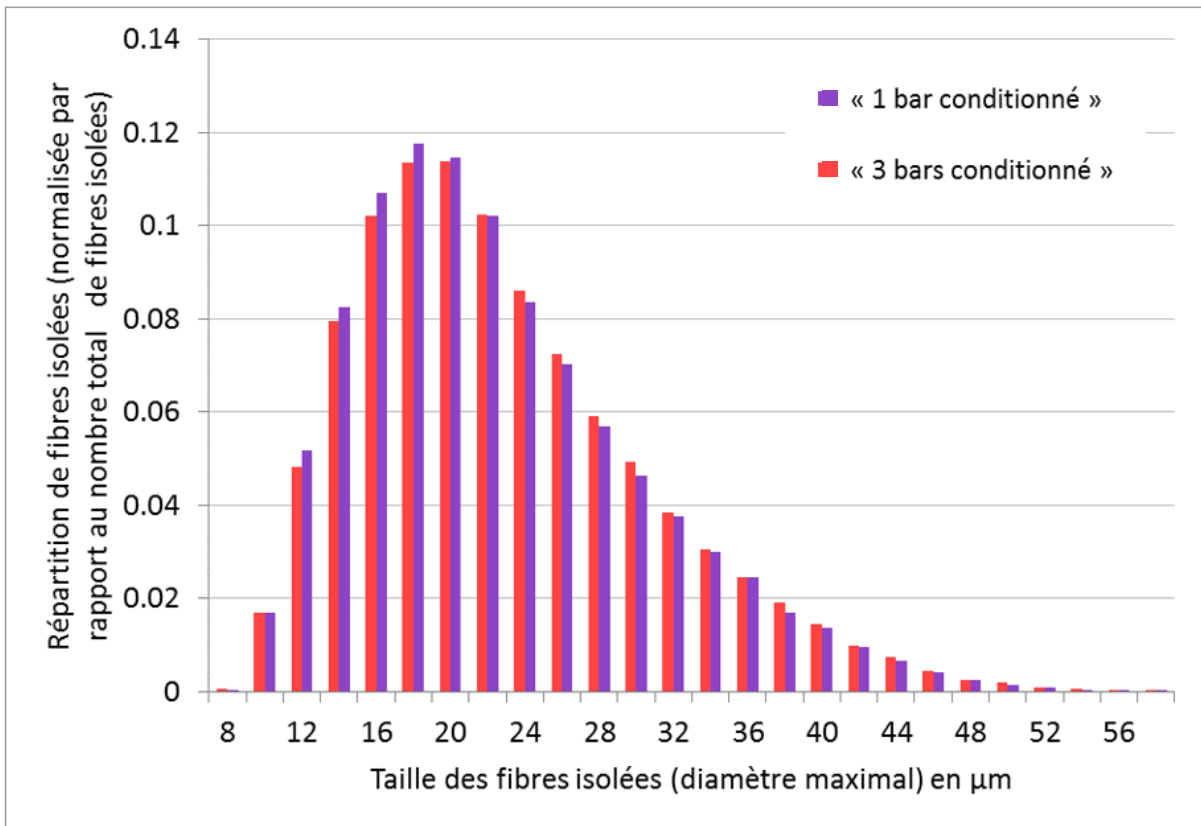


Figure 6.1.1.3 : Histogramme de la répartition des fibres isolées par taille pour les composites « 1 bar » en violet et « 3 bars » en rouge

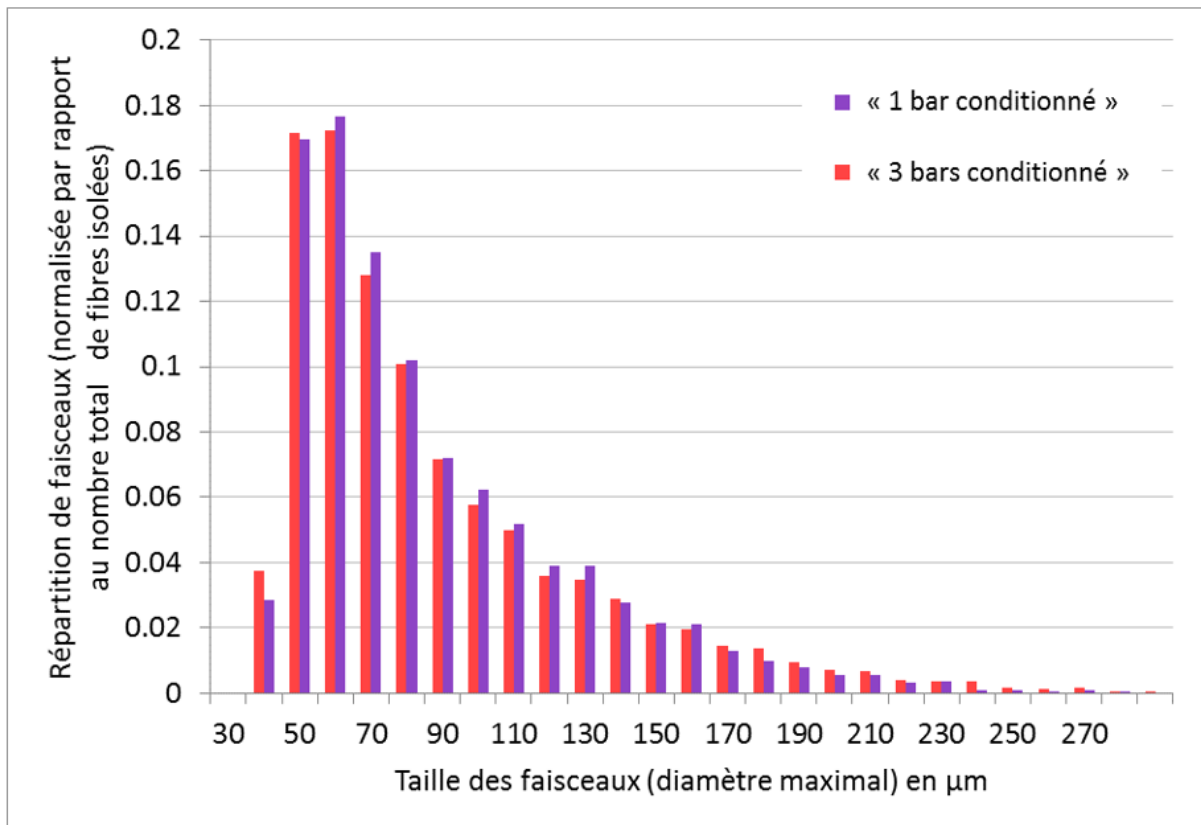


Figure 6.1.1.4 : Histogramme de la répartition des faisceaux par taille pour les composites « 1 bar » en violet et « 3 bars » en rouge

6.1.2 – Comportement statique à l'état conditionné

Afin de déterminer l'évolution des propriétés mécaniques sous chargement monotone (CM), il est important d'étudier le comportement sous CM avant immersion. Des essais longitudinaux (réalisés en tirant dans le sens de fibres) et transverses (réalisés en tirant à 90° ou à 45° du sens des fibres) ont été réalisés.

- Comportement longitudinal

La **figure 6.1.2.1** récapitule le comportement sous CM. La contrainte est donc représentée en fonction de la déformation jusqu'à rupture pour les deux lots d'échantillons (« 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné »). Les courbes ont un comportement bilinéaire avec une incurvation en coude à de faibles déformations. Ce comportement bilinéaire est classiquement observé dans la littérature [10], [26]. Il est typique des composites renforcés par des fibres végétales avec un point d'inflexion qui est attribué à une réorientation des fibres dans la structure macroscopique du composite et/ou des microfibrilles à l'intérieur des fibres de lin [26]. Ces hypothèses de réorientation restent difficiles à observer in situ et sont donc à considérer avec prudence.

Sur la **figure 6.1.2.2** est tracé le module tangent, qui correspond à la pente en chaque point des courbes présentées sur la **figure 6.1.2.1**, en fonction de la déformation. Les résultats montrent qu'il ne s'agit pas d'un comportement bilinéaire, mais plutôt d'une non-linéarité initiale jusqu'à la fin du coude suivie d'une stabilisation du module, donc d'une partie linéaire.

De plus, la **figure 6.1.2.2** montre que la plage de déformation préconisée par la norme ISO 527-4, soit la plage 0.05 % à 0.25 % de déformation (0.0005 à 0.0025 en déformation), n'est pas adaptée à la mesure du module d'Young pour les composites à fibres de lin étudiés. En effet, cette plage de déformation présente une partie non linéaire. La définition d'un module élastique sur une plage non linéaire semble donc contestable. Aussi, comme ces phénomènes dépendent notamment des fibres utilisées, des conditions de stockage et des conditions d'essai, ils ne se produisent pas nécessairement sur la même plage de déformation. Ainsi, le module déterminé sur la plage de déformation préconisée par la norme ne permet pas toujours de comparer efficacement les différents matériaux.

On constate également que les « 1 bar conditionné » présentent des propriétés légèrement inférieures aux composites « 3 bars conditionné ». Cet écart, bien qu'attendu, semble faible sur les **figures 6.1.2.1 et 6.1.2.2** compte tenu de la différence de taux volumiques.

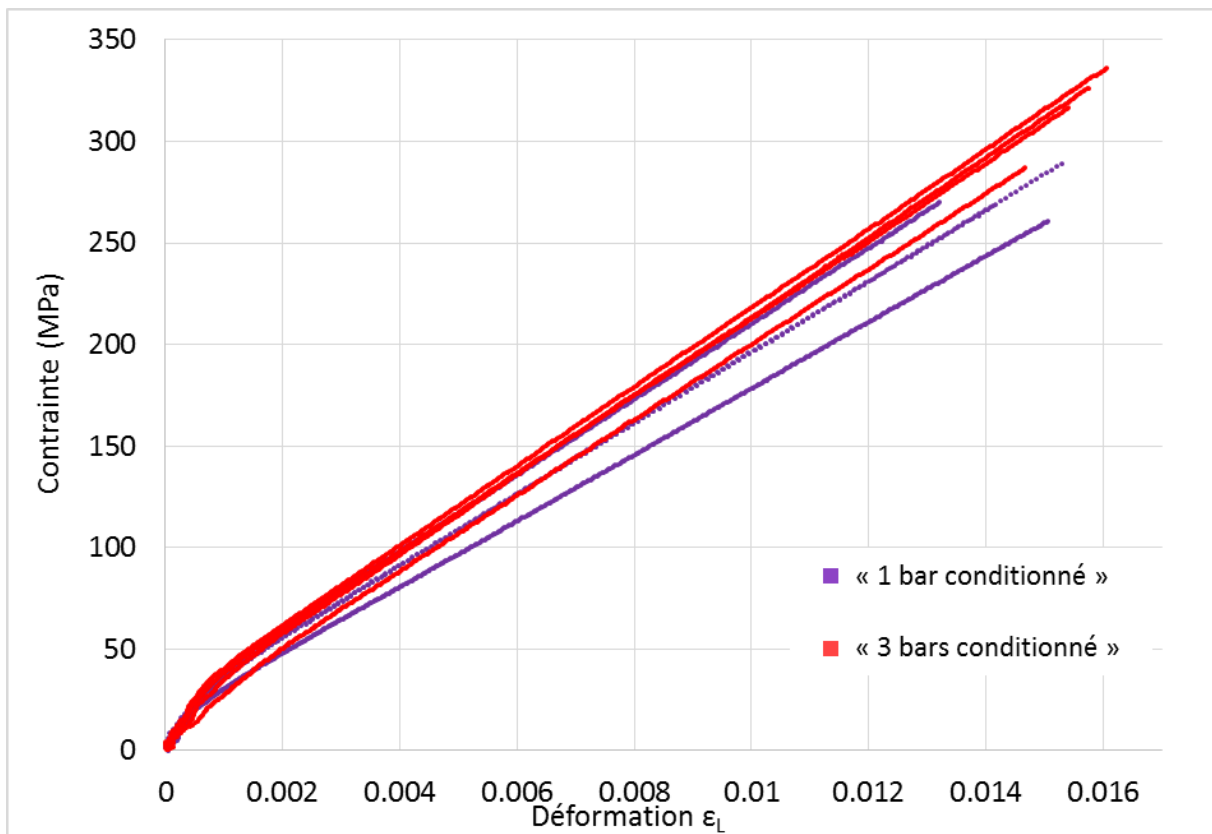


Figure 6.1.2.1 : Contrainte en fonction de la déformation pour les composites « 1 bar conditionné » (violet) et « 3 bars conditionné » (rouge)

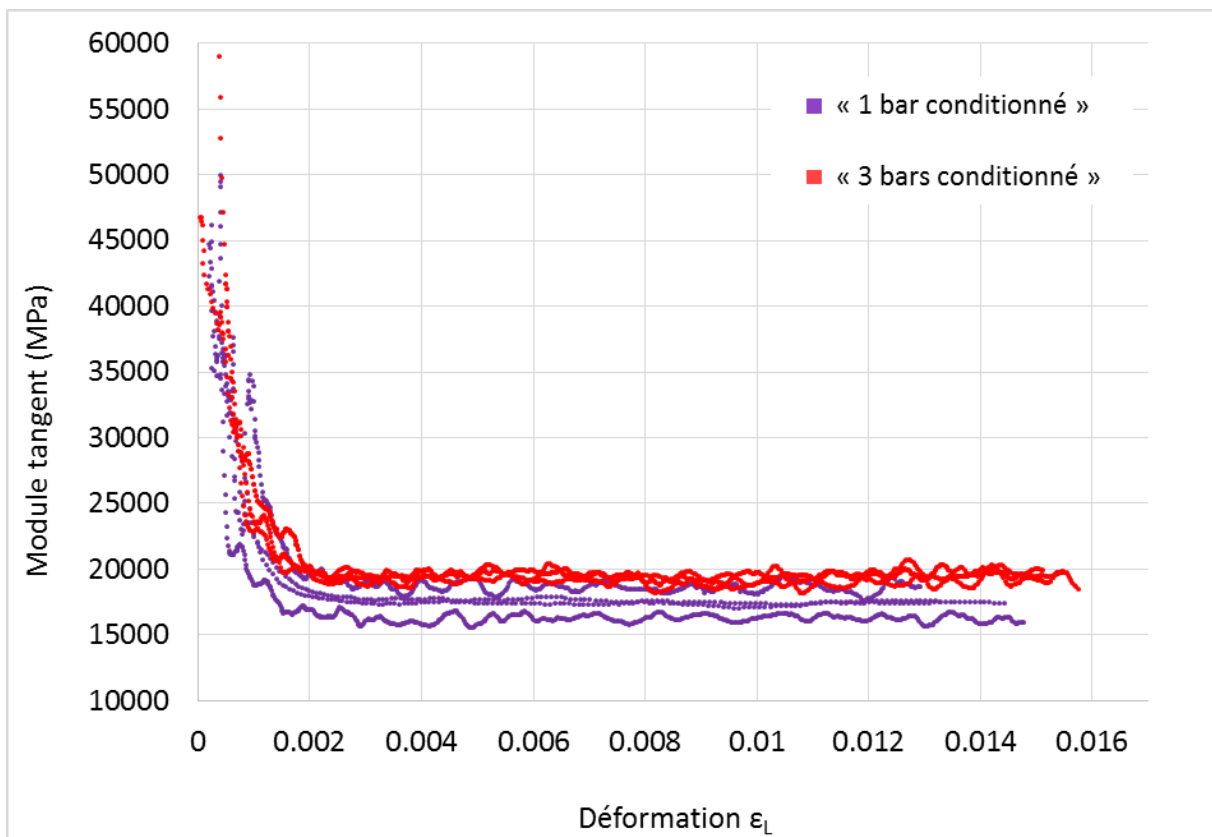


Figure 6.1.2.2 : Module tangent en fonction de la déformation pour les composites « 1 bar conditionné » (violet) et « 3 bars conditionné » (rouge)

Le **tableau 6.1.2.1** récapitule les propriétés extraites des courbes présentées sur la **figure 6.1.2.1**. Il présente également les propriétés de la résine seule. Les modules E_1 et E_2 sont effectivement différents entre les « 1 bar conditionné » et les « 3 bars conditionné », ainsi que la contrainte à rupture et la déformation à rupture, cependant le coefficient de Poisson semble peu impacté par la différence de taux volumique entre les deux types de composites.

Les valeurs présentées dans le **tableau 6.1.2.1** sont cohérentes avec les valeurs de la littérature [51], [55], [65], [66], [164]. En effet, pour des composites à fibres de lin unidirectionnelles, le module (mesuré de manière équivalente à E_1) varie de 12 à 25 GPa, l'UTS de 130 à 230 MPa et la déformation à rupture est de l'ordre de 1.2 % pour des taux volumiques de fibres entre 30 à 40 % [51], [55], [66], [164]. Pour des taux volumiques de 45 à 47 %, ces valeurs sont respectivement comprises entre 28 et 30 GPa, 250 et 320 MPa, 0.9 et 1.5 % [65], [164].

L'objectif étant de remplacer des fibres synthétiques, notamment des fibres de verre, il peut être intéressant de comparer les résultats présentés ici à ceux obtenus avec des composites renforcés de ces fibres. Ainsi, dans la littérature [161], le module E_L et l'UTS sont respectivement de 46 GPa et 1400 MPa pour des composites époxy renforcés de fibres de verre à 60 % en fraction volumique. Leur masse volumique de 2.6 kg/dm³, en comparaison d'environ 1.5 kg/dm³ pour les fibres de lin présentées ici, les valeurs spécifiques sont pour le module E_1/ρ , E_2/ρ (ou uniquement E/ρ pour les composites à fibres de verre) et la contrainte à rupture σ/ρ de 19.7 GPa/(kg.dm⁻³), 12.8 GPa/(kg.dm⁻³) et 221 MPa/(kg.dm⁻³) pour le composite « 3 bars conditionné » et de 17.7 GPa/(kg.dm⁻³) et 538 MPa/(kg.dm⁻³) pour le composite à fibres de verre avec un taux volumique de renfort de 60 %. Les propriétés mécaniques longitudinales des composites renforcés de fibres de lin, en particulier leur rigidité spécifique, sont donc intéressantes par rapport aux fibres de verre (ici fibres de verre E).

| 0° conditionné | 1 bar | | 3 bars | | Résine seule | |
|------------------------|---------|------------|---------|------------|--------------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| E_V (GPa) | 26.5 | 1.2 | 30.4 | 1.6 | - | - |
| E_1 (GPa) | 26.4 | 1.7 | 29.6 | 2.7 | 3.4 | 0.1 |
| E_2 (GPa) | 17.5 | 1.0 | 19.2 | 0.4 | - | - |
| $\sigma_{L\max}$ (MPa) | 272.4 | 12.8 | 316.5 | 21.3 | 78.6 | 7.1 |
| $\epsilon_{L\max}$ (%) | 1.44 | 0.10 | 1.55 | 0.06 | 5.14 | 1.86 |
| U_L | 0.37 | 0.01 | 0.40 | 0.00 | 0.38 | 0.02 |

Tableau 6.1.2.1 : Propriétés mécaniques des composites « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionnés » dans le sens longitudinal ainsi que de la résine seule avant immersion

À l'aide des résultats présentés dans le **tableau 6.1.2.1**, les propriétés des fibres dans chacun des deux types des composites ont été déterminée par loi des mélanges. Les résultats sont donc présentés dans le **tableau 6.1.2.2**.

| Propriétés longitudinales des fibres estimées par loi des mélanges | 1 bar | | 3 bars | |
|--|---------|------------|---------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| E_1 (GPa) | 64.4 | 4.3 | 57.9 | 5.3 |
| E_2 (GPa) | 40.8 | 2.5 | 37.6 | 0.8 |

Tableau 6.1.2.2 : Modules longitudinaux des fibres dans les composites « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné » calculées par loi des mélanges

Dans la littérature [26], les fibres de lin pour une utilisation dans les composites ont des modules de l'ordre de 60 GPa. Les valeurs dans le **tableau 6.1.2.2** sont donc cohérentes avec cet ordre de grandeur.

En revanche, il existe des différences entre les fibres présentes dans les composites « 1 bar conditionné » et celles présentes dans les composites « 3 bars conditionné ». En effet, pour des renforts initiaux identiques, un écart de 7 GPa est trouvé pour le module E_1 et de 3 GPa pour le E_2 , tandis qu'un écart d'environ 30 MPa est observé pour la contrainte à rupture. En considérant les écarts-type, les modules sont effectivement significativement différents, mais la contrainte à rupture ne semble pas significativement différente. Ainsi, les fibres dans les « 1 bar conditionné » semblent plus performantes que celles dans les « 3 bars conditionné » en termes de modules.

De plus, dans la **partie 6.1.1**, il a été montré que la pression appliquée ne changeait pas l'organisation des fibres. Elles se répartissent de la même manière en fibres isolées et en faisceaux, selon le même ratio. La distance interfibrilles et l'adhésion à l'interface fibre/matrice, qui semblent *a priori* les seuls paramètres microstructuraux qui peuvent différencier les deux types de composites, peuvent donc être à l'origine de cette différence.

La configuration compacte du « 3 bars » diminue les propriétés effectives de renforcement des fibres dans le composite, mais le taux volumique supérieur dans ce même composite le rend plus performant en ne considérant que les caractéristiques du composite.

- Comportement transverse et en cisaillement

Dans les **tableaux 6.1.2.3 et 6.1.2.4** sont reportées les propriétés mécaniques transverses des deux types de composite. Les courbes de traction associées présentent des profils linéaires et seront présentées dans la **section 6.4.3** afin de les comparer aux échantillons saturés.

Le taux volumique ne semble ici pas avoir d'effet sur les propriétés, autant en traction transverse qu'en cisaillement. En revanche, dans le **tableau 6.1.2.1** la résine présente un module d'Young de 3.4 GPa. Les modules obtenus dans les **tableaux 6.1.2.3 et 6.1.2.4** sont donc équivalents au module d'Young de la résine. Les fibres n'influent donc pas dans la rigidité transverse. La contrainte à rupture, en revanche, est bien plus faible que celle obtenue pour la résine seule, ce qui signifie que les fibres sont des facteurs d'affaiblissement dans le sens transverse pour le comportement en rupture. L'interface fibre/matrice est à l'origine de cet affaiblissement transverse.

| 90° conditionné | 1 bar | | 3 bars | |
|-------------------------|---------|------------|---------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| E_T (GPa) | 3.5 | 0.1 | 3.5 | 0.1 |
| $\sigma_{T \max}$ (MPa) | 19.1 | 2.1 | 18.8 | 1.1 |
| $\epsilon_{T \max}$ (%) | 0.59 | 0.08 | 0.61 | 0.06 |
| U_T | 0.05 | 0.00 | 0.04 | 0.00 |

Tableau 6.1.2.3 : Propriétés mécaniques des composites « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné » dans le sens transverse à 90° avant immersion

| 45° conditionné | 1 bar | | 3 bars | |
|--------------------------|---------|------------|---------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| G (GPa) | 1.75 | 0.16 | 1.88 | 0.22 |
| $\sigma_{45 \max}$ (MPa) | 33.3 | 1.9 | 32.2 | 2.5 |
| ϵ_{45} (%) | 0.84 | 0.07 | 0.76 | 0.05 |

Tableau 6.1.2.4 : Propriétés mécaniques des composites « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné » dans le sens transverse à 45° avant immersion

Les différentes valeurs présentées dans le [tableau 6.1.2.3](#) sont cohérentes avec les données de la littérature, avec des valeurs de module transverse entre 2.7 et 4.7 GPa et d'UTS entre 4.5 et 30 MPa [55], [65], [66]. Les performances transverses des composites « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné » sont donc dans la moyenne de leurs homologues de la littérature. En revanche, peu de données sont disponibles pour le comportement en cisaillement de ce type de composite. Dans les travaux de Monti *et al.* [55], un module G_{LT} et une contrainte σ_{45} de 1.53 GPa et 38.5 MPa respectivement ont été déterminés. Les valeurs obtenues dans le [tableau 6.1.2.4](#) sont donc en accord avec ces données, mais il reste difficile de discuter les performances en cisaillement de ces composites par rapport à leurs homologues de la littérature.

Dans la bibliographie pour des composites époxy à fibres de verre ensimées [161], des valeurs de E_T , G_{LT} et σ_{LT} sont respectivement de l'ordre de 10 GPa, 4.6 GPa et 70 MPa pour un taux volumique de fibres autour de 60 %, donc les composites à fibres de lin présentés ici sont en effet moins performants à ce niveau-là en propriétés brutes. Il faut également noter que les fibres de verre sont généralement traitées par ensimage afin de garantir une adhésion fibre matrice optimale tandis que ce genre de traitement reste plus difficile avec les fibres de lin à l'heure actuelle dans un contexte industriel. Souvent, l'amélioration de l'adhésion fibre matrice se fait au détriment des propriétés longitudinales de la fibre. Un compromis peut être trouvé, et des solutions efficaces apparaissent de plus en plus pour l'industrie, mais celles-ci n'en sont pas au même niveau de développement que pour les fibres synthétiques. En revanche, le Kevlar présente, pour des composites époxy avec un taux de fibres autour de 60 %, un E_T de 5.6 GPa et un G_{LT} de 2.1 GPa, ce qui se rapproche des valeurs que l'on obtient ici. Cela signifie bien que même si les propriétés interfaciales des fibres de lin avec l'époxy sont bien plus faibles que celles obtenues avec des fibres de verre, l'industrie sait utiliser des fibres avec des valeurs du même ordre de grandeur que celles obtenues ici.

Avec ces résultats, la phénoménologie globale des composites fabriqués peut être dressée. Ces valeurs seront comparées aux valeurs trouvées après saturation en immersion et permettront d'identifier les mécanismes de dégradation de ces composites.

6.2 – Protocole de saturation en immersion

Le but de cette immersion est de dégrader le matériau avec de l'eau de manière accélérée afin de caractériser l'évolution des propriétés mécaniques associée dans un but d'application industrielle en utilisation extérieure. La température a été choisie pour accélérer l'absorption tout en restant suffisamment éloignée à la température de transition vitreuse pour éviter de créer des endommagements supplémentaires qui ne correspondraient pas à un vieillissement réel.

La saturation en immersion a été réalisée dans un bain statique d'eau distillée à 70 °C (**Figure 6.2**). Cette température correspond à celle préconisée dans la norme NF EN 2823.



Figure 6.2 : bain statique pour l'immersion à 70 °C

La durée de l'immersion a été déterminée par des essais de saturation préliminaires. La durée nécessaire pour atteindre la saturation est d'environ 550 heures, soit environ 23 jours. La durée de l'immersion pour la réalisation des essais mécaniques a donc été de 625 heures, soit environ 26 jours, afin de garantir la saturation sur tous les échantillons. L'eau n'a pas été changée en cours de saturation.

Les échantillons sont régulièrement retirés de leur bain d'eau distillée afin de suivre d'une part leur prise en masse et d'autre part l'évolution de leurs propriétés mécaniques par analyse vibratoire. Ces mesures sont réalisées en milieu ambiant à 23 °C et 50 %HR. Il est donc nécessaire de laisser les éprouvettes refroidir jusqu'à équilibre thermique. Afin d'éviter au maximum la désorption d'eau durant cette mise à l'équilibre thermique, les échantillons sont placés dans un bain d'eau distillée à 23°C. Une fois l'équilibre thermique atteint après environ 5 minutes, les échantillons sont sortis et l'eau en surface des échantillons est retirée à l'aide de papier absorbant.

Toute mesure réalisée en cours de vieillissement a été réalisée en moins de 5 minutes, afin de limiter au maximum les éventuels changements de taux d'humidité de l'échantillon. Outre les essais de suivi non destructifs précédemment cités, les essais mécaniques à rupture à saturation des échantillons ont été réalisés immédiatement après sortie du bain et ont été de courte durée. De ce fait, une hypothèse a été faite : les sorties du bain sont de suffisamment courte durée pour négliger toute modification de l'état d'équilibre à saturation ainsi obtenu. Cette hypothèse sera discutée dans la **section 6.3**.

6.3 – Évolution des propriétés au cours de la saturation

La **figure 6.3.1** récapitule l'absorption des échantillons en immersion avec le gain de masse par rapport à l'état conditionné en fonction du temps d'immersion. L'absorption croît linéairement par rapport à la durée d'immersion pendant la première partie (jusqu'à environ 60 % du gain de masse à saturation) et tend ensuite vers une asymptote horizontale qui correspond à la saturation. Ce comportement est en accord avec la loi de Fick. La représentation des courbes de Fick 1D suit effectivement la saturation expérimentale. Les saturations pour les « 1 bar » et pour les « 3 bars » sont respectivement à environ 12 et 15 % de la masse à l'état conditionné, à 23 °C et 50 %HR. De plus, la pente de la portion linéaire, reliée au coefficient de diffusion, est plus importante pour les « 3 bars » que pour les « 1 bar ». L'écart de saturation et de coefficient de diffusion est corrélé à la différence de taux volumique de fibres qui différencie les « 1 bar » et les « 3 bars ».

La **figure 6.3.2** présente la courbe d'absorption d'échantillons de résine pure testés en traction monotone jusqu'à rupture à différentes durées d'immersion. L'absorption suit également une loi de Fick 1D et le gain de masse à saturation atteint environ 2.5 %.

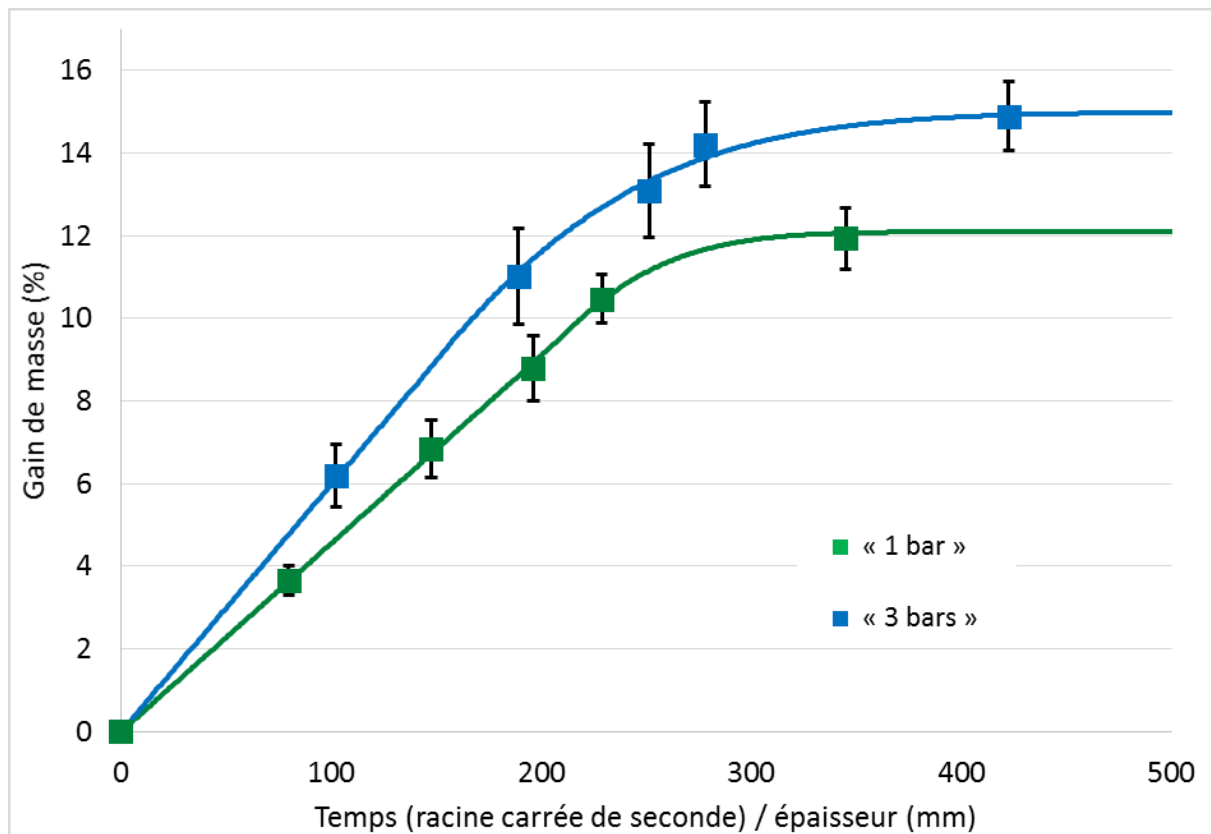


Figure 6.3.1 : Gain de masse en fonction du temps d'immersion

Points : expérimental ; Courbes : modèles de Fick 1D associés — Vert : 1 bar ; Bleu : 3 bars

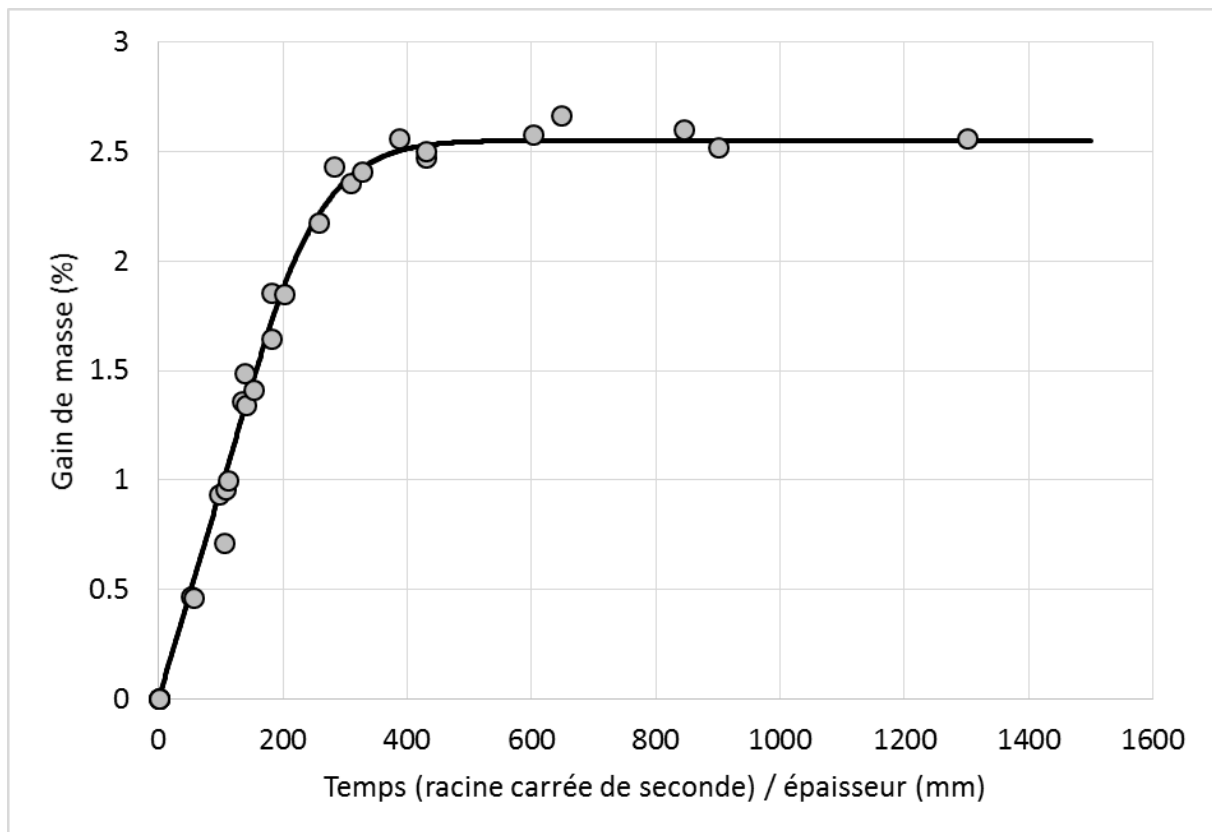


Figure 6.3.2 : Gain de masse en fonction du temps d'immersion dans le cas de la résine pure
Points : expérimental ; Courbes : modèles de Fick 1D associés

Les paramètres associés aux lois de Fick des [figures 6.3.1 et 6.3.2](#) sont reportés dans le [tableau 6.3](#). Les valeurs de coefficient de diffusion et de gain de masse à saturation dans la littérature (pour des composites lin/époxy) sont respectivement entre $1.3 \cdot 10^{-6}$ et $3.3 \cdot 10^{-6}$ mm^2/s et entre 6.2 et 13.5 % pour une immersion à température ambiante, et de $11.9 \cdot 10^{-6}$ mm^2/s et de 9.4 % pour une immersion à 60 °C. La température est censée accélérer le processus d'absorption. Or, le coefficient de diffusion observé dans le tableau 6.3 est dans la moyenne des valeurs à température ambiante et bien inférieure à celui à 60 °C. La dispersion des valeurs de gain de masse à saturation laisse penser que l'absorption dépend grandement de paramètres autres que la seule température et du taux de fibres. Des paramètres morphologiques sont donc probablement responsables des différences observées.

Aussi, le [tableau 6.3](#) synthétise non seulement les paramètres de diffusion selon la loi de Fick, mais également le gonflement, le module vibratoire et l'amortissement vibratoire aux états conditionné et saturé. Le gonflement se fait principalement dans l'épaisseur de l'échantillon. Le gonflement dans la largeur des échantillons est le même pour les deux composites. Un phénomène anisotrope est donc observé, pourtant, dans la [section 6.1.1](#), les fibres ne présentaient pas d'organisation privilégiée (pas d'anisotropie identifiable sur les clichés).

La saturation s'effectue principalement par la diffusion dans le sens de l'épaisseur, de par les dimensions des échantillons. Une hypothèse peut donc être émise : le gradient de concentration lors de la diffusion induit des gradients de rigidité, et donc de contraintes liés au gonflement hygroscopique des fibres. Avant la saturation, le cœur de l'échantillon a une concentration plus faible que la peau. Sur la [figure 6.3.3 a\)](#), l'échantillon est représenté de manière schématique en coupe avec la zone 1 ayant une concentration c_1 et la zone 2 ayant

une concentration c_2 telle que $c_1 > c_2$. La zone 2, du fait de sa rigidité supérieure à celle de la zone 1, limite les gonflements latéraux (cf. [figure 6.3.3 b](#))). De ce fait, il est possible que la zone 2 retienne le gonflement transverse de la zone 1 par continuité. En revanche, le gonflement dans l'épaisseur est possible du fait du bord libre. Le gonflement dans l'épaisseur serait donc ainsi favorisé, induisant des déformations au cours de la période transitoire se répercutant à saturation.

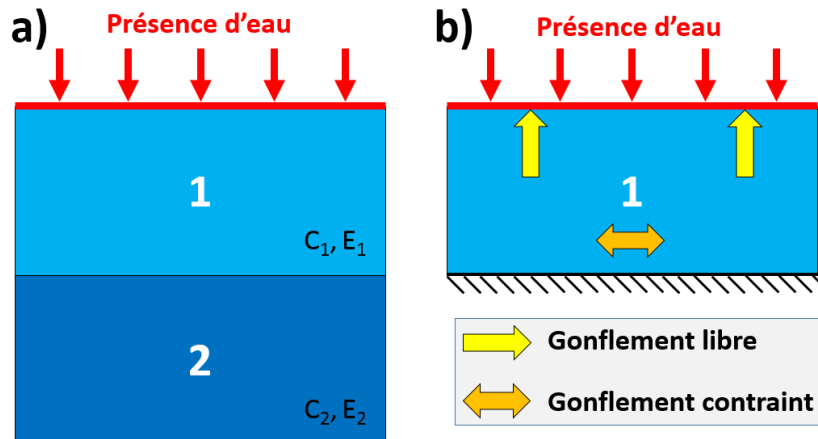


Figure 6.3.3 : Schématisation du gradient de concentration au sein du composite, représenté par une zone 1 et une zone 2 de concentration différente

Afin de déterminer la prise en masse des fibres dans les composites, l'absorption de la résine au sein du composite est considérée identique à celle de la résine seule. Ensuite, par la loi des mélanges en considérant les fractions massiques de fibres présentées dans le [tableau 5.3.8.1](#) et en négligeant les porosités, des gains de masse à saturation pour les fibres ont été calculés. Les valeurs respectives pour les « 1 bar » et les « 3 bars » sont de 27.0 % et 27.1 %. Il n'y aurait donc pas d'écart entre l'absorption d'eau des fibres au sein des deux lots de composites, à condition que l'hypothèse sur l'absorption de la résine au sein du composite est valide. Ce fait est intéressant, car il peut traduire un état de contraintes des fibres identique lors de la diffusion de l'eau, indépendamment de la fraction volumique de fibres.

Dans le [tableau 6.3](#), le module vibratoire dans l'état conditionné est environ 2 fois supérieur à celui à saturation. Aussi, l'amortissement est largement augmenté avec la saturation. Cela traduit entre autres la plastification par l'eau de la résine et des fibres, ce qui provoque une plus grande mobilité dans les chaînes macromoléculaires de la résine et une augmentation du caractère viscoélastique des fibres de lin. En effet, les pectines et hémicelluloses sont sensibles à l'eau et perdent leur rigidité [26]. De ce fait, le module en est affecté et les vibrations sont plus facilement amorties, non seulement parce que l'amortissement augmente lorsque le module d'Young diminue [165], mais aussi à cause des phénomènes visqueux dans le matériau qui réduisent la propagation des vibrations.

| | 1 bar | 3 bars | Résine seule |
|--|-------------------------------|-------------------------------|------------------------|
| Gain de masse à saturation (%) | 11,9 ± 0,7 | 14,9 ± 0,8 | 2,5 ± 0,1 |
| Coefficient de diffusion (mm ² .s ⁻¹) | 2,85 ± 0,37 .10 ⁻⁶ | 3,08 ± 0,35 .10 ⁻⁶ | 2,78 .10 ⁻⁶ |
| Gonflement de la section (%) | 13,6 ± 0,9 | 19,0 ± 1,9 | 3,3 ± 1,7 |
| Gonflement de l'épaisseur (%) | 10,3 ± 0,9 | 15,5 ± 1,3 | 1,8 ± 1,4 |
| Gonflement de la largeur (%) | 3,0 ± 0,2 | 3,1 ± 0,5 | 1,4 ± 0,3 |
| Module vibratoire conditionné (GPa) | 26,5 ± 1,2 | 30,4 ± 1,6 | - |
| Module vibratoire à saturation (GPa) | 13,9 ± 0,6 | 15,1 ± 0,4 | - |
| Amortissement vibratoire conditionné | 0,96 ± 0,06 | 1,13 ± 0,20 | - |
| Amortissement vibratoire à saturation | 2,41 ± 0,05 | 2,54 ± 0,21 | - |

Tableau 6.3 : Caractéristiques de l'absorption et propriétés (module vibratoire et amortissement) avant immersion et à saturation

Outre les propriétés dans l'état conditionné et à saturation, l'évolution de ces propriétés globales au cours de la prise en masse a été étudiée. La **figure 6.3.4** présente, pour les deux lots de composites, l'évolution de module vibratoire et de l'amortissement en fonction du gain de masse. Le module vibratoire décroît linéairement. Les « 1 bar » et les « 3 bars » exhibent, pour le module vibratoire, une décroissance similaire (pentes identiques). La dépendance linéaire entre les propriétés mécaniques et l'absorption d'eau a déjà été observée dans la littérature [57], cependant, l'intérêt est ici d'accéder à la caractérisation de cette dépendance pour notre matériau afin d'alimenter par la suite un modèle numérique pouvant intégrer la perte de propriétés mécaniques en fonction de l'absorption.

En revanche, sur la **figure 6.3.4**, l'amortissement est proportionnel au gain de masse pour chacun des deux lots, mais les pentes ne sont pas les mêmes pour le « 1 bar » et le « 3 bars ». La plus grande quantité de fibres dans le « 3 bars » peut donc expliquer la différence d'amortissement à saturation, mais n'explique pas pourquoi l'amortissement du « 1 bar » croît plus rapidement en fonction de l'absorption de masse que pour le « 3 bars ». Cet effet ne provient pas du changement de module, puisque celui-ci évolue de manière identique pour le « 1 bar » et le « 3 bars ». L'origine de cette augmentation plus rapide de l'amortissement pour le « 1 bar » reste donc à identifier.

De plus, la **figure 6.3.5**, présente l'évolution du module d'Young (déterminé en traction monotone) en fonction du gain de masse. Le module d'Young de la résine pure décroît linéairement également. Ces informations permettront, dans la modélisation du **chapitre 7**, de pouvoir identifier la décroissance du module associée aux fibres au sein des composites.

Il est important de noter que pour les **figures 6.3.4 et 6.3.5**, les matériaux dont les propriétés sont mesurées sont dans un état transitoire, hormis les points extrêmes (état conditionné et état saturé). Les linéarités observées sont donc uniquement globales sur le matériau mesuré, mais ne correspondent pas nécessairement à une évolution locale des propriétés des fibres. Ceci sera discuté plus amplement dans le **chapitre 7**, une fois que la décroissance locale du module des fibres au sein du composite aura été identifiée.

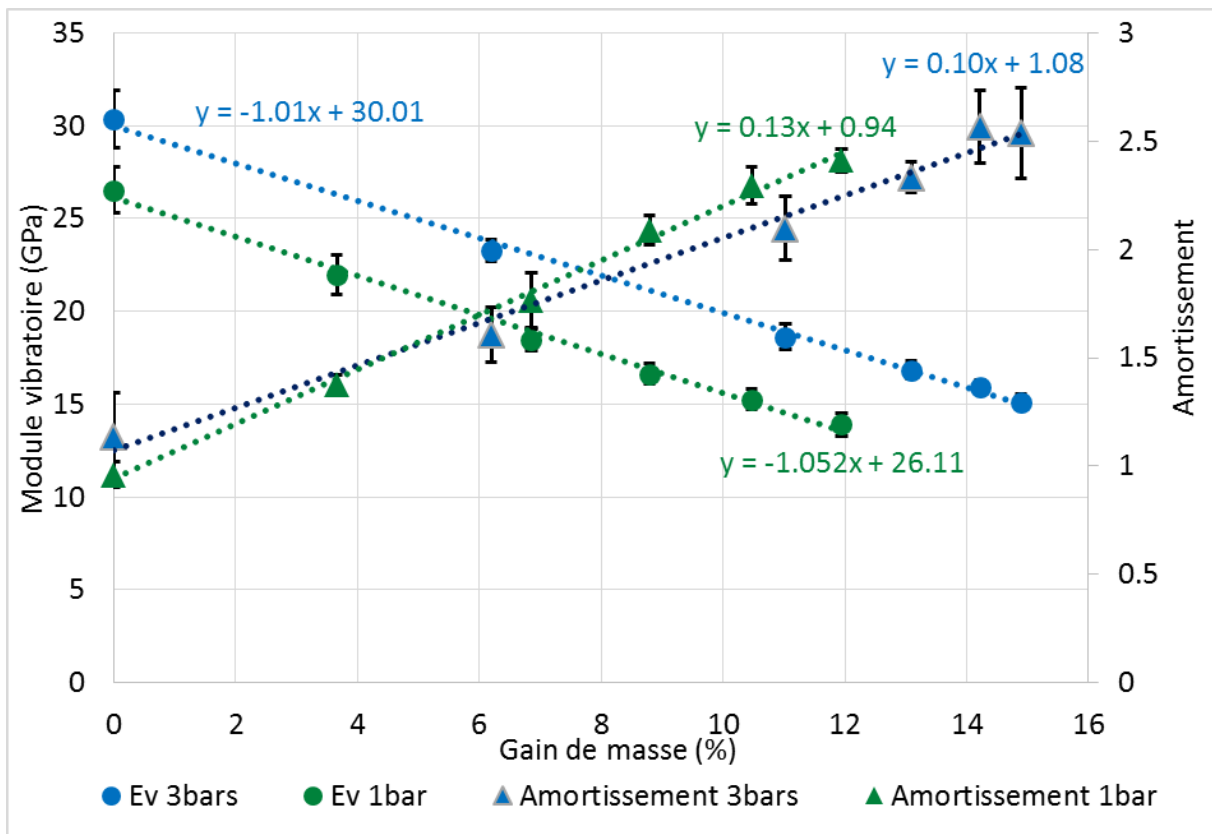


Figure 6.3.4 : Module vibratoire global et amortissement global en fonction du gain de masse – Vert : 1 bar ; Bleu : 3 bars

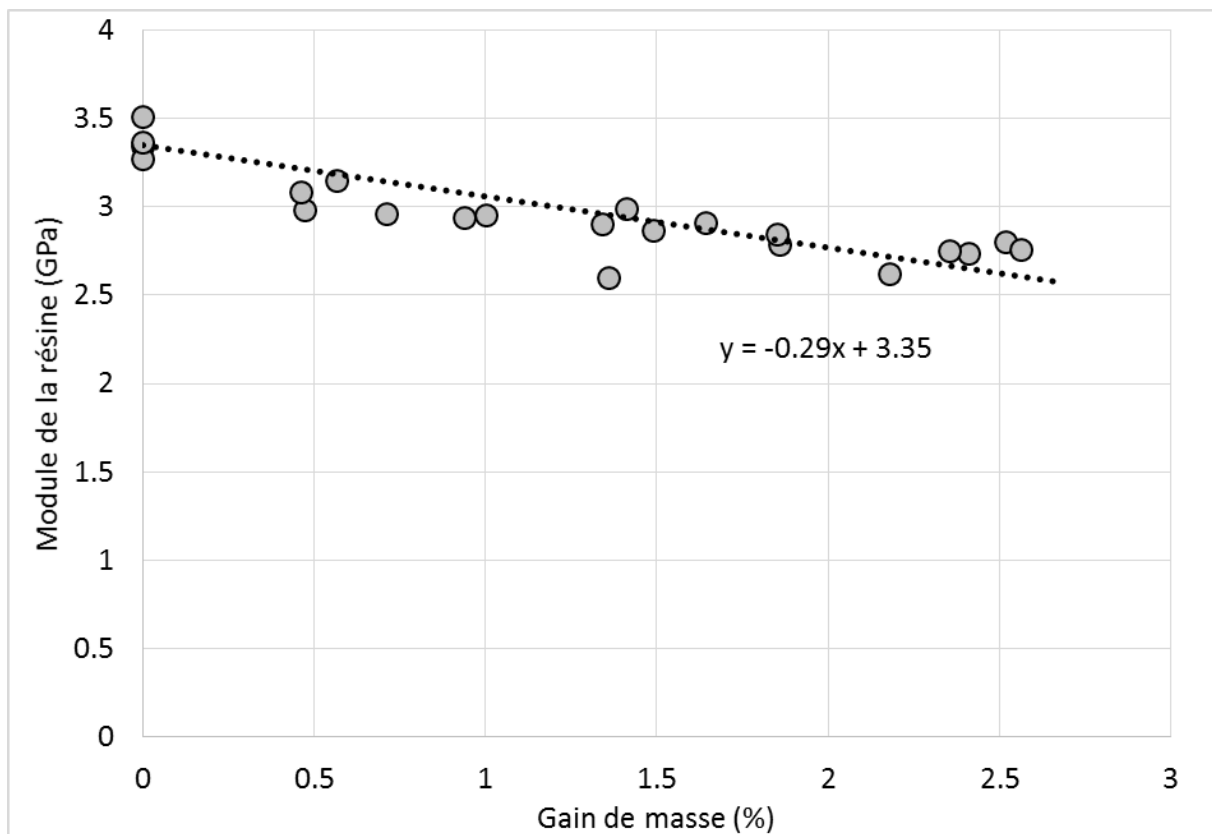


Figure 6.3.5 : Module global en traction quasi-statique en fonction du gain de masse dans le cas de la résine pure

Sur la [figure 6.3.6](#), le gonflement de l'épaisseur est représenté en fonction du gain de masse. La première observation est que les deux types de composites (« 1 bar » et « 3 bars ») se superposent bien, à la différence que le « 1 bar » sature à 12 % de gain de masse. Le gonflement présente donc une partie linéaire jusqu'à environ 13 % puis un léger effet non linéaire apparaît jusqu'à la saturation du composite « 3 bars ». La droite rouge reliant les points extrêmes du composite « 3 bars » met en évidence l'effet des volumes libres dans le comportement de gonflement des composites. Ces volumes libres sont naturellement présents dans les constituants, y compris en l'absence de porosités. Il s'agit d'espaces entre les chaînes macromoléculaires, des pores au sein des fibres ou encore de porosités. Le remplissage de ces volumes libres induit une prise en masse sans gonflement.

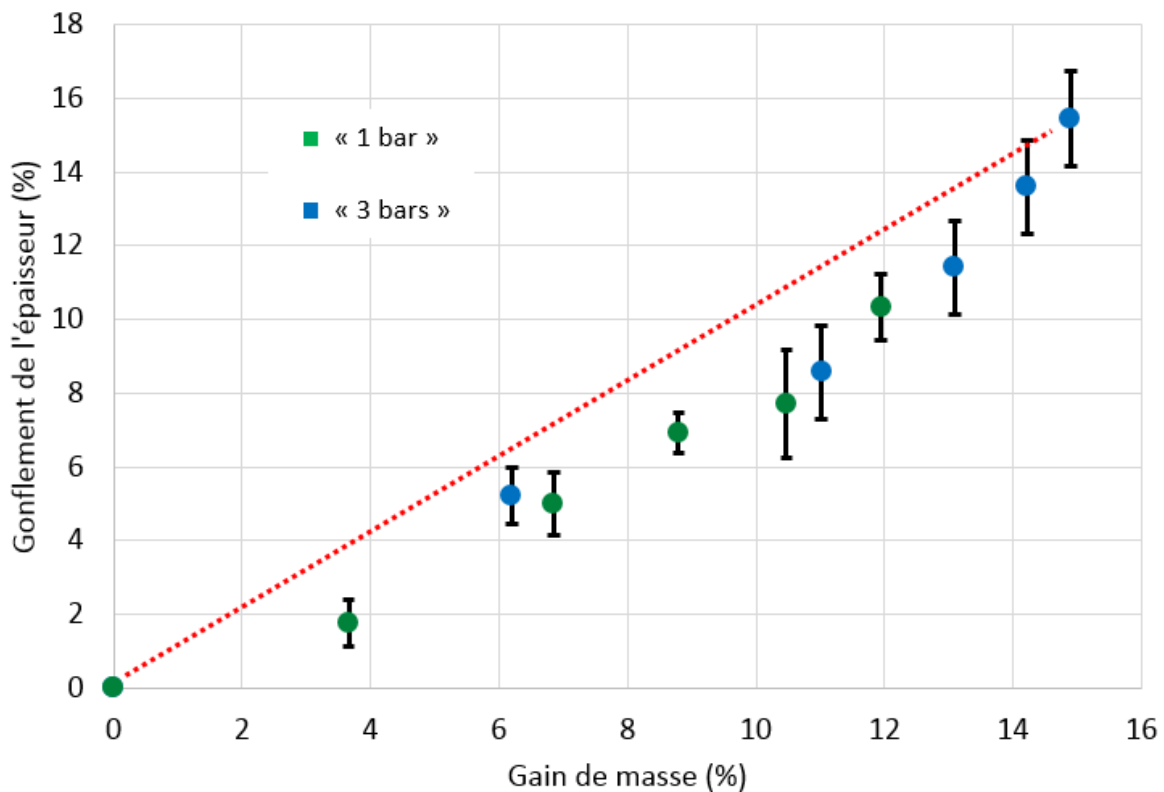


Figure 6.3.6 : Gonflement de l'épaisseur normalisé en fonction du gain de masse
Vert : 1 bar ; Bleu : 3 bars

6.4 – Comportement statique à l'état saturé

Afin de compléter la caractérisation du comportement statique avec la saturation, une campagne d'essais de traction monotone a été réalisée pour déterminer les propriétés des échantillons à saturation. L'impact du taux de fibres sur les phénomènes liés à l'absorption d'eau sera donc étudié.

Le comportement longitudinal sera présenté en premier lieu, puis la viscoélasticité sera étudiée par des essais de traction avec décharges. Ensuite, le comportement transverse et en cisaillement sera détaillé. Enfin, des observations de la microstructure permettront de discuter de l'endommagement des composites avec la teneur en eau.

6.4.1 – Comportement longitudinal

La **figure 6.4.1.1** réunit les courbes de traction des « 1 bar conditionné », « 3 bars conditionné », « 1 bar saturé » et « 3 bars saturé » présentant la contrainte en fonction de la déformation longitudinale. Les échantillons saturés ont une rigidité et une contrainte à rupture nettement inférieures à leurs homologues conditionnés, ainsi qu'une déformation à rupture plus importante. L'évolution des différentes propriétés mécaniques pour ces échantillons est récapitulée dans les **tableaux 6.4.1.1 et 6.4.1.2**. Cette diminution de propriétés est en accord avec les résultats de la section précédente, soit la baisse du module vibratoire au cours du vieillissement, mais également avec la littérature [68], [94], [98], [106]. La diminution des propriétés mécaniques sera discutée ci-après, au regard des tableaux cités.

De plus, sur la **figure 6.4.1.1**, les courbes des « 1 bar saturés » exhibent un comportement très proche de celui des « 3 bars saturés », avec un écart visible principalement à partir de 0.01 de déformation et jusqu'à rupture. Ainsi, les échantillons saturés présentent un coude initial suivi d'une section non linéaire, avec une augmentation du module tangent jusqu'à rupture. Ce comportement n'est donc pas le même que dans le cas des échantillons conditionnés. Afin de mieux visualiser ce phénomène, le module tangent a donc été représenté en fonction de la déformation longitudinale sur la **figure 6.4.1.2**. Le module des échantillons saturés des deux lots après la section correspond au coude (forte variation de module jusqu'à une déformation d'environ 0.002 où le module est d'environ 7 GPa. Pour ces échantillons saturés des deux lots, le module tangent augmente ensuite pour atteindre des valeurs entre 10 et 13 GPa à rupture.

Dans la **partie 6.3**, il a été établi que la plastification par l'eau de la résine et des fibres augmentait les effets de viscoélasticité au sein des composites. Les réorganisations structurales, dont la réorientation des fibres au sein du composite ou des microfibrilles au sein des fibres, régulièrement attribuées aux non-linéarités observées pour ce type de composites [10], [26], [55] pourraient donc être à l'origine du changement de comportement observé après le coude. Aussi, dans de précédents travaux [65], l'apparition d'une non-linéarité après le coude a déjà été observée après saturation en conditions hygrothermiques et a été attribuée à l'alignement de microfibrilles de cellulose et à la cristallisation de la cellulose amorphe qui seraient facilités par la plastification par l'eau des fibres et de la résine.

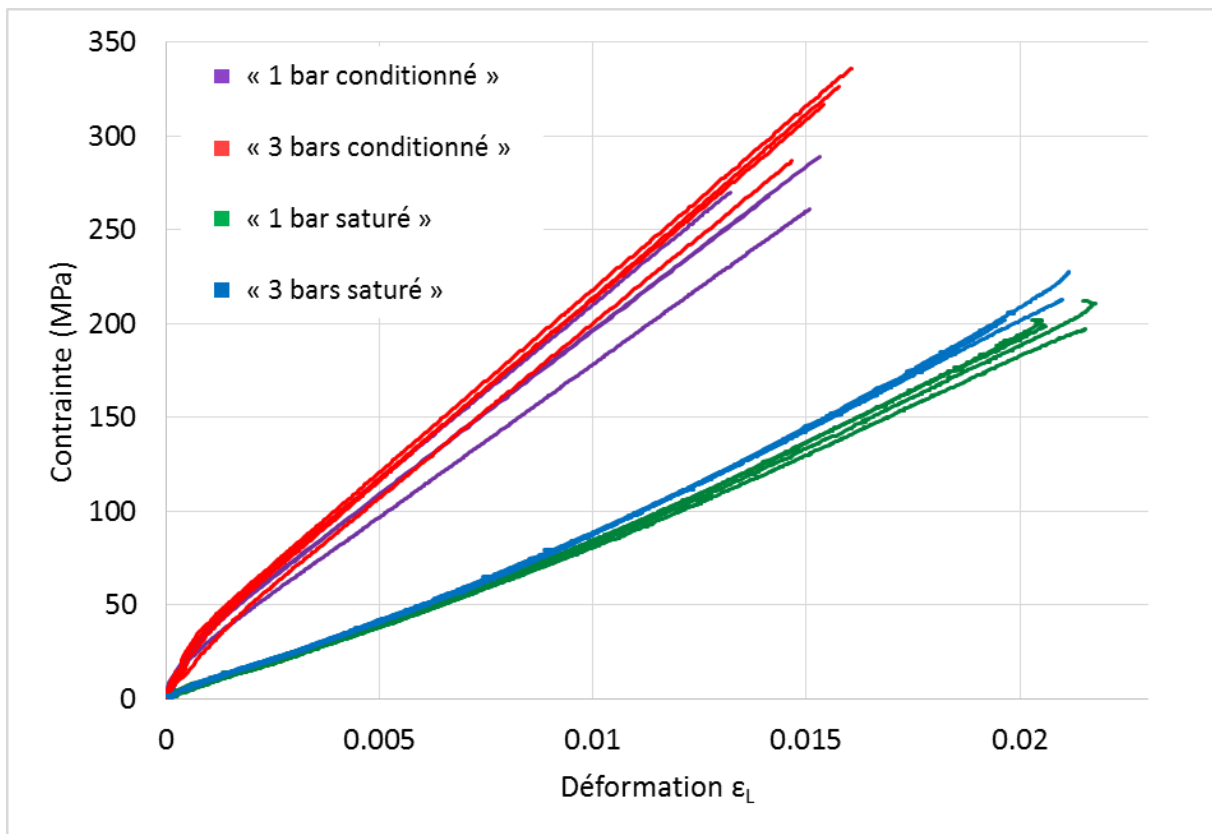


Figure 6.4.1.1 : Contrainte en fonction de la déformation longitudinale pour les composites « 1 bar conditionné » (violet), « 1 bar saturé » (vert), « 3 bars conditionné » (rouge) et « 3 bars saturé » (bleu)

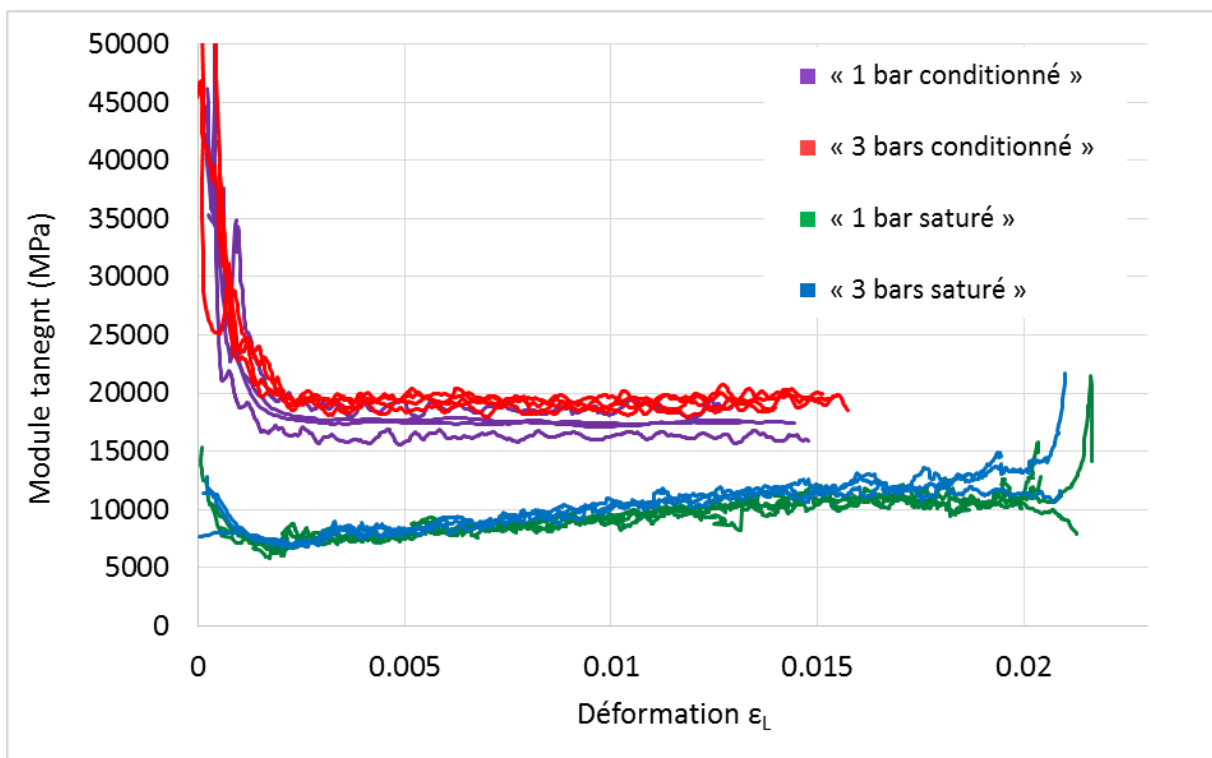


Figure 6.4.1.2 : Module tangent en fonction de la déformation longitudinale avec le même code couleur que la figure 6.3.1.1

Dans les [tableaux 6.4.1.1 et 6.4.1.2](#) sont récapitulées les propriétés mécaniques longitudinales des lots de composites, à l'état conditionné et à l'état saturé. Les écarts de propriétés, sur la [figure 6.4.1.1](#), semblaient se réduire à l'état saturé entre les « 1 bar » et les « 3 bars ».

Une baisse de rigidité est observée entre l'état conditionné et saturé, mais cette baisse est plus importante pour les « 3 bars » que les « 1 bar ». En effet, les modules E_1 et E_2 diminuent respectivement de 65.9 et 58.3 % pour les « 1 bar » et de 67.2 et 60. % pour « 3 bars ». Cette différence peut sembler légère, mais la différence de module E_1 entre les « 1 bar » et les « 3 bars » est de l'ordre de 10.8 % à l'état conditionné et de 7.2 % à l'état saturé.

Les propriétés à rupture sont également impactées. La contrainte à rupture diminue de 25.6 % et 32.3 % respectivement pour les « 1 bar » et « 3 bars » avec la saturation, tandis que la déformation à rupture augmente de 46.5 et 34.8 % respectivement pour les « 1 bar » et « 3 bars ». De ce fait, l'écart de contrainte à rupture entre les « 1 bar » et les « 3 bars » est de l'ordre de 13.9 % à l'état conditionné et de 5.5 % à l'état saturé. La déformation à rupture est, après saturation, similaire pour les deux composites.

L'absorption d'eau tend donc à lisser la réponse mécanique des deux composites. Le taux volumique de fibres a donc moins d'influence sur les propriétés à saturation qu'à l'état conditionné.

De plus, l'augmentation du coefficient de Poisson montre que ces matériaux composites saturés se rapprochent de conditions d'isovolume ($\nu_L = 0.5$), surtout les « 3 bars saturé ». Ceci montre aussi une évolution du comportement vers un comportement élastoplastique avec un seuil de plasticité très bas.

Si le module vibratoire mesuré avant vieillissement est du même ordre de grandeur que le module E_1 , il est observé une différence très nette entre ces deux modules à l'état saturé. En effet, le module vibratoire diminue de 47.5 et 50.3 % respectivement pour les « 1 bar » et les « 3 bars ». La diminution du module vibratoire est donc plus faible que celle du module E_1 . La prise en eau confère une réponse viscoélastique plus marquée du composite, qui peut modifier les propriétés du matériau en fonction de la vitesse de sollicitation avec laquelle les mesures sont effectuées. Il est donc important de distinguer l'analyse des modules en traction monotone des modules vibratoires ainsi que des modules dynamiques dans le [chapitre 8](#) sur les résultats en fatigue.

Dans la littérature, une immersion à température ambiante mène à des diminutions de module de l'ordre de 20 à 60 % [68], [94], [106] et jusqu'à 70 % en immersion à 60 °C [68]. Les valeurs présentées dans le [tableau 6.4.1.1](#) sont donc cohérentes avec ces valeurs. En revanche, dans la littérature, l'UTS après immersion à température ambiante est stable ou augmente jusqu'à 40 % [68], [94], [106]. Pour une immersion à 60 °C, une perte d'UTS de 40 % a été observée [68]. L'effet de la saturation sur l'UTS est donc dépendante de différents phénomènes, y compris la teneur en eau. Or, comme il a été montré dans la [section 6.3](#), les matériaux considérés ici ont des teneurs en eau à saturation plus importantes que celles observées dans la littérature. Il est donc logique que les propriétés mécaniques soient affectées en conséquence. Cela considéré, les « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné » ont des chutes de propriétés en accord avec la littérature.

Les fibres de verre, que nous cherchons à substituer par des fibres de lin, absorbent beaucoup moins d'eau et perdent moins leurs propriétés. Cela pose donc un problème conséquent pour des utilisations dans des conditions sévères d'absorption. Avant de conclure sur une utilisation industrielle en conditions sévères, les propriétés transverses seront étudiées dans la [section 6.4.3](#).

| 1 bar 0° | Etat conditionné | | Etat saturé | |
|------------------------|------------------|------------|-------------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| E_V (GPa) | 26.5 | 1.2 | 13.9 | 0.6 |
| E_1 (GPa) | 26.4 | 1.7 | 9.0 | 0.8 |
| E_2 (GPa) | 17.5 | 1.0 | 7.3 | 0.6 |
| $\sigma_{L\max}$ (MPa) | 272.4 | 12.8 | 202.6 | 6.8 |
| $\epsilon_{L\max}$ (%) | 1.44 | 0.10 | 2.11 | 0.06 |
| ν_L | 0.37 | 0.01 | 0.43 | 0.01 |

Tableau 6.4.1.1 : Propriétés mécaniques des composites « 1 bar conditionné » et « 1 bar saturé » dans le sens longitudinal

| 3 bars 0° | Etat conditionné | | Etat saturé | |
|------------------------|------------------|------------|-------------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| E_V (GPa) | 30.4 | 1.6 | 15.1 | 0.4 |
| E_1 (GPa) | 29.6 | 2.7 | 9.7 | 1.5 |
| E_2 (GPa) | 19.2 | 0.4 | 7.6 | 0.8 |
| $\sigma_{L\max}$ (MPa) | 316.5 | 21.3 | 214.3 | 12.7 |
| $\epsilon_{L\max}$ (%) | 1.55 | 0.06 | 2.09 | 0.08 |
| ν_L | 0.40 | 0.00 | 0.48 | 0.07 |

Tableau 6.4.1.2 : Propriétés mécaniques des composites « 3 bars conditionné » et « 3 bars saturé » dans le sens longitudinal

Le [tableau 6.4.1.3](#) récapitule les propriétés mécaniques de la résine pure à l'état conditionné et à l'état saturé. La rigidité diminue de 11.7 % et la contrainte à rupture diminue de 35.9 %. Cela permet aussi de calculer les propriétés des fibres au sein des composites pour les deux lots à l'état saturé à l'aide d'une loi des mélanges. Ces valeurs sont reportées dans le [tableau 6.4.1.4](#). Les fibres au sein des composites « 1 bar » sont plus performantes que celles présentes au sein des composites « 3 bars ». Les résultats confirment que les fibres sont fortement impactées par la saturation, avec une diminution entre 71 et 72 % pour le module E_1 des fibres pour les deux lots. Dans la [section 6.1.2](#), la différence de propriétés des fibres au sein des composites a été attribuée à la distance interfibres plus faible dans les « 3 bars ». L'évolution avec la saturation est du même ordre pour les deux lots et ne remet donc pas l'hypothèse de la distance interfibres en question.

| Résine seule | Etat conditionné | | Etat saturé | |
|---|------------------|-------------------|-------------|-------------------|
| | Moyenne | <i>Ecart-type</i> | Moyenne | <i>Ecart-type</i> |
| E (GPa) | 3.4 | 0.1 | 3.0 | 0.1 |
| $\sigma_{L \max}$ (MPa) | 73.5 | 11.8 | 47.1 | 7.7 |
| $\epsilon_{L \max}$ (%) | 3.53 | 1.43 | 1.96 | 0.39 |
| ν_L | 0.38 | 0.02 | 0.36 | 0.03 |

Tableau 6.4.1.3 : Propriétés mécaniques de la résine pure à l'état conditionné et à l'état saturé

| Propriétés longitudinales des fibres | 1 bar conditionné | | 3 bars conditionné | | 1 bar saturé | | 3 bars saturé | |
|--------------------------------------|-------------------|-------------------|--------------------|-------------------|--------------|-------------------|---------------|-------------------|
| | Moyenne | <i>Ecart-type</i> | Moyenne | <i>Ecart-type</i> | Moyenne | <i>Ecart-type</i> | Moyenne | <i>Ecart-type</i> |
| E_1 (GPa) | 64.4 | 4.3 | 57.9 | 5.3 | 18.9 | 2.3 | 16.1 | 3.0 |
| E_2 (GPa) | 40.8 | 2.5 | 37.6 | 0.8 | 14.4 | 1.8 | 12.0 | 0.7 |

Tableau 6.4.1.4 : Propriétés longitudinales recalées des fibres dans les composites « 1bar conditionné », « 1 bar saturé », « 3 bars conditionné » et « 3 bars saturé »

6.4.2 – Caractérisation de la viscoélasticité

Afin de caractériser l'évolution de la viscoélasticité des composites, des essais de traction monotone avec décharges successives ont été réalisés. Ces essais nous donnent ainsi accès à des informations utiles : l'aire de la boucle de décharge / recharge est d'autant plus grande que le caractère viscoélastique est important. Le but est de comparer ces aires à l'état conditionné et à saturation pour connaître l'évolution de la viscoélasticité des matériaux.

Ces essais ont donc été réalisés selon le protocole de traction défini dans la section [M&M essais de traction] avec 3 décharges au cours de l'essai. La première a lieu à 1 kN, la deuxième à 5 kN et la troisième à 15 kN, toutes trois à 1 mm.min⁻¹.

Les décharges n'ont cependant pas été menées jusqu'à un retour à une force nulle, mais à 10% de la valeur maximale atteinte précédemment, soit 100 N, 500 N et 1500 N respectivement pour les décharges successives, afin d'éviter des problèmes de flambage et de relâchement des mors autoserrants.

La **figure 6.4.2** présente les courbes avec décharges successives (3 par état) ainsi qu'une éprouvette sans décharge, servant de modèle de traction monotone, pour des composites « 3 bars ». Les éprouvettes sans décharge pour l'état conditionné et l'état saturé ne sont pas différenciées, car se superposent aux courbes avec décharges (hors cycles de décharge).

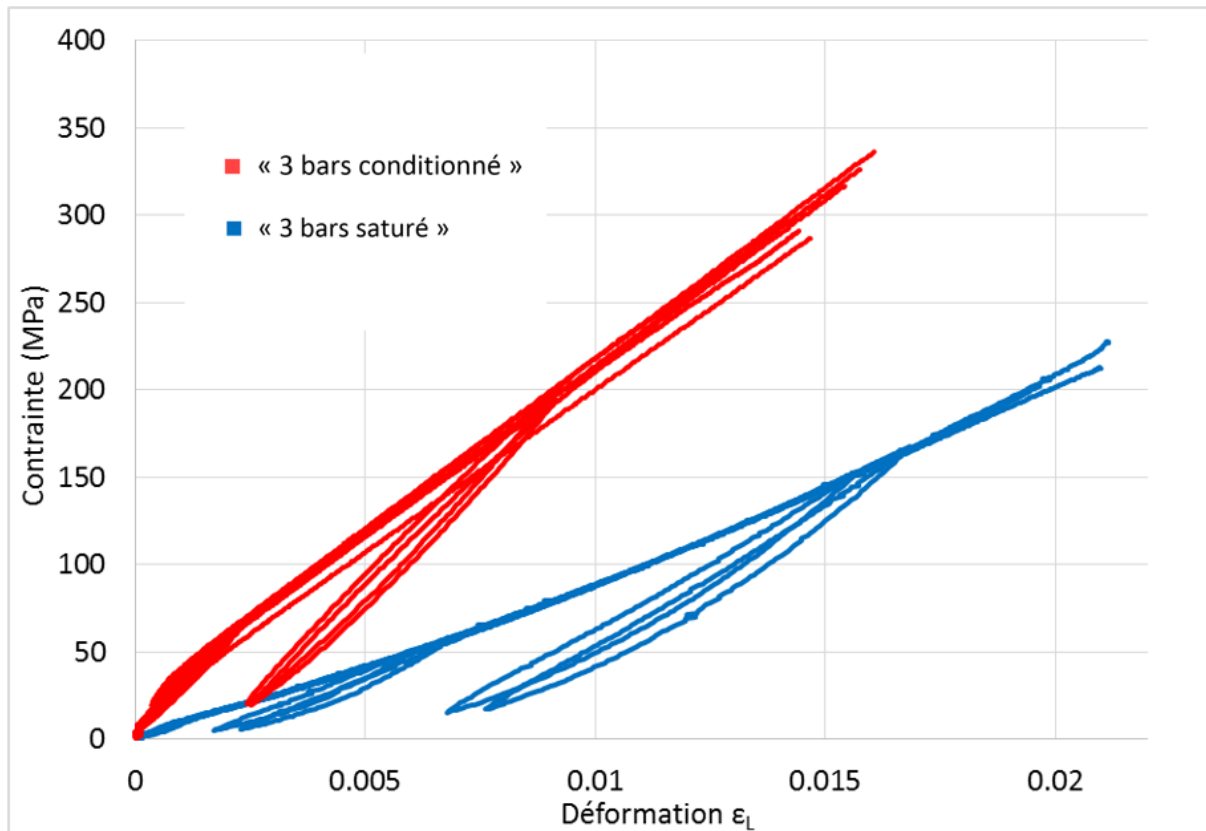


Figure 6.4.2 : Courbes de traction avec décharges successives sur les éprouvettes « 3 bars conditionné » (rouge) et « 3 bars saturé » (bleu)

Tout d’abord, il est important de noter que les courbes enveloppes (hors décharges/recharges) des essais avec décharges sont les mêmes que les références associées. Ceci implique donc que le comportement global n’est pas affecté par les décharges.

Ensuite, la première hystérésis de décharge est superposée à la courbe initiale avec une aire quasi nulle, et ce pour toutes les éprouvettes testées avec des décharges, ce qui rend impossible sa visualisation, quelle que soit l’échelle employée. Il est néanmoins important de garder en tête le fait que cette décharge a bien lieu et se produit avant le coude. Comme elle apparaît avant le coude de la courbe de traction, le comportement peut y être assimilé comme purement élastique. En revanche, dès la seconde, des hystérésis d’aires non négligeables apparaissent.

Afin d’étudier l’évolution du comportement, le rapport entre les aires des hystérésis 2 et 3 et des aires sous la courbe ont été calculées et résumées dans le [tableau 6.4.2](#). La saturation provoque donc une augmentation significative du rapport d’aire pour l’hystérésis de la deuxième décharge, mais ne modifie pas l’aire de l’hystérésis de la troisième décharge. L’aire de l’hystérésis 2 (à 5 kN) augmente de 154 %. Or, lors des essais vibratoires en vibrations libres, l’amortissement a augmenté entre l’état conditionné et saturé de 151 % et 124 % respectivement pour les « 1 bar » et les « 3 bars ». Cette augmentation de l’amortissement traduit également une augmentation de la viscoélasticité du matériau. Les ordres de grandeur entre les deux phénomènes, observés lors de sollicitations de différentes natures (vibratoire en vibrations libres et en monotone), restent similaires.

Afin de caractériser avec une plus grande précision la viscoélasticité de ces matériaux, des essais auraient pu être menés avec un pilotage en déformation et d’autres en pilotage en

contraintes afin d'avoir des décharges à déformation équivalente et des décharges à contrainte équivalente pour comparer les résultats et les influences de ces paramètres. Malheureusement, les échantillons étant en nombre limité, cette étude n'a pas pu être effectuée. De plus, des essais de DMA n'ont pas pu être menés à bien après vieillissement, ce qui n'a pas permis d'étudier plus en détail les phénomènes de viscoélasticité.

| N° de décharge | 3 bars conditionné | 3 bars saturé |
|----------------|--------------------|---------------|
| 2 | 3.8 ± 0.3 % | 9.66 ± 1.7 % |
| 3 | 8.0 ± 0.7 % | 8.0 ± 0.3 % |

Tableau 6.4.2 : Proportion en pourcentage de l'aire de l'hystérésis de décharge par rapport à l'aire sous la courbe jusqu'à la décharge

6.4.3 – Comportement transverse et en cisaillement

Pour ce qui est du comportement transverse, les **tableaux 6.4.3.1 et 6.4.3.2** présentent les résultats des essais de traction sur les échantillons avec les fibres orientées à 90° par rapport à l'axe de sollicitation (transverse) et les **tableaux 6.4.3.3 et 6.4.3.4** présentent ceux des échantillons avec les fibres orientées à 45° par rapport à l'axe de sollicitation (cisaillement).

Si les composites des deux types avant immersion possédaient des propriétés transverses équivalentes dans le sens transverse et en cisaillement, cela n'est plus le cas après immersion. Effectivement, les « 3 bars saturé » présentent des propriétés plus faibles que les « 1 bar saturé ». Le module d'Young transverse des « 3 bars saturé » est en effet inférieur de 33 % à celui des « 1 bar saturé » et la contrainte à rupture en transverse des « 3 bars saturé » est inférieure à celle des « 1 bar saturé » de 23 %.

Dans la littérature, il n'y a pas de travaux à ma connaissance qui rapportent les propriétés transverses et en cisaillement pour des composites lin/époxy en immersion. En revanche, pour une saturation en conditions hygrothermiques pour un gain de masse à saturation de 3.3 % [65], une baisse de module transverse de 35 % a été observée, ainsi qu'une baisse de l'UTS transverse de 15 % et une augmentation de la déformation à rupture de 80 %. En considérant la teneur en eau à saturation, et la différence de sollicitations (90 %HR comparé à de l'immersion), les valeurs obtenues dans les **tableaux 6.4.3.1 et 6.4.3.2** sont cohérentes.

Malheureusement, aucune donnée n'a été trouvée concernant les propriétés en cisaillement après saturation. Il n'est donc pas possible de se positionner par rapport aux composites similaires de la littérature.

Cependant, les phénomènes d'endommagement ayant lieu lors de ces sollicitations (transverse et en cisaillement) peuvent être discutés. Plusieurs phénomènes peuvent altérer l'interface fibre-matrice, dont notamment une dégradation chimique par l'eau de la liaison fibre-matrice [166] et une dégradation physique de la résine par les fibres par gonflement relatif [30], [93]. La diminution importante des propriétés interfaciales peut être à l'origine de difficultés majeures pour une utilisation industrielle. Leur équivalent en fibres synthétiques reste bien meilleur, ces dernières n'étant pas aussi sensibles à l'absorption d'eau.

| 1 bar 90° | Etat conditionné | | Etat saturé | |
|-------------------------|------------------|------------|-------------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| E_T (GPa) | 3.5 | 0.1 | 0.9 | 0.2 |
| $\sigma_{T \max}$ (MPa) | 19.1 | 2.1 | 6.4 | 0.5 |
| $\epsilon_{T \max}$ (%) | 0.59 | 0.08 | 0.93 | 0.17 |
| ν_T | 0.05 | 0.00 | 0.03 | 0.00 |

Tableau 6.4.3.1 : Propriétés mécaniques des composites « 1 bar conditionné » et « 1 bar saturé » dans le sens transverse à 90°

| 3 bars 90° | Etat conditionné | | Etat saturé | |
|-------------------------|------------------|------------|-------------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| E_T (GPa) | 3.5 | 0.1 | 0.6 | 0.1 |
| $\sigma_{T \max}$ (MPa) | 18.8 | 1.1 | 4.9 | 0.2 |
| $\epsilon_{T \max}$ (%) | 0.61 | 0.06 | 1.34 | 0.24 |
| ν_T | 0.04 | 0.00 | 0.03 | 0.01 |

Tableau 6.4.3.2 : Propriétés mécaniques des composites « 3 bars conditionné » et « 3 bars saturé » dans le sens transverse à 90°

| 1 bar 45° | Etat conditionné | | Etat saturé | |
|--------------------------|------------------|------------|-------------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| G (GPa) | 1.75 | 0.16 | 0.59 | 0.11 |
| $\sigma_{45 \max}$ (MPa) | 33.3 | 1.9 | 9.4 | 1.1 |
| ϵ_{45} (%) | 0.84 | 0.07 | 0.88 | 0.09 |

Tableau 6.4.3.3 : Propriétés mécaniques des composites « 1 bar conditionné » et « 1 bar saturé » dans le sens transverse à 45°

| 3 bars 45° | Etat conditionné | | Etat saturé | |
|--------------------------|------------------|------------|-------------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| G (GPa) | 1.88 | 0.22 | 0.49 | 0.08 |
| $\sigma_{45 \max}$ (MPa) | 32.2 | 2.5 | 8.4 | 0.5 |
| ϵ_{45} (%) | 0.76 | 0.05 | 1.39 | 0.13 |

Tableau 6.4.3.4 : Propriétés mécaniques des composites « 3 bars conditionné » et « 3 bars saturé » dans le sens transverse à 45°

Sur les **figures 6.4.3.1 et 6.4.3.2** sont représentées respectivement les courbes de traction monotone transverse et en cisaillement pour les échantillons « 1 bar conditionné », « 3 bars conditionné », « 1 bar saturé » et « 3 bars saturé ».

Pour les échantillons saturés, la rupture ne se produit plus de manière brutale comme pour les échantillons à l'état conditionné. Si la courbe paraît témoigner d'une rupture plastique, les clichés pour la corrélation d'images montrent qu'il s'agit en réalité d'une rupture avec des fibres qui restent attachées aux deux parts (cf. **figure 6.4.3.3**). De ce fait, la rupture est considérée effective au maximum de contrainte et la courbe ne peut pas être interprétée au-delà en raison de l'apparition de ce phénomène (déformation non homogène).

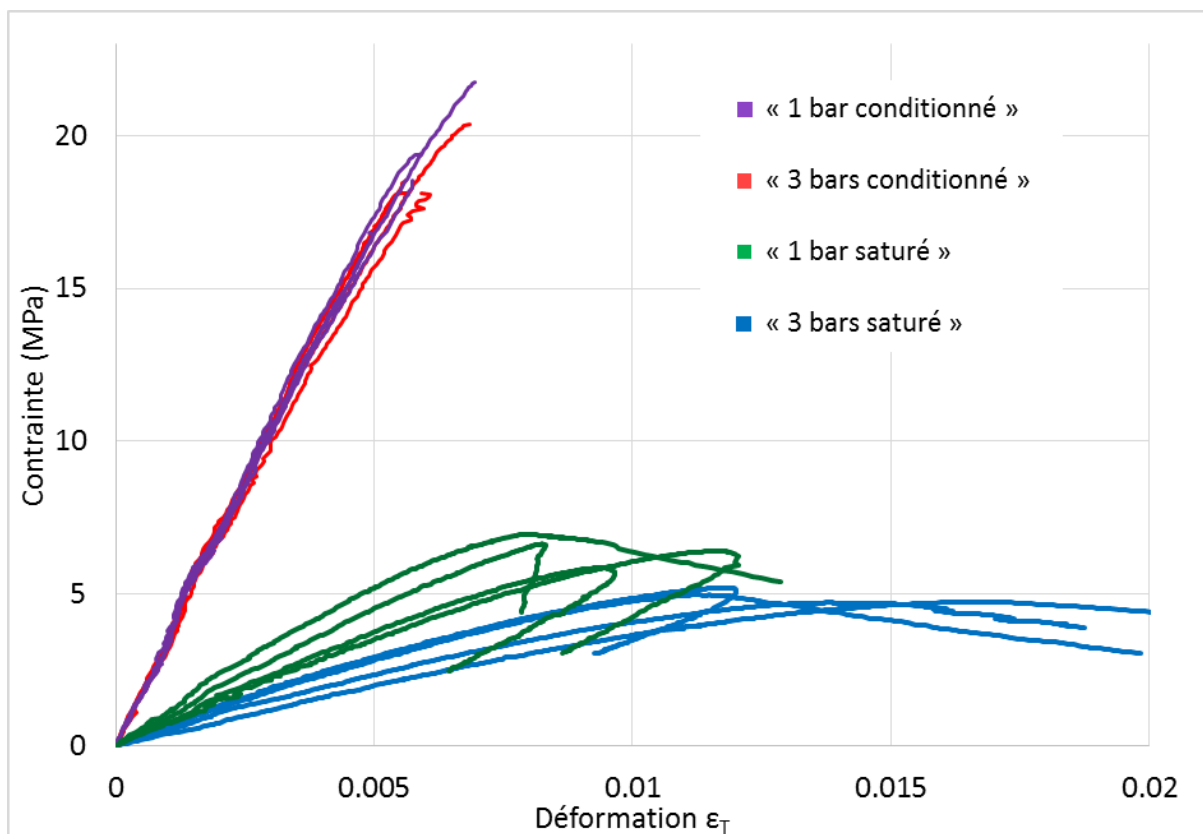


Figure 6.4.3.1 : Courbes de traction à 90° : « 1 bar conditionné » en violet, « 1 bar saturé » en vert, « 3 bars conditionné » en rouge et « 3 bars saturé » en bleu

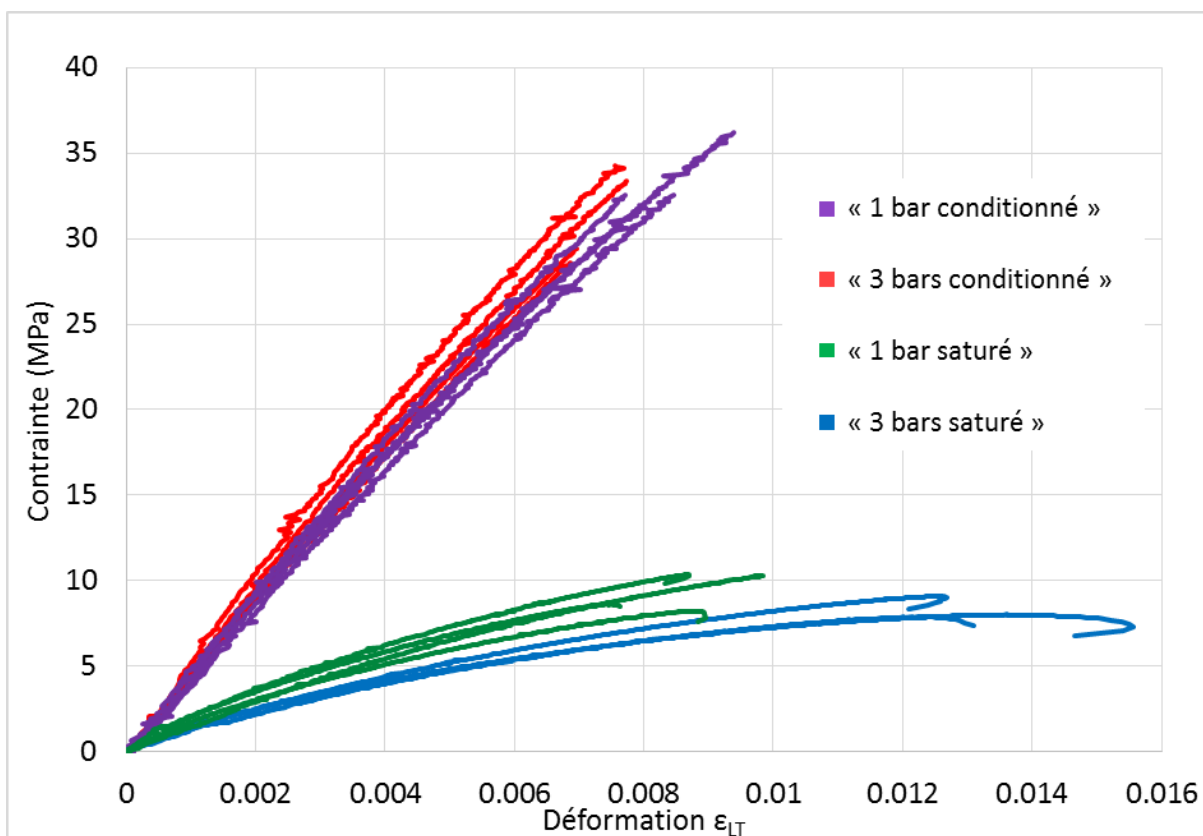


Figure 6.4.3.2 : Courbes de traction à 45° : « 1 bar conditionné » en violet, « 1 bar saturé » en vert, « 3 bars conditionné » en rouge et « 3 bars saturé » en bleu

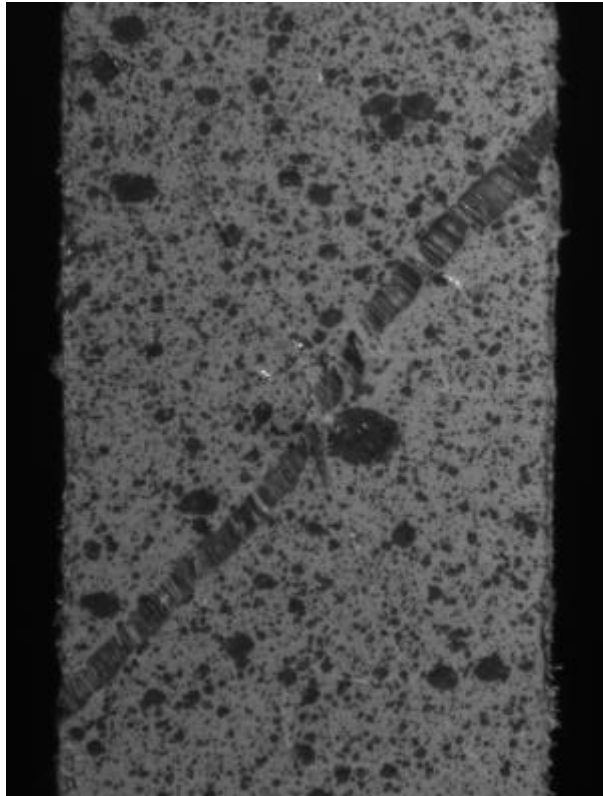


Figure 6.4.3.3 : Rupture classique d'un échantillon transverse à 45° à saturation avec fibres reliant les deux parties (surface mouchetée pour la mesure de la déformation par corrélations d'images)

6.4.4 – Observations de la microstructure à saturation

Des observations de la microstructure ont également été réalisées afin d'observer d'éventuelles dégradations de la résine au pourtour des fibres, ainsi que des endommagements macroscopiques qui pourraient se produire.

Pour rappel, les **figures 6.1.1.1 et 6.1.1.2** présentent des observations réalisées sur les deux types de composite dans l'état conditionné.

Sur les **figures 6.4.4.1 et 6.4.4.2** sont présentées les microstructures observées à saturation. Il est primordial de rappeler ici que les clichés sont obtenus après métallisation sous vide, ce qui a pour effet de créer une désorption de surface, au minimum, sur les parties présentant une désorption rapide : les fibres et les porosités, dont l'eau s'échappe sous vide.

On observe donc des décohésions fibres/matrice autour des fibres. Malheureusement, il n'a pas été possible à cette étape de déterminer la provenance de ces décohésions. L'origine la plus probable consiste en une désorption rapide des fibres, provoquant une réduction des diamètres, tandis que la résine demeure en l'état déformé, provoquant ainsi ces décohésions [6].

De plus, aucune fissure n'a été détectée dans la résine au pourtour des fibres (cf. **figure 6.4.4.3**). Cela ne signifie pas pour autant qu'aucune dégradation physique n'a eu lieu, par exemple de la plasticité par contraintes de gonflement relatif, mais simplement que les microfissures à l'interface, qui sont relatées dans la littérature, ne sont ici pas responsables de la modification des propriétés mécaniques.

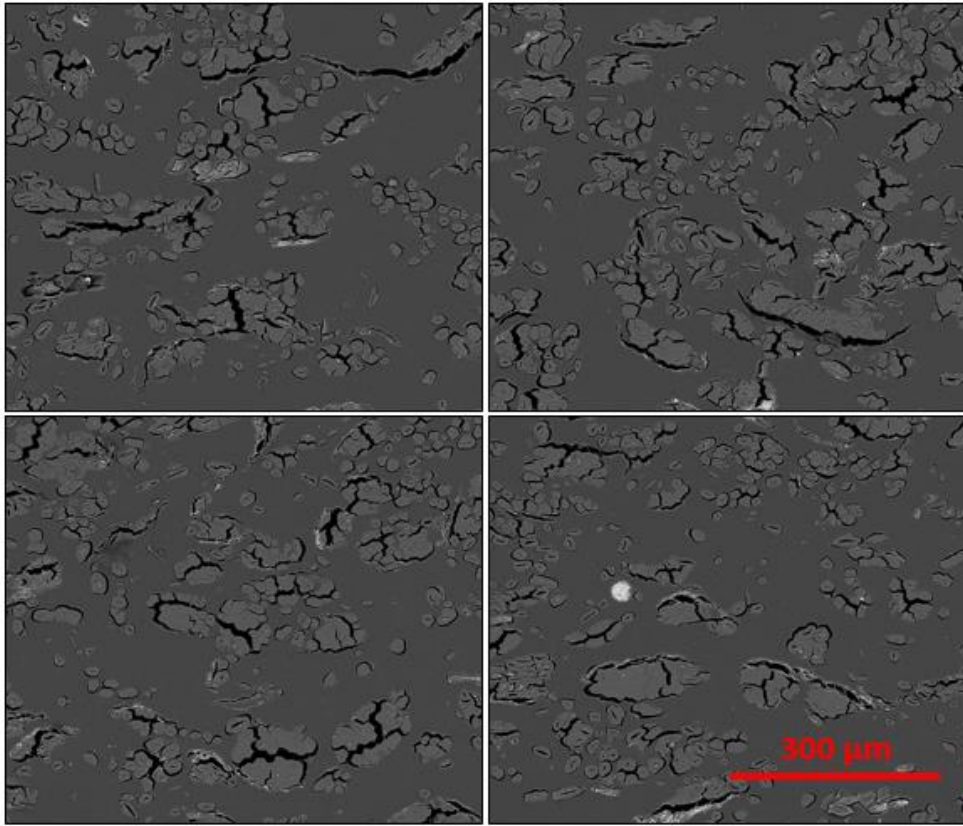


Figure 6.4.4.1 : Observations microscopiques du composite « 1 bar saturé »

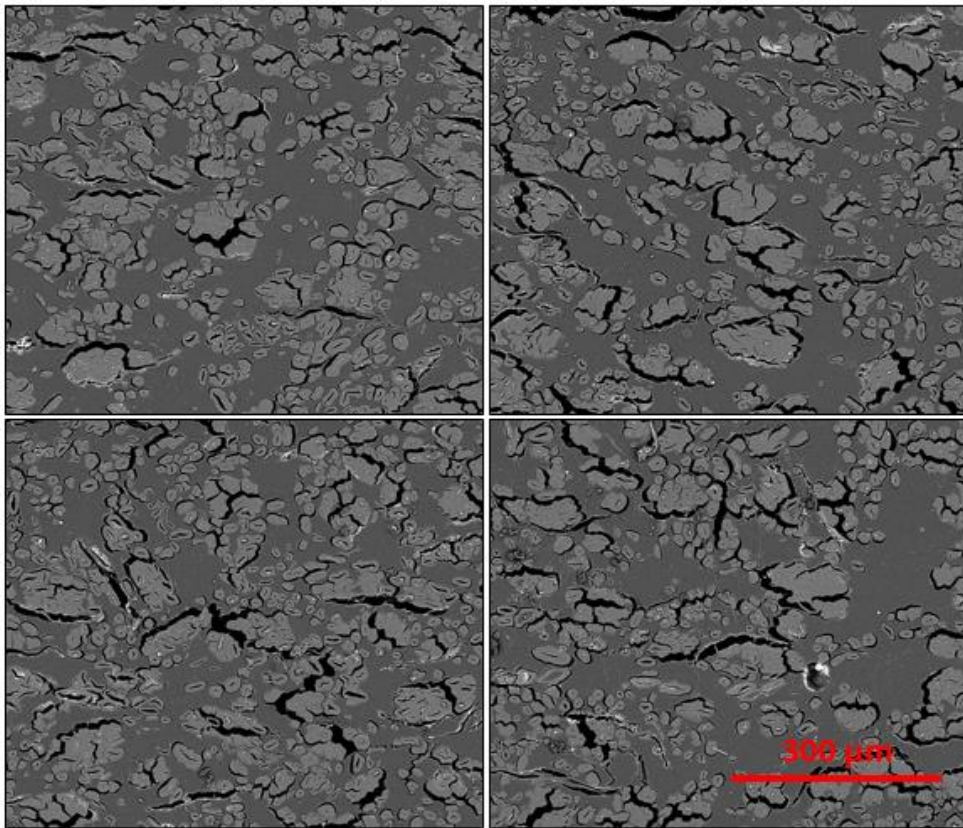


Figure 6.4.4.2 : Observations microscopiques du composite « 3 bars saturé »

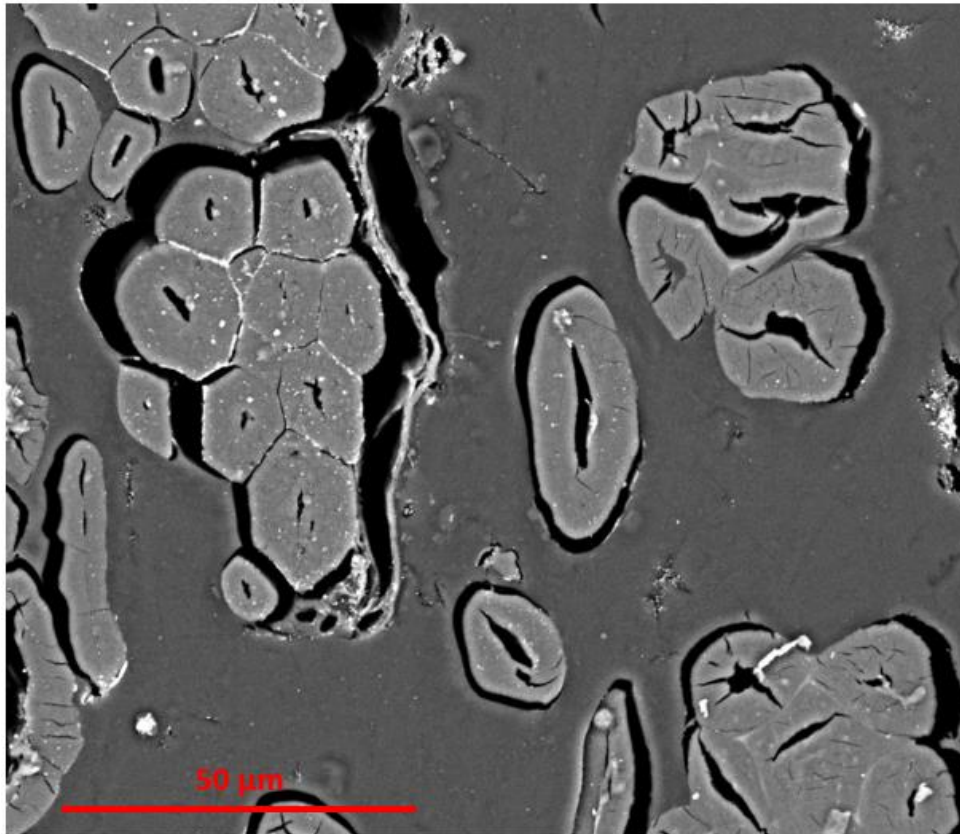


Figure 6.4.4.3 : Observation microscopique du composite « 3 bars saturé » pour détection d'éventuels endommagements de la résine

6.5 – Conclusions

Ainsi, avec les résultats précédents, un bilan complet des propriétés en traction monotone des composites conditionnés et à saturation peut être dressé.

Sur la **figure 6.5.1** sont récapitulés les modules, l'amortissement et le coefficient de Poisson longitudinal tandis que la **figure 6.5.2** présente les propriétés à rupture (contrainte et déformation). Les résultats sont normalisés par rapport aux résultats du composite « 3 bars conditionné » afin d'étudier les évolutions des propriétés avec la saturation.

On constate donc que les « 3 bars », qui présentent un taux de fibres supérieur et des propriétés dans l'état conditionné légèrement supérieures à celles du « 1 bar », ne sont pas forcément les plus performants à saturation. En effet, la saturation tend à réduire les écarts, voire même à détériorer plus les composites « 3 bars » que les composites « 1 bar », notamment en sollicitations transverses et en cisaillement.

Aussi, les propriétés spécifiques à l'état conditionné peuvent avoisiner celles de composites à fibres synthétiques, mais les propriétés à l'état saturé sont bien plus faibles que celles obtenues pour des fibres synthétiques. Il peut donc paraître difficile d'envisager une utilisation industrielle de ces composites en l'état dans le cas où le mécanisme de rupture principal serait la rupture en traction monotone longitudinale, transverse ou en cisaillement.

En revanche, il existe d'autres solutions envisageables, comme l'application d'un gel coat permettant une réduction drastique de l'absorption ou bien une hybridation des composites avec des fibres de verre en sus.

Il est tout de même important de noter que les mécanismes principaux de rupture envisagés ici ne sont pas les seuls. Il reste donc important d'étudier d'autres mécanismes de rupture ou des conditions de saturation / de vieillissement différentes. Une étude en fatigue sera donc présentée dans le **chapitre 8** et une étude en conditions hygrothermiques cycliques dans le **chapitre 9**.

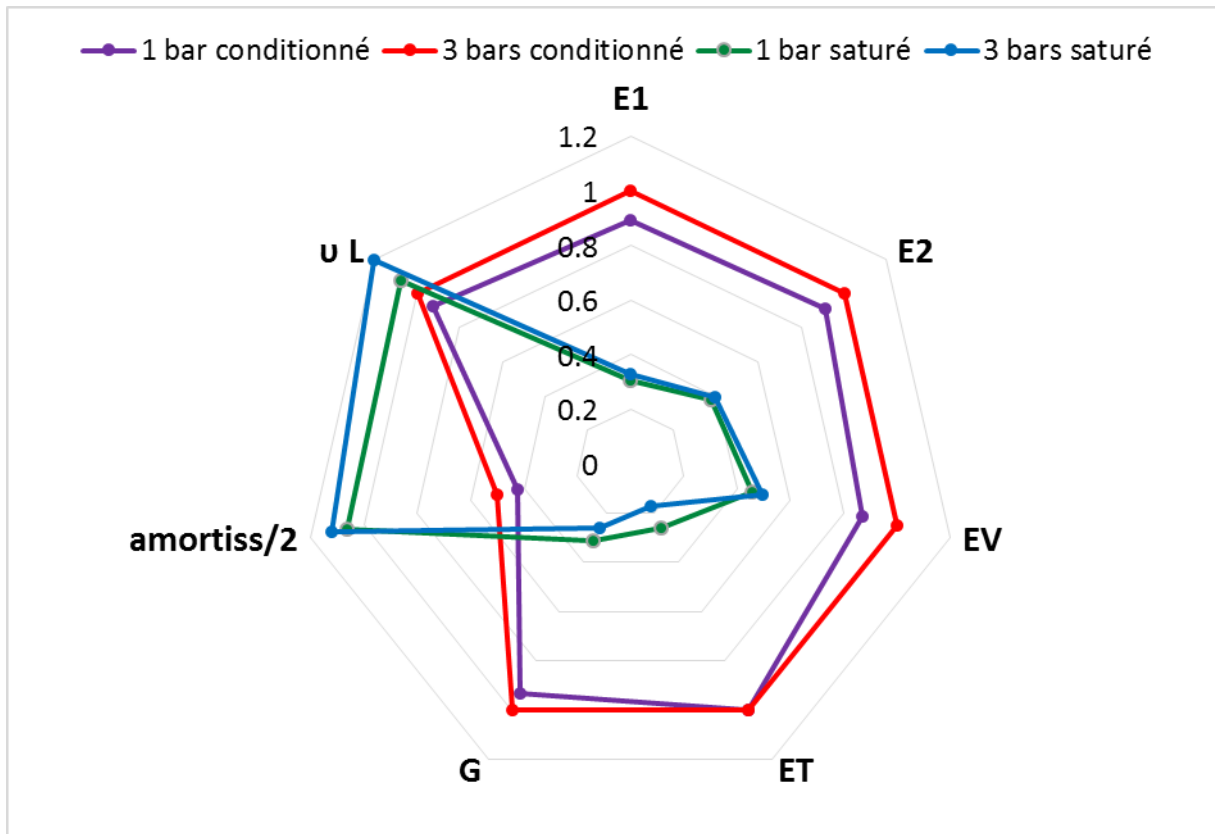


Figure 6.5.1 : Comportement statique — Modules, coefficient de Poisson et amortissement

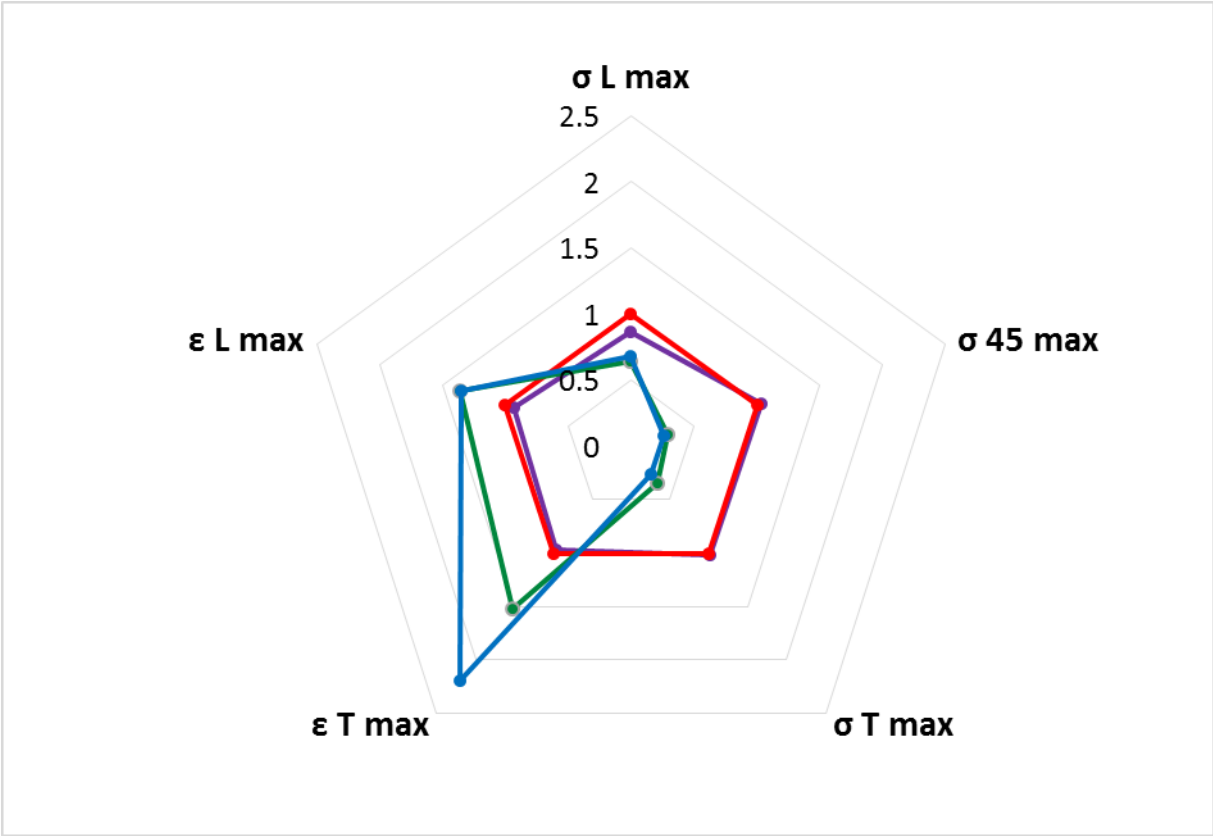


Figure 6.5.2 : Comportement statique — Contraintes et déformations à rupture

Chapitre 7 – Modélisation du comportement statique en conditions hydrothermiques

Dans la thèse de G. Apolinario Testoni [116], un modèle multiéchelles a été étudié, justifié par la présence d'une échelle microscopique (intramèche) et d'une échelle mésoscopique (intermèches). Une analyse d'images a permis, pour les deux échelles, d'analyser les paramètres morphologiques de la microstructure afin de générer des microstructures numériques aléatoires en fonction des paramètres morphologiques. Les travaux d'approche numérique présentés ici s'inscrivent donc dans la continuité de la thèse de G. Apolinario Testoni. En revanche, compte tenu de la morphologie décrite au **chapitre 4** et d'une microstructure homogène, l'échelle intramèche décrite dans la thèse de G. Apolinario Testoni peut être avantageusement étendue à tout le composite dans les travaux de cette thèse. Le modèle implémenté dans cette thèse ne sera donc pas multiéchelle. L'objectif est de contribuer à l'analyse numérique de la durabilité pour des composites à fibres végétales. Le but est de pouvoir utiliser des modèles prédictifs pour de la conception de structures soumises à des sollicitations multiphysiques (dont de l'immersion ou une exposition à une atmosphère humide).

Les problématiques principales qui sont étudiées ici sont la représentation de la microstructure du composite en fonction d'observations microscopiques pour un composite disposant d'une microstructure à une seule échelle en l'absence d'une distinction de mèches ou d'une distinction des plis. De plus, l'intégration de données expérimentales issues de la diffusion en immersion et d'essais mécaniques sera discutée.

Ce chapitre présentera donc en premier lieu la méthodologie suivie, depuis les observations microscopiques jusqu'à la modélisation sous COMSOL Multiphysics®. Ensuite, les hypothèses de diffusion seront étudiées. Les paramètres de la modélisation sous COMSOL Multiphysics® seront finalement identifiés pour aboutir au modèle résultant et aux discussions qui y sont associées.

7.1 – Méthodologie

Afin d'aboutir à un modèle représentatif de la microstructure du composite, de nombreuses étapes préliminaires sont nécessaires, dont l'analyse morphologique décrite dans le **chapitre 4** et la génération de microstructure sur le logiciel Digimat®.

L'implémentation du modèle requiert également plusieurs analyses à comparer avec la campagne expérimentale du **chapitre 6**, dont l'identification de paramètres de diffusion ou de gonflement hygroscopique.

Afin de bien comprendre la démarche de cette approche numérique de la durabilité du composite « 3 bars », la méthodologie suivie est explicitée dans cette section.

La méthodologie globale est présentée avec les différentes étapes suivies, de l'observation de la microstructure à l'implémentation sous COMSOL Multiphysics®. La méthodologie de génération de microstructures 2D sous Digimat® est discutée par rapport à la représentativité de la réalité. Enfin, la méthodologie d'implémentation sous COMSOL Multiphysics® est précisée pour les différentes étapes de la modélisation.

7.1.1 – Méthodologie globale

Dans le **chapitre 4**, le traitement de la microstructure par Aphelion® a été détaillé. Il constitue la base expérimentale de la modélisation numérique proposée. Les données morphologiques sont ainsi extraites de ce traitement, afin de pouvoir déterminer différentes classes de fibres et de faisceaux. Ces classes sont définies dans Digimat® pour générer une microstructure aléatoire. Un script Java permet d'importer cette microstructure Digimat® sous COMSOL Multiphysics®, où la modélisation numérique et la corrélation avec les données expérimentales sont mises en place. Cette modélisation passe par l'identification des coefficients de diffusion, de gonflement hygroscopique des fibres ainsi que de l'implémentation de l'évolution du module local des fibres en fonction de leur teneur en eau.

La **figure 7.1.1** récapitule ces différentes étapes et les logiciels utilisés.

L'utilisation des données morphologiques dans le logiciel Digimat®, et les différents physiques et différents paramètres mis en place sous COMSOL Multiphysics® pour la modélisation seront donc présentés par la suite plus en détail.

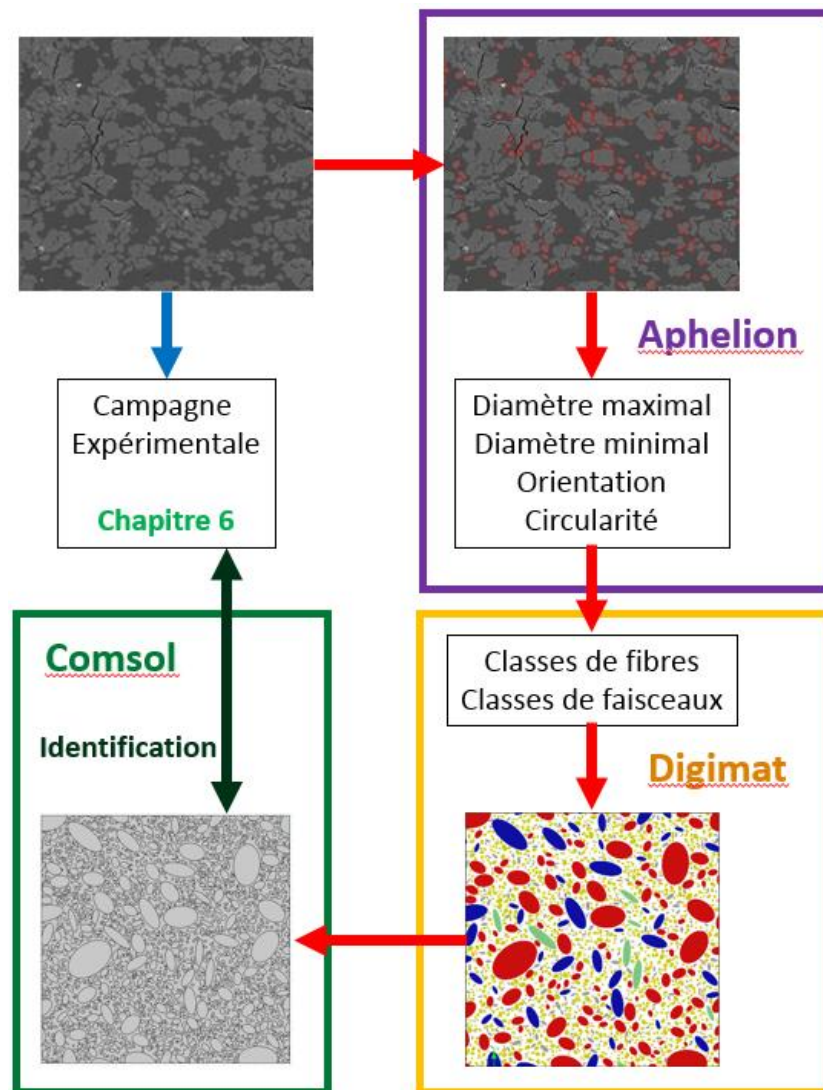


Figure 7.1.1 : Méthodologie suivie pour la modélisation de la durabilité des composites étudiés

7.1.2 – Génération de microstructures 2D sous Digimat®

Dans le logiciel Digimat®, il est possible de générer des microstructures aléatoires constituées d'ellipses paramétrées. En renseignant un rapport entre diamètre maximal et diamètre minimal fixe, appelé excentricité de l'ellipse, il est possible de donner une distribution de taille. De ce fait, plusieurs classes ont été définies afin de rendre compte de la diversité des excentricités des fibres et faisceaux observés par microscopie. Afin de limiter la durée des calculs et la complexité de la microstructure, 3 classes de fibres et 3 classes de faisceaux ont été définies. Sur les [figures 7.1.2.1 et 7.1.2.2](#), les répartitions des excentricités sont représentées en fonction de la surface des fibres unitaires et des faisceaux respectivement. Les classes ont donc été définies par des intervalles d'excentricité de [1 ; 2], [2 ; 3] et [3 ; ∞[. Les intervalles ne sont pas équivalents en nombre de fibres unitaires ou faisceaux dans chaque classe, mais permettent de représenter les différentes excentricités, notamment pour des excentricités de 3 et plus, qui seraient non représentées si la limite du troisième intervalle était plus basse. Ces limites sont arbitraires et sont donc discutables. Une étude plus poussée pourrait cependant être réalisée lors de futurs travaux sur les valeurs des bornes permettant de représenter au mieux la microstructure réelle. Le nombre de classes a été défini pour réduire le temps de génération des microstructures sous Digimat®, mais pourra faire l'objet d'une étude plus poussée pour de futurs travaux.

Il est également important de signaler que la moyenne d'excentricité calculée pour chaque intervalle ne correspond pas à une moyenne brute des bornes, mais bien à une moyenne pondérée par la surface occupée par les fibres, afin de créer des gammes permettant de décrire le taux surfacique avec le plus de fidélité possible. Ainsi, les excentricités utilisées lors de la reconstruction sont pour les fibres unitaires de 1.51, 2.32 et 3.43, et pour les faisceaux de 1.57, 2.37 et 3.56.

L'excentricité et la distribution des classes permettent donc une génération de la microstructure supposée en accord avec les observations microscopiques. Afin d'affiner le modèle, il peut être envisagé, pour de futurs travaux, de générer des classes plus nombreuses, afin que les différentes excentricités soient mieux représentées.

Afin de déterminer la taille suffisante d'une surface représentative, plusieurs tailles de microstructure ont été étudiées pour définir une surface suffisamment homogénéisée correspondant à l'échelle mésoscopique du matériau : 500 x 1500 μm^2 , 1000 x 1500 μm^2 , 1500 x 1500 μm^2 et 3000 x 1500 μm^2 . Pour chaque taille, 5 tirages aléatoires de microstructures différentes ont été générés, à l'exception de la taille 3000 x 1500 μm^2 où seulement 3 microstructures ont été générées pour des contraintes de temps.

Il est également important de noter que pour les faibles tailles (500 x 1500 μm^2), l'intervalle d'excentricité de [3 ; ∞ [n'est pas forcément représenté. L'étude de la taille de la surface à modéliser sera donc possiblement impactée par cette absence. Cette observation sera discutée dans la [section 7.3.2](#).

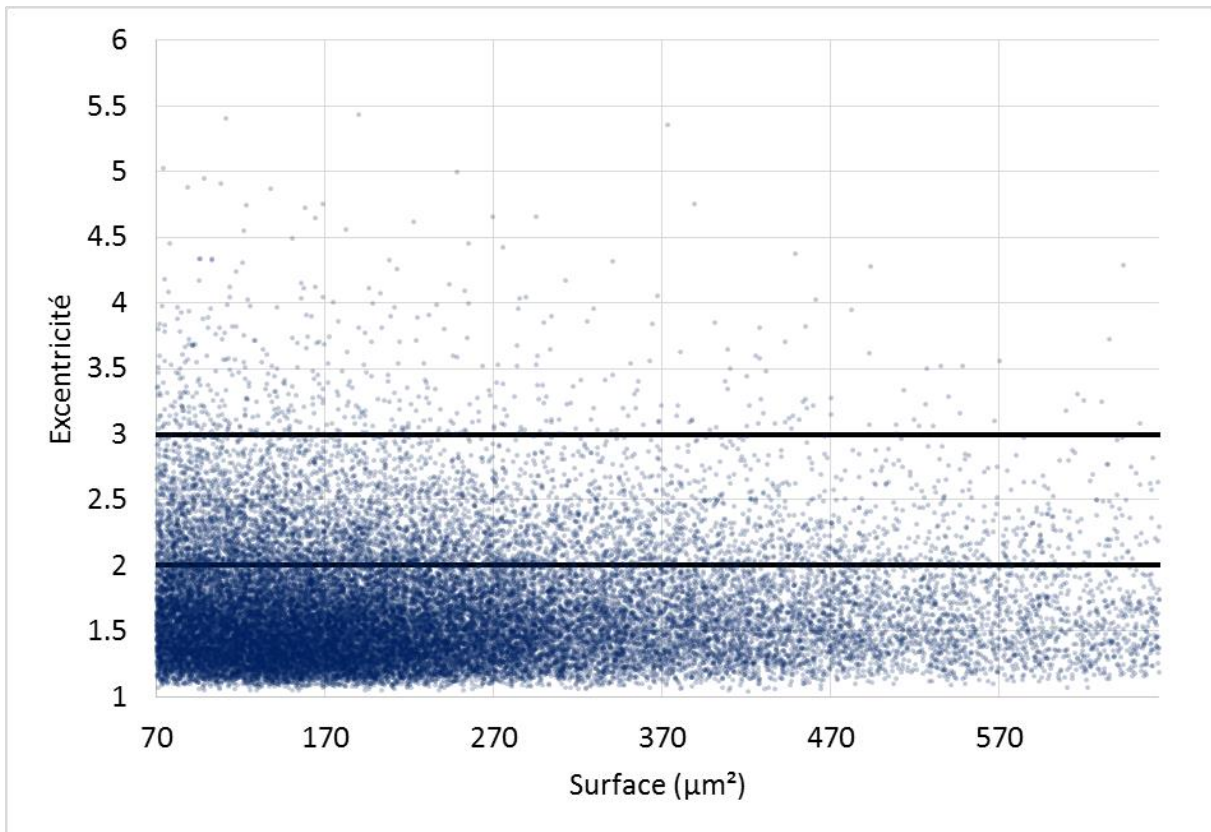


Figure 7.1.2.1 : Répartition des fibres unitaires observées par leur excentricité en fonction de leur surface

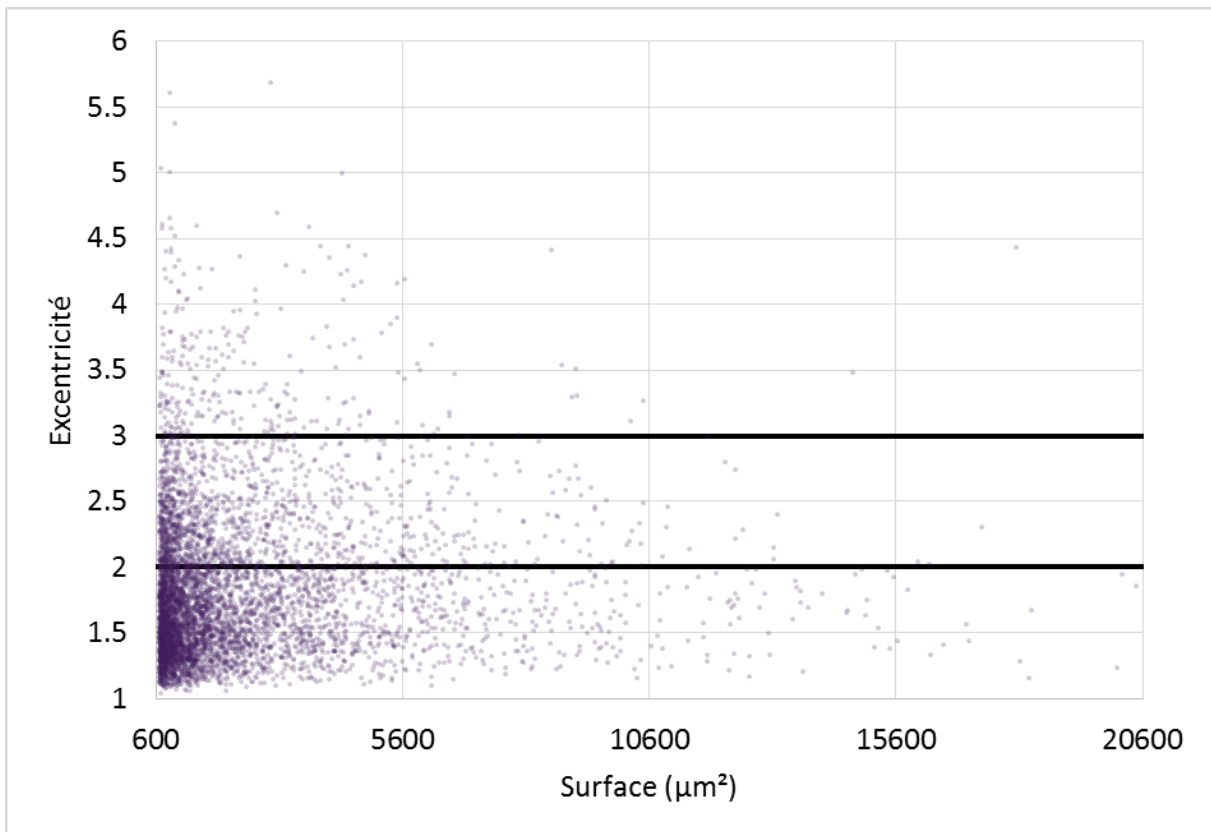


Figure 7.1.2.2 : Répartition des faisceaux observés par leur excentricité en fonction de leur surface

7.1.3 – Méthodologie d’implémentation sous COMSOL Multiphysics®

La microstructure générée sous Digimat® a été importée dans COMSOL Multiphysics® via un script Java. Ce script permet la reconstruction de toutes les ellipses. Ensuite, deux carrés définissant la zone d’étude sont ajoutés. Le premier permet de faire une intersection avec les ellipses, ce qui élimine les parties extérieures à la zone d’étude des ellipses. Le second permet la mise en place de la zone matricielle.

Des étapes préliminaires ont été réalisées avant la détermination des coefficients de diffusion et de gonflement expérimentaux, soit avec des paramètres approchés. Ainsi, l’hypothèse de diffusion 2D ([section 7.2.1](#)), la convergence du maillage ([7.3.1](#)) et la définition de la surface d’étude ([7.3.2](#)) utilisent donc des paramètres qui seront détaillés dans chaque section. En revanche, les résultats de ces études préliminaires, même si elles ne font pas référence aux données expérimentales, restent valables.

Plusieurs physiques seront employées : le transport d’espèces diluées, la mécanique du solide et le gonflement hygroscopique. Le gonflement hygroscopique est généré sous COMSOL Multiphysics® par le biais d’une multiphysique impliquant le transport d’espèces diluées et la mécanique du solide implémentés. Les physiques et conditions aux limites associées présentées dans cette section sont définies pour une microstructure similaire à celle présentée sur la [figure 7.1.1](#) sous la section « Comsol ».

Transport d’espèces diluées :

Le transport d’espèces diluées est appliqué aux deux domaines distincts, correspondant aux deux matériaux : les fibres et la résine. La seule propriété des matériaux nécessaire pour représenter cette physique est le coefficient de diffusion. Un travail en concentration relative permet en effet de s’affranchir de problématique de différences de teneur en eau lors de la modélisation et donc de concentration à saturation, mais les résultats resteront étudiés en fonction de la teneur en eau, calculée dans un second temps (post-traitement) à partir de la concentration relative issue du modèle.

Pour une microstructure rectangulaire avec le bord du haut défini comme étant la surface supérieure du composite et le bord du bas comme étant le centre de l’épaisseur du composite, les conditions aux limites sont les suivantes:

- une symétrie sur les bords verticaux, qui correspond aux conditions aux limites de la microstructure dans le cadre d’une hypothèse d’une plaque infinie avec une épaisseur fixe.
- une symétrie sur le bord du bas, qui correspond à une symétrie réelle du composite, puisque la hauteur des microstructures correspondra toujours à une demi-épaisseur d’une éprouvette.
- une concentration relative (de 1) est appliquée sur le bord supérieur.

Les conditions aux limites appliquées seront discutées dans la [section 7.2](#) liée aux hypothèses de diffusion.

Mécanique du solide :

La mécanique du solide est représentée, pour chaque domaine, par les propriétés matériaux suivantes : masse volumique, coefficient de Poisson et module d’Young. Les matériaux sont considérés comme élastique linéaire et le modèle 2D est décrit avec une hypothèse de déformations planes.

Pour la microstructure décrite précédemment, les conditions aux limites sont les suivantes :

- le bord du haut est libre, puisqu'il s'agit de la surface du composite.
- une symétrie est appliquée sur les autres bords, pour les mêmes raisons que pour le transport d'espèces diluées.
- un encastrement ponctuel a été implémenté à l'angle de droite du bord du bas afin de bloquer les rotations.

Gonflement hygroscopique :

Le gonflement hygroscopique est, sous COMSOL Multiphysics, une multiphysique issue du transport d'espèces diluées et de la mécanique du solide. Elle est représentée par la valeur de gonflement hygroscopique des matériaux. Les conditions aux limites sont définies par les physiques précédemment présentées.

Les paramètres obtenus numériquement et expérimentalement seront, au long de ce chapitre, récapitulés dans un tableau, indiquant pour la résine, les fibres et le composite les différentes valeurs utilisées des grandeurs explicitées ci-dessus (module, masse volumique, coefficient de Poisson, coefficient de diffusion et coefficient de gonflement hygroscopique).

La saturation, de par l'analyse en concentration relative, sera de 1 dans les deux domaines (fibres et résine), bien que leurs teneurs en eau respectives soient différentes. La saturation en concentration relative fera donc l'objet d'un post-traitement pour intégrer la teneur en eau de chaque domaine à l'aide du logiciel Excel®. Les coefficients de diffusion utilisés resteront cependant les coefficients de diffusion déterminés expérimentalement pour la résine et le composite. Cela ne constitue pas un problème, car le coefficient de diffusion dépend de la valeur à saturation et de la pente de la portion considérée linéaire de Fick soit jusqu'à 60 % de la valeur à saturation. Ainsi, la durée pour atteindre ces 60 % reste la même en relatif ou en teneur en eau (par définition pour corrélérer avec l'expérimental). De ce fait, la valeur de la saturation se simplifie à l'aide des formules suivantes :

$$D = \pi \left(\frac{k}{4M_{\infty}} \right)^2 \quad (\text{Éq. 7.1.3.1})$$

Avec D : le coefficient de diffusion ; k : la pente de la portion considérée linéaire (jusqu'à 60 % du gain de masse à saturation environ ; M_{∞} : le gain de masse à saturation

$$k = \frac{0.6 M_{\infty}}{t_1} \quad (\text{Éq. 7.1.3.2})$$

avec t_1 : le temps nécessaire pour atteindre 60 % du gain de masse à saturation. Or, ce temps doit être le même qu'en gain de masse pour que le modèle soit cohérent avec les résultats expérimentaux. Ainsi, on peut écrire l'équation 7.1.3.1 comme suit :

$$D = \pi \left(\frac{\frac{0.6 M_{\infty}}{t_1}}{4M_{\infty}} \right)^2 = \pi \left(\frac{0.6}{4t_1} \right)^2 \quad (\text{Éq. 7.1.3.3})$$

Le coefficient de diffusion de l'équation 7.1.3.3, exprimé en fonction du temps nécessaire pour atteindre 60 % de la valeur à saturation (identique pour une étude en gain de masse ou en concentration relative), ne dépend donc pas du gain de masse atteint à saturation. Ceci permet donc d'utiliser les coefficients de diffusion expérimentaux dans le modèle de diffusion en concentration relative.

Il est également important de noter que pour l'évolution des modules, à partir de la [section 7.3.5](#), le modèle prend en compte la teneur en eau à saturation dans l'expression du module. L'étude en concentration relative n'induit ainsi pas de biais sur les valeurs de modules en fonction de la teneur en eau.

De plus, l'étude temporelle est effectuée en deux étapes « ségréguées » successives, avec en premier le transport d'espèces diluées et ensuite le champ de déplacement de la mécanique du solide. Les étapes « ségréguées » correspondent à un découplage des résultats des différentes physiques implémentées. Ceci est justifié par l'hypothèse que le comportement diffusif ne dépend pas de l'état de contraintes ou de déformation dans le matériau. Cela permet de diminuer la durée du calcul. Le pas de temps utilisé est exprimé en jours. L'étude se fait donc de 0 jour (initial) à 30 jours avec un pas de temps de 0.25 jour.

7.2 – Hypothèses de diffusion sur une géométrie 2D

Les géométries observées au microscope représentent des coupes des échantillons. Les analyses morphologiques ne prennent donc pas en compte les défauts des fibres ou la non-linéarité des fibres sur leur longueur. Il est donc difficile de modéliser un matériau avec une microstructure réaliste en 3D sur ces bases. L'étude d'une géométrie 2D a donc plus de sens en considérant les données disponibles. Un modèle sur une géométrie 2D n'est possible que si la diffusion longitudinale ne domine pas la cinétique de diffusion globale. La diffusion du composite dans la longueur des fibres est plus importante d'un facteur inférieur d'environ 3 dans les travaux de Saidane *et al.* [80] sur un composite lin/époxy quasi-UD. L'objectif de cette section est de vérifier que la diffusion dans le sens longitudinal n'induit pas d'effets de bords, et ne perturbe pas la diffusion au centre de l'éprouvette.

Afin d'étudier cela, une loi de Fick a été utilisée pour modéliser la diffusion dans une éprouvette élastique homogène avec des propriétés de diffusion anisotrope, qui sont renseignées dans le [tableau 7.2](#), avec les dimensions associées. Des unités en mètres ont été utilisées, mais les ordres de grandeur ont été conservés pour assurer un facteur d'élongation de l'éprouvette cohérent avec les éprouvettes expérimentales. L'ordre de grandeur du coefficient de diffusion permet une saturation en quelques secondes. Ces valeurs ne sont donc pas en accord avec la réalité expérimentale. Cela n'a cependant pas d'impact sur les résultats obtenus. La cinétique de diffusion implémentée ici n'a pas d'impact, puisque seule la cinétique longitudinale relative à la cinétique transverse est étudiée.

Un coefficient de diffusion longitudinal plus important de deux décades par rapport aux directions transverses a été utilisé pour assurer un coefficient de sécurité important. En effet, le facteur de diffusion renseigné dans la littérature dépend de nombreux paramètres morphologiques et des différentes propriétés des constituants. Aucun matériau particulier n'a été défini à cette étape. Afin de minimiser le temps de calcul, seulement 1/8 de l'éprouvette a été modélisée, comme il est classiquement utilisé sur des modèles 3D. Ainsi, les dimensions de l'objet modélisé sont la moitié de celles présentées dans le [tableau 7.2.](#), puisque l'objet a pour dimension une demi-longueur, une demi-largeur et une demi-épaisseur par rapport à

une éprouvette complète. Une symétrie a été appliquée sur trois faces différentes adjacentes. Une concentration relative de 1 a été appliquée sur les autres faces.

| | Dimension (m) | Coefficient de diffusion (m^2/s) |
|-----------|---------------|--------------------------------------|
| Longueur | 250 | 100 |
| Largeur | 25 | 1 |
| Épaisseur | 3 | 1 |

Tableau 7.2 : Propriétés de l'échantillon modélisé sous COMSOL Multiphysics® avec diffusion d'eau selon loi de Fick

Sur la **figure 7.2.1**, les deux faces intérieures qui nous intéressent sont observables : la face [longueur x largeur intérieure] (où la symétrie est appliquée) et la face [largeur x épaisseur] (où la symétrie est appliquée). Un gradient longitudinal apparaît donc clairement, comme attendu. En revanche, la saturation est visiblement atteinte par diffusion dans l'épaisseur, du fait de la géométrie.

Avec cette hypothèse de diffusion 2D (valable sauf à proximité des bords longitudinaux de l'éprouvette), il est possible de considérer une surface d'étude située au centre de l'échantillon et perpendiculaire à la direction des fibres dans le composite. Sur la **figure 7.2.1**, la diffusion dans le sens de la largeur de l'échantillon a une influence jusqu'à environ 2.5 mm depuis le bord où la concentration est appliquée. Au-delà, la diffusion globale est pilotée par la diffusion dans le sens de l'épaisseur (c'est-à-dire par la concentration appliquée sur le bord supérieur uniquement). Il est cependant difficile de dire que la diffusion n'est pas affectée par ces effets de bords, qui occupent tout de même une partie non négligeable de l'échantillon comme cela est visible sur la **figure 7.2.1**. Il sera donc étudié ici une surface éloignée des effets de bords dans un premier temps. L'étude du reste de la surface et de la représentation 3D pourra faire l'objet de futurs travaux.

L'étude numérique sera donc portée sur une zone d'étude explicitée sur la **figure 7.2.2**. La taille de la zone d'étude sera de l (largeur) x 1.5 mm (demi-épaisseur d'une éprouvette). La définition de la largeur sera étudiée dans la **section 7.3.2**.

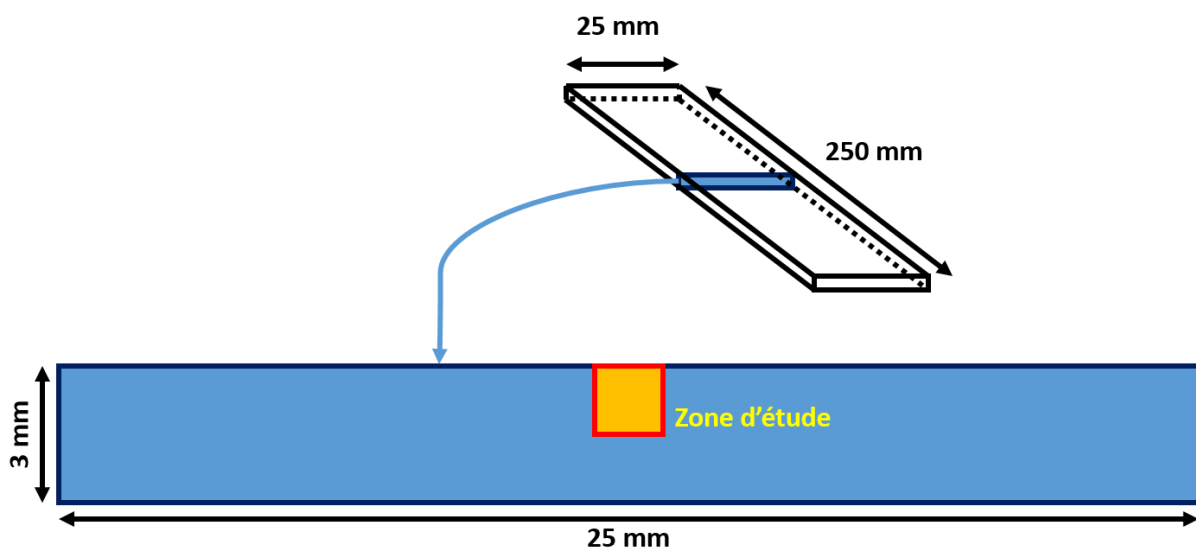


Figure 7.2.2 : Zone d'étude de l'approche numérique de la durabilité des composites étudiés perpendiculaire au sens des fibres dans le composite

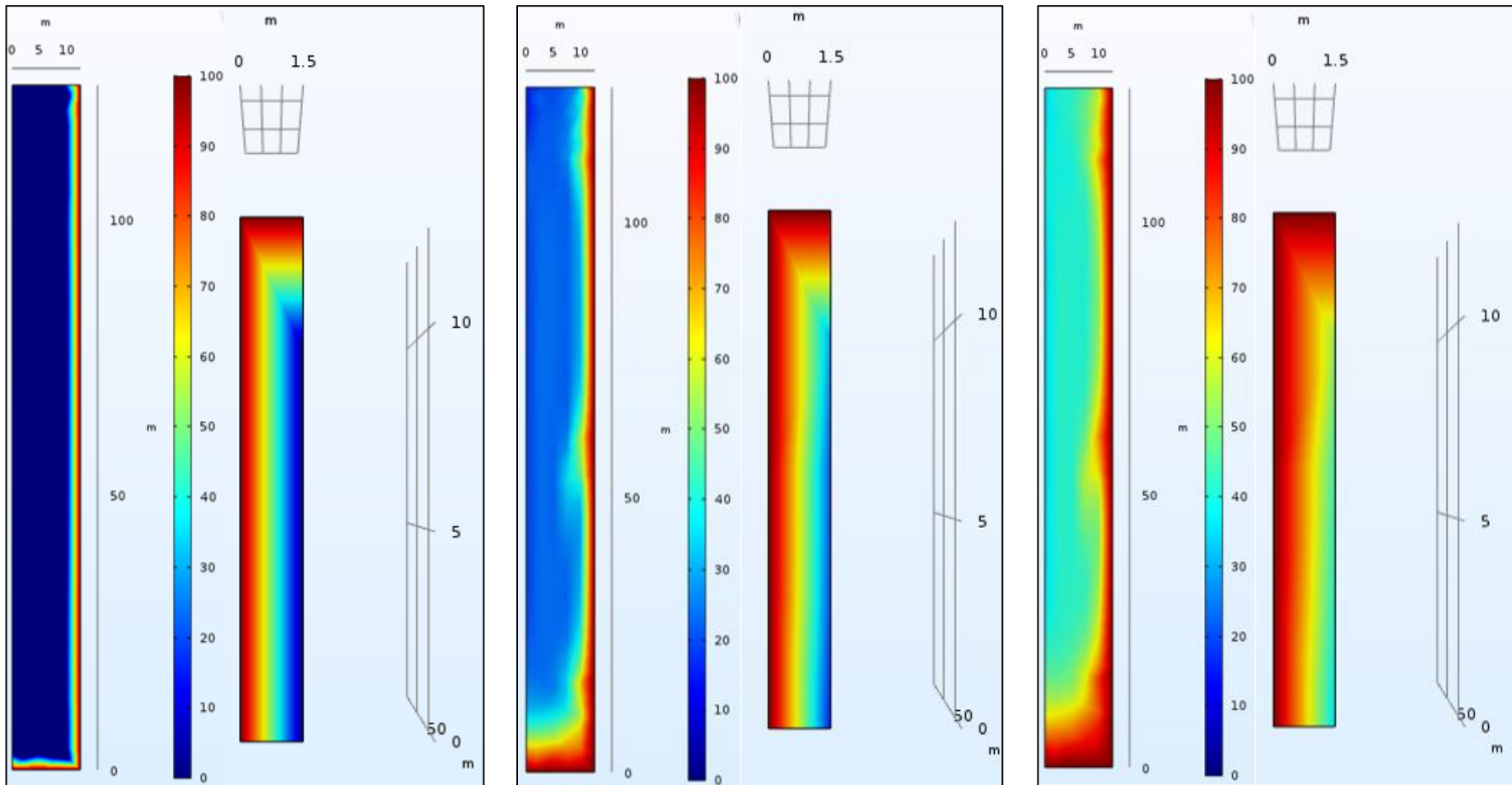


Figure 7.2.1a : Évolution de la saturation locale en eau à différents instants (de gauche à droite : état initial, état à 0.2 seconde, état à 0.4 seconde) – face longueur x largeur à gauche, face largeur x épaisseur à droite

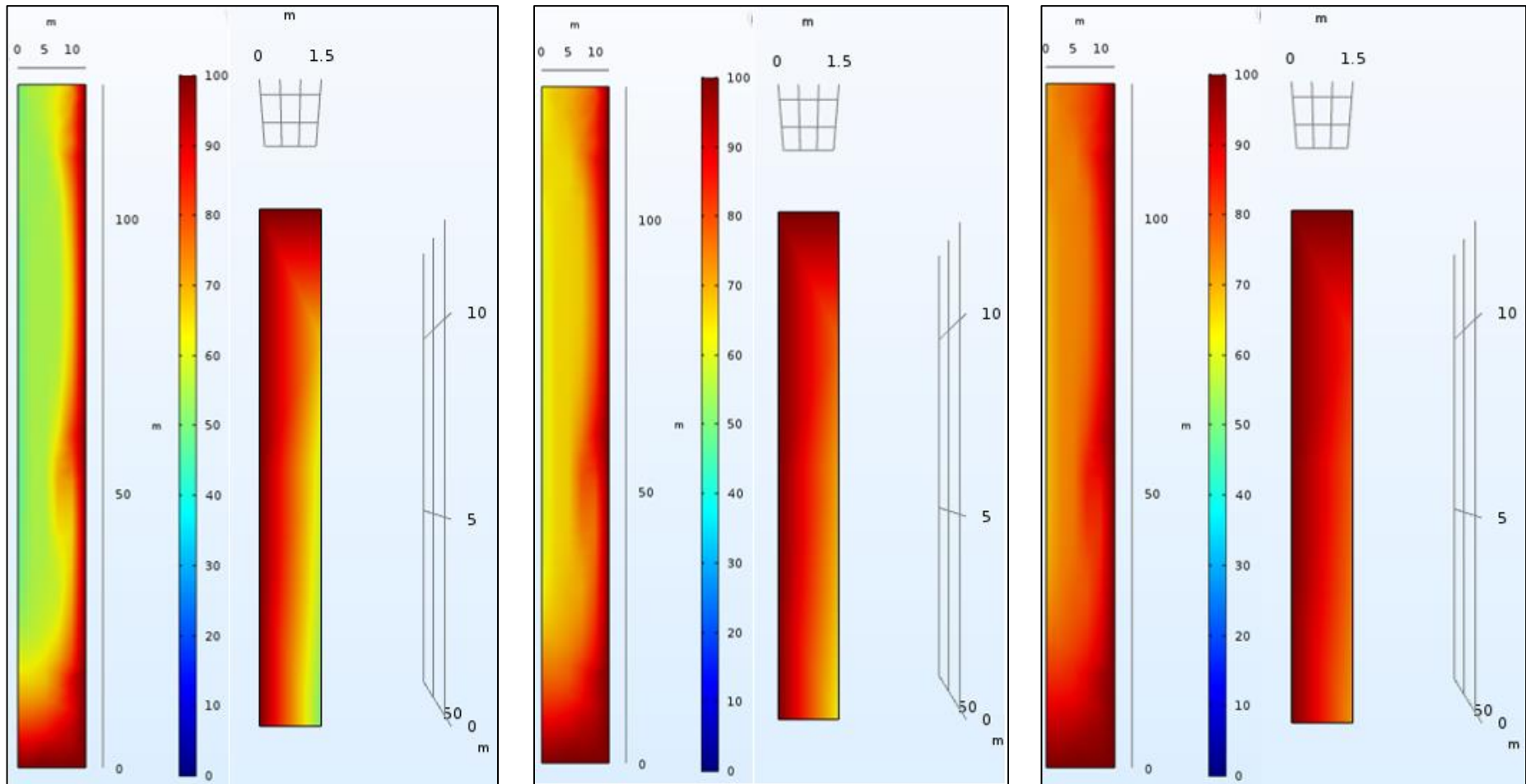


Figure 7.2.1b : Évolution de la saturation locale en eau à différents instants (de gauche à droite : état à 0.6 seconde, état à 0.8 seconde, état à 1 seconde) – face longueur x largeur à gauche, face largeur x épaisseur à droite

7.3 – Identification des paramètres de modélisation

7.3.1 – Convergence du maillage

Afin d'étudier le maillage à employer lors de la modélisation, les maillages automatiques triangulaires de COMSOL Multiphysics® ont été utilisés. Il y a différents niveaux de précision du maillage, dans l'ordre croissant de précision, avec une nomenclature issue du logiciel : « extrêmement grossier », « extra grossier », « plus grossier », « grossier », « normal », « fin », « plus fin », « extra-fin » et « extrêmement fin ».

La microstructure de 1500 μm x 1500 μm de la [figure 7.3.3.1](#) a été utilisée. La taille représentative sera néanmoins étudiée après, avec des tailles allant de 500 x 1500 μm^2 à 3000 x 1500 μm^2 . La hauteur choisie représente une demi-épaisseur du matériau composite réel dont les données morphologiques ont été extraites. Ces données morphologiques et leur utilisation sont détaillées dans la [section 7.1.2](#). Cette microstructure est donc considérée comme « pseudo-réaliste » puisqu'elle dépend des paramètres morphologiques, mais que le modèle utilisé simplifie grandement la géométrie des fibres et faisceaux par rapport à la microstructure réelle.

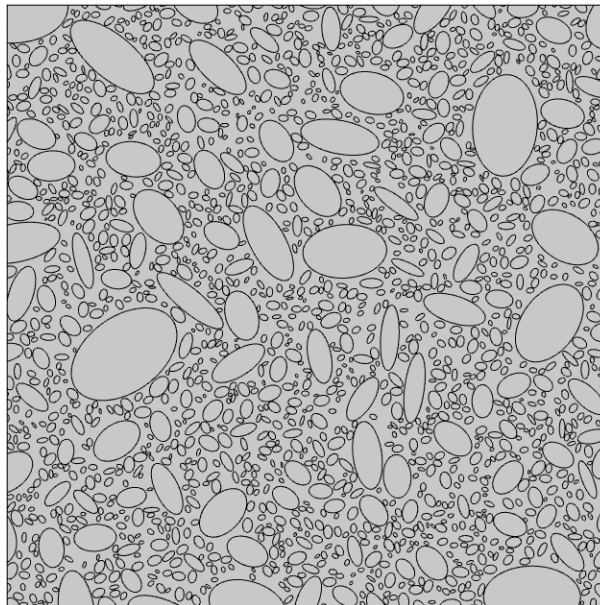


Figure 7.3.3.1 : Microstructure de 1500 μm x 1500 μm avec fibres représentées par des ellipses d'élongation et taille définies par analyse morphologique

Une concentration est appliquée sur l'arête supérieure du carré, tandis qu'une symétrie est appliquée sur les arêtes gauche, inférieure et droite du carré comme décrit dans la [section 7.1.3](#).

Les coefficients de diffusion utilisés ne sont pas représentatifs d'un coefficient de diffusion réel à cette étape. Ainsi, les coefficients de diffusion du modèle de Fick de la résine et des fibres sont respectivement de 10^{-12} et 10^{-11} m^2/s lors de cette étape préliminaire, car les coefficients de diffusion réels n'avaient pas encore été mesurés. À supposer que l'ordre de grandeur du rapport de diffusion entre les phases soit conforme à la réalité, la discussion quant à la convergence du maillage reste néanmoins valable.

Ainsi, 7 maillages différents ont été analysés. Les nombres d'éléments triangulaires pour chaque maillage sont indiqués dans le [tableau 7.3.3.1](#).

| Type de maillage | Extrêmement grossier | Extra grossier | Plus grossier | Grossier | Normal | Fin | Extra fin |
|-----------------------------|----------------------|----------------|---------------|----------|---------|---------|-----------|
| Nbre d'éléments de maillage | 35 692 | 51 762 | 117 242 | 296 174 | 762 307 | 769 230 | 1 284 590 |

Tableau 7.3.3.1 : Nombres d'éléments de maillage en fonction du maillage réalisé

Sur la **figure 7.3.3.2** sont présentés les différents maillages utilisés. Le maillage « Fin » n'y apparaît pas, car aucune différence significative avec le maillage « normal » n'est visible, comme le nombre d'éléments pour ces deux maillages peut l'indiquer. Du fait de la présence de fibres unitaires de petite taille (quelques microns) entre les faisceaux de plus grande taille, le maillage est très dense. Le modèle pseudo-réaliste 2D permet donc d'accéder à une grande précision dans le maillage en assurant un temps de calcul raisonnable, ce qui n'aurait pas été possible dans le cadre d'une modélisation 3D.

Les résultats sont présentés sur les **figures 7.3.3.3 à 7.3.3.4**. On constate sur la **figure 7.3.3.3** que la saturation se fait au même taux de concentration et que les écarts sur la courbe globale sont faibles. En revanche, sur la **figure 7.3.3.4** qui est une section agrandie de la **figure 7.3.3.3**, il est possible de voir que cet écart reste faible, et ce même pour des maillages dits « plus grossiers ». Les points associés aux maillages « grossier », « normal » et « fin » ne sont pas visibles, car superposés aux points associés au maillage « extra-fin ». Le temps de calcul étant également augmenté de manière significative entre les maillages « normal » et « extra fin », mais peu entre le maillage « plus grossier » jusqu'au maillage « normal », le maillage « normal » a été choisi pour représenter le maillage permettant une précision optimale en garantissant un temps de calcul faible. Les différents paramètres utilisés par ce maillage sont récapitulés dans le **tableau 7.3.3.2**.

| | |
|--|-------|
| Taille maximale des éléments (μm) | 10.1 |
| Taille minimale des éléments (μm) | 0.045 |
| Taux de croissance maximal | 1.3 |
| Facteur de courbure | 0.3 |

Tableau 7.3.3.2 : Paramètres utilisés pour le maillage « normal »

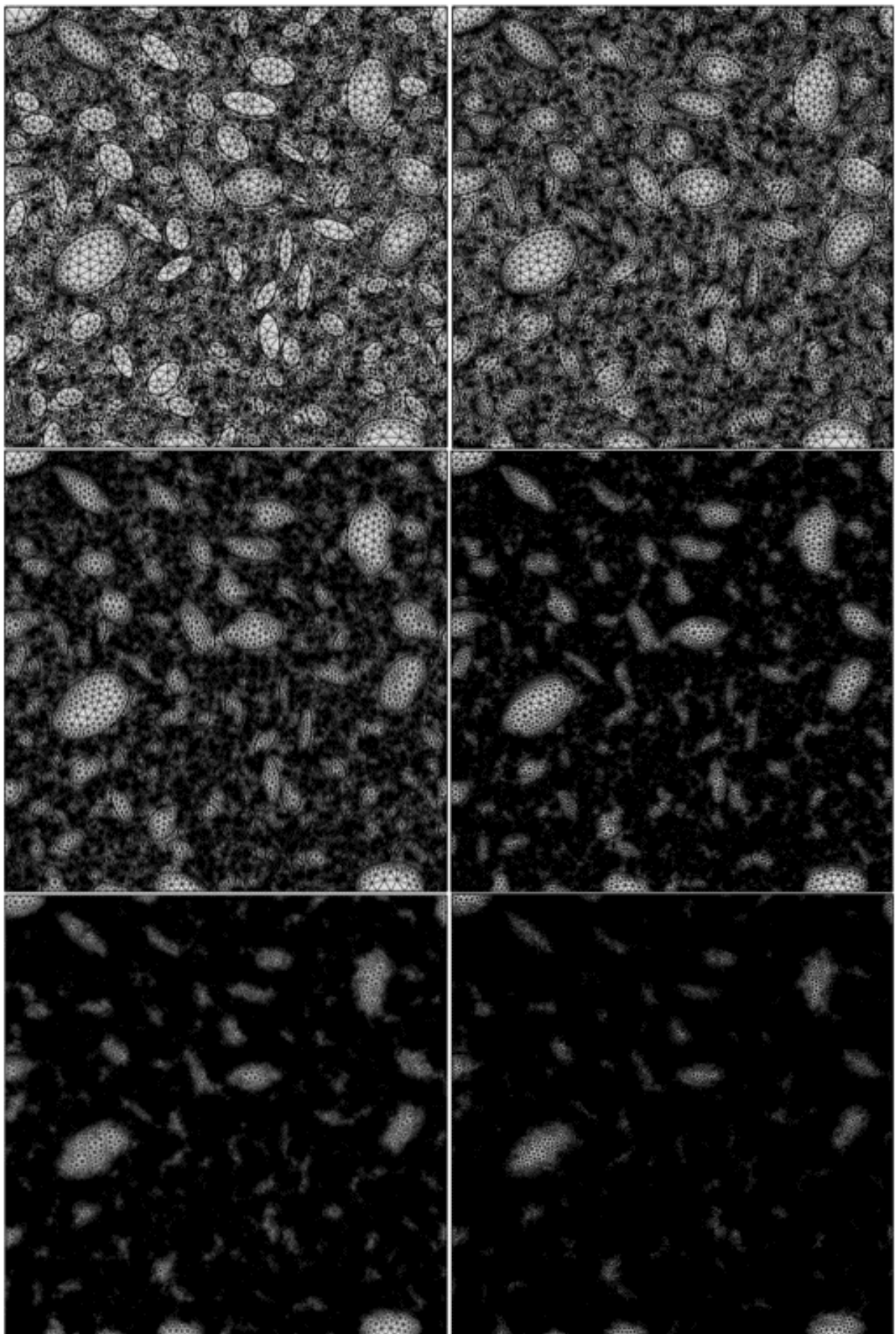


Figure 7.3.3.2 : Maillages étudiés, de gauche à droite et de haut en bas dans l'ordre croissant d'éléments

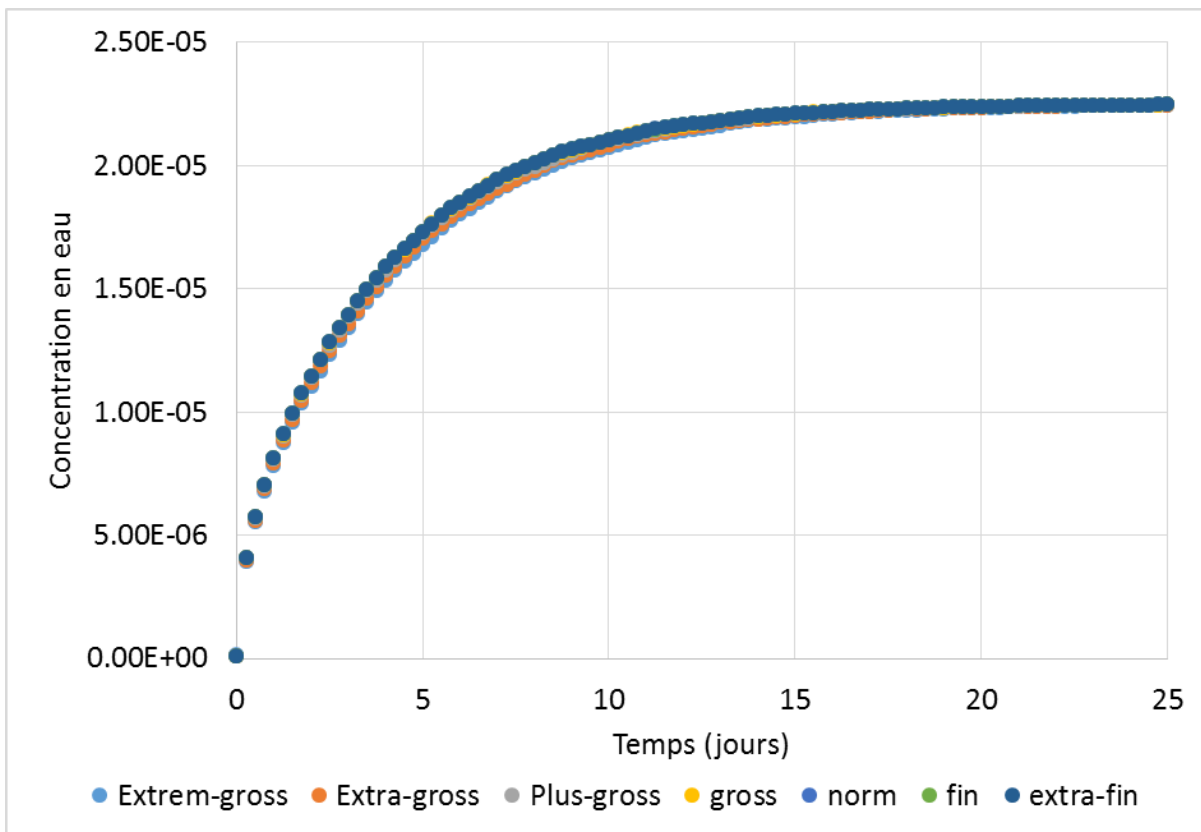


Figure 7.3.3.3 : Concentration en eau dans le composite (intégration sur la surface) au cours du temps (en jours)

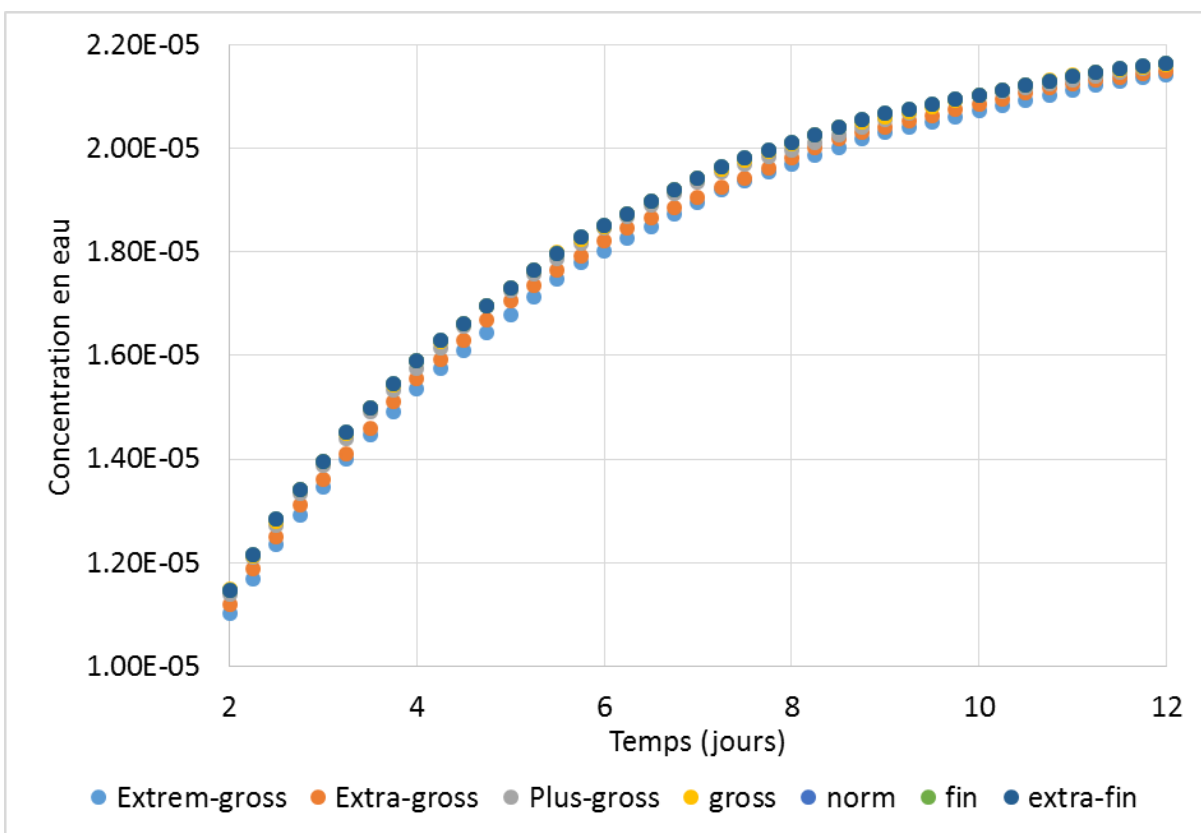


Figure 7.3.3.4 : Même courbe que la figure 7.3.3.3 zoomée sur la section centrale

7.3.2 – Définition de la surface d'étude

La dernière étape préliminaire est d'identifier la taille de la surface minimale d'étude qui permettra d'assurer une reproductibilité des résultats (surface d'étude représentative). Pour cela, des microstructures comme présentées précédemment ont été réalisées. La demi-épaisseur de 1,5 mm a été conservée dans tous les cas, afin de simplifier le modèle (symétrie) tout en assurant qu'il puisse être représentatif des données expérimentales puisque l'absorption dépend de l'épaisseur du matériau.

Ainsi, 5 microstructures tirées aléatoirement ont été testées avec des tailles de 500 x 1500 μm^2 (violet), de 1000 x 1500 μm^2 (bleu) et 1500 x 1500 μm^2 (vert), ainsi que 2 microstructures de 3000 x 1500 μm^2 (rouge) afin de donner une référence sur les valeurs cibles. L'objectif sera donc de trouver la surface la plus petite permettant d'obtenir des résultats en accord avec la plus grande microstructure de 3000 x 1500 μm^2 .

Les paramètres du modèle à cette étape sont identiques à ceux de la section précédente pour la convergence du maillage. Le maillage utilisé a été celui dit « normal » issu de cette même section.

Les résultats de l'absorption sont reportés sur la [figure 7.3.2.1](#). On constate donc des différences notables. Afin de mieux les observer, un agrandissement a été réalisé de cette même figure sur la [figure 7.3.2.2](#). Il est constaté que les courbes pour les microstructures de largeur 500 et 1000 μm (« 500 » et « 1000 » par la suite), bien que certaines soient en accord avec les courbes des microstructures de largeur 3000 μm (« 3000 » par la suite), présentent les écarts les plus importants avec les courbes « 3000 ». Pour une microstructure plus petite, les particules les plus grosses ont du mal à être représentées et des dispersions importantes peuvent donc apparaître. Les courbes correspondantes aux microstructures de largeur 1500 μm (« 1500 » par la suite) sont en accord avec celles des « 3000 », mais, afin de mieux appréhender la reproductibilité des résultats, l'évolution des écarts-types sur le gain de masse a été représenté sur la [figure 7.3.2.3](#). L'écart-type des microstructures « 1500 » est le plus faible parmi les microstructures étudiées. Les microstructures « 3000 » font référence et demandent un temps de calcul trop long par rapport aux contraintes temporelles. Ainsi, il peut être considéré qu'une nette amélioration de la reproductibilité des résultats est obtenue avec une taille « 1500 », par rapport à la reproductibilité équivalente des résultats des tailles « 500 » et « 1000 ».

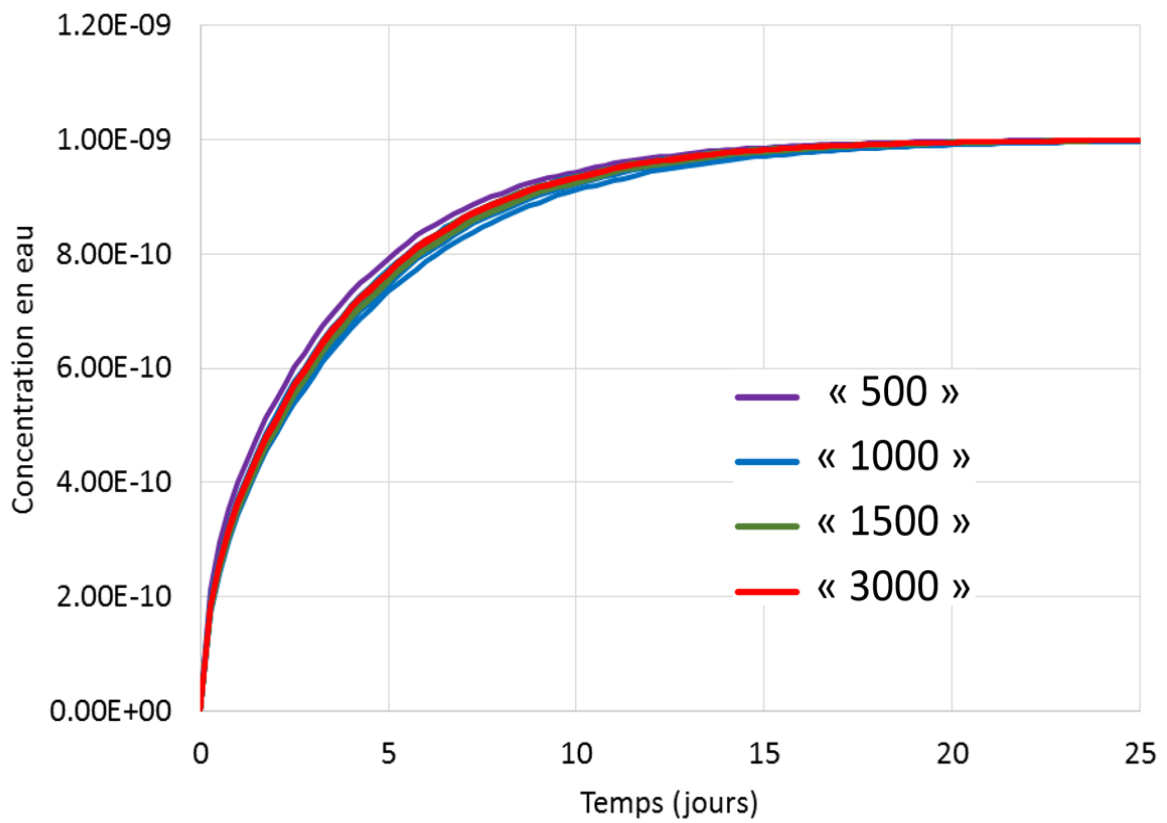


Figure 7.3.2.1 : Concentration d'eau dans le composite en fonction du temps – violet : 500x1500 μm^2 ; bleu : 1000x1500 μm^2 ; vert : 1500x1500 μm^2 ; rouge : 3000x1500 μm^2

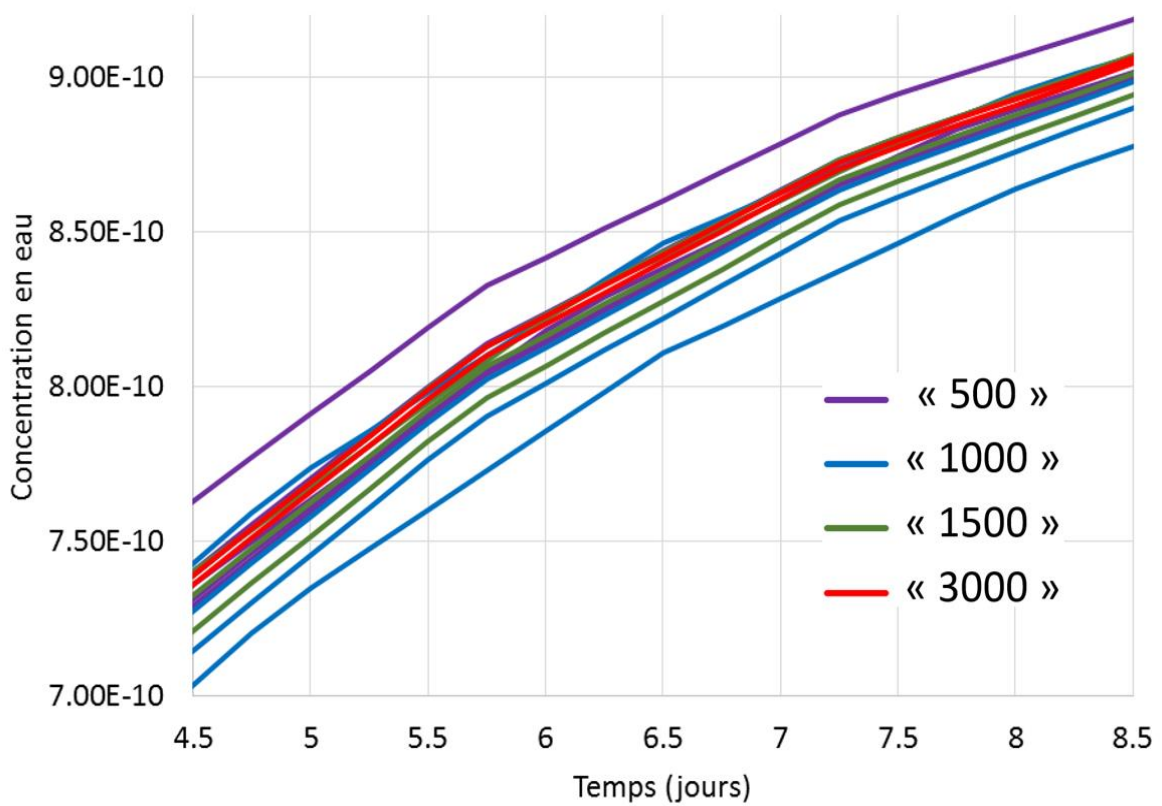


Figure 7.3.2.2 : Concentration d'eau dans le composite en fonction du temps – violet : 500x1500 μm^2 ; bleu : 1000x1500 μm^2 ; vert : 1500x1500 μm^2 ; rouge : 3000x1500 μm^2

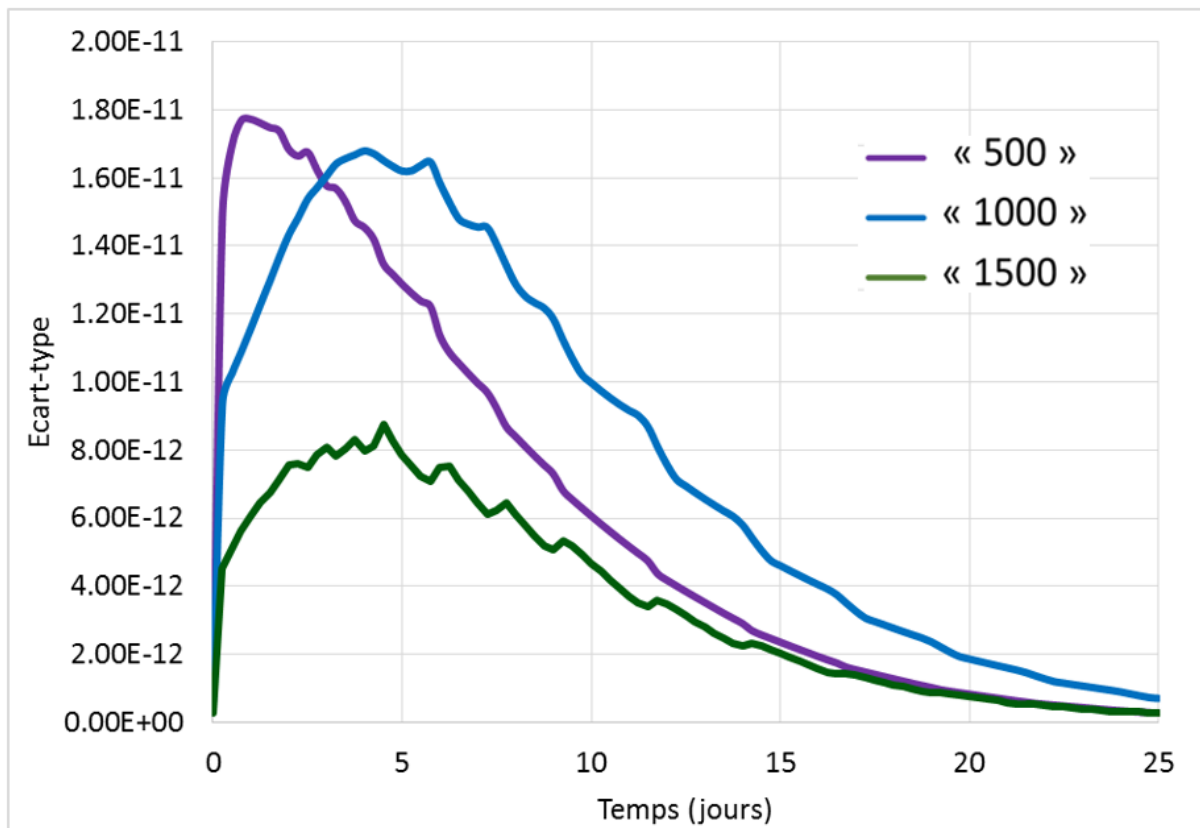


Figure 7.3.2.3 : Écart-types associés aux courbes des figures 7.3.2.1 et 7.3.2.1 en fonction du temps – violet : 500x1500 μm^2 ; bleu : 1000x1500 μm^2 ; vert : 1500x1500 μm^2

La dimension de la zone d'étude retenue est de 1500 x 1500 μm^2 . Elle permet d'obtenir des résultats satisfaisants en absorption, avec la meilleure répétabilité parmi les microstructures « 500 », « 1000 » et « 1500 », et de réduire le temps de calcul par rapport à une microstructure « 3000 ».

On notera qu'il est difficile de mettre en place une surface élémentaire représentative qui serait grande par rapport à l'échelle microscopique et petite par rapport à l'échelle macroscopique. Du fait de nombreuses tailles et morphologies des fibres et des faisceaux, il est nécessaire d'utiliser une surface qui correspond à une échelle mésoscopique, pour que la microstructure générée puisse être représentative de la large distribution des géométries.

Indépendamment de la réponse en diffusion de la surface d'étude, la question de la reproductibilité de la microstructure se pose, mais cela n'a pas encore été vérifié. Cependant, cette reproductibilité, c'est-à-dire l'écart aux médianes des distributions de la taille de fibres et des faisceaux ainsi que des taux surfaciques des deux, impacte la diffusion. Il a ici été estimé, en première estimation, que l'étude de la diffusion serait suffisante pour les phénoménologies observées. Cela restera à vérifier.

L'identification des paramètres du modèle a donc été réalisée sur une microstructure de taille 1500 x 1500 μm^2 , présentée sur la [figure 7.3.2.4](#).

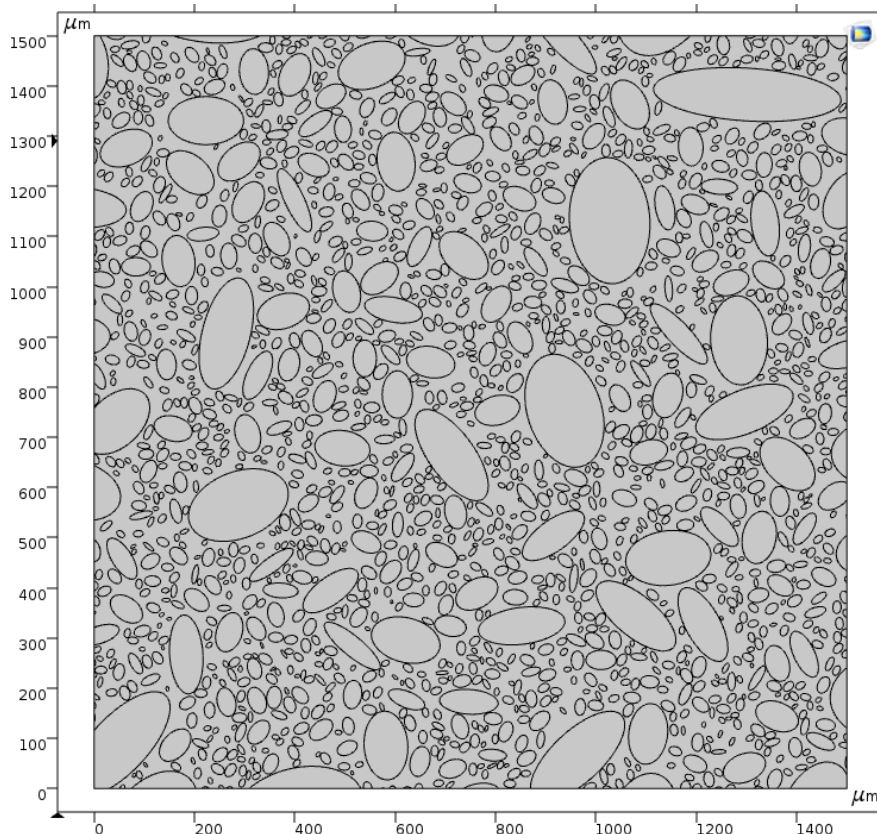


Figure 7.3.2.4 : Microstructure utilisée pour l'identification des paramètres du modèle

7.3.3 – Identification du coefficient de diffusion des fibres

Afin d'identifier le coefficient de diffusion des fibres au sein du composite par approche inverse (recalage du modèle numérique), la physique de transport d'espèces diluées, présentée dans la [section 7.1.3](#), a été implémentée. Deux paramètres ont été nécessaires : le coefficient de diffusion de la résine, déterminé expérimentalement sur des éprouvettes de résine pure, et le coefficient de diffusion des fibres, recherché. L'absorption globale du composite a été étudiée. L'objectif est, pour une microstructure donnée, de corréler les données expérimentales de diffusion du composite (global) aux données numériques de diffusion du composite (global).

Il est important de noter que la teneur en eau des fibres a été déterminée par loi des mélanges, étant donné que la teneur en eau de la résine a été déterminée expérimentalement sur des éprouvettes de résine pure. De plus, le coefficient de diffusion de la résine est supposé identique dans le cas de la résine pure et au sein du composite.

Le [tableau 7.3.3](#) récapitule les différentes valeurs utilisées.

| | | Résine | Fibres |
|-----------------------------|--------------------------------------|-----------------------------|-----------------|
| Transport d'espèces diluées | Coefficient de diffusion (m^2/s) | $2.78 \cdot 10^{-12}$ (exp) | Variable |
| | Gain de masse à saturation (%) | 2.5 (exp) | 27 (exp) |

Tableau 7.3.3 : Valeurs utilisées dans le modèle lors de l'identification du coefficient de diffusion des fibres au sein du composite

Par itérations, différentes valeurs de coefficients de diffusion des fibres au sein du composite ont été testées. Le gonflement n'a pas été implémenté à ce stade du modèle.

Sur la **figure 7.3.3**, les différentes courbes d'absorption ont été représentées. Les points expérimentaux y sont également repris à des fins de comparaison. Afin de déterminer la valeur du coefficient de diffusion des fibres, les différentes courbes ont été comparées au modèle de Fick 1D présentée dans le **chapitre 6**. La valeur du coefficient de diffusion des fibres a été définie en minimisant, au sens des moindres carrés, l'écart entre la courbe issue du modèle numérique et les points expérimentaux. Il est important de souligner que cette valeur n'est pas le résultat d'une optimisation, mais un choix approché de la valeur optimisée de ce paramètre. Elle sera ici considérée comme suffisamment proche pour permettre une étude cohérente (erreur relative inférieure à 2% sur la figure **7.3.3**). De plus, il est important de noter que l'hypothèse de microstructure 2D est utilisée, alors que les résultats de la campagne d'essais correspondent à des diffusions 3D. Une correction du coefficient de diffusion pourra être envisagée dans de futurs travaux pour que les hypothèses 2D puissent être plus représentatives de la réalité en 3D.

La valeur de coefficient de diffusion retenue pour les fibres au sein de la résine sera donc de $3.3 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$.

Le coefficient de diffusion de la résine étant à $2.78 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$, la valeur obtenue pour les fibres peut paraître surprenante, car très proche de celle de la résine. Il est possible que les fibres, au sein du composite, aient non seulement une diffusion restreinte par la présence de la résine autour d'elles, mais également que la résine diffuse peu de quantité d'eau dans les fibres, c'est-à-dire que la résine absorbe peu d'eau et donc n'a que peu d'eau à diffuser dans les fibres, ainsi qu'un couplage mécanosorptif avec un état de pression hydrique/hydrostatique des fibres qui pourrait limiter son comportement diffusif.

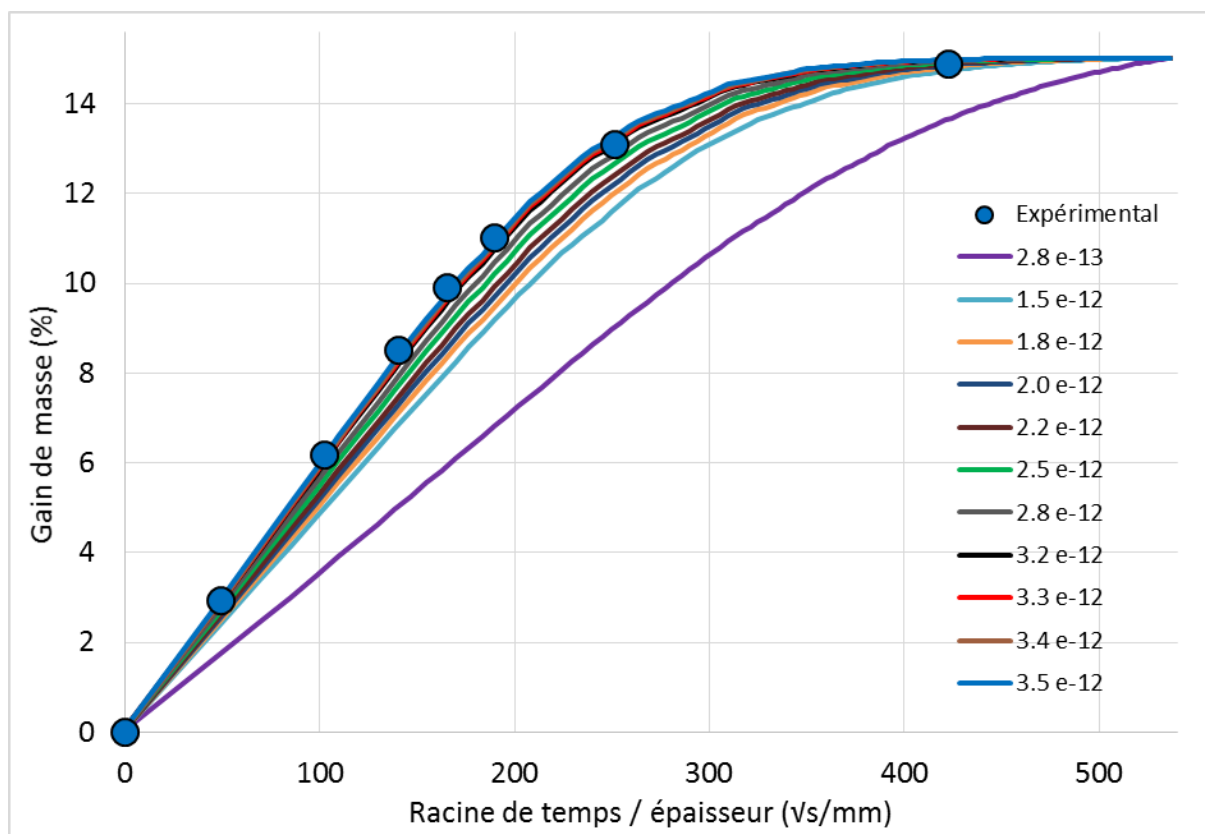


Figure 7.3.3 : Courbes d'absorption par approche numérique pour différentes valeurs du coefficient de diffusion d'eau dans les fibres comparées aux points expérimentaux issus du **chapitre 6**

7.3.4 – Identification du coefficient de gonflement hygroscopique des fibres

L'identification du coefficient de gonflement hygroscopique suit le principe utilisé dans la section précédente. L'absorption d'eau, le comportement mécanique et le gonflement hygroscopique, présentés dans la [section 7.1.3](#), ont été utilisés avec les paramètres présentés dans le [tableau 7.3.4](#).

| | | Résine | Fibres |
|-----------------------------|--|------------------------------|-----------------------------|
| Transport d'espèces diluées | Coefficient de diffusion (m ² /s) | 2.78.10 ⁻¹² (exp) | 3.3.10 ⁻¹² (num) |
| | Gain de masse à saturation (%) | 2.5 (exp) | 27 (exp) |
| Mécanique du solide | Module d'Young (GPa) | 3.4 (exp) | 56.1 (exp) |
| | Coefficient de Poisson | 0.4 | 0.4 |
| | Masse volumique (kg/m ³) | 1170 (exp) | 1517 (exp) |
| Gonflement hygroscopique | β_h (m ³ /kg) | Variable | Variable |

Tableau 7.3.4 : Valeurs utilisées dans le modèle lors de l'identification du coefficient de gonflement hygroscopique de la résine et des fibres au sein du composite

Le gonflement hygroscopique de la résine a été déterminé par recalage numérique dans les mêmes conditions aux limites que le composite ([section 7.1.3](#)). Le gonflement à saturation a été identifié par itérations successives. Le coefficient de gonflement de l'épaisseur à saturation a été la valeur ciblée (de 1.8 %, cf. [chapitre 6](#)). Un coefficient β_h^r de 0.54 a été trouvé. Il est supposé ici que le coefficient de gonflement hygroscopique de la résine seule reste le même dans le composite.

De même que pour le coefficient de gonflement hygroscopique de la résine seule, la valeur cible du gonflement hygroscopique des fibres au sein du composite est la valeur permettant d'obtenir le gonflement expérimental global de l'épaisseur du composite à l'état saturé (cf. [chapitre 6](#)). Après plusieurs itérations, un coefficient β_h^f de 6.35 a été trouvé, pour un gonflement global du composite de 15,44 %, en accord avec les données expérimentales, ce qui correspond dans le cas de notre modèle à un déplacement moyen de la ligne du haut (bord libre) de 231.6 μm . Ce gonflement n'a cependant pas pu être relié au gonflement des fibres hors du composite dans ces travaux de thèse, ce qui pourrait être intéressant à effectuer dans de futurs travaux.

La valeur déterminée par approche numérique du β_h^f des fibres au sein du composite est environ 12 fois plus grande que celle de la résine seule. Ceci est logique puisque le gonflement du composite est bien supérieur au gonflement de la résine seule et est principalement dû au gonflement des fibres.

Sur la [figure 7.3.4](#) est représentée l'évolution du gonflement hygroscopique du composite en fonction du gain de masse en pourcents.

Comme le gonflement hygroscopique de la fibre implémenté dans le modèle a été réglé afin que la valeur à saturation de gonflement du composite corresponde à la valeur expérimentale. Le modèle n'intègre notamment pas les volumes libres.

Cela signifie qu'en régime transitoire, le gonflement hygroscopique numérique sera supérieur au gonflement réel. Ainsi les contraintes associées à ce gonflement seront surestimées.

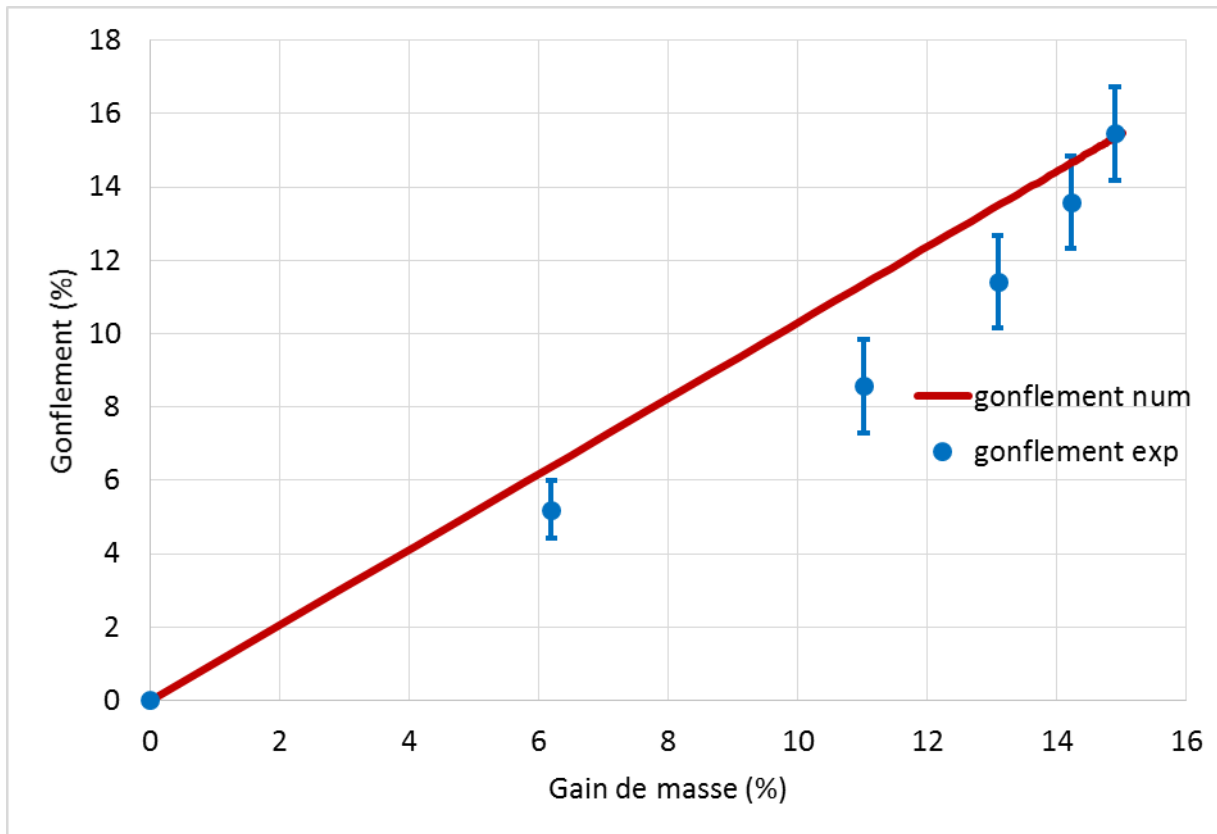


Figure 7.3.4 : Évolution du gonflement expérimental et numérique en fonction du gain de masse

7.3.5 – Identification de l'évolution du module élastique des fibres au cours de la diffusion

L'objectif de cette section est d'identifier le module élastique des fibres par approche inverse sur la base des mesures expérimentales faites sur le composite et sur la résine. La prudence est néanmoins de rigueur quant aux résultats de cette identification, car les mesures de module de la résine sont tirées d'essais monotones tandis que les mesures du module du composite sont issues d'essais dynamiques.

La résine pure présente une décroissance linéaire de son module d'Young en fonction de sa prise en eau. Le composite présente également une décroissance linéaire du module vibratoire moyen en fonction de la prise en eau. De ce fait, il a été calculé, dans un premier temps, le module élastique des fibres au sein du composite aux états conditionné et saturé (sans gradient de propriétés) à l'aide d'une loi des mélanges, en utilisant le module vibratoire du composite et le module d'Young en traction monotone pour la résine pure. Une loi de décroissance linéaire a été implémentée. Cette hypothèse est cohérente compte tenu du comportement linéaire observé pour la résine pure et le composite.

Dans le [tableau 7.3.5](#), les valeurs utilisées dans le modèle sont récapitulées. Le module est exprimé en GPa en fonction de x , la concentration relative locale.

| | | Résine | Fibres |
|-----------------------------|--|------------------------------|-----------------------------|
| Transport d'espèces diluées | Coefficient de diffusion (m ² /s) | 2.78.10 ⁻¹² (exp) | 3.3.10 ⁻¹² (num) |
| | Gain de masse à saturation (%) | 2.5 (exp) | 27 (exp) |
| Mécanique du solide | Module d'Young (GPa) | 3,4 - 4 x | 56,1 - 29.7 x |
| | Coefficient de Poisson | 0.4 | 0.4 |
| | Masse volumique (kg/m ³) | 1170 (exp) | 1517 (exp) |
| Gonflement hygroscopique | β_h (m ³ /kg) | 0.54 (num) | 6.35 (num) |

Tableau 7.3.5 : Valeurs utilisées dans le modèle lors de l'identification de l'évolution du module élastique des fibres au sein du composite

Le modèle mis en place a permis d'obtenir la **figure 7.3.5**. Elle représente les modules moyens de la résine, des fibres et du composite en fonction du gain de masse global. Les points expérimentaux sont également représentés. L'évolution du module de la résine a été identifiée à partir de données expérimentales et le module des fibres a été recalé pour correspondre à une évolution linéaire en fonction du gain de masse. Le module global du composite est le résultat du modèle et est comparé aux résultats expérimentaux, ce qui permet de valider ou non l'évolution du module des fibres.

Le gain de masse de chaque constitué est calculé à partir de la concentration relative au sein du constituant considéré (résine ou fibres). La concentration relative est estimée par intégration sur le domaine associé. Cette concentration relative est ensuite multipliée par un coefficient correspondant au gain de masse à saturation pour chaque constituant (mesuré expérimentalement pour la résine, calculé par loi des mélanges pour les fibres).

Les résultats montrent une concordance entre le modèle numérique et l'expérience pour le module global du composite. À ce stade, le modèle implémenté semble représentatif du comportement global du matériau observé lors de la campagne expérimentale. Il est cependant important de noter que ces modules correspondent aux modules vibratoires. Rien ne garantit la linéarité des modules sous chargement monotone E_1 et E_2 (décrit dans le **chapitre 4 et 6**) en fonction de la teneur en eau.

Ce modèle sera analysé dans la section suivante avec des analyses de modules locaux, comparé à l'analyse globale du module effectuée pour le recalage du module vibratoire des fibres.

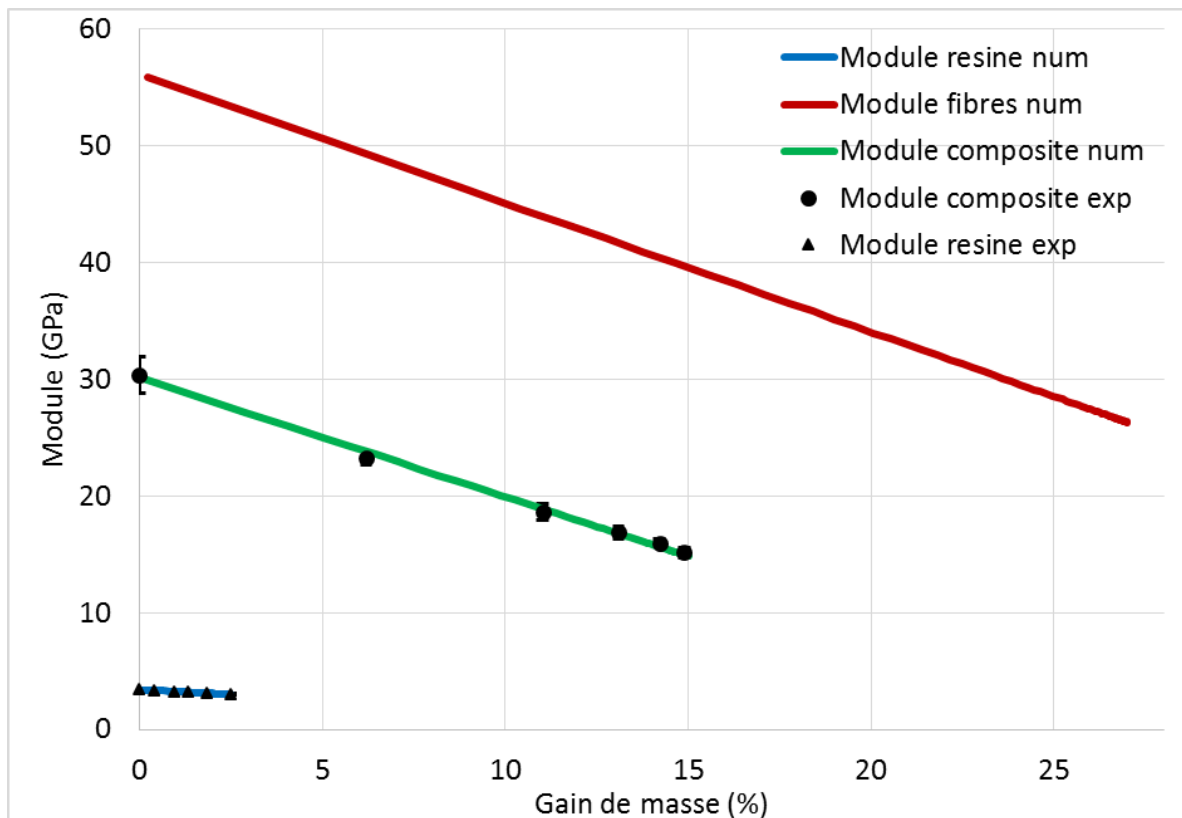


Figure 7.3.5 : Évolution des modules expérimentaux et numériques en fonction du gain de masse pour les différents constituants et pour le composite

7.4 – Application du modèle résultant à l’analyse locale

Les physiques sont donc présentées dans la [section 7.1.3](#), et les différents paramètres identifiés sont récapitulés dans le [tableau 7.3.5](#). L’objectif est d’analyser l’évolution des modules locaux du composite et des constituants, et les implications que cela peut avoir, ainsi que d’analyser les contraintes internes générées par le gonflement hygroscopique.

7.4.1 – Évolution locale du module

Dans la [section 7.3.5](#), le module des fibres en fonction du gain de masse exprimé en pourcents a été établi à partir des données du composite à l’état conditionné et à l’état saturé. Une évolution linéaire de ce module a été implémentée.

Dans le but d’étudier ces gradients dans différents états, quatre durées de diffusion ont été choisies. Elles correspondent à des états de diffusion étagés à environ chaque 1/5^e du gain de masse à saturation. Cet étagement correspond à des durées d’environ 0.25 jour, 1 jour, 2.5 jours et 5 jours. L’état saturé (30 jours) ne sera pas présenté pour puisqu’aucun gradient n’est présent à saturation.

La [figure 7.4.1.1](#) montre les modules locaux dans les 4 états transitoires choisis. Le module est exprimé en dizaine de GPa avec une échelle commune pour toutes les représentations graphiques, à des fins de lisibilité. De forts gradients de module sont observables entre les différentes fibres, notamment à 0.25 jour et 1 jour. Le gradient de module de la résine n’est pas visible sur cette représentation.

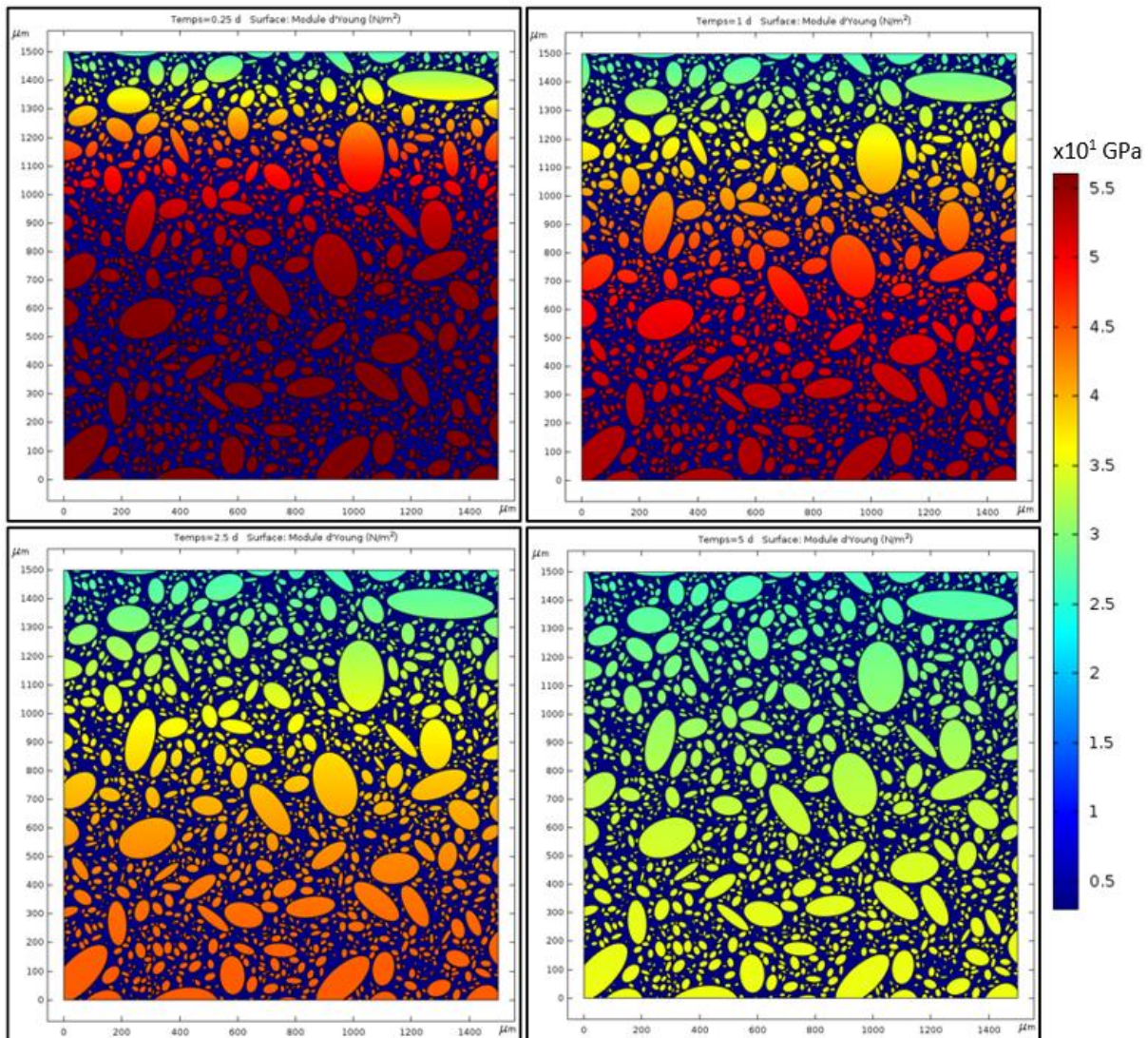


Figure 7.4.1.1 : Représentation graphique des modules locaux dans les états transitoires à 0.25 jour, 1 jour, 2.5 jours et 5 jours

Afin de mieux appréhender les gradients au sein des différents constituants, des histogrammes sont présentés sur les [figures 7.4.1.2 et 7.4.1.3](#), respectivement pour la résine et les fibres.

Sur les [figures 7.4.1.2 et 7.4.1.3](#), les gradients de module apparaissent nettement par deux phénomènes. Le premier est un étalement des valeurs entre 0.25 jour et 1 jour, avec une réduction de la fréquence maximale atteinte, et une augmentation des fréquences atteintes après 1 jour. Cette évolution est logique, puisque l'état conditionné serait constitué d'une valeur unique à une fréquence de 1 et l'état saturé aussi, avec une valeur de module différente. Cette évolution-là est visible ici, car les classes de modules sont les mêmes pour chaque état. Le second phénomène est un décalage de la valeur maximale de module vers la valeur à saturation. Que ce soit pour la résine ou les fibres, l'effet reste le même. Cela traduit le fait que la diffusion affecte rapidement le cœur du matériau (ligne du bas pour le modèle considéré). L'impact est d'abord faible, mais une concentration nulle n'est plus observable dès le début de la diffusion.

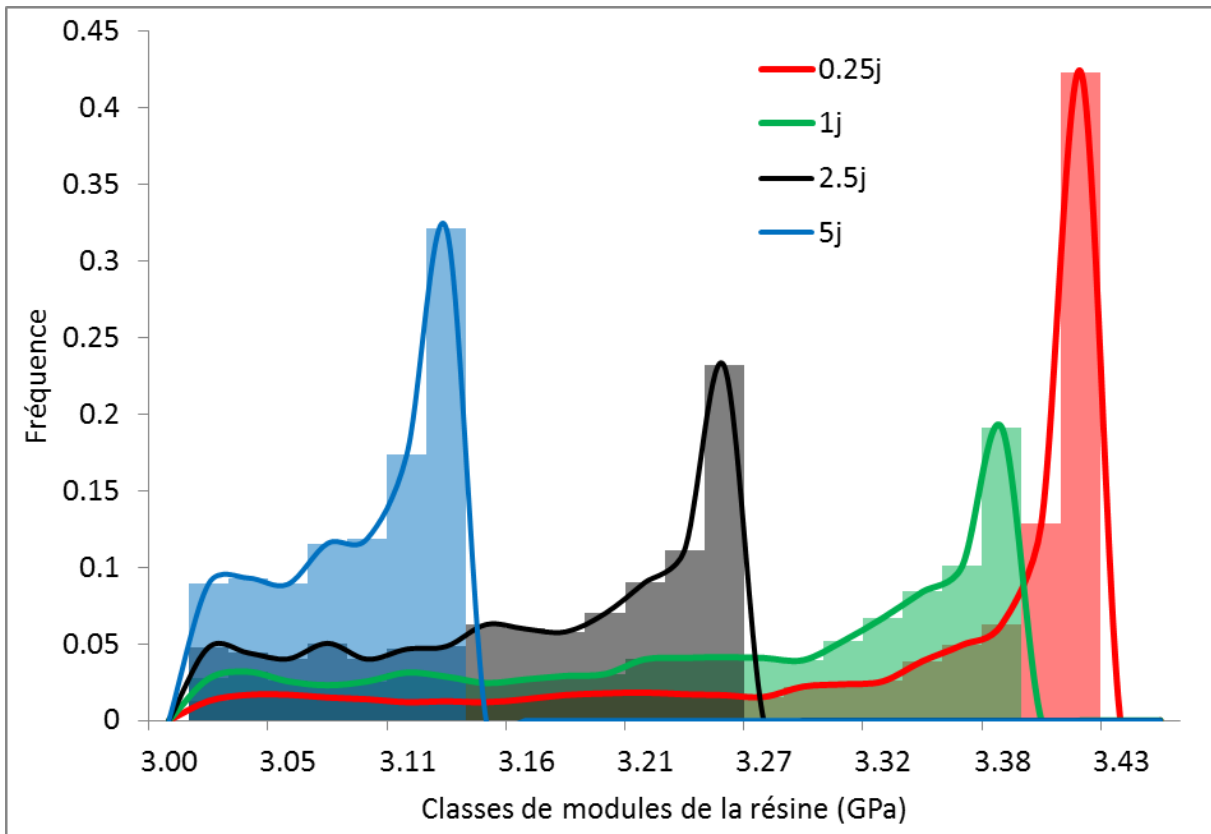


Figure 7.4.1.2 : Histogrammes des modules de la résine dans les états transitoires à 0.25 jour, 1 jour, 2.5 jours et 5 jours

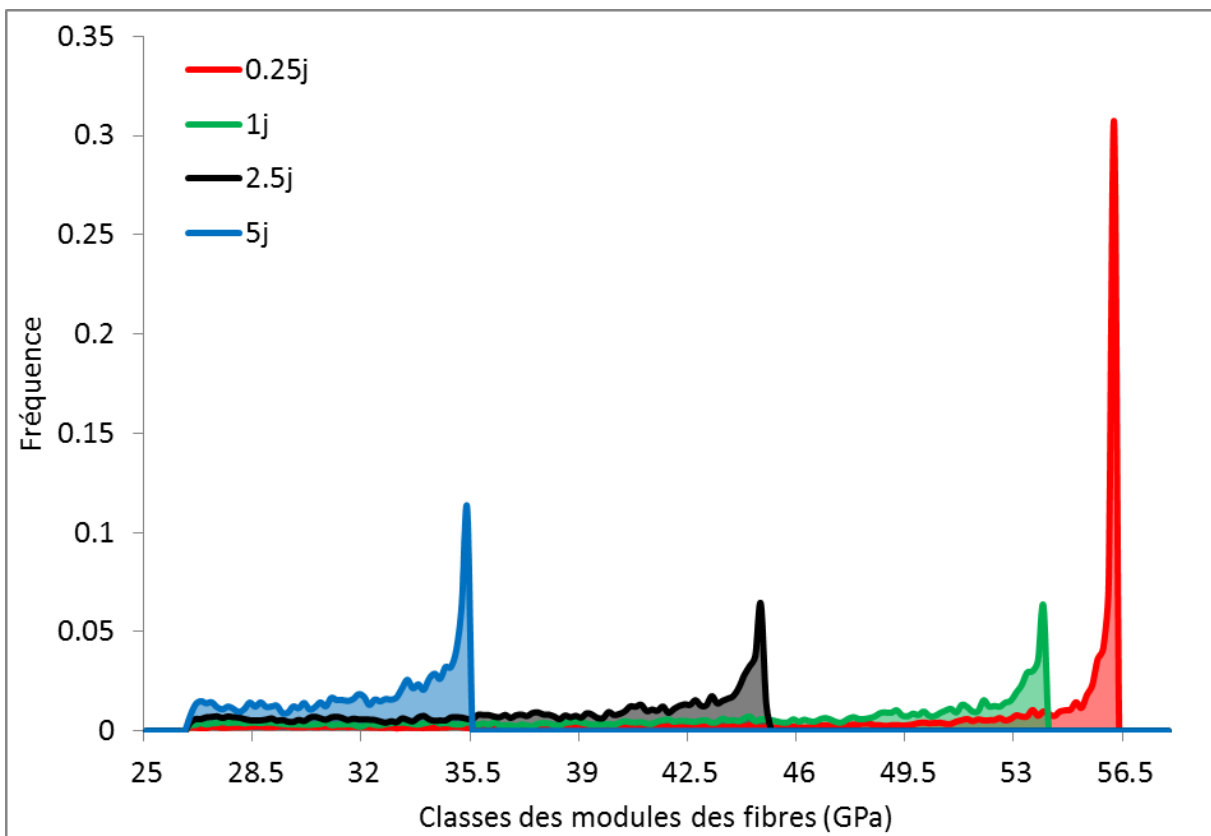


Figure 7.4.1.3 : Histogrammes des modules des fibres dans les états transitoires à 0.25 jour, 1 jour, 2.5 jours et 5 jours

Ces données permettent de discuter l'hypothèse émise dans la [section 6.3](#), à l'aide de la [figure 6.3.3](#), concernant le gonflement orthotrope du composite lors de la campagne expérimentale malgré l'hypothèse d'une microstructure quasi isotrope transverse. L'hypothèse considère un gradient de rigidité dans l'épaisseur du matériau qui induit, dans le sens de la largeur, un confinement du gonflement des strates les moins rigides par les strates les plus rigides. Le gradient est clairement visible sur les différentes figures présentées ici. Même si l'hypothèse n'est pas vérifiée ici, les résultats de module local sont un élément permettant de soutenir cette hypothèse. Afin de la vérifier, il serait cependant nécessaire d'effectuer des essais supplémentaires ou de mettre en place une modélisation plus complète, notamment quant aux conditions aux limites.

7.4.2 – Étude de l'état de contraintes internes

Le gonflement différentiel des fibres et de la résine induit des contraintes à l'intérieur de chaque composant du composite. La [figure 7.4.2.1](#) présente les états de contraintes suivant la composante en x (axe horizontal) du tenseur des contraintes. Les zones affectées, dès 0.25 jour, apparaissent globalement en compression, avec quelques zones en traction.

Afin d'étudier ces tendances avec plus de précision, des histogrammes de contraintes sont employés. Il est important de noter que les niveaux de contrainte atteints sont discutés après l'exposition des résultats suivant les composantes en x, en y et en xy (cisaillement).

Les [figures 7.4.2.2 et 7.4.2.3](#) présentent respectivement les histogrammes de la composante x du tenseur des contraintes des fibres et de la résine. Les résultats montrent que le pic pour l'état à 0.25 jour est localisé à une contrainte nulle et les contraintes s'étendent un peu dans le domaine de la compression. Pour les temps suivants, un décalage est observé de ces contraintes nulles vers un état de compression. Pour la résine, il est possible de constater un étalement des contraintes jusqu'à des zones en traction, mais la résine reste globalement en compression également.

Cette compression traduit plusieurs phénomènes : le gonflement contraint les différents constituants, l'effet des conditions aux limites bloquant le gonflement latéral. L'analyse de la composante en y (axe vertical) des contraintes pourra donc permettre de comparer et de dissocier ces effets.

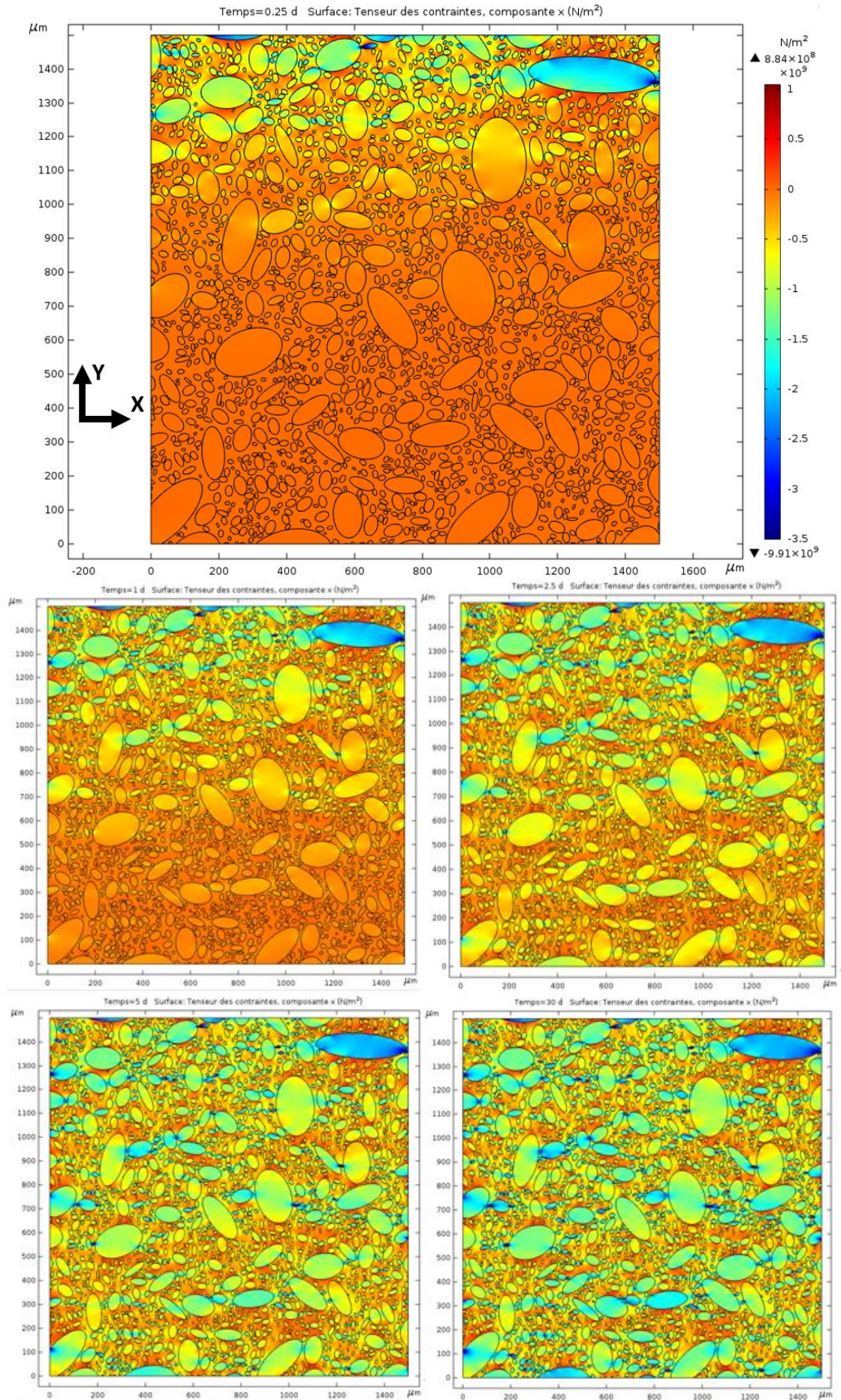


Figure 7.4.2.1 : Représentation graphique de la composante x (horizontale) des contraintes (σ_x) dans les états transitoires à 0.25 jour, 1 jour, 2.5 jours, 5 jours et à saturation (30 jours)

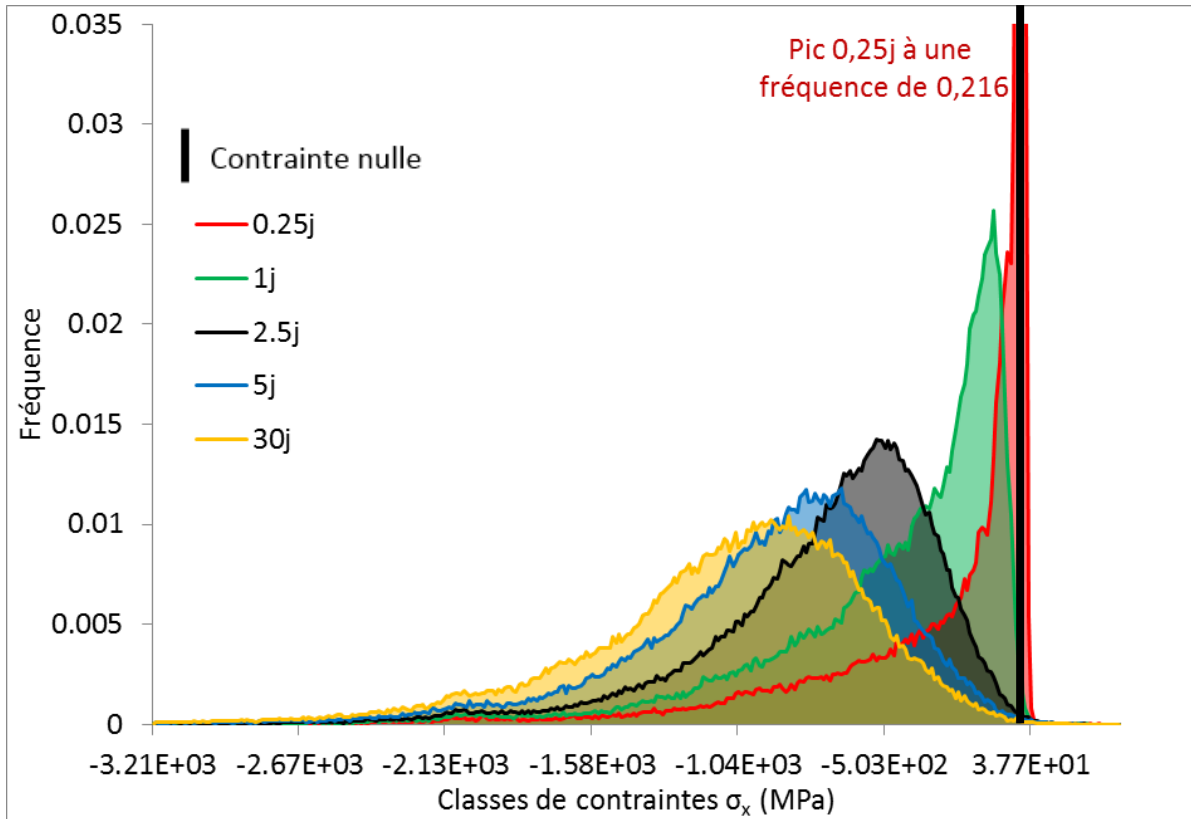


Figure 7.4.2.2 : Histogrammes des contraintes σ_x des fibres pour les différents états de diffusion (0.25j, 1j, 2.5j, 5j et 30j)

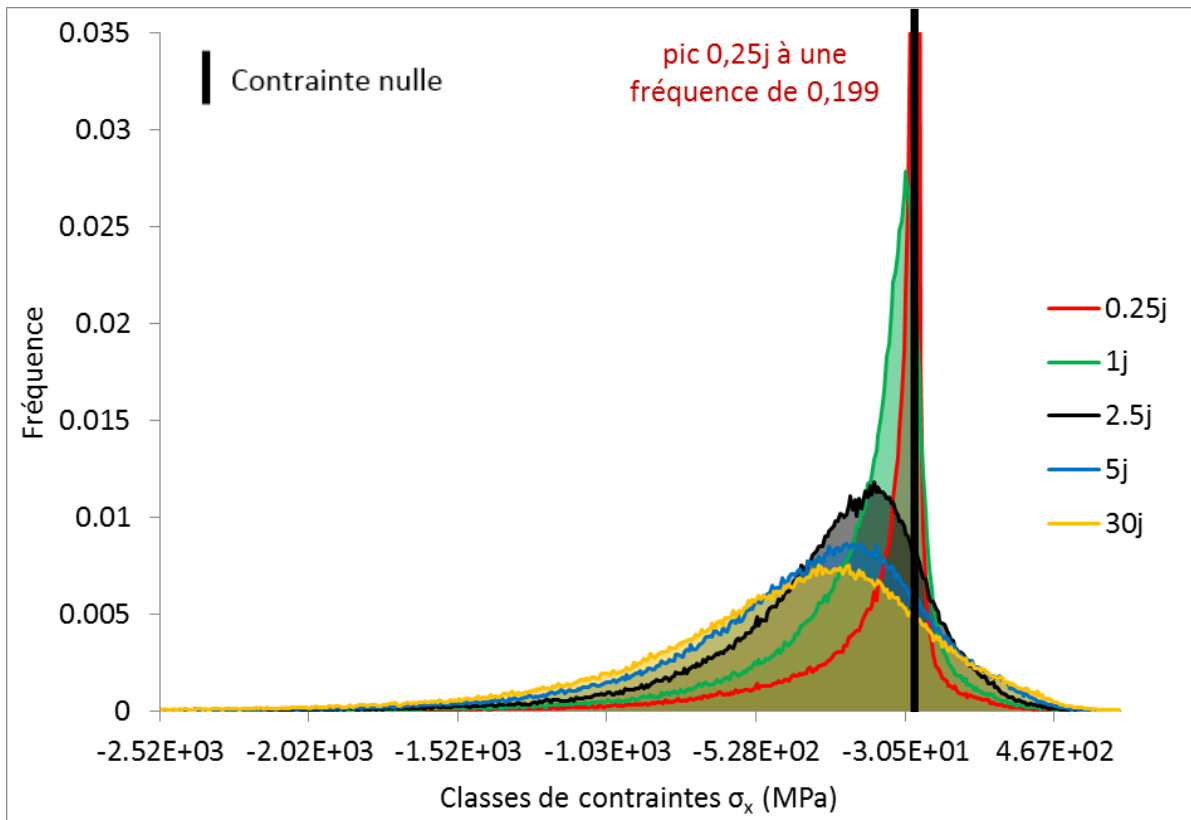


Figure 7.4.2.3 : Histogrammes des contraintes σ_x de la résine pour les différents états de diffusion (0.25j, 1j, 2.5j, 5j et 30j)

Les **figures 7.4.2.4 et 7.4.2.5** récapitulent respectivement les histogrammes de la composante y des contraintes des fibres et de la résine. Le pic de contrainte nulle se retrouve de nouveau pour l'état à 0.25 jour. En revanche, contrairement aux observations sur la composante en x, la composante en y du tenseur des contraintes est beaucoup plus étendue dans le domaine de la traction, bien que le décalage de la valeur centrale de l'histogramme se déplace vers la compression. Pour la résine, le décalage ne se fait plus vers la compression, mais quasi exclusivement vers la traction. Il s'agit ainsi d'une différence majeure et conséquente avec la composante en x. Le gonflement libre dans le sens de l'épaisseur permet aussi de réduire l'état de compression, ce qui est cohérent avec l'hypothèse évoquée précédemment quant au gonflement orthotrope avec une microstructure quasi isotrope transverse. De plus, il est évident que les conditions aux limites sur les bords verticaux sont à l'origine de ces différences, ce qui constitue une limite du modèle, puisqu'il n'est, du coup, pas possible d'identifier l'effet du gonflement orthotrope et l'effet des conditions aux limites.

La composante de cisaillement du tenseur des contraintes est également intéressante à étudier, puisqu'elle est primordiale dans la définition du critère de Von Mises. Elle est donc présentée pour les fibres et la résine dans les différents états de la diffusion respectivement sur les **figures 7.4.2.6 et 7.4.2.7**. Un étalement de l'histogramme est observé autour de contraintes nulles qui restent au centre d'une répartition gaussienne. Cela traduit le fait que les contraintes de cisaillement sont de plus en plus présentes, au fur et à mesure de la diffusion.

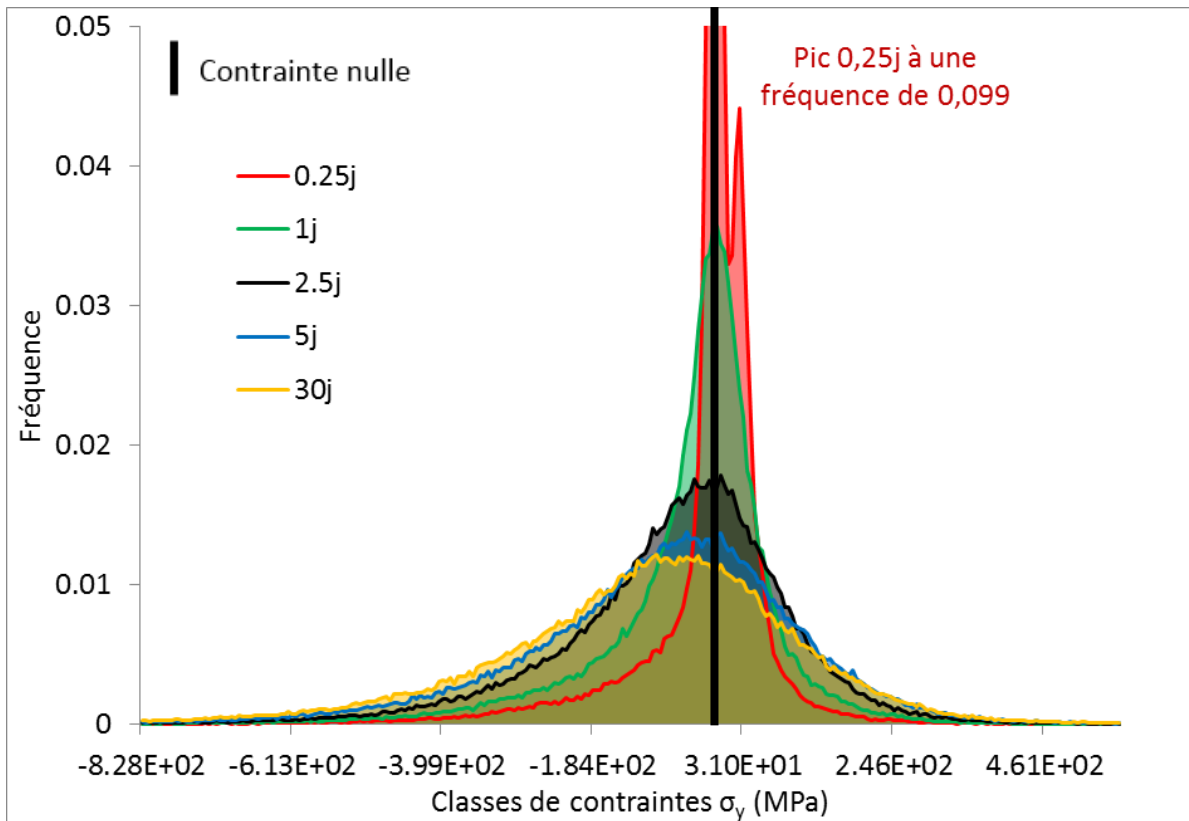


Figure 7.4.2.4 : Histogrammes des contraintes σ_y des fibres pour les différents états de diffusion (0.25j, 1j, 2.5j, 5j et 30j)

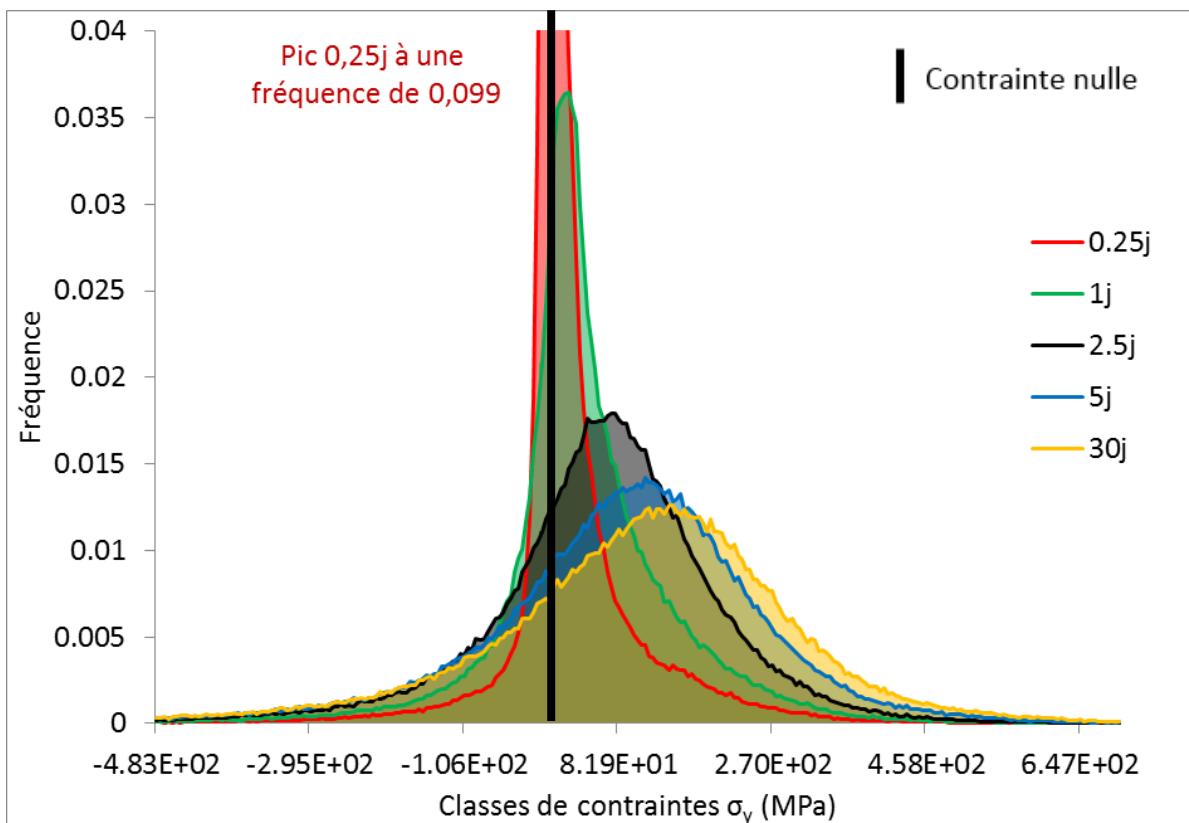


Figure 7.4.2.5 : Histogrammes des contraintes σ_y de la résine pour les différents états de diffusion (0.25j, 1j, 2.5j, 5j et 30j)

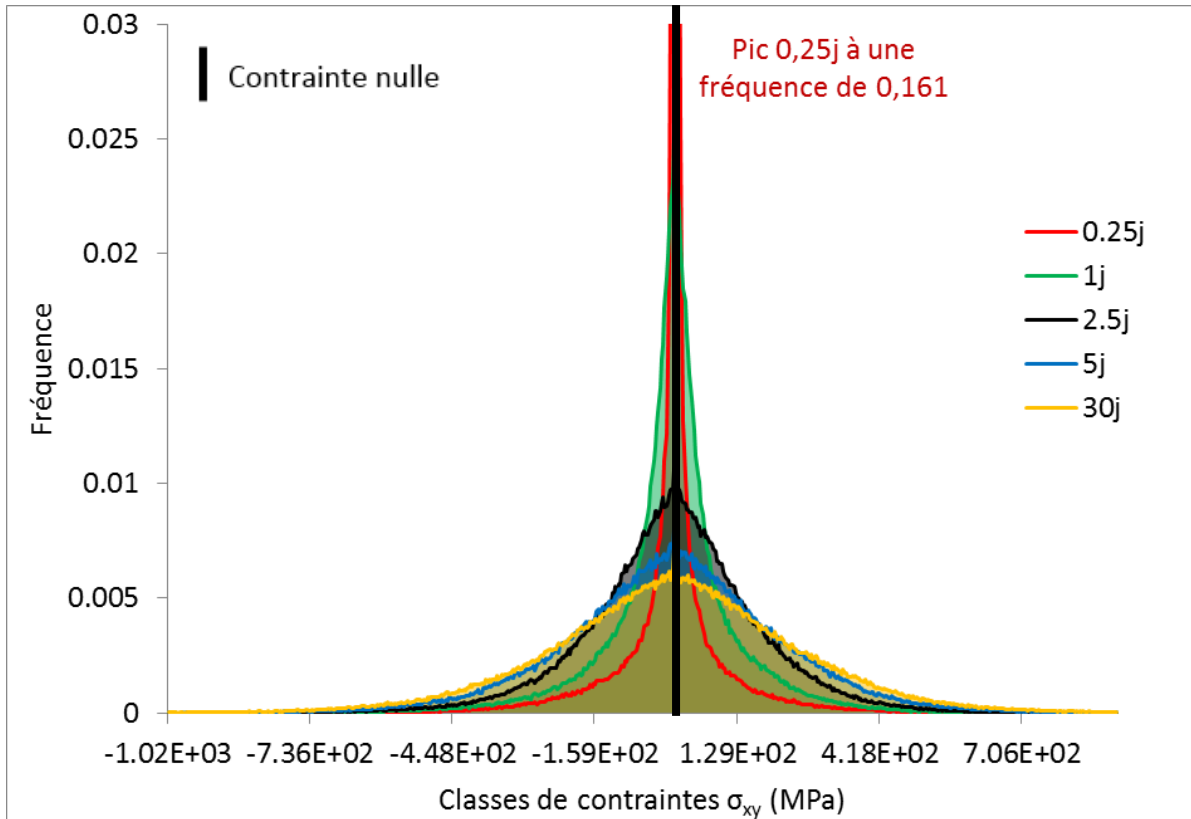


Figure 7.4.2.6 : Histogrammes des contraintes σ_{xy} des fibres pour les différents états de diffusion (0.25j, 1j, 2.5j, 5j et 30j)

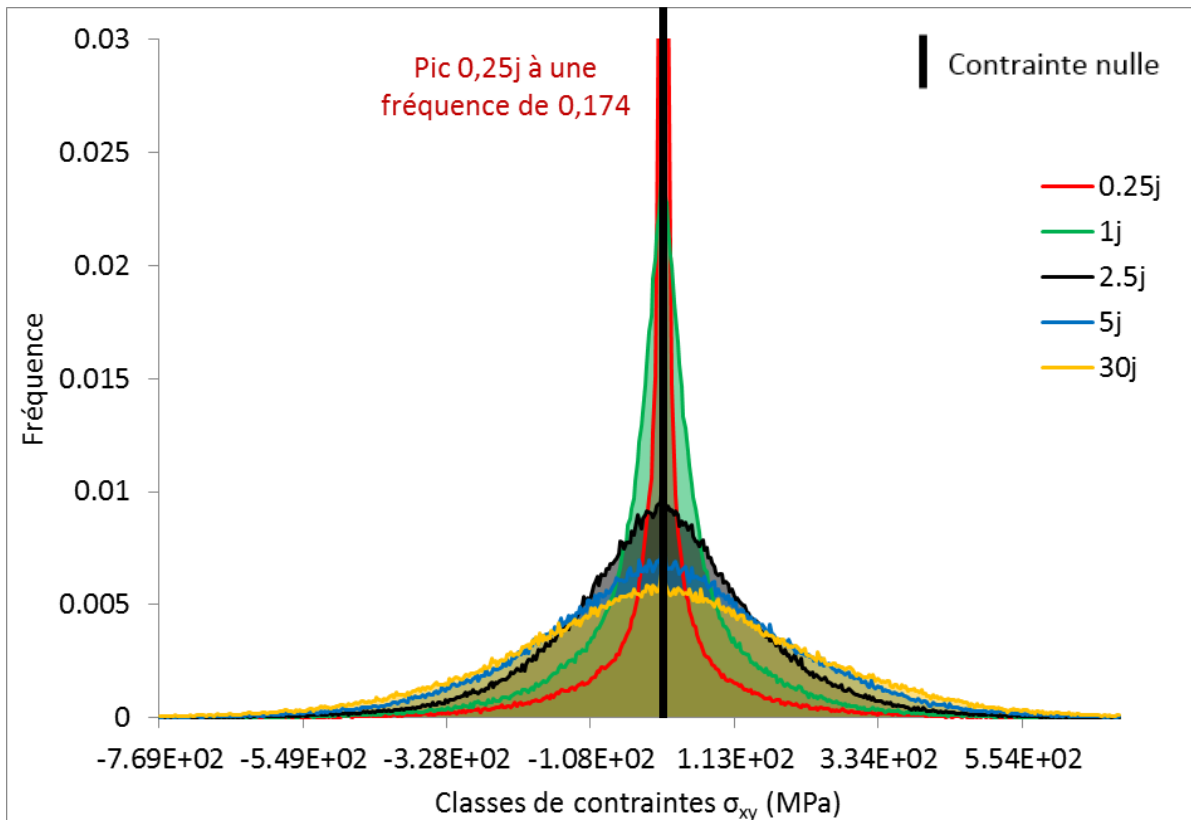


Figure 7.4.2.7 : Histogrammes des contraintes σ_{xy} de la résine pour les différents états de diffusion (0.25j, 1j, 2.5j, 5j et 30j)

Les valeurs atteintes n'ont cependant pas été discutées. Il est important de les étudier et d'en rendre compte afin de valider ou non les hypothèses effectuées. Les ordres de grandeur des bornes définissant la répartition des histogrammes pour l'état saturé (30 jours) sont reportés dans le **tableau 7.4.2** (min histo et max histo). Les valeurs extrêmes pour l'état saturé (30 jours) y sont également données (min absolu et max absolu), mais sont des valeurs très locales qui n'apparaissent donc qu'à des fréquences trop faibles pour apparaître sur des histogrammes.

Les valeurs selon les autres composantes restent très élevées comparé à ce que l'on pourrait attendre du matériau réel, puisque les contraintes dépassent ici la contrainte à rupture de la résine. L'influence du gonflement hygroscopique surestimé dans les états transitoires n'est pas applicable ici puisqu'il s'agit des résultats à saturation. De ce fait, il est possible d'attribuer ces valeurs importantes au modèle élastique linéaire choisi pour représenter le comportement mécanique des constituants. En effet, la plasticité n'est pas considérée dans le modèle purement élastique. Les comportements mécaniques longitudinaux sont récapitulés sur la **figure 7.4.2.8**. Ainsi, pour une déformation correspondant à la rupture du matériau, la contrainte est surestimée d'environ 50 % dans le cas du modèle.

Aussi, les résultats montrent clairement que les valeurs selon la composante en x sont globalement plus importantes que dans les deux autres directions. Ceci peut provenir des conditions aux limites, qui peuvent être discutables, ou au moins qui seront à étudier dans de futurs travaux. Il pourra être intéressant d'étendre cette analyse à un modèle de comportement plus réaliste. Aussi, l'étude des invariants du tenseur des contraintes donnerait des informations quant à la distribution des contraintes hydrostatiques dans les fibres et dans la résine, ainsi que du cisaillement de la résine confinée entre les fibres.

| En MPa | Fibres | | | | Résine | | | |
|--------------|--------------------|-------------------------|------------------------|-------------------|--------------------|-------------------------|------------------------|-------------------|
| | Min absolu | Min histo | Max histo | Max absolu | Min absolu | Min histo | Max histo | Max absolu |
| En x | $-1.02 \cdot 10^4$ | Environ $-3 \cdot 10^3$ | Environ 0 | $5.57 \cdot 10^2$ | $-6.06 \cdot 10^3$ | Environ $-2 \cdot 10^3$ | Environ $5 \cdot 10^2$ | $1.05 \cdot 10^3$ |
| En y | $-2.54 \cdot 10^3$ | Environ $-8 \cdot 10^2$ | Environ $5 \cdot 10^2$ | $2.66 \cdot 10^3$ | $-3.06 \cdot 10^3$ | Environ $-5 \cdot 10^2$ | Environ $7 \cdot 10^2$ | $1.64 \cdot 10^3$ |
| En xy | $-1.66 \cdot 10^3$ | Environ $-8 \cdot 10^2$ | Environ $7 \cdot 10^2$ | $1.55 \cdot 10^3$ | $-1.50 \cdot 10^3$ | Environ $-8 \cdot 10^2$ | Environ $6 \cdot 10^2$ | $1.44 \cdot 10^3$ |

Tableau 7.4.2 : Récapitulatif des contraintes selon les différentes composantes du tenseur des contraintes pour les deux constituants exprimées en MPa

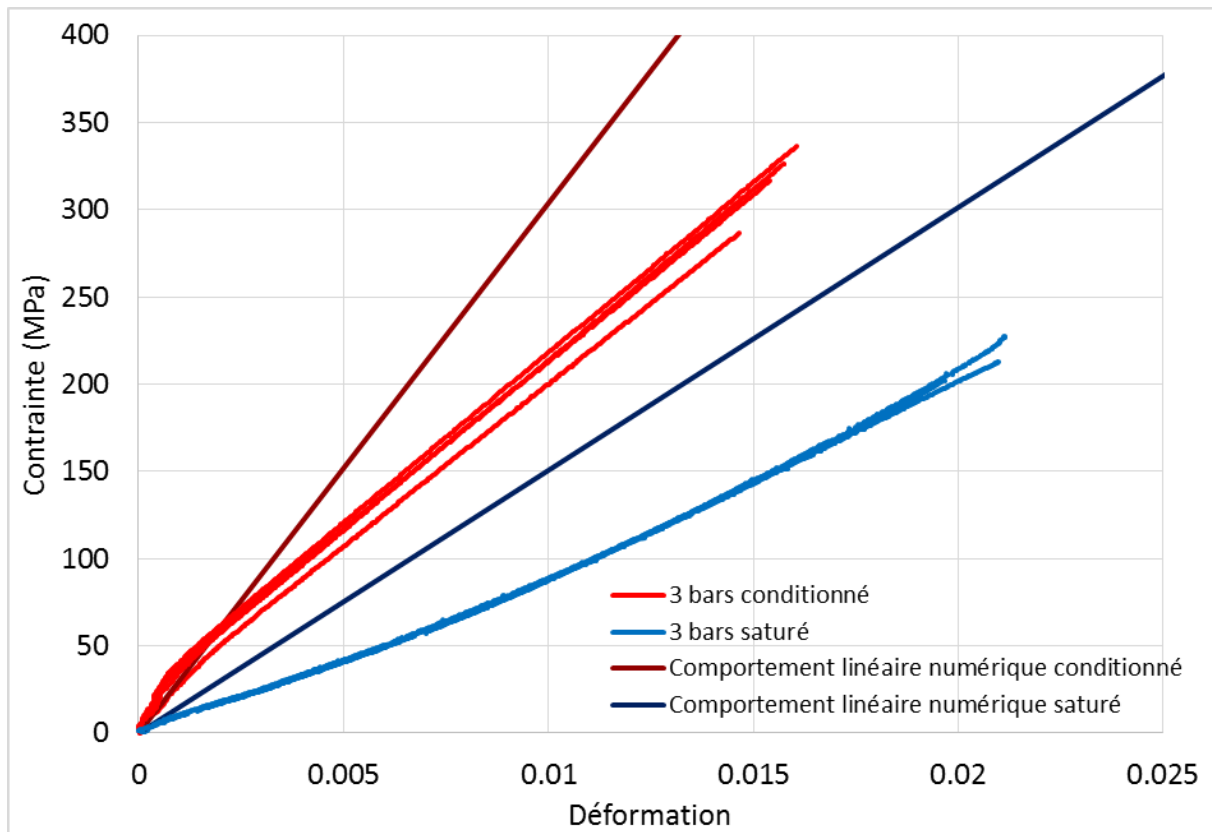


Figure 7.4.2.8 : Comparaison entre les comportements mécaniques expérimentaux et numériques associés aux états conditionné et saturé

Ce modèle « diffusif » ne permet pas de rendre entièrement compte du confinement des fibres lors de leur gonflement contraint par la résine. Un second modèle peut donc être envisagé pour étudier cela, plus spécifiquement.

7.4.3 – Bilan du modèle diffusif recalé

Le modèle diffusif recalé étudié dans ce chapitre a permis d'étudier une microstructure générée aléatoirement à partir de données morphologiques réelles. La diffusion a ainsi pu être intégrée en accord avec la campagne expérimentale du [chapitre 6](#) et l'évolution du module des constituants a été prise en compte en fonction du gain de masse de chaque constituant.

Les recalages des différentes valeurs ont été implémentés dans le but d'analyser les évolutions de modules locaux et de contraintes internes au cours de la diffusion. Les gradients de module peuvent donc expliquer le gonflement orthotrope observé lors de la campagne expérimentale. Aussi, l'analyse des contraintes internes a révélé que les constituants du composite sont globalement en compression dans la composante x du tenseur de contraintes. Dans la composante y du tenseur des contraintes, les fibres sont majoritairement en compression avec néanmoins une partie significative en traction, tandis que la résine est globalement en traction. De par les valeurs atteintes, il est possible de constater que les contraintes selon la composante x du tenseur des contraintes sont plus importantes que selon la composante y. Il est donc possible d'en conclure que les constituants sont globalement en compression, avec quelques zones de traction.

Les conditions aux limites sont à l'origine de ces contraintes importantes dans la direction x . Si ces conditions aux limites sont en accord avec une hypothèse de plaque infinie, cela n'est pas le cas dans le matériau réel. Ces conditions aux limites peuvent donc être discutées.

Aussi, de nombreuses simplifications pourraient faire l'objet, à l'avenir, d'une complexification pour obtenir un modèle plus détaillé permettant une analyse plus fine des phénomènes lors de la diffusion d'eau. Parmi ces simplifications se trouvent notamment la taille de la surface d'étude, qui pourrait être plus grande (quart de section d'une éprouvette réelle) afin de s'affranchir de conditions aux limites trop limitantes, et le comportement élastique linéaire implémenté pour les constituants qui ne correspond pas à leurs comportements mécaniques réels, d'autant plus avec la diffusion.

Le modèle diffusif présenté dans cette section présente donc encore des limites qui demandent encore du travail pour aboutir à une analyse détaillée et complète de la durabilité des composites étudiés.

De plus, le modèle diffusif permet difficilement l'analyse de l'état de confinement des fibres au sein du composite. Le gonflement des fibres est en effet induit par une absorption d'eau qui génère une pression interne. La fibre gonfle au sein du composite de manière contrainte et se retrouve en compression. La présence de zones de traction de notre modèle présente donc une limite quant à l'analyse de ce confinement. D'autres modélisations seraient en revanche possible pour donner une meilleure idée de ce confinement.

7.5 – Modèle de pression hydrique

Si le modèle diffusif présenté précédemment permet difficilement de rendre compte de l'état de confinement des fibres lors du gonflement contraint du composite, d'autres modèles peuvent être envisagés. Le but de cette section est de proposer un second modèle 2D à partir de la microstructure étudiée précédemment, constitué des mêmes conditions aux limites.

Les fibres, lors de leur gonflement, exercent une pression sur la résine. La résine va donc « résister » à cette pression et provoquer une compression au sein des fibres. L'objectif de l'implémentation de ce second modèle est de représenter les fibres par une pression sur la résine, sans représentation physique des fibres. La pression appliquée par les fibres pour obtenir un gonflement global du composite, correspondant au gonflement réel observé à saturation, permettra ainsi de donner une idée du confinement des fibres, avec une valeur de pression que son état de confinement à saturation applique sur la résine. Cette pression des fibres sur la résine est appelée pression hydrique, par défaut.

La **figure 7.5.1** présente la microstructure utilisée, qui correspond à une zone réduite de la microstructure précédemment utilisée, de taille $1000 \times 1000 \mu\text{m}^2$. Une réduction a été nécessaire pour des problématiques de convergence du calcul. Les conditions aux limites sont identiques au modèle diffusif présenté précédemment. Une pression est ensuite appliquée sur les contours précédemment associés à l'interface fibre/matrice. Les données matériau utilisées pour la résine sont celle de la résine à saturation. Ce modèle sera donc comparé au modèle diffusif à l'état saturé uniquement. En revanche, le gonflement de la résine n'a pas été implémenté.

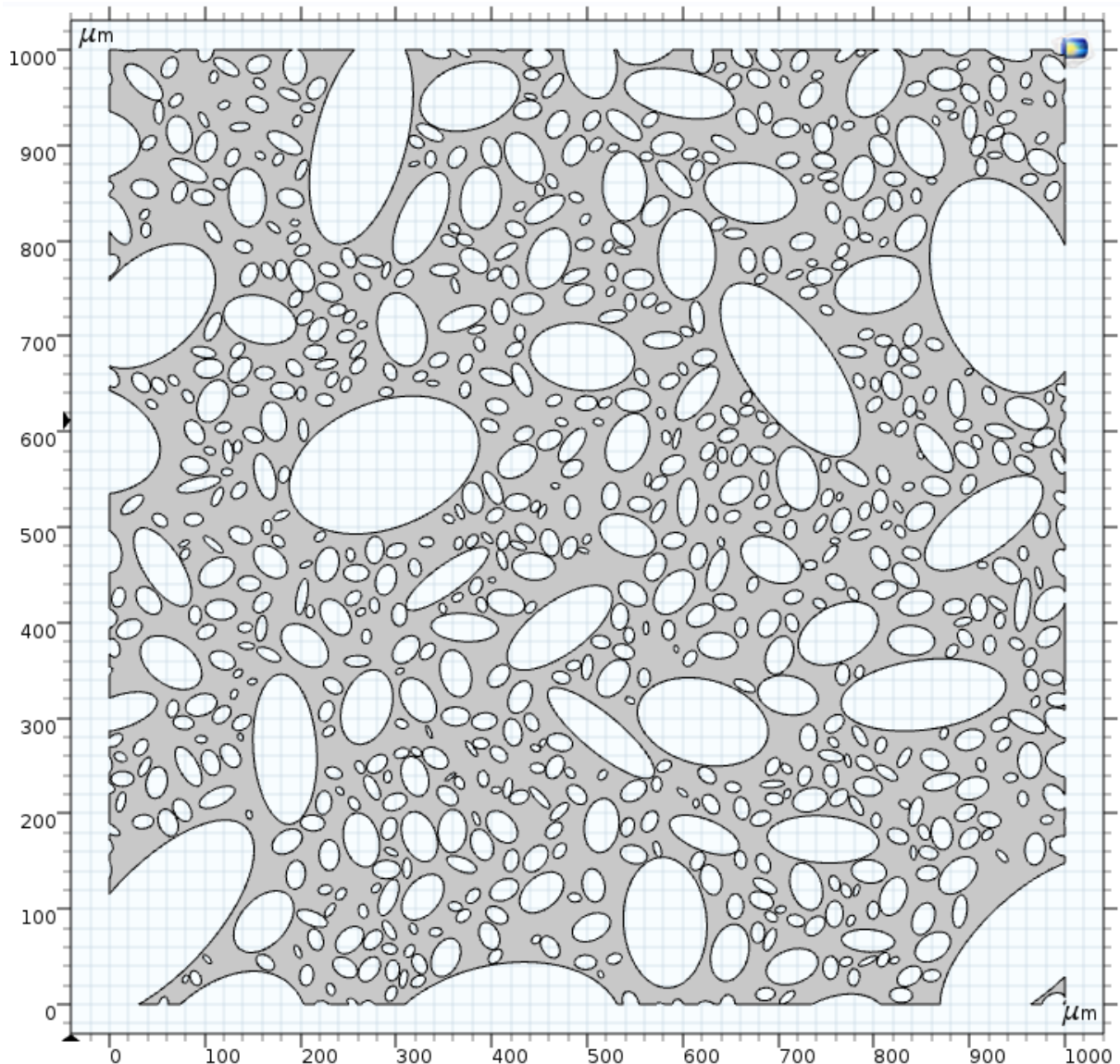


Figure 7.5.1 : Microstructure utilisée pour le modèle de pression hydrique, de dimensions 1000 μm x 1000 μm

Une pression interfaciale de 145 MPa a été appliquée sur chaque contour afin d'atteindre un gonflement global de 15.45% pour le domaine étudié. Cette valeur de gonflement du composite correspond au gonflement mesuré expérimentalement dans le **chapitre 6**. Ceci donne une estimation de la pression globale au sein des fibres. Cette pression est exclusivement attribuée au confinement des fibres dans la résine lors de leur gonflement et traduit un confinement important.

Aussi, il est primordial de comparer cette pression de 145 MPa avec la contrainte à rupture de la résine pure de 78.6 MPa. La pression appliquée est donc près de 2 fois supérieure à la contrainte maximale supportable par la résine. Cela signifie que, dans ce modèle, avec cette pression, la résine devrait être fortement endommagée. Or, dans la réalité, la résine présente de faibles déformations plastiques, mais aucune fissuration. Ceci traduit une limite du modèle, avec des comportements mécaniques qui ne sont pas implémentés (dont la plasticité) ou des hypothèses qui sont trop contraignantes (conditions aux limites).

Il reste possible d'étudier le tenseur de contraintes, avec les composantes en x , en y et en xy à comparer avec le modèle diffusif. Sur la **figure 7.5.2**, les histogrammes de la composante x du tenseur des contraintes à saturation du modèle diffusif et du modèle de pression hydrique sont représentés. Le modèle de pression hydrique exhibe des niveaux de contraintes en compression plus faibles que le modèle diffusif. Cela provient très probablement du fait que le gonflement de la résine n'a pas été implémenté, réduisant ainsi l'état de compression de la résine.

La **figure 7.5.3** montre les histogrammes associés à la composante y des tenseurs de contraintes. Les résultats indiquent une différence importante entre les deux modèles, avec un pic en compression pour le modèle de pression hydrique, au lieu d'un pic en traction pour le modèle diffusif. Des analyses complémentaires restent nécessaires pour déterminer l'origine de ces différences.

La **figure 7.5.4** présente les histogrammes associés à la composante xy des tenseurs de contraintes. L'étalement des valeurs est moins important pour l'histogramme du modèle de pression hydrique, ce qui est cohérent avec l'absence de gonflement de la résine, à l'instar des résultats dans la composante x .

Le comportement des composantes x et xy sont similaires avec des valeurs atteintes plus faibles, ce qui est attribué au fait que le gonflement de la résine n'a pas été implémenté. En revanche, des analyses supplémentaires sont nécessaires pour confirmer cet aspect. De plus, il est nécessaire d'étudier plus en détail le modèle de pression hydrique pour trouver l'origine des différences dans la composante y .

Les contraintes hydrostatiques ont également été étudiées à travers les histogrammes présentés sur la **figure 7.5.5**. Le modèle diffusif et le modèle de pression hydrique exhibent les mêmes tendances, avec des valeurs atteintes inférieures (toujours du fait de l'absence de gonflement de la résine).

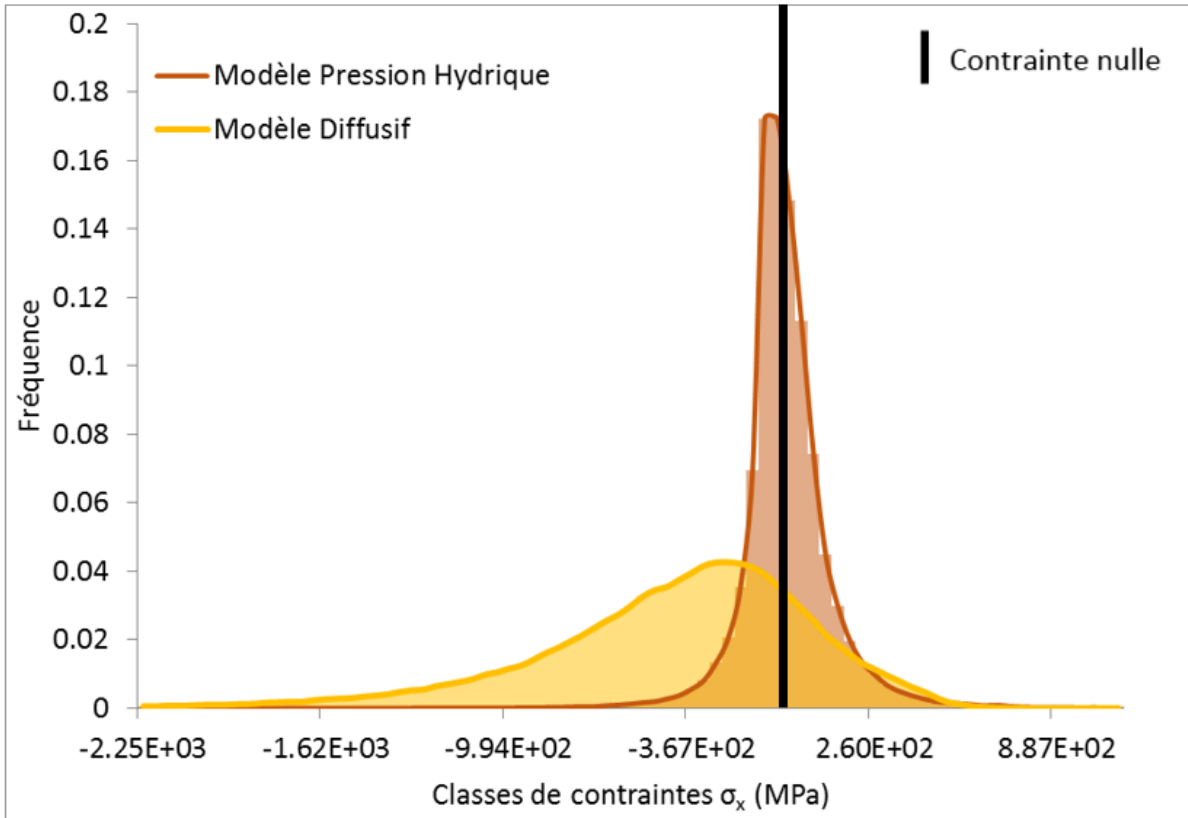


Figure 7.5.2 : Histogrammes des contraintes σ_x de la résine pour le modèle diffusif à saturation et pour le modèle de pression hydrique

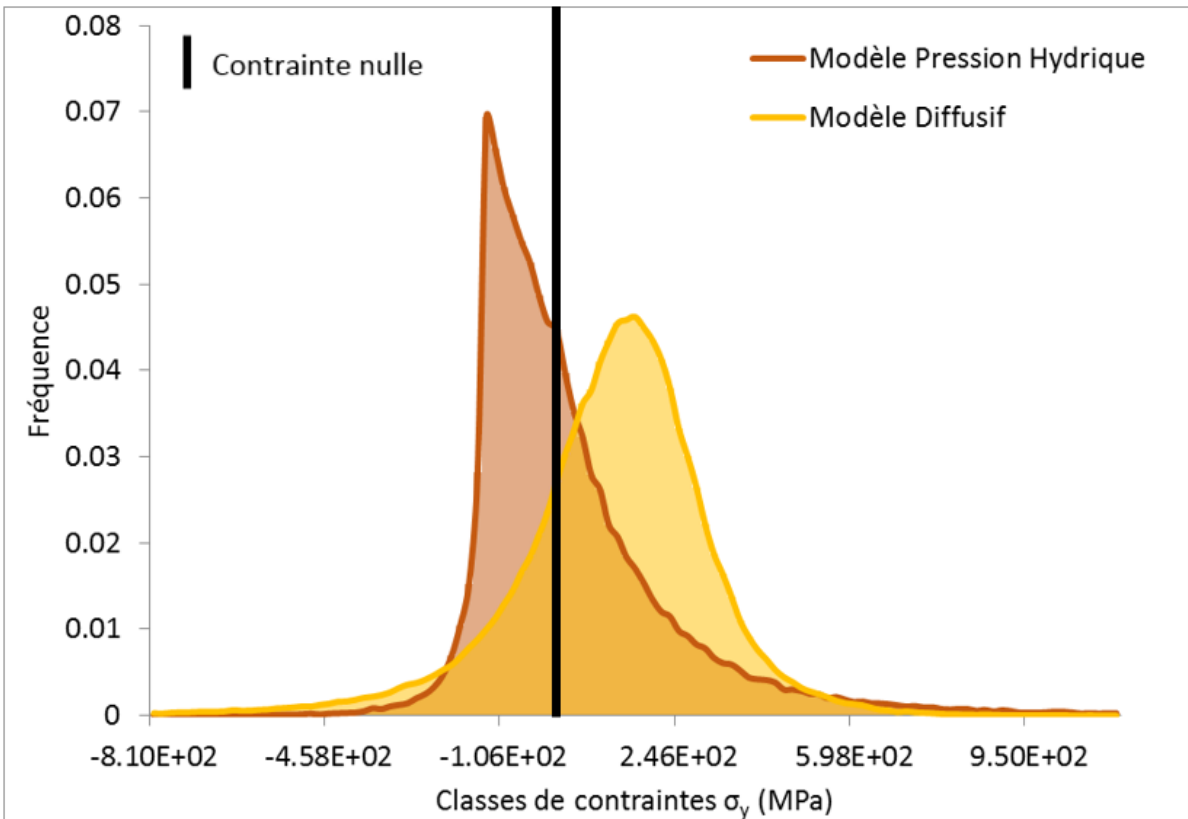


Figure 7.5.3 : Histogrammes des contraintes σ_y de la résine pour le modèle diffusif à saturation et pour le modèle de pression hydrique

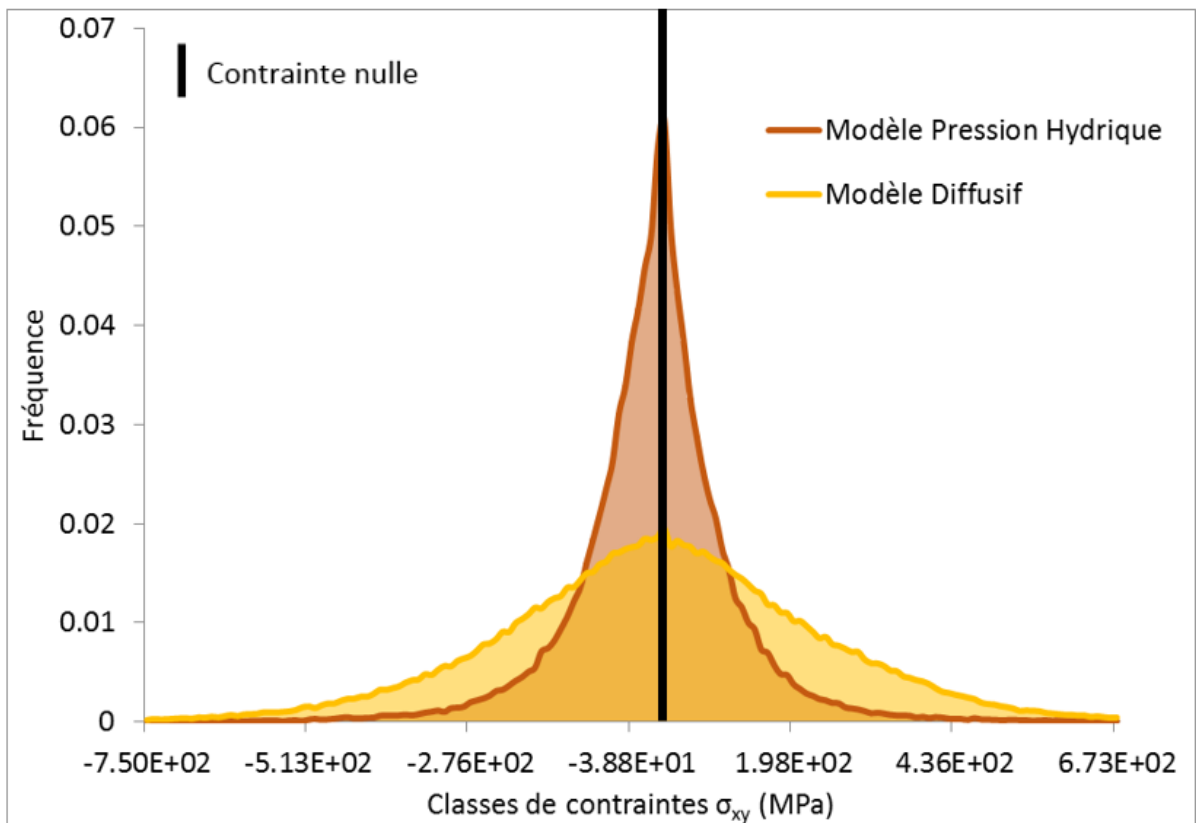


Figure 7.5.4 : Histogrammes des contraintes σ_{xy} de la résine pour le modèle diffusif à saturation et pour le modèle de pression hydrique

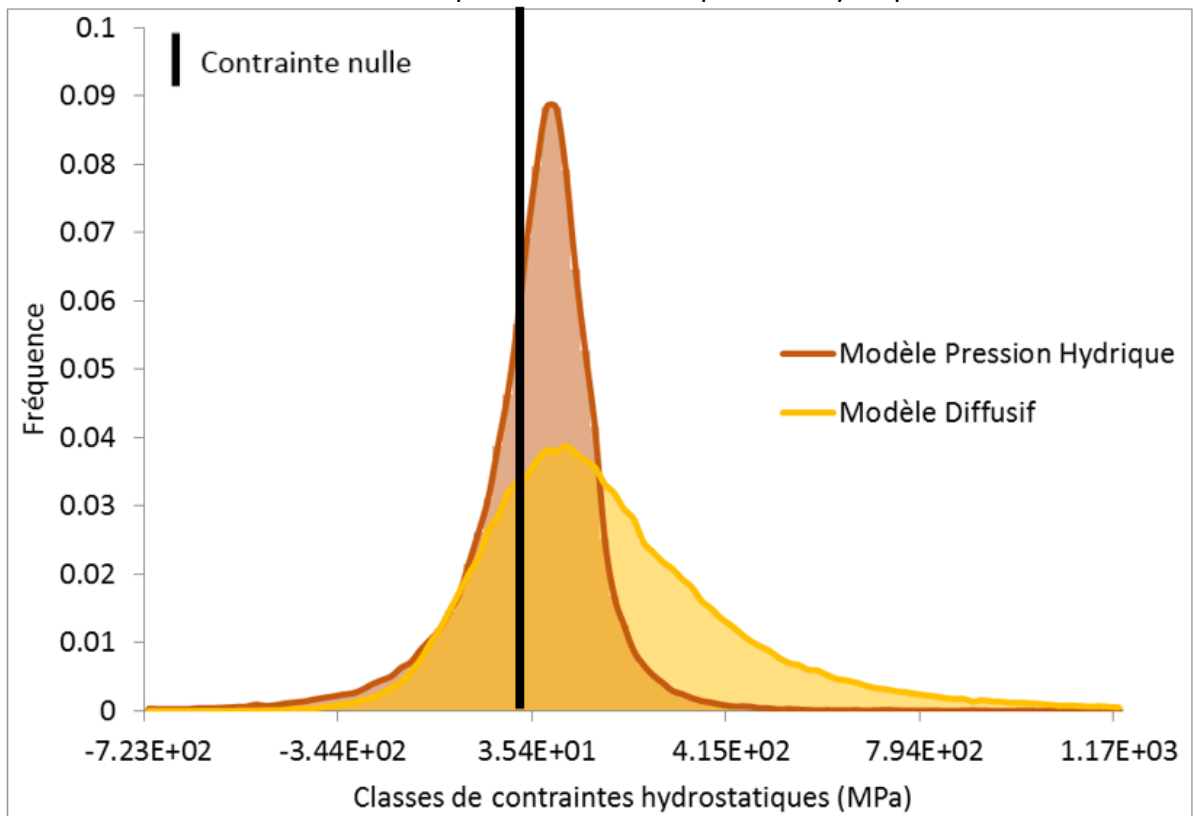


Figure 7.5.5 : Histogrammes des contraintes hydrostatiques de la résine pour le modèle diffusif à saturation et pour le modèle de pression hydrique

La pression appliquée, correspondant au confinement des fibres, reste tout de même importante : les fibres sont fortement confinées au sein du composite. La résine devrait être fortement endommagée, voire détruite, ce qui n'est pas le cas en réalité. Ceci constitue une limite du modèle et l'origine de cette limite n'a pas pu être clairement identifiée.

Il resterait intéressant d'intégrer le gonflement de la résine pour étudier l'impact sur l'état de contraintes au sein des fibres et sur la pression hydrique à appliquer.

7.5 – Conclusions et Perspectives

Le modèle diffusif présenté dans ce chapitre propose des résultats de diffusion couplée à l'évolution de propriétés mécaniques. Le couplage ici employé est un couplage faible, avec un impact de la diffusion sur les propriétés mécaniques sans réciprocité. Un comportement linéaire du module élastique des fibres au sein du composite est attendu en fonction de leur teneur en eau.

Aussi, les valeurs élevées de contraintes observées peuvent être issues des hypothèses et des conditions aux limites appliquées, mais les matériaux constituants sont globalement en compression avec quelques zones de traction plus ou moins marquées suivant la composante du tenseur de contraintes considérée.

Le modèle de pression hydrique a permis de faire un premier pas vers la caractérisation du confinement des fibres au sein du composite lors du vieillissement, mais nécessite encore du travail pour donner des résultats plus probants.

Les conditions aux limites choisies peuvent être contestées. Elles sont valables en considérant une plaque de dimensions infinies, mais il faudrait ici étudier, à l'avenir, d'autres possibilités, dont notamment l'intégration du gonflement latéral avec des conditions aux limites différentes. Il est également possible d'étudier un quart de section d'échantillon, afin de considérer la diffusion associée à la concentration appliquée sur un bord latéral tout en laissant ce bord latéral libre. Cette option nécessite cependant une génération d'une microstructure de grande taille, avec un nombre de fibres très important, ce qui peut impacter négativement le maillage et donc le temps de calcul.

Une homogénéisation des résultats peut être envisagée pour modéliser une structure 3D, mais les résultats du modèle diffusif doivent être étoffés avant de pouvoir accéder à cette étape. L'intégration du comportement mécanique complet serait en effet une étape préliminaire à l'homogénéisation, mais nécessite des essais sur des éprouvettes saturées à différents teneurs en eau, et donc soumis à des expositions à des conditions hygrothermiques différentes. Aussi, l'implémentation d'un couplage fort reste nécessaire avant d'effectuer une homogénéisation 3D afin de rendre l'état de contraintes et la diffusion interdépendants, au lieu d'une dépendance du module à la diffusion unilatéralement.

Partie 4 – Vers des conditions de service

Dans cette partie, l'objectif est de progresser dans la caractérisation du matériau en mettant en œuvre des conditions d'essais se rapprochant de celles pouvant être rencontrées en service dans le cas d'une utilisation réelle en extérieur, notamment pour du mobilier urbain. La partie 3 a permis d'accéder aux propriétés mécaniques sous chargement monotone et à leurs évolutions avec la saturation en eau après immersion à 70 °C. En service, et pour certaines applications, ces matériaux ne seront certainement pas sollicités uniquement sous chargement monotone. Des charges statiques, cycliques et dynamiques peuvent également être rencontrées. De même, l'environnement pourra varier au cours du temps et mettre en œuvre de l'eau sous forme de vapeur dans l'air, mais également sous forme liquide directement au contact du matériau.

*Dans cette **partie 4**, l'objectif n'est pas de mettre en œuvre des conditions de vieillissement réel. La durée de ce type d'essais est peu compatible avec celle de la thèse. Il s'agit ici de mettre en œuvre des essais accélérés et/ou couplés permettant de mieux évaluer les paramètres influant principalement la dégradation des propriétés mécaniques du matériau tout en se rapprochant de conditions plus réalistes. Cette partie contient ainsi deux volets complémentaires.*

Le premier porte sur l'étude du comportement en fatigue mécanique cyclique des matériaux composites dans un état saturé après un vieillissement par immersion dans une eau à 70°C. Ce premier volet a pour objectif à la fois d'étudier le comportement en fatigue des composites après vieillissement sous sollicitations hydrothermiques et également d'appréhender les couplages hydromécaniques puisque les essais de fatigue sont réalisés en immersion.

Le deuxième volet se focalise sur l'étude de l'évolution des propriétés et du comportement en traction monotone au cours d'un vieillissement mettant en œuvre un cyclage hygrothermique. Ce volet permet d'appréhender l'influence d'un environnement variable et des phénomènes transitoires associés sur le comportement en traction.

*L'étude en fatigue immergée est donc réalisée dans le **chapitre 8** et l'étude du comportement monotone sous cyclage hygrothermique est présentée dans le **chapitre 9**.*

Chapitre 8 – Couplage hydromécanique : fatigue en immersion

L'objectif de ce chapitre est d'étudier le comportement du matériau sous sollicitation mécanique cyclique, car les ruptures en fatigue représentent la majorité des causes de ruine des pièces d'ingénierie. Comme l'utilisation visée pour ce matériau dans ce travail est en extérieur, pouvant impliquer des expositions prolongées à l'eau liquide, le comportement en fatigue est étudié en immersion après un vieillissement sous sollicitations hydrothermiques préalables.

Dans ce chapitre sont présentés, dans un premier temps, les résultats obtenus pour les composites « 1 bar » et « 3 bars » à l'état conditionné testés en fatigue dans l'air ambiant. Cette partie permet de discuter l'influence du taux volumique de fibres sur les propriétés en fatigue. À l'issue de cette première partie, une campagne de fatigue réalisée en immersion sur des éprouvettes « 1 bar » saturées sous sollicitations hydrothermiques est présentée. Cette partie permet de mettre en évidence l'influence du vieillissement sous sollicitations hydrothermiques et également des couplages hydromécaniques sur la résistance et le comportement en fatigue.

8.1 – Comportement en fatigue à l'état conditionné

Dans cette section, l'objectif est de mettre en évidence les phénomènes se produisant lors de la fatigue de matériaux composites à fibres de lin. Le but est d'étudier l'influence du taux volumique de fibres sur les propriétés en fatigue.

La courbe de Wöhler est donc étudiée en premier lieu. Ensuite, l'évolution des propriétés mécaniques au cours des essais de fatigue sera discutée, avec un focus sur l'évolution de la déformation moyenne et du module dynamique en fonction du nombre de cycles. Cette section se finira par une discussion et interprétation des résultats au regard de la littérature.

8.1.1 – Courbe de Wöhler

La **figure 8.1.1** propose une synthèse dans un diagramme S-N des points expérimentaux collectés sous chargement cyclique (CC) en fatigue aux différents niveaux de chargement (NC) pour les deux lots de matériaux testés (« 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné »). Comme évoqué précédemment, ces deux lots se différencient principalement par leur taux volumique de fibres, respectivement de 37.7 % et 51.1 % pour les « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné ».

Les résultats montrent que la résistance en fatigue décroît linéairement en fonction du logarithme du nombre de cycles pour les deux types de composite considérés. Cette évolution est donc fidèlement décrite par une loi logarithmique. Pour une durée de vie donnée, et pour le nombre de cycles étudiés (au maximum 10^6 cycles), il est possible de constater que la résistance en fatigue des éprouvettes « 3 bars conditionné » est supérieure à celles des éprouvettes « 1 bar conditionné ». Ce résultat est cohérent avec les résultats obtenus sous chargement monotone (CM) jusqu'à rupture, avec des valeurs de 272.5 et 316.5 MPa, pour

les contraintes à rupture obtenues respectivement pour les composites « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné » (cf. [tableaux 6.4.1.1 et 6.4.1.2](#)). Comme pour les résistances sous chargement monotone (UTS), ce résultat est attribué à la différence de teneur en fibres entre les deux lots.

Ainsi, la résistance maximale pour une durée de vie de 10^6 cycles est d'environ 120 MPa pour les composites « 1 bar conditionné » et d'environ 155 MPa pour les composites « 3 bars conditionné » (soit respectivement 44 et 49 % de leurs UTS). Ces résultats sont en accord avec les valeurs de résistance mentionnées dans la littérature pour une durée de vie de 10^6 cycles, avec environ 140 MPa (soit 42% de l'UTS) mentionnés dans de précédents travaux [65], et de 135 à 150 MPa (soit de 45 à 50% de l'UTS) relevés dans les travaux d'El Sawi *et al.* [120].

Il est néanmoins possible de constater que la pente de la courbe S-N (c'est-à-dire le coefficient B pour la loi de type $\log(X) = A + B.Y$ utilisée, cf. Éq. 2.3.2), est plus faible pour le composite « 1 bar conditionné » avec une valeur de B, indiquée dans le [tableau 8.1.1](#), de - 0.0278 à comparer à - 0.0205 obtenue pour le composite « 3 bars conditionné ». Aussi, les coefficients A et B identifiés et reportés dans le [tableau 8.1.1](#) sont en accord avec les résultats de la littérature [43] pour des composites à fibres végétales unidirectionnelles (cf. [tableau 2.3.2](#)) avec des valeurs de A entre 8.881 à 10.98 et des valeurs de B entre - 0.268 et - 0.025. En comparaison, les composites à fibres de verre exhibent, quant à eux, des valeurs de A de 8.008 à 9.851 et des valeurs de B entre - 0.090 et - 0.018 pour des empilements [0/90], [\pm 45], des mats ou des tissés [43], [105], [121], [126], [128].

Plus les valeurs de B sont faibles, plus le composite peut être considéré comme performant. Les résultats obtenus dans le [tableau 8.1.1](#) témoignent donc d'une bonne tenue en fatigue en comparaison à la littérature citée [43], [105], [121], [126], [128]. En revanche, une valeur de A importante témoigne également de bonnes performances des composites en fatigue. Les valeurs obtenues ici sont dans les valeurs attendues pour ce type de composite.

Ainsi, en utilisant les modèles logarithmiques identifiés et en considérant qu'il n'y a pas de limite d'endurance pour ces matériaux, une égalité de résistance en fatigue serait finalement obtenue pour ces deux types de matériaux, avec une valeur de 23.8 MPa (soit 7.5 % et 8.7 % de la contrainte à rupture respective des « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné ») pour 4.86×10^8 cycles. Il est possible que pour une durée de vie aussi importante, une limite d'endurance soit atteinte, et donc que les prédictions obtenues en utilisant les modèles logarithmiques ne soient pas valables. Cette question de la limite d'endurance reste néanmoins ouverte dans la littérature [43], puisque son existence n'a pas été démontrée expérimentalement pour ce type de composite à ma connaissance et jusqu'à ce jour. Si la différence sur le niveau de résistance en fatigue peut s'expliquer par la différence de fraction volumique de fibres, l'origine de la différence de pente (dégradation au cours du temps) réside certainement davantage dans les cinétiques d'endommagement. Ces cinétiques d'endommagement peuvent néanmoins avoir des composantes qui dépendent, elles aussi, étroitement de la fraction volumique de fibres.

Afin de mieux appréhender les phénomènes responsables de cet écart pour les valeurs de B, l'évolution des propriétés mécaniques au cours des essais de fatigue a été analysée dans la section suivante.

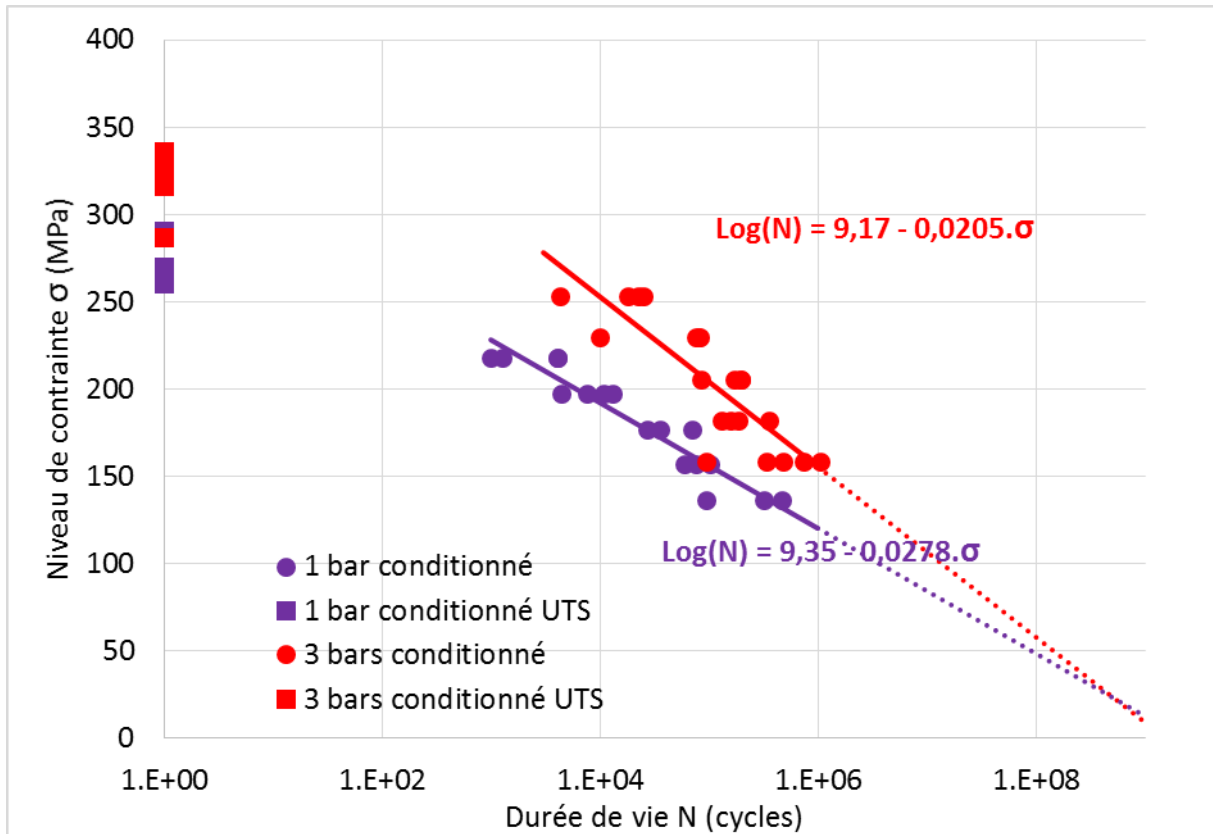


Figure 8.1.1 : Courbe de Wöhler des composites « 1bar conditionné » (ronds violets) et « 3bars conditionné » (ronds rouges) avec la représentation des UTS (carrés, couleurs respectives)

| | A | B |
|------------------------|------|---------|
| « 1 bar conditionné » | 9.35 | -0.0278 |
| « 3 bars conditionné » | 9.17 | -0.0205 |

Tableau 8.1.1 : Paramètres des courbes de Wöhler pour les composites « 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné »

8.1.2 – Évolution des propriétés mécaniques au cours de la fatigue

Pour chaque NC (cf. [figure 8.1.1](#)), il est possible d’observer une dispersion non négligeable du nombre de cycles à rupture, dont l’amplitude est du même ordre que celle mesurée précédemment par d’autres auteurs sur ce type de matériaux [43], [118], [133], [134]. Celle-ci peut être attribuée à la variabilité intrinsèque du matériau et également aux imperfections géométriques et dimensionnelles des éprouvettes (en particulier les variations d’épaisseur).

Ainsi, afin d’améliorer la lisibilité des figures suivantes, une seule éprouvette sera utilisée parmi les échantillons testés à chaque NC. L’éprouvette représentée pour chaque NC sera considérée comme représentative des différentes éprouvettes testées à ce NC.

La [figure 8.1.2](#) expose trois cycles de chargement/déchargement dans un graphe contrainte/déformation respectivement, pour 5%, 50% et 90% de la durée de vie pour un échantillon « 1 bar conditionné » sous chargement cyclique (CC) à 50 % de l'UTS à titre d'exemple. Les cycles des « 3 bars conditionné » suivent les mêmes tendances et ne sont pas représentés afin d'améliorer la lisibilité de la figure. Les résultats montrent un comportement quasi linéaire représentatif d'un comportement élastique dominant. L'hystérésis des boucles semble réduite, bien que la qualité des signaux (directement liée à la précision des capteurs de force et déformation, mais également de la fréquence d'acquisition) ne soit pas suffisante pour mettre en évidence des dissipations de faible niveau.

La consigne en force est la même pour les trois boucles. Il est possible de constater que les amplitudes moyennes et pics à pics sont bien identiques, ce qui confirme que l'essai est piloté correctement. Cependant, les boucles à 50 % et 90 % de fraction de vie en fatigue présentent un décalage vers des niveaux de déformation plus importants, en comparaison à ceux enregistrés pour 5 % de fraction de vie en fatigue. Ceci est dû à une augmentation à la fois à des déformations moyennes et pics à pic, qui sont explicitées sur la [figure 8.1.2](#). L'augmentation de la déformation moyenne est attribuée à l'accumulation de déformations résiduelles et l'augmentation de l'amplitude pic-à-pic à une évolution du module dynamique. Cette différence de pentes, difficile à observer sur la figure, correspond néanmoins à une rigidification de l'ordre de 5 %, en comparaison à la rigidité initiale.

Pour des composites unidirectionnels à fibres de verre et carbone, qui exhibent généralement des comportements purement élasto-fragiles dans la direction des fibres, la déformation moyenne n'évolue pas significativement au cours des cycles et n'est donc pas étudiée. Une variable d'endommagement est alors généralement préférée. La variable d'endommagement Y est usuellement définie en fonction du nombre de cycles en fatigue X comme suit : $Y(X) = 1 - E_c(X)/E_c(0)$, avec E_c le module dynamique. Celle-ci est donc fonction du module dynamique, et plus exactement de son évolution au cours du temps. Les composites unidirectionnels à fibres végétales présentant généralement une rigidification sous chargement cyclique [43], cette variable n'est pas exploitable.

Ainsi, pour caractériser les différents phénomènes ayant lieu lors des essais de fatigue sur composites à fibres végétales, deux paramètres, la déformation moyenne et le module dynamique, ont été analysés.

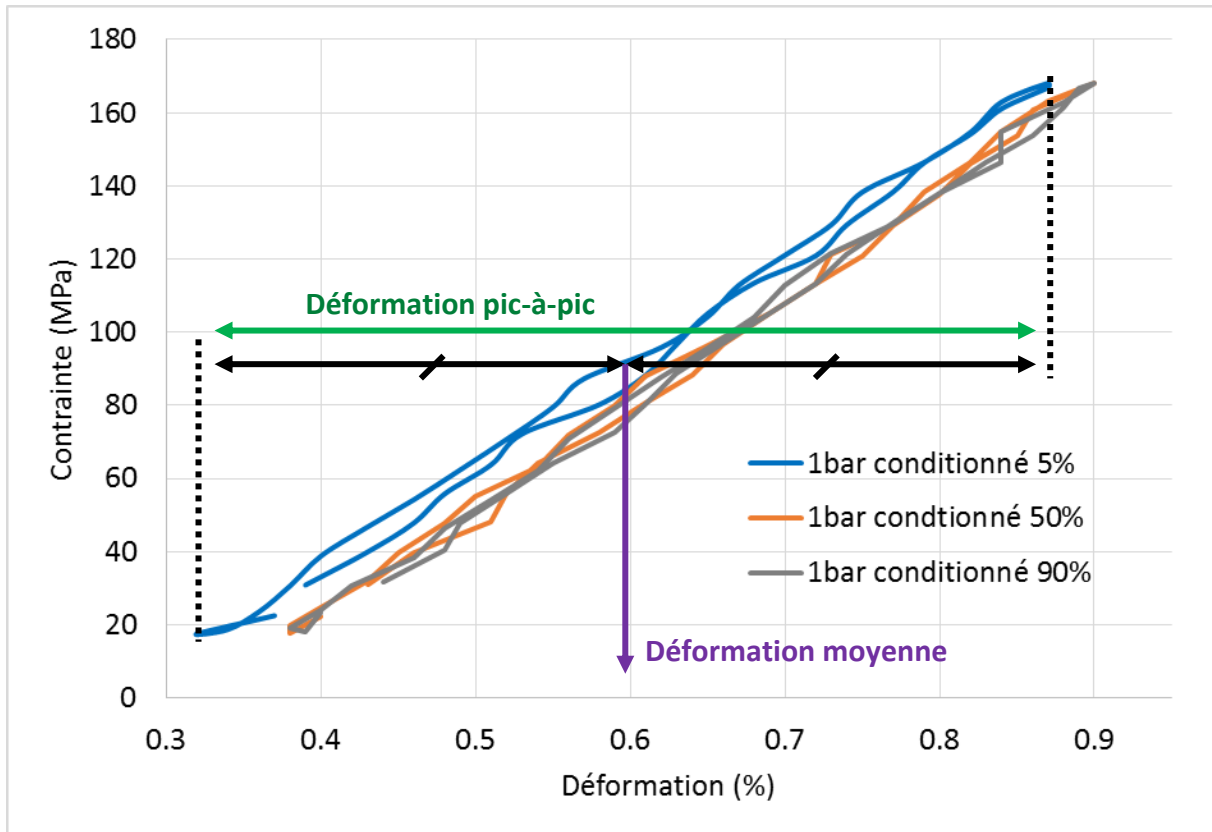


Figure 8.1.2 : Cycles de contrainte en fonction de la déformation sous chargement cyclique (CC) à 5 %, 50 % et 90 % de fraction de vie pour l'échantillon « 1 bar conditionné » testé au NC de 50 %

Dans la section suivante sont donc présentés les résultats de déformation moyenne, puis ceux de module dynamique. Ensuite, ces résultats font l'objet d'une discussion.

8.1.2.1 – Évolution de la déformation moyenne

La **figure 8.1.2.1.1** récapitule les courbes représentatives de l'évolution de la déformation moyenne en fonction du nombre de cycles au cours des essais de fatigue pour chaque NC pour les deux lots de matériaux testés (« 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné »). Le NC de 80 % de l'UTS n'est pas représenté pour le composite « 1 bar conditionné » à cause de problèmes rencontrés lors de l'acquisition des signaux pour ce NC.

Tout d'abord, il peut être constaté que la déformation moyenne augmente en fonction de N_f mais avec des vitesses différentes qui permettent au final de distinguer trois phases. Sur la **figure 8.1.2.1.1**, ces trois phases sont représentées pour la courbe « 3 bars conditionné » à 50 % UTS. La zone I correspond à une augmentation rapide de la déformation moyenne en fonction du nombre de cycles. Dans la zone II, la déformation moyenne évolue peu. Une augmentation brutale de la déformation moyenne est alors à nouveau observée dans la zone III. Cette zone n'est pas visible sur toutes les courbes. Cela peut être expliqué par une rupture brutale, avec une zone III localisée uniquement sur les derniers cycles. Cette évolution en 3 phases est également observée dans la littérature. Elle est souvent attribuée à des endommagements (déformations irréversibles) et à du fluage (avec des composantes réversibles et/ou irréversibles) [65], [120].

Les valeurs de déformation moyenne pour les « 1 bar conditionné » sont comprises entre 0.65 et 0.95 %. Pour les « 3 bars conditionné », la déformation moyenne se situe entre 0.55 et 1.15 %. La dispersion des résultats est donc bien plus importante que pour les « 1 bar conditionné ». L'ordre de grandeur des résultats est en accord avec celui indiqué dans des travaux précédents [65], pour des composites lin/époxy quasi unidirectionnels avec un taux volumique de fibres d'environ 45 %, dans lesquels les déformations moyennes sont comprises entre environ 0.3 % à 0.95 %.

Aussi, les valeurs initiales de déformations moyennes pour les « 1 bar conditionné » sont étagées en fonction du NC appliqué, tandis qu'elles ne le sont pas pour les « 3 bars conditionné ». Ce résultat peut paraître surprenant et plusieurs éléments peuvent l'expliquer. Le premier élément est lié à la dispersion des propriétés de rigidité observée entre les différents échantillons sous CM. Cette variabilité se répercute évidemment directement sur cette déformation moyenne initiale. Des erreurs et incertitudes peuvent également provenir de l'instrumentation et en particulier d'éventuels glissements de l'extensomètre à couteau lors des premiers cycles de chargement. Enfin, un troisième élément est lié à la progressivité du chargement dans les premiers cycles de fatigue. Effectivement, pour éviter les « overshoot », le chargement en fatigue est généralement appliqué progressivement pendant les premiers cycles. Pendant cette première phase, les amplitudes pic-à-pic et moyenne évoluent progressivement jusqu'à atteindre les consignes. Il en découle que l'amplitude des déformations du premier cycle ne correspond pas à la consigne.

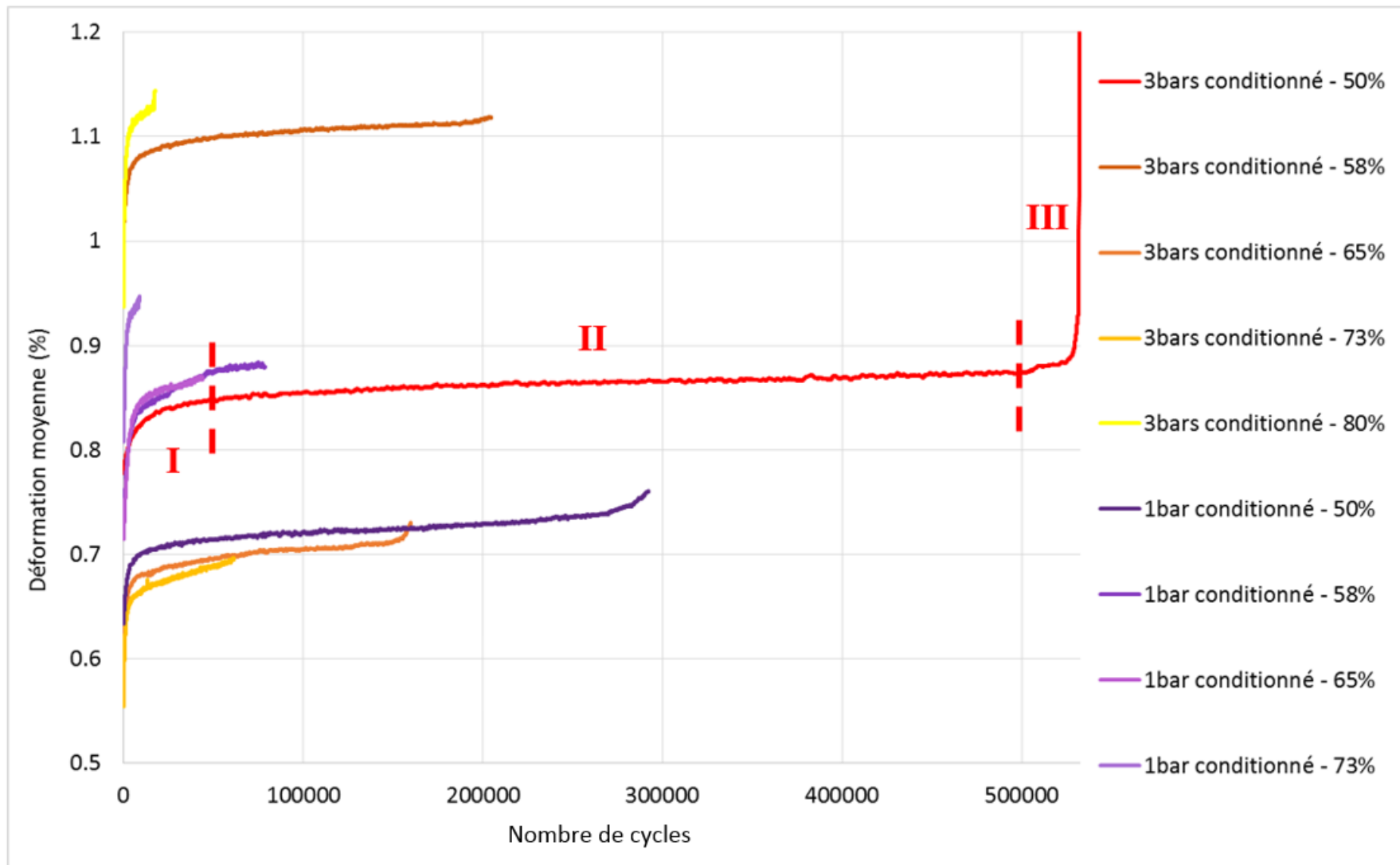


Figure 8.1.2.1.1 : Déformation moyenne en fonction du nombre de cycles en fatigue pour les composites « 1bar conditionné » et « 3bars conditionné » pour différents NC. À titre d'exemple, les zones I, II et III sont définies pour l'échantillon « 3 bars conditionné » à 50 % UTS

Pour pallier le problème lié à la dispersion de la valeur initiale de la déformation moyenne (**figure 8.1.2.1.1**), une normalisation de la déformation moyenne a été effectuée par rapport à la déformation moyenne initiale. La **figure 8.1.2.1.2** résultante synthétise les déformations moyennes normalisées en fonction du nombre de cycles pour les échantillons de la figure précédente. Pour les deux lots, l'augmentation de la déformation moyenne normalisée croît avec le NC. De plus, pour tous les NC appliqués, les « 1 bar conditionné » exhibent une augmentation de la déformation moyenne plus importante que les « 3 bars conditionné » à NC équivalente.

Il reste cependant difficile sur une telle représentation de déterminer avec précision les bornes des zones I, II et III, car les échantillons testés à des NC importants ont une durée de vie bien plus faible que ceux testés à des NC faibles. Certains phénomènes à des NC importants peuvent donc être masqués.

Afin de mieux appréhender les phénomènes qui se produisent à chaque NC, une normalisation du nombre de cycles N_f a également été effectuée. La **figure 8.1.2.1.3** présente ainsi la déformation moyenne normalisée en fonction de la fraction de vie en fatigue pour les mêmes échantillons que précédemment.

Les résultats montrent que la zone I de la déformation moyenne au cours de l'essai se situe dans les 10 premiers pourcents de la fraction de vie, que la zone III apparaît à partir de 95 pourcents de la fraction de vie. Ces bornes des différentes zones ont déjà été observées dans la littérature pour des composites à fibres de lin [65]. Pour un NC à 73 % de l'UTS pour les « 1 bar conditionné » et à 80 % pour les « 3 bars conditionné », la zone I se prolonge jusqu'à environ 20 à 30 % de la fraction de vie.

De plus, le gain de déformation à 90 % de la fraction de vie (soit avant la zone III pour tous les échantillons) est entre environ 12.5 et 25 % pour les « 3 bars conditionné » et entre environ 16 et 22.5 % pour les « 1 bar conditionné » (pour les NC de 50 % à 73 % afin de conserver des grandeurs comparables). Ainsi, pour les NC faibles, les « 3 bars conditionné » exhibent donc un gain de déformation plus faible que les « 1 bar conditionné ». La courbe « 3 bars conditionné » pour le NC à 73 % UTS est cependant supérieure en gain de déformation par rapport au « 3 bars conditionné » pour le NC à 80 % UTS.

Les **figures 8.1.2.1.1 à 8.1.2.1.3** ne permettent cependant pas de déterminer si l'évolution de la déformation moyenne est réversible, irréversible ou avec une partie réversible et une autre irréversible.

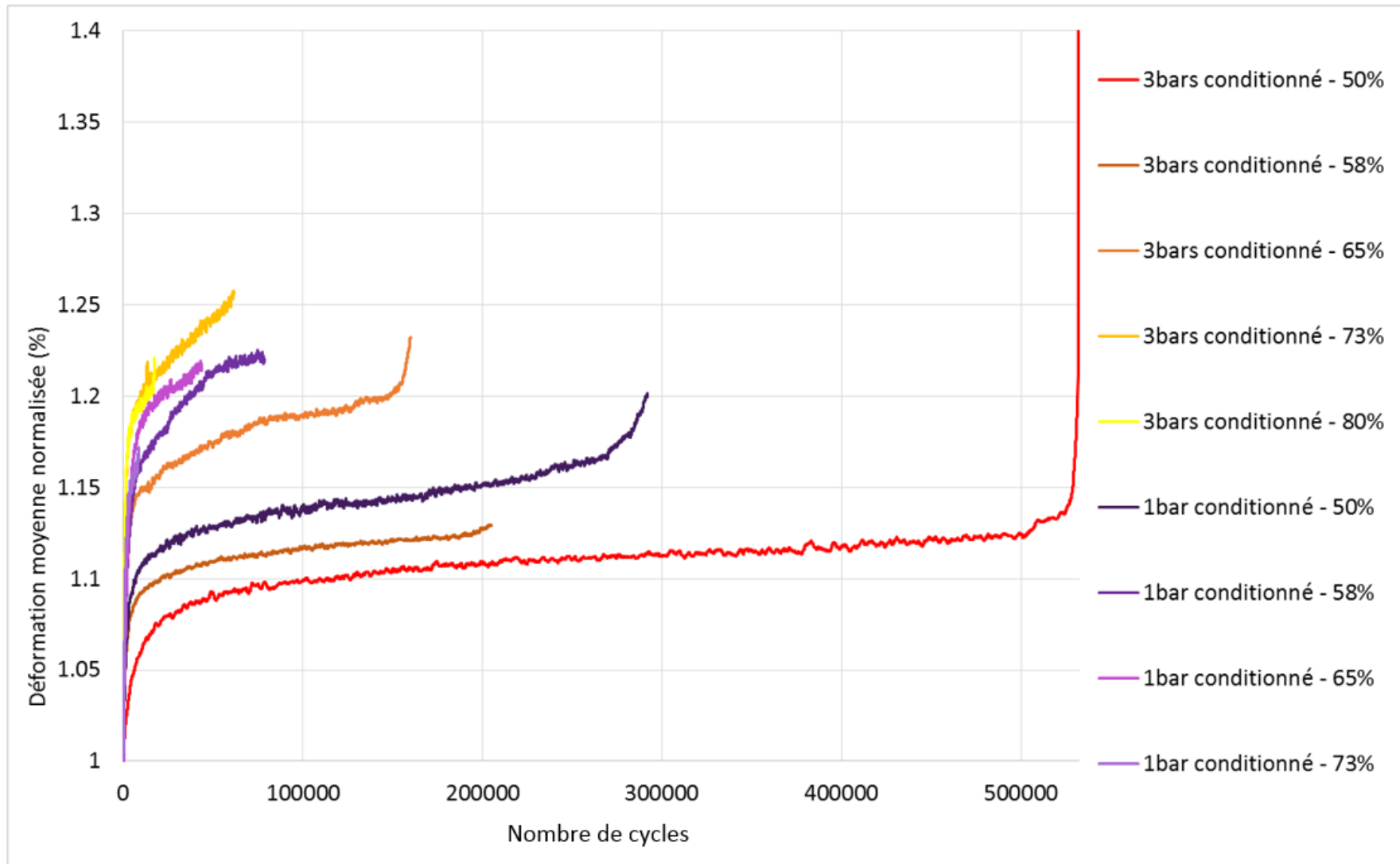


Figure 8.1.2.1.2 : Déformation moyenne normalisée en fonction du nombre de cycles en fatigue pour les composites « 1bar conditionné » et « 3bars conditionné »

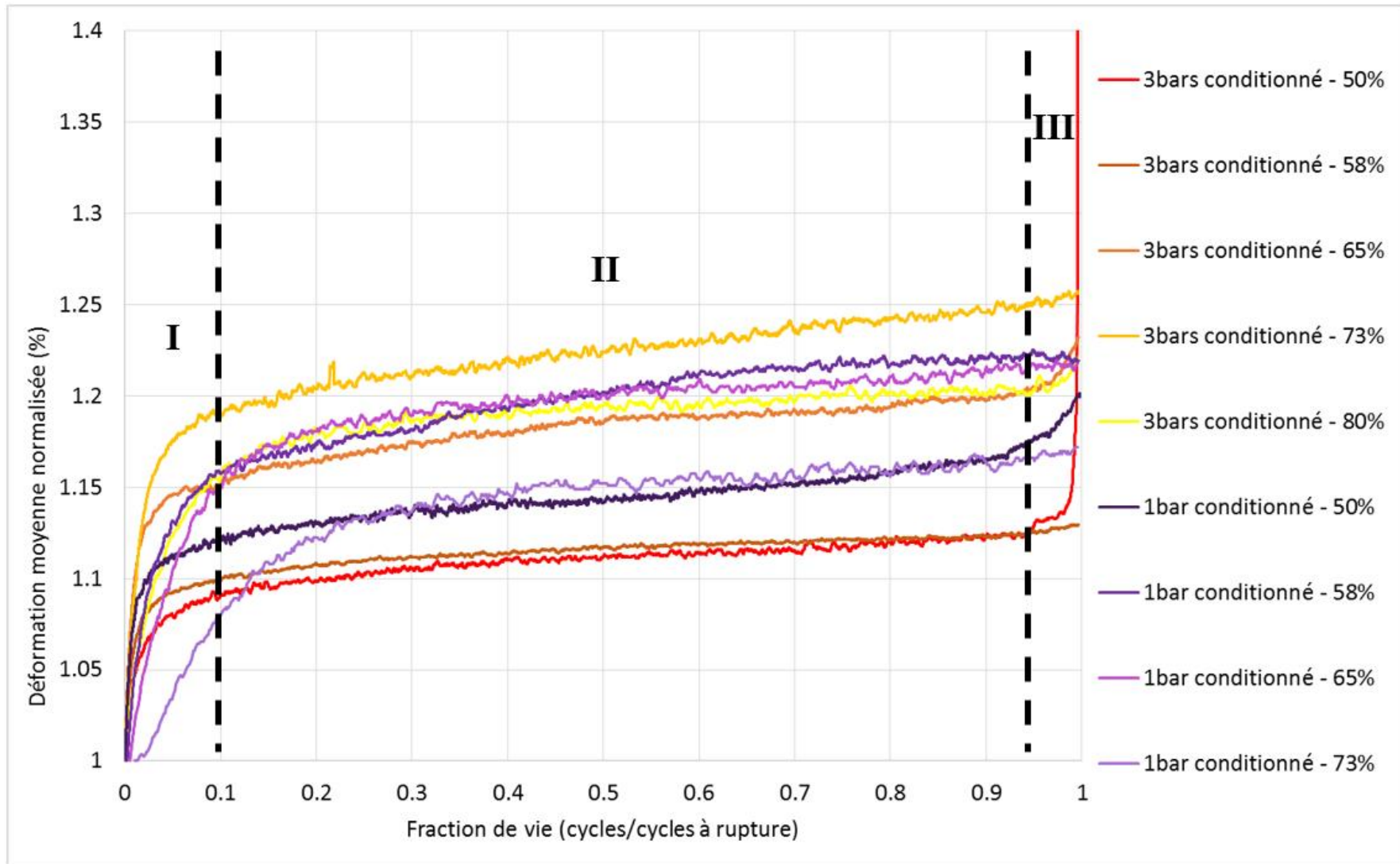


Figure 8.1.2.1.3 : Déformation moyenne normalisée en fonction de la fraction de vie pour les composites « 1bar conditionné » et « 3bars conditionné »

8.1.2.2 – Évolution du module dynamique

La **figure 8.1.2.2.1** présente l'évolution des modules dynamiques au cours de l'essai de fatigue pour chaque NC pour les deux lots de matériaux testés (« 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné »). Les échantillons utilisés sont les mêmes que pour les figures précédentes. Pour rappel, le module dynamique est calculé par régression linéaire à l'aide des points situés aux extrémités d'une boucle de CC.

Le module dynamique des « 3 bars conditionné » augmente de manière importante dans le début de l'essai (zone 1), se stabilise (zone 2) puis diminue fortement avant rupture (zone 3). Sur la figure, ces trois zones sont indiquées pour l'échantillon « 3 bars conditionné » au NC de 50 % UTS. Les courbes du module dynamique des « 1 bar conditionné » en fonction du nombre de cycles en fatigue présente uniquement les deux premières phases. La décroissance avant rupture n'est observée que pour l'échantillon « 1 bar conditionné » pour un NC de 50 % UTS. L'évolution en trois étapes, à l'instar des « 3 bars conditionné », a été observée dans la littérature [65] et est attribuée à des réorientations des fibres au sein du composite et à la rigidification des fibres de lin au cours d'un CC. Cette rigidification est elle-même attribuée à des réorientations des microfibrilles au sein de la structure des fibres [167]–[169] et à une possible cristallisation de la cellulose amorphe induite par les contraintes appliquées [128], [170].

Pour le matériau de cette thèse, il est important de rappeler que les fibres sont parfaitement alignées et unidirectionnelles.

La perte de rigidité à la fin de l'essai est généralement attribuée à des endommagements (ruptures de fibres, décohésions fibres-matrice ...) qui mènent à la ruine. De même que pour la déformation moyenne, la courte durée de vie des échantillons « 1 bar conditionné » aux NV de 50 %, 58 % et 65 % UTS peut masquer cette zone si la zone 3 est réduite. Il est donc intéressant de proposer une représentation en fonction de la fraction de vie.

Les valeurs du module dynamique évoluent entre 24.2 et 28.3 GPa et entre 30 et 34.1 GPa respectivement pour les « 1 bar conditionné » et les « 3 bars conditionné ». Les écarts-types sont plus importants que ceux observés lors du CM pour E_2 . En effet, les valeurs des modules E_2 étaient comprises entre 16.5 et 18.5 GPa et entre 18.8 et 19.6 GPa respectivement pour les « 1 bar conditionné » et les « 3 bars conditionné ». Cette dispersion peut également être due à la non-linéarité de la relation entre le module de rigidité apparent et le niveau de déformation.

Un net écart entre les « 1 bar conditionné » et les « 3 bars conditionné » est cependant observé. La différence est de l'ordre de 18 % à NC équivalent. Comme pour les modules sous CM, ce résultat est attribué à l'écart de taux volumique de fibres entre les deux lots.

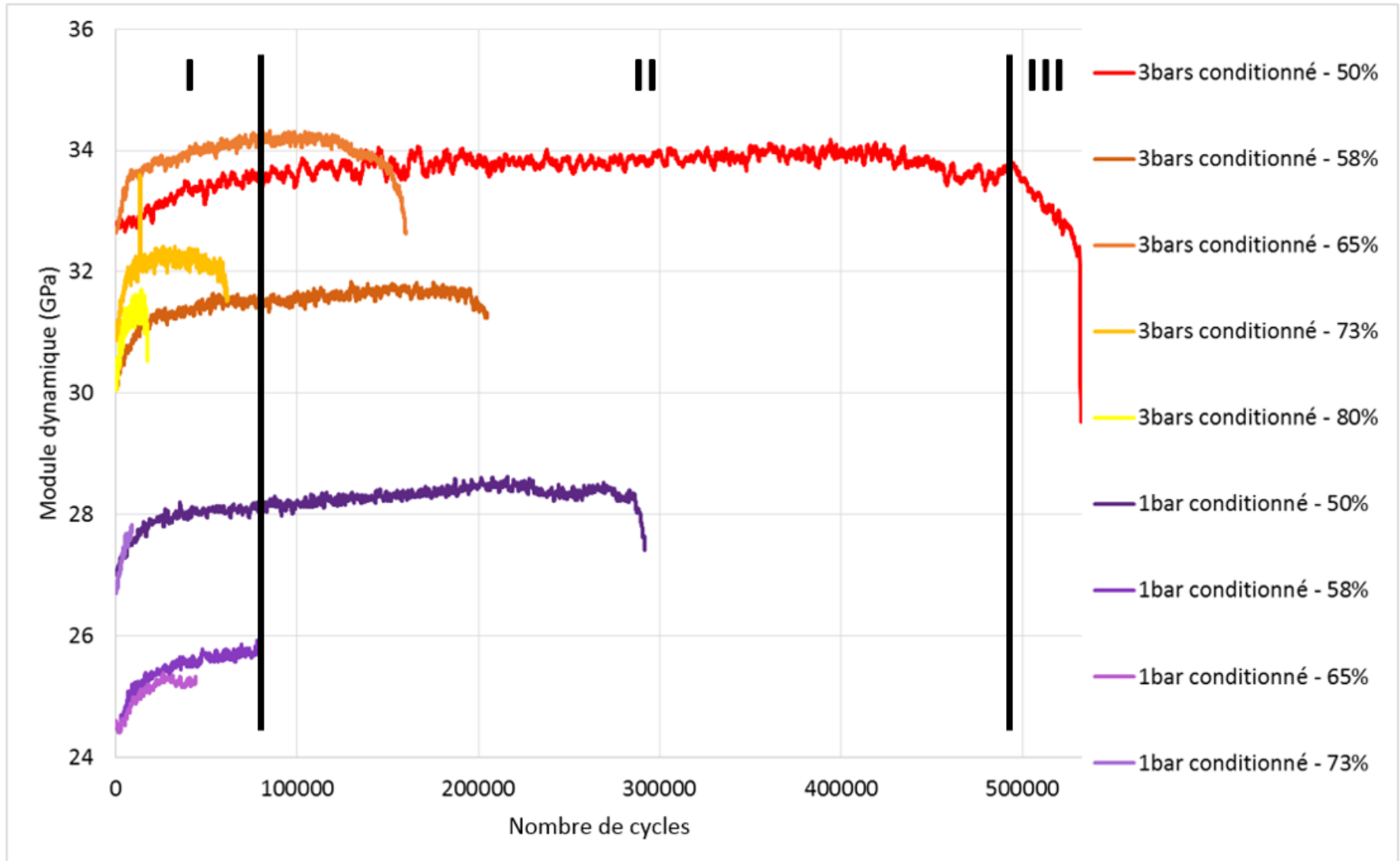


Figure 8.1.2.2.1 : Module dynamique en fonction du nombre de cycles en fatigue pour les composites « 1bar conditionné » et « 3bars conditionné »

La **figure 8.1.2.2.2** récapitule les évolutions du module dynamique en fonction de la fraction de vie N_f pour chaque NC. Les échantillons présentés ici sont les mêmes que dans les figures précédentes.

Les différentes zones (1, 2 et 3) peuvent être identifiées en analysant l'évolution du module dynamique. Effectivement, la zone 1 s'étend jusqu'à environ 20 % de la fraction de vie et la zone 3 débute, suivant les échantillons, entre 85 et 95 % de la fraction de vie. Ces résultats sont en accord avec la littérature [43], où la délimitation entre la zone 1 et 2 se situe généralement entre 10 et 30 % et elle entre la zone 2 et 3, entre 70 et 95 %.

Un gain de module dynamique peut donc être déterminé et sera appelé rigidification par la suite. La rigidification est de l'ordre de 3.2 à 5.8 % pour les « 1 bar conditionné » et de 4.3 à 8.9 % pour les composites « 3 bars conditionné ». En considérant les hypothèses explicitées précédemment par rapport à des données de la littérature, il est possible d'attribuer cette différence au taux volumique de fibres. L'ordre de grandeur observé ici est également en accord avec celui observé dans la littérature [65], [120], [171], avec une rigidification de 7 à 8.5 % sur un composite lin/époxy avec un taux volumique de fibres de 45 % mentionnée dans de précédents travaux [65], et une rigidification de 8% mentionnée dans les travaux d'El Sawi *et al.* [120].

Les différents résultats présentés seront discutés dans la **section 8.1.2.3** « Discussion des résultats ».

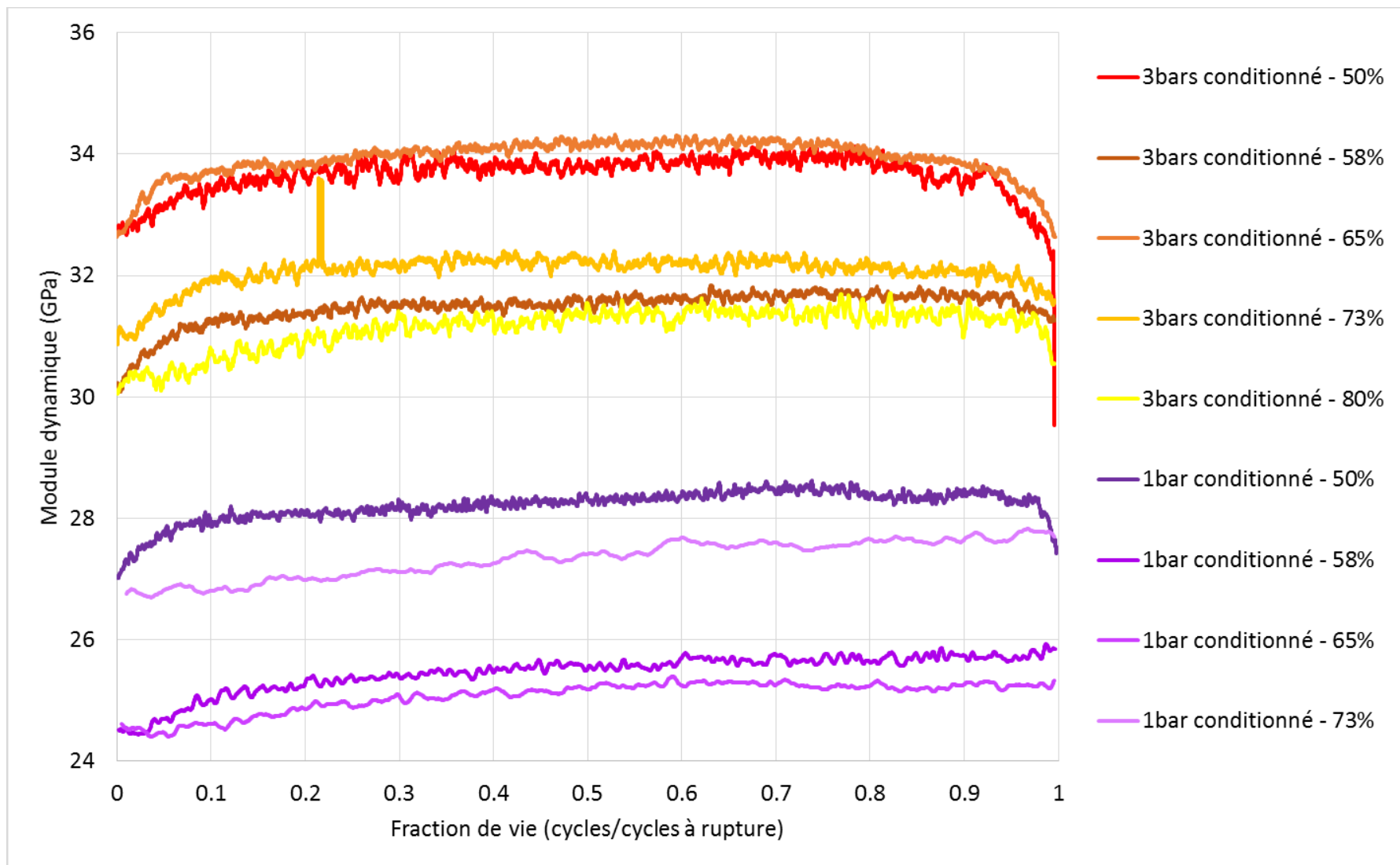


Figure 8.1.2.2.2 : Module dynamique en fonction de la fraction de vie pour les composites « 1bar conditionné » et « 3bars conditionné »

8.1.2.3 – Discussion des résultats

Les différents phénomènes à l'origine des résultats précédents sont donc vraisemblablement du fluage, de l'endommagement et de la rigidification.

Les deux lots (« 1 bar conditionné » et « 3 bars conditionné ») sont exclusivement différenciés par leurs taux volumiques de fibres (respectivement 37.7 % et 51.1 %). Afin d'étudier l'influence de ce taux volumique de fibres, il est important de distinguer l'influence de ce paramètre sur les différentes composantes du comportement global du composite.

L'augmentation de la déformation moyenne lors du cyclage mécanique, en particulier dans les zones I et II (cf. [figure 8.1.2.1.3](#)) est certainement due à l'expression du fluage primaire et secondaire du matériau. Effectivement, pour le ratio de chargement considéré, un chargement de traction est constamment appliqué aux éprouvettes. L'état de l'art proposé dans le chapitre 2 a permis de mettre en évidence l'existence de déformations différées sous chargement constant pour ce type de matériau. Pour les temps et niveau de chargement considérés, il est probable que le régime tertiaire de fluage ne soit jamais atteint. Ainsi, la zone III des courbes de fatigue, montrant une augmentation rapide et parfois brutale de la déformation moyenne en fonction du nombre de cycles est davantage attribuée à des endommagements provoqués par la composante cyclique du chargement plutôt que par sa composante constante.

Par ailleurs, il a également été souligné dans le chapitre 2 que lors du fluage le module d'élasticité de ce type de composite décroît [6], [116]. Or, dans les phases 1 et 2 de fatigue, une rigidification a été observée. Cela indique donc qu'au-delà des mécanismes traditionnels de fluage, pour ce type de matériau et sous chargement cyclique d'autres phénomènes microstructuraux se produisent, permettant ainsi de contrecarrer la perte de rigidité associée au comportement différé.

Le phénomène de rigidification est souvent attribué à des réorganisations structurales au sein de la paroi des fibres. Ainsi, par augmentation du taux de fibres, cet effet devrait apparaître plus important. La rigidification plus importante pour les « 3 bars conditionné » est cohérente avec cette hypothèse. Cependant, aucune observation *in situ* de ces phénomènes au sein des fibres n'a été réalisée dans ces travaux ou dans la littérature, à ma connaissance. De ce fait, même si les résultats sont cohérents avec cette hypothèse, il ne demeure pas moins que celle-ci reste à valider. Quoi qu'il en soit, la rigidification a bien lieu et n'a pas pour origine les endommagements ou le fluage.

Dans de précédents travaux [65], l'activité d'endommagement a été caractérisée. Pour des NC de 50 % UTS, l'activité d'endommagement est constante au cours de la vie du matériau, tandis que pour des NC plus élevés, l'activité d'endommagement est importante au début de l'essai (soit jusqu'à 10 à 20 % de la fraction de vie) puis constante ensuite. Dans la littérature, durant ces deux phases de l'activité d'endommagement, l'activité acoustique est attribuée à des amorces et des propagations de fissures aux interfaces fibre/matrice et fibre/fibre [65], [128]. La rupture implique ensuite une augmentation brève et intense de l'activité d'endommagement dans les derniers instants précédents la ruine. Dans cette dernière phase, l'activité d'endommagement peut être attribuée à la propagation des fissures précédemment amorcées et la rupture des fibres [128]. Sur la [figure 8.1.2.2.2](#), la chute de module dynamique dans la zone III est plus importante pour les « 3 bars conditionné » que pour les « 1 bar

conditionné ». Il est donc possible de penser que l'activité d'endommagement est plus importante pour les « 3 bars conditionné ». Ceci a également été observé dans les figures précédentes, puisque les « 1 bar conditionné » ne présentaient pas forcément la zone III, ce qui implique que les endommagements liés à la rupture sont plus réduits ou davantage liés à un endommagement matriciel et/ou interfacial. Ceci signifie que les endommagements menant à la rupture des « 3 bars conditionné » apparaissent à une fraction de vie plus faible que pour les « 1 bar conditionné ». L'activité d'endommagement peut donc être présumée plus importante pour les « 3 bars conditionné », sans que l'on puisse ici la quantifier.

En revanche, la microstructure présentée dans le chapitre 6 indique une plus grande compaction des fibres les unes par rapport aux autres dans le cas des composites « 3 bars ». Il y a donc plus de contact ou de proximité entre les fibres et plus d'interfaces fibre/fibre. Cette observation est donc cohérente avec l'hypothèse d'augmentation de l'endommagement proposée ici.

En résumé, la rigidification est plus importante avec un taux de fibres plus important. Le taux de fibres est supposé réduire l'effet du fluage. Aussi, l'activité d'endommagement semble supérieure pour les « 3 bars conditionné ». Aux NC élevés, cette hypothèse sur le fluage pourrait donc induire des endommagements supplémentaires plus facilement aux « 1 bar conditionné », plus sensible au fluage, et pourrait dominer les phénomènes d'endommagement, mais aux NC faibles le fluage ne dominerait plus les endommagements et ceux-ci seraient donc plus faibles que pour les « 3 bars conditionné ».

Or, sur la [figure 8.1.1](#), la courbe S-N des « 1 bar conditionné » présente une pente plus faible. Les observations et hypothèses quant aux phénomènes mis en jeu sont donc cohérentes avec l'évolution des courbes S-N, mais restent à considérer avec prudence.

Les origines des phénomènes influençant les propriétés mécaniques en fatigue, explicitées ci-dessus, n'ont pourtant pas toutes pu être confirmées par des observations et caractérisations microstructurales. Les conclusions et observations de la littérature permettent néanmoins de soutenir certaines des hypothèses proposées.

8.2 – Comportement en fatigue à saturation

L'étude du comportement en fatigue en immersion a pour objectif de comprendre les phénomènes mis en jeu et de caractériser les propriétés mécaniques en vue d'une utilisation en conditions réelles en extérieur. De plus, la volonté initiale était de pouvoir analyser l'influence du taux volumique sur les propriétés en fatigue à saturation. Des essais de fatigue en immersion ont donc été réalisés sur des échantillons saturés préalablement. L'immersion *in situ* permet de conserver l'état de saturation afin de garantir un couplage des sollicitations eau-mécanique.

Malheureusement, la campagne d'essai sur les composites « 3 bars saturé » prévue initialement n'a pas pu être réalisée à cause d'une rupture des mors lors du début de cette campagne. Seuls les résultats des composites « 1 bar conditionné » et « 1 bar saturé » sont présentés dans cette section, avec la courbe de Wöhler et les évolutions des propriétés mécaniques au cours des essais de fatigue en immersion *in situ*.

8.2.1 – Courbe de Wöhler

Un diagramme S-N des points expérimentaux en fatigue est présenté sur la [figure 8.2.1](#) aux différents NC pour les « 1 bar conditionné » et les « 1 bar saturé ». Dans le [chapitre 6](#), l'état saturé de ces composites a été caractérisé, avec une saturation à 12 % de gain de masse après une immersion de 26 jours dans de l'eau distillée à 70 °C. Les échantillons « 1 bar saturé » ont donc été saturés au préalable et testés en fatigue en immersion à température ambiante. Il a été ici fait l'hypothèse que le niveau de saturation atteint en immersion à 70 °C ne change pas en immersion à 23 °C.

La résistance en fatigue des échantillons saturés décroît également de manière linéaire en fonction du logarithme du nombre de cycles. Pour le nombre de cycles étudiés (maximum 10^6 cycles) et pour une durée de vie donnée, la résistance des « 1 bar saturé » est inférieure à celles des « 1 bar conditionné ». Ce résultat correspond aux observations du [chapitre 6](#) sous CM jusqu'à rupture, où les UTS atteignaient 272.5 et 202.6 MPa respectivement pour les « 1 bar conditionné » et les « 1 bar saturé » (cf. [tableau 6.4.1.1](#)).

Pour une durée de vie de 10^6 cycles, la résistance maximale est d'environ 120 MPa pour les « 1 bar conditionné » et d'environ 107 MPa pour les « 1 bar saturé », soit respectivement 44 et 52 % de leur UTS). L'ordre de grandeur est cohérent avec les résultats de précédents travaux [65], où la contrainte maximale à saturation dans des conditions hygrothermiques (4 % de gain de masse à saturation) pour une durée de vie de 10^6 cycles est d'environ 155 MPa, soit 47 % de l'UTS.

Pour une durée de vie de 10^6 cycles, la diminution de la contrainte maximale, à saturation par rapport à l'état conditionné, est de 11 %. Néanmoins, la pente de la courbe S-N (c'est-à-dire le coefficient B pour l'expression de type $\log(X) = A + B.Y$ utilisée, cf. Éq. 2.3.2), est plus faible pour les « 1 bar saturé » avec un coefficient B, indiqué dans le [tableau 8.2.1](#), de -0.0461, contre -0.0278 pour les « 1 bar conditionné ».

En prolongeant les modèles logarithmiques comme indiqué en pointillés sur la [figure 8.2.1](#), une résistance maximale de 85.4 MPa serait atteinte pour les deux états pour une durée de vie de $9.42 \cdot 10^6$ cycles si on considère que la limite d'endurance, si elle existe, n'est pas atteinte. Cette résistance maximale correspond à 31 % de l'UTS des « 1 bar conditionné ». Pour une durée de vie inférieure à 10^7 cycles, il reste probable que la limite d'endurance ne soit pas encore atteinte.

Dans des travaux précédents [65], un composite saturé à 70 °C et 90 %HR (pour un gain de masse à saturation de 3.3 %) est moins performant que son homologue conditionné aux NC élevés et plus performants aux NC faibles. Le point de transition entre ces deux phases est observé à environ 200 MPa pour une durée de vie de $6 \cdot 10^4$ cycles. En revanche, les matériaux ne présentent aucune différence d'UTS dans les différents états étudiés [65]. Il est également important de noter que le comportement en fatigue des échantillons saturés, dans les travaux précédents [65], a été attribué à des pertes de propriétés des fibres au cours de la fatigue et à un phénomène de frettage des fibres, gonflées par l'absorption d'eau, dans la résine, permettant de compenser la perte des propriétés mécaniques pour les NC faibles [65]. Or, dans notre étude en immersion, l'UTS à saturation diminue fortement, comme il a été présenté dans le [chapitre 6](#). Il est donc cohérent que la contrainte pour laquelle le composite saturé est plus performant que le conditionné soit plus faible, à condition de l'existence de cette zone. L'effet de frettage évoqué dans de précédents travaux peut cependant induire des modifications du comportement mécanique et sera donc discuté par la suite.

À l'état saturé, les composites exhibent donc des courbes S-N significativement différentes. Pour mieux comprendre l'origine de ces résultats, l'évolution des propriétés mécaniques au cours des essais de fatigue sera développée dans la section suivante.

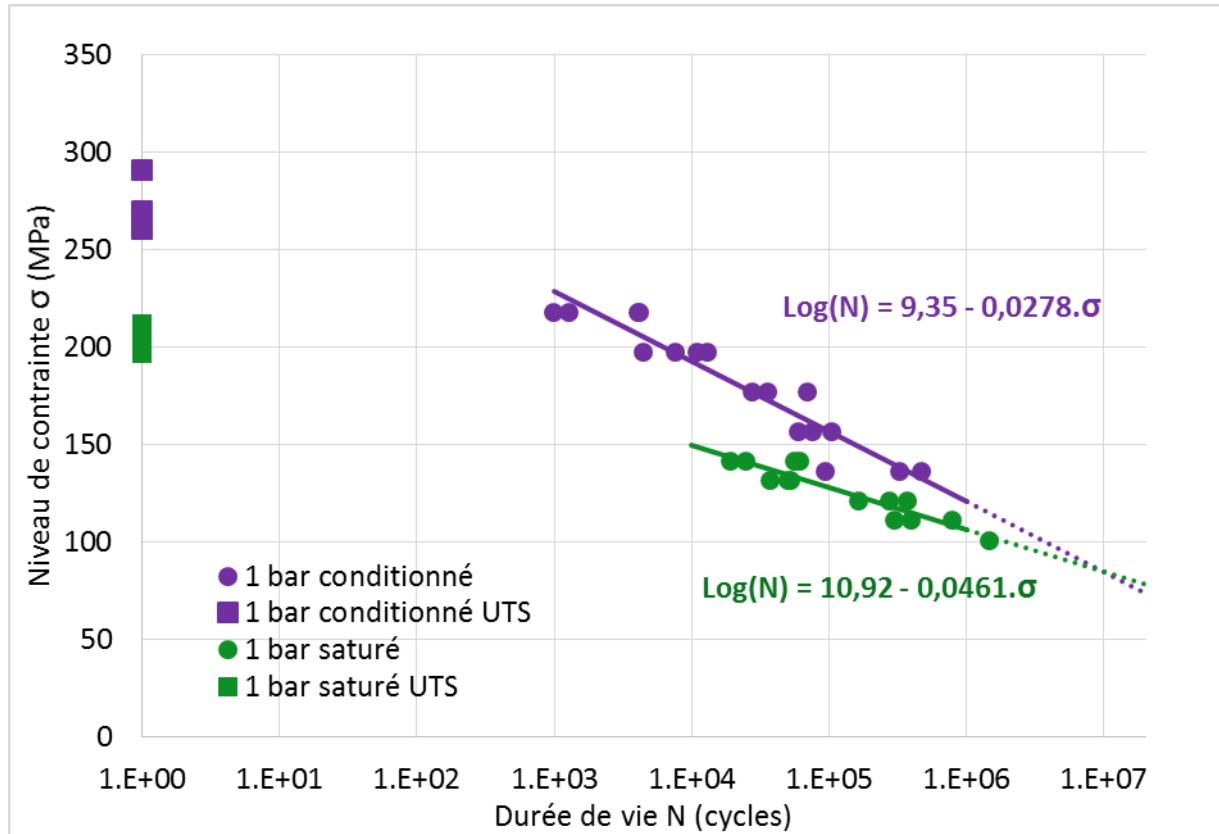


Figure 8.2.1 : Courbe de Wöhler des composites « 1bar conditionné » (violet) et « 1bar saturé » (vert)

| | A | B |
|-----------------------|-------|---------|
| « 1 bar conditionné » | 9.35 | -0.0278 |
| « 1 bar saturé » | 10.92 | -0.0461 |

Tableau 8.2.1 : Paramètres des courbes de Wöhler pour les composites « 1 bar conditionné » et « 1 bar saturé »

8.2.2 – Évolution des propriétés mécaniques au cours de la fatigue

Pour caractériser les différents phénomènes mis en jeu lors des essais de fatigue, il a été mis en évidence dans la section précédente que la déformation moyenne et le module dynamique devaient être analysés.

Dans cette section seront donc présentés les résultats de l'évolution de la déformation moyenne et du module dynamique pour finir sur une discussion quant aux résultats.

8.2.2.1 – Évolution de la déformation moyenne

La [figure 8.2.2.1.1](#) récapitule les déformations moyennes en fonction du nombre de cycles en fatigue pour un échantillon représentatif d'au moins 4 testés à chaque NC. Globalement, deux à trois phases sont observées, avec une augmentation rapide de la déformation moyenne, puis une stabilisation ou une très légère augmentation de la vitesse de déformation et une augmentation de la déformation moyenne rapide avant rupture. Les résultats mettent en évidence une nette augmentation de la déformation moyenne initiale avec la saturation, avec croissance de la valeur initiale en fonction du NC testé. Pour les « 1 bar conditionné », les déformations moyennes initiales sont entre 0.63 % et 0.81 % tandis que celles des « 1 bar saturé » sont entre 0.76 et 1.16 %. Cette augmentation de déformation est cohérente avec les observations sous CM dans le [tableau 6.4.1.1](#), qui a été attribuée à une plus grande déformabilité induite par la plastification par l'eau.

Afin de mieux appréhender l'augmentation de déformation au cours des essais, la déformation a été normalisée, comme proposé précédemment. La [figure 8.2.2.1.2](#) présente donc la déformation moyenne normalisée en fonction du nombre de cycles en fatigue pour les mêmes échantillons. La courbe des « 1 bar saturé » pour chaque NC présente une augmentation de la déformation moyenne inférieure à la courbe des « 1 bar conditionné » équivalente. Il est important de noter que les NC testés ne sont pas les mêmes, suite à des impossibilités techniques de tester les NC supérieurs à 70 % de l'UTS pour les échantillons saturés. Cependant, l'augmentation de déformation des « 1 bar saturé » est suffisamment inférieure à celle des « 1 bar conditionné » pour que la tendance reste nette. Avec la plastification par l'eau augmentant la déformabilité, il peut être surprenant de voir cet effet sur les « 1 bar saturé » en fatigue. Le vieillissement sous sollicitations hydrothermiques a donc un effet contradictoire aux observations réalisées sous chargement monotone du [chapitre 6](#) ou sous chargement statique (fluage) dans la littérature, avec une évolution de la déformation moyenne au cours des essais de fatigue plus faible pour les échantillons saturés que les échantillons conditionnés.

Cependant, les zones I, II et III identifiées dans l'analyse à l'état conditionné sont ici difficiles à voir du fait de la durée de vie faible des échantillons testés aux NC élevés. Pour cela, la durée de vie a été normalisée. Ainsi, la [figure 8.2.2.1.3](#) illustre les évolutions des déformations moyennes des échantillons présentés dans les figures précédentes en fonction de la fraction de vie. Les résultats indiquent que l'évolution de la déformation moyenne présente bien 3 zones, avec la zone I qui s'étend entre 10 et 20 % pour les échantillons saturés. La zone III apparaît de manière plus perturbée sur les courbes, sans doute à cause de problèmes d'acquisition des signaux. Il est néanmoins possible d'estimer la présence de cette zone III pour les échantillons saturés entre 80 % pour des échantillons perturbés et 95 % pour des échantillons non perturbés. Les délimitations de ces zones, pour les « 1 bar conditionné », sont autour de 10 % (zone I à II) et 90 % (zone II à III). Avec la saturation, la zone I semble donc être plus étendue. Cette zone I correspond à des modifications importantes liées aux différents effets mis en évidence dans la [section 8.1.2](#). Le vieillissement sous sollicitations hydrothermiques semble donc induire une modification de la cinétique d'évolution de la déformation moyenne.

Ces résultats feront l'objet d'une discussion dans la [section 8.2.2.3](#).

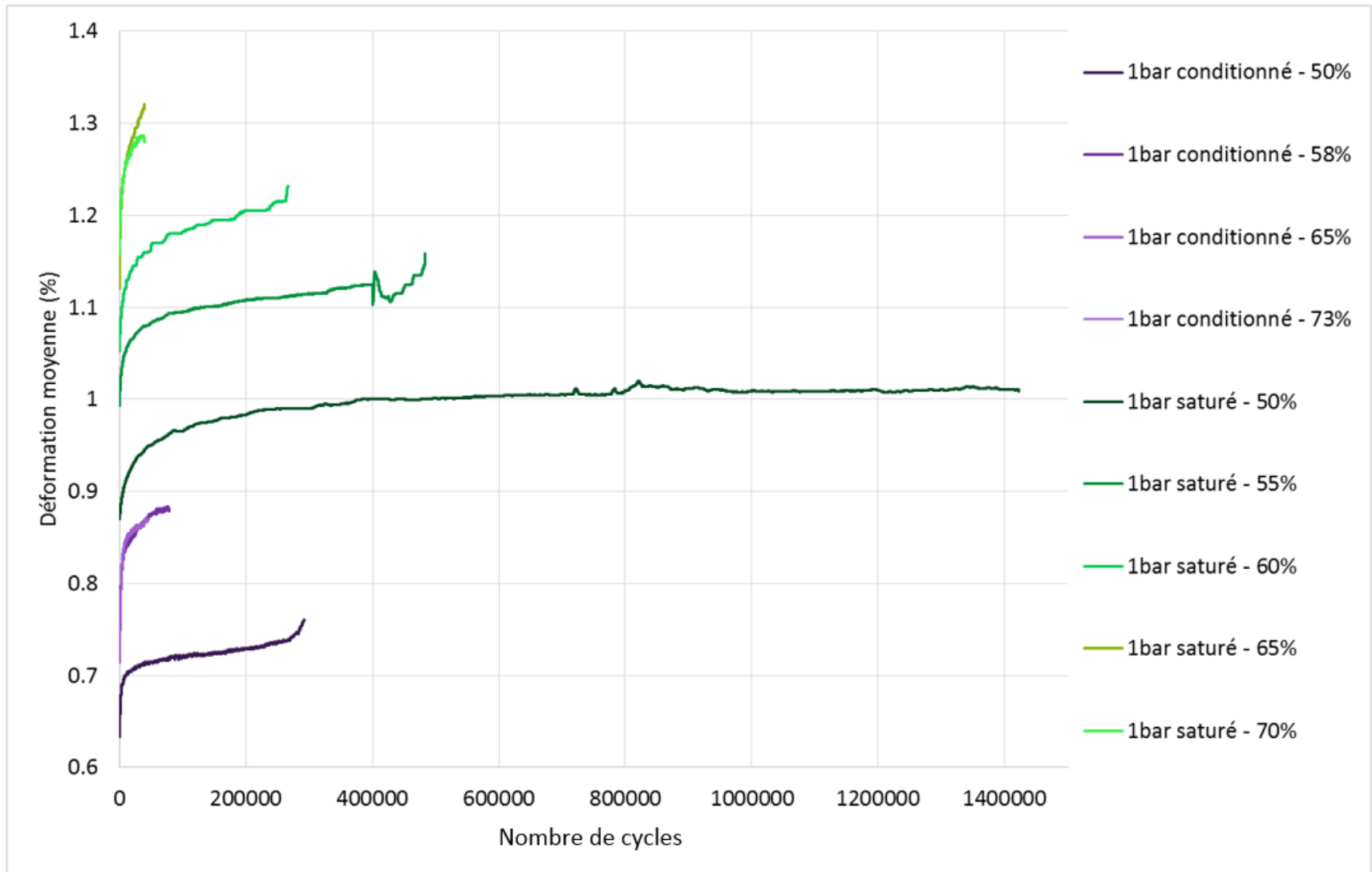


Figure 8.2.2.1.1 : Déformation moyenne en fonction du nombre de cycles en fatigue pour les composites « 1bar conditionné » et «1bar saturé »

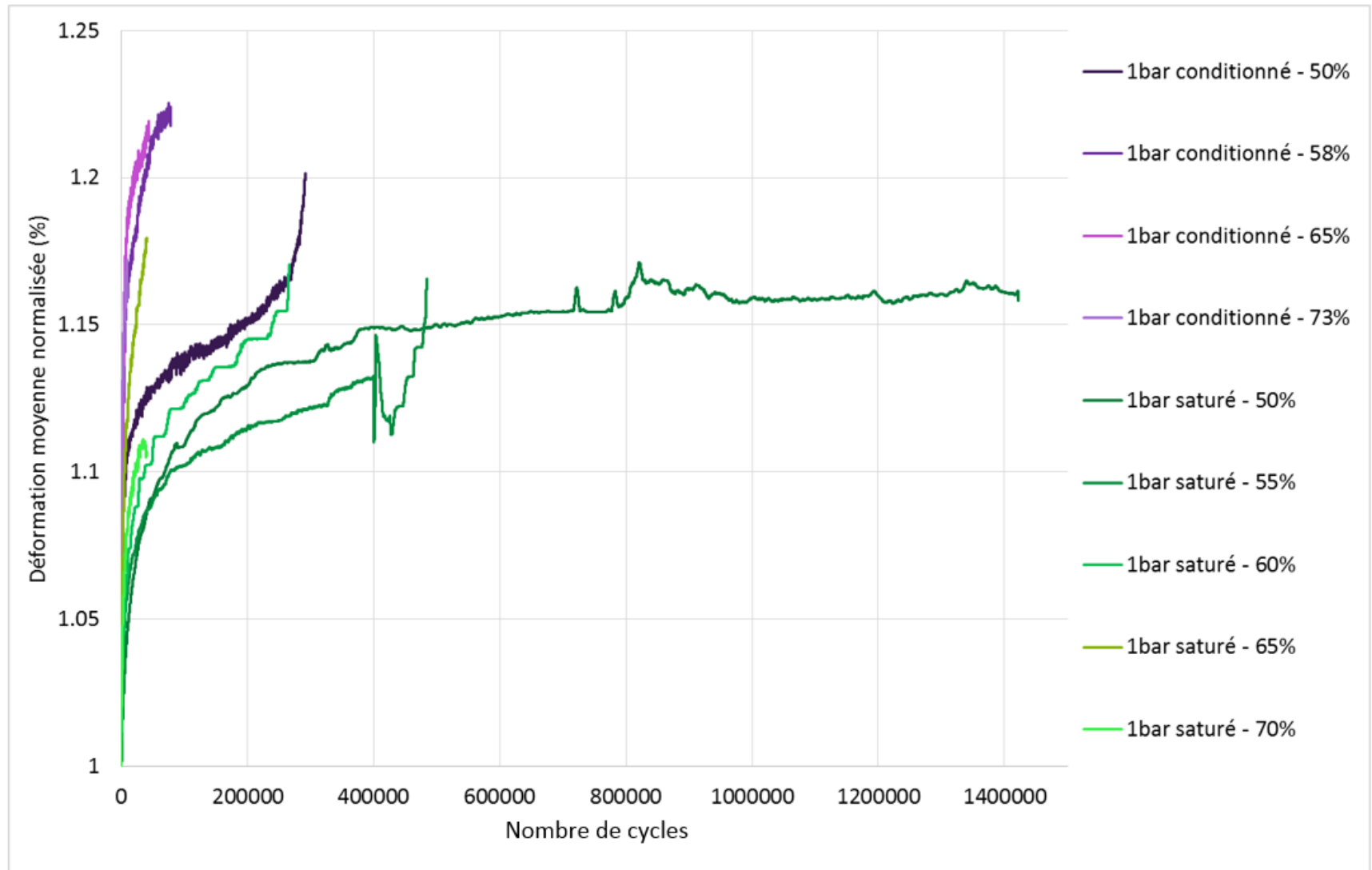


Figure 8.2.2.1.2 : Déformation moyenne normalisée en fonction du nombre de cycles en fatigue pour les composites « 1bar conditionné » et «1bar saturé »

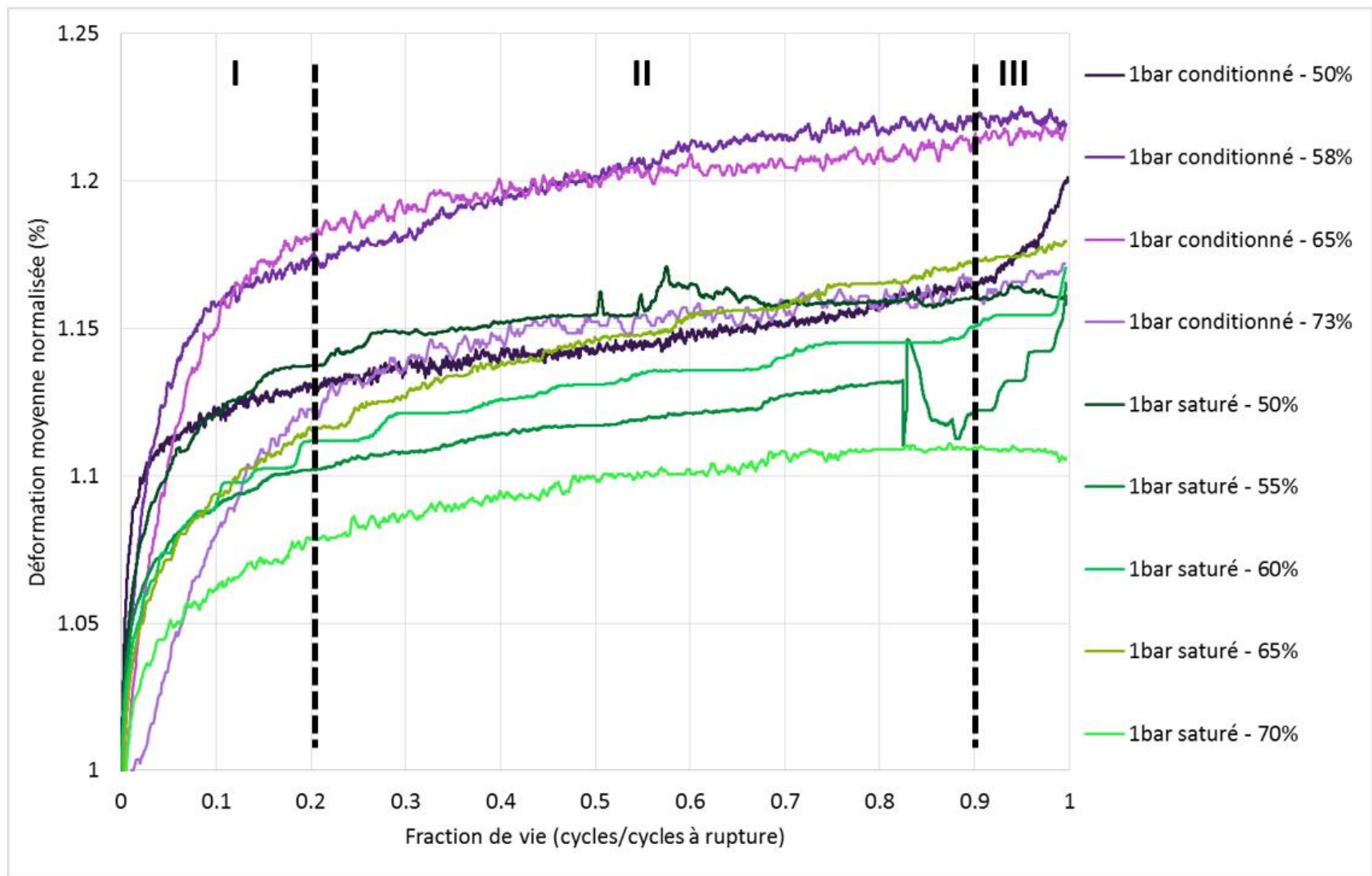


Figure 8.2.2.1.3 : Déformation moyenne en fonction de la fraction de vie pour les composites « 1bar conditionné » et «1bar saturé » avec les zones I, II et III définies pour les échantillons saturés

8.2.2.2 – Évolution du module dynamique

La [figure 8.2.2.1](#) propose une synthèse, pour les échantillons présentés dans les figures précédentes, de l'évolution du module dynamique en fonction du nombre de cycles en fatigue pour les « 1 bar conditionné » et les « 1 bar saturé ».

Le module semble évoluer selon au moins 2 phases, dont une augmentation importante du module dynamique suivi de sa stabilisation. La phase 3 observée à l'état conditionné pour les « 3 bars conditionné » et peu visible pour les « 1 bar conditionné » n'est pas visible sur cette représentation. Une normalisation de la durée de vie peut donc être envisagée.

Cependant, ces résultats montrent déjà une nette diminution du module dynamique initial, avec des valeurs entre 24.2 et 28.3 GPa et entre 12.5 et 15.0 GPa respectivement pour les « 1 bar conditionné » et les « 1 bar saturé ». De plus, l'écart-type des courbes aux différents NC semble se réduire avec la saturation. L'écart de module reste cohérent avec la diminution observée lors d'essais monotones (cf. [tableau 6.4.1.1](#)) attribuée à la perte de rigidité induite par la plastification par l'eau des composants.

Sur la [figure 8.2.2.2](#) est tracé le module dynamique en fonction de la fraction de vie pour les échantillons présentés dans la figure précédente. Les zones I, II et III peuvent être identifiées. Pour les échantillons saturés, la zone I s'étend jusqu'à environ 10 % de la fraction de vie, tandis que la zone III apparaît pour un seul échantillon à partir de 97 % de la fraction de vie. Pour les échantillons conditionnés, la zone III n'apparaît que sur un seul échantillon, mais sur une portion plus grande et semble impacter plus largement le module dynamique avant rupture que pour les « 1 bar saturé ».

Aussi, la rigidification peut être quantifiée. Elle est de l'ordre de 3.2 à 5.8 % pour les « 1 bar conditionné » et de 6.5 à 14.1 % pour les « 1 bar saturé ». Ceci est cohérent avec la littérature [65], où la rigidification des composites a été trouvée augmentée par une saturation en conditions hygrothermiques, avec une rigidification de 7 à 8.5 % à l'état conditionné et de 22 à 32 % à saturation (4 % de gain de masse). Ceci a été attribué à une activation de la rigidification par l'absorption d'eau. Ainsi, la plastification par l'eau des composants peut permettre une réorganisation structurale plus aisée.

Ces résultats seront discutés dans la [section 8.2.2.3](#).

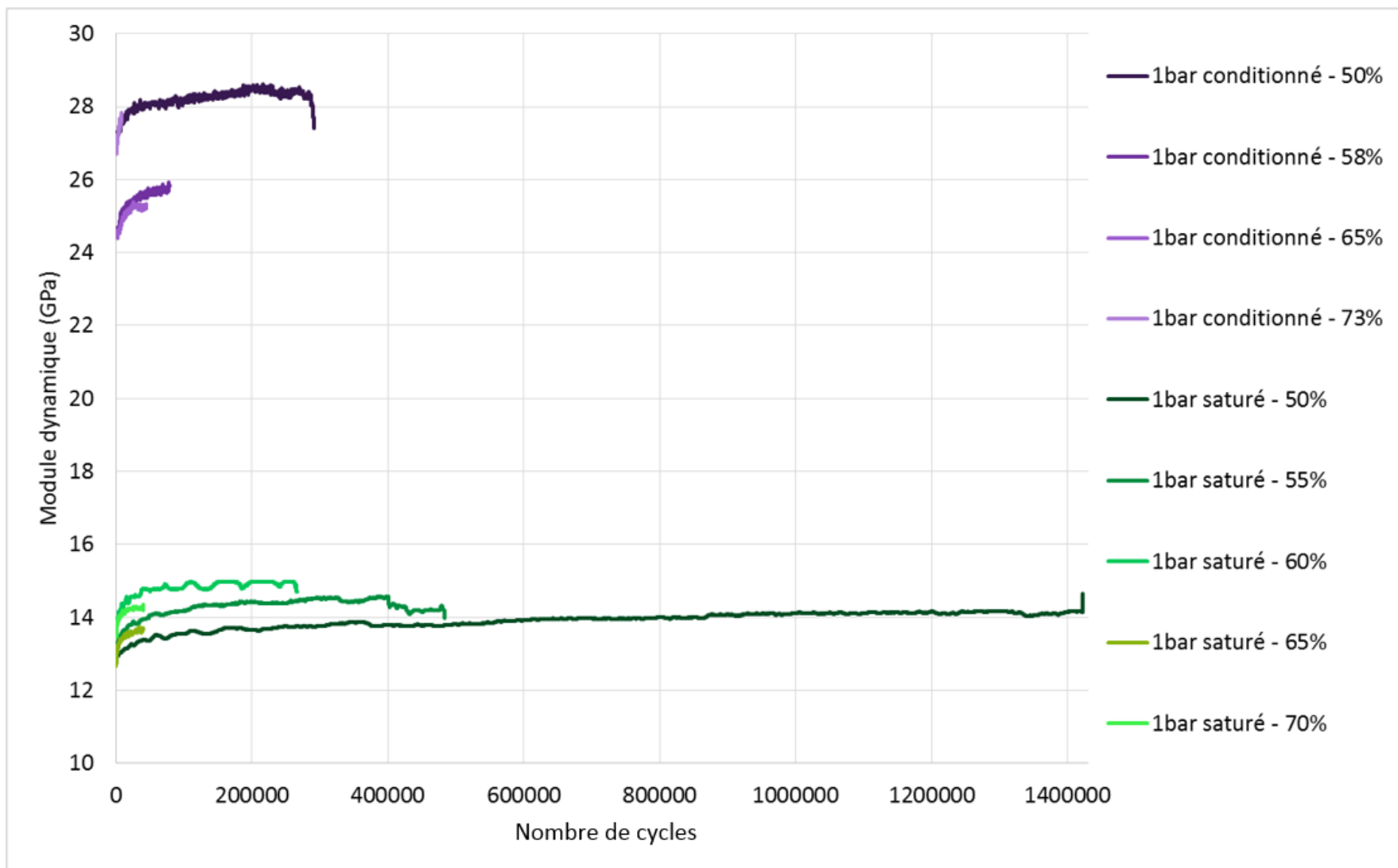


Figure 8.2.2.2.1 : Module dynamique en fonction du nombre de cycles en fatigue pour les composites « 1bar conditionné » et « 1bar saturé »

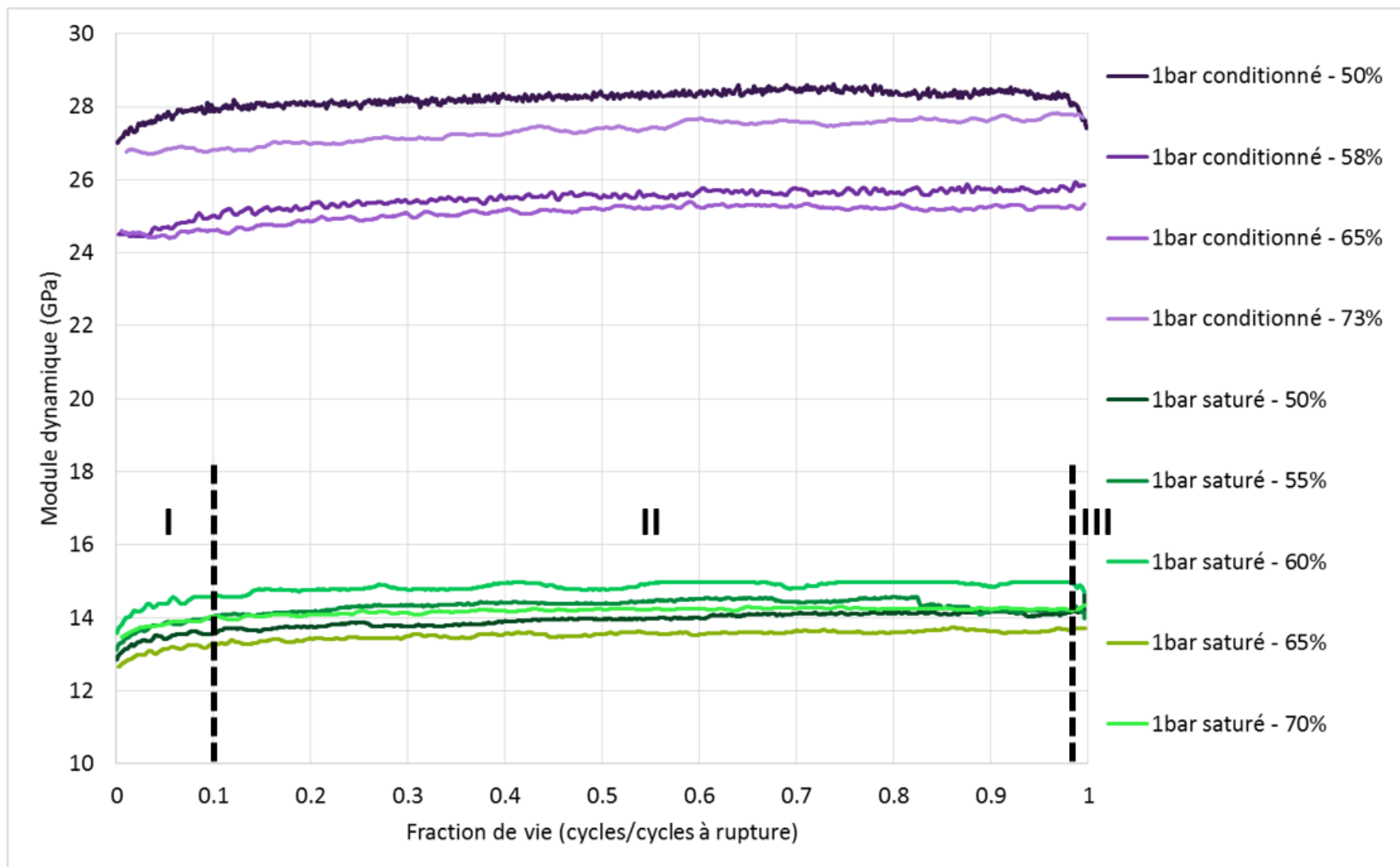


Figure 8.2.2.2.2 : Module dynamique en fonction de la fraction de vie pour les composites « 1bar conditionné » et « 1bar saturé »

8.2.2.3 – Discussion des résultats

Les phénomènes mis en jeu dans la fatigue des composites conditionnés sont également mis en jeu dans la fatigue des composites saturés. Du fluage, de la rigidification et des endommagements sont donc supposés présents. Ceci ne signifie pas qu'aucun autre phénomène ne peut intervenir.

Le phénomène de rigidification est également exacerbé par la prise en eau, comme il a pu être étudié dans la littérature [65]. Ici, la rigidification des échantillons saturés est en accord avec la phénoménologie attribuée, c'est-à-dire une réorganisation structurale facilitée par la plastification par l'eau.

Cette plastification par l'eau induit également une activation du fluage (cf. **chapitre 2**). Cependant, l'évolution de la déformation moyenne ne suit pas la tendance attendue, puisque l'augmentation de la déformation moyenne au cours de l'essai est réduite avec la saturation. Cette évolution surprenante n'est donc pas induite par une activation des phénomènes de fluage par la plastification par l'eau.

Les zones I et II pour la déformation sont toujours attribuées aux zones primaires et secondaires de fluage, à l'instar des composites conditionnés. Cependant, la zone I s'étend sur une plage de fraction de vie plus importante pour les échantillons saturés. La saturation peut donc réduire la cinétique de fluage. De ce fait, il est possible que pour une même fraction de vie, l'évolution de la déformation moyenne soit plus faible pour les composites saturés. Cependant, même cette diminution de la cinétique de fluage va à l'encontre de l'activation du fluage observée dans la littérature. L'endommagement peut être responsable de l'évolution de la déformation moyenne et sera donc étudié, ainsi qu'une compétition plus forte entre fluage et rigidification.

Pour les figures de la déformation moyenne ou bien du module dynamique, la zone III liée à l'endommagement menant à la ruine n'apparaît pas, ou de manière réduite. On peut donc penser que les endommagements sont plus faibles pour les composites saturés. En revanche, il reste important d'identifier les possibles causes de cette réduction des endommagements. Tout d'abord, le matériau saturé est plus déformable, comme il a été montré dans le **chapitre 6** ou encore dans la **section 8.2.2.1**. Les endommagements peuvent donc être réduits, puisque la mobilité macromoléculaire accrue permet aux constituants une déformation locale plus grande avant d'atteindre une déformation menant à des endommagements. Ensuite, un phénomène associé à du frottement des fibres dans la résine par gonflement hygroscopique a été évoqué dans de précédents travaux [65]. Cela permettrait donc d'améliorer l'adhésion fibre/matrice et l'adhésion fibre/fibre. Des observations microscopiques ont mis en évidence, dans ces travaux, des microfissures entre les fibres et à l'interface fibre/matrice dans le cas des composites conditionnés et des microfissures dans la résine et à l'interface fibre/matrice moins nombreuses dans les cas des composites saturés. Ainsi, dans la zone III, ces hypothèses induisent une faible diminution de module dynamique et une faible augmentation de la déformation moyenne pour les composites saturés. Ceci est cohérent avec les observations des **sections 8.2.2.1 et 8.2.2.2**.

Comme l'évolution de la déformation moyenne ne correspond pas à l'évolution attendue par le fluage en immersion, il est possible que l'endommagement soit suffisamment

réduit pour impacter plus fortement la déformation moyenne après vieillissement sous sollicitations hydrothermiques qu'à l'état conditionné.

Ces hypothèses peuvent cependant être discutées, car aucune preuve *in situ* n'a pu être établie, la mesure étant difficile à effectuer.

En résumé, la rigidification est plus importante pour les composites saturés, du fait de la plastification par l'eau. De plus, une réduction des endommagements par un potentiel frettage des fibres dans la résine et par augmentation de la mobilité macromoléculaire induit une évolution réduite de la déformation moyenne. Ces effets couplés permettent donc d'expliquer les évolutions de propriétés observées.

Ainsi, aux NC élevés, les endommagements présents, bien que plus faibles pour les composites saturés, ne peuvent pas compenser la perte drastique de propriétés mécaniques à rupture. Aux NC faibles, la réduction des endommagements peut permettre de compenser en partie la perte de propriétés à rupture. Ceci peut donc expliquer la pente de la courbe S-N des composites saturés. En extrapolant, aux NC très faibles, non testés ici, les endommagements seraient assez faibles pour surmonter la perte de propriétés à rupture et permettraient une augmentation de la durée de vie en fatigue.

La mesure du module dynamique est également à discuter. En effet, elle est effectuée en prenant, pour chaque cycle de chargement, les valeurs aux extrémités des cycles. De ce fait, cette mesure ne prend pas en compte les non-linéarités de comportement.

Sur la [figure 8.1.2](#), l'allure des cycles est quasi-linéaire, avec une aire d'hystérésis faible. Sur la [figure 8.2.2.3](#) sont présentés ces mêmes cycles présents et les cycles équivalents pour un échantillon représentatif des composites saturés, testé pour le NC à 50 % de l'UTS. Les résultats mettent en évidence des non-linéarités, qui correspondent aux non-linéarités après le coude lors du chargement monotone sur les échantillons saturés. Ces non-linéarités rendent la mesure du module dynamique plus délicate. À l'avenir, il serait alors plus judicieux de mesurer plusieurs modules afin de mieux rendre compte de l'effet des non-linéarités observées. Les paramètres d'acquisition n'ont ici permis de n'avoir que les données pour les chargements à 50 % de la contrainte à rupture sous chargement monotone.

Aussi, l'énergie dissipée, notamment du fait de la viscoélasticité et des endommagements, est reliée à l'aire de l'hystérésis de chargement. Le [tableau 8.2.2.3](#) présente donc les aires des hystérésis présentées sur la [figure 8.2.2.3](#) ainsi que les rapports d'aires entre l'aire d'hystérésis et l'aire sous la courbe. Les composites conditionnés présentent donc des aires qui décroissent de 2.4 à 0.6 au cours de l'essai de fatigue, tandis que les composites saturés présentent des aires plus importantes, entre 3.4 et 5.3, sans tendance nette au cours de l'essai de fatigue. La diminution de l'aire des hystérésis des composites conditionnés a déjà été observée dans la littérature [65], [133], [134] et a été attribuée à une diminution de l'activité d'endommagements et à la diminution au cours de l'essai de l'amortissement. Cette diminution de l'amortissement provient des changements microstructuraux des fibres (réorientation des microfibrilles et cristallisation des parties amorphes de la cellulose). Dans de précédents travaux [65], la diminution a également été observée pour les composites saturés à 4 % de gain de masse. Les composites « 1 bar saturé » ne sont donc pas en accord avec ces résultats. Cela provient probablement du fait que la saturation étudiée se trouve à 12 % de gain de masse, soit 3 fois plus. Les effets viscoélastiques peuvent donc être bien plus marqués. En revanche, l'augmentation de l'aire des hystérésis

avec l'absorption d'eau a été observée dans ces travaux [65] et a été attribuée à l'augmentation de l'amortissement induite par l'absorption d'eau.

| État | Cycle | Aire sous la courbe | Aire de l'hystérésis | Rapport des aires (%) (hystérésis / sous la courbe) |
|--------------------|---------|---------------------|----------------------|--|
| Conditionné | 5% vie | 48.0 | 2.4 | 4.9 |
| | 50% vie | 49.3 | 1.8 | 3.6 |
| | 90% vie | 48.6 | 0.6 | 1.1 |
| Saturé | 5% vie | 46.5 | 4.8 | 10.4 |
| | 50% vie | 45.2 | 3.4 | 7.6 |
| | 90% vie | 44.3 | 5.3 | 11.9 |

Tableau 8.2.2.2 : Comparaison des aires sous les courbes et des aires des hystérésis issues de la **figure 8.2.2.3**

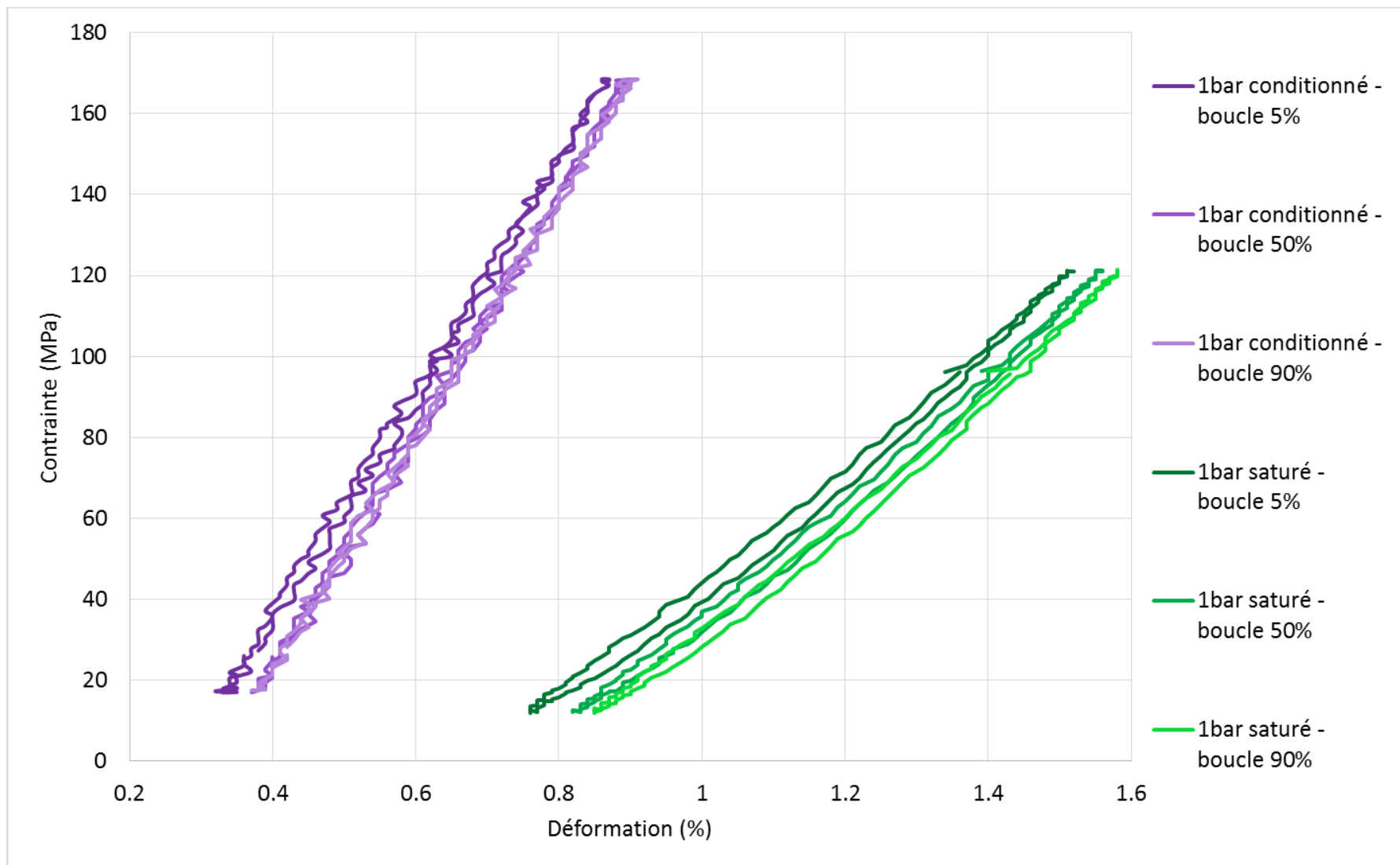


Figure 8.2.2.3 : Cycles de contrainte en fonction de la déformation sous chargement cyclique (CC) à 5 %, 50 % et 90 % de fraction de vie pour l'échantillon « 1 bar conditionné » et « 1 bar saturé » testé au NC de 50 % de leurs UTS respectifs

8.3 – Conclusions et Perspectives

Les résultats présentés dans ce chapitre ont montré que dans le cas d'une application en conditions humides, les composites à fibres végétales ont un comportement qui diffère des composites à fibres synthétiques.

De plus, un taux volumique important a pour effet d'augmenter la durée de vie pour une sollicitation donnée, mais la différence de pente des courbes S-N peut indiquer qu'il existe des taux de fibres qui peuvent être plus avantageux pour certaines contraintes données.

Aussi, la saturation induit des pertes de propriétés importantes, mais pour des niveaux de contraintes faibles, elle peut également induire une durée de vie éventuellement plus grande pour les échantillons saturés. Ceci est particulièrement intéressant pour une utilisation en conditions réelles.

En revanche, des analyses complémentaires sont encore nécessaires pour pouvoir comprendre en détail l'origine des différents phénomènes observés. Notamment, pour aller plus loin dans l'analyse de l'endommagement, des capteurs d'émission acoustique ont été utilisés, mais l'acquisition en immersion a malheureusement été perturbée par des signaux parasites, comme des bruits et vibrations de la machine qui ont été portés par l'eau jusque dans les capteurs. Avec des filtres adéquats, il pourrait être possible, à l'avenir, d'obtenir des informations complémentaires sur les phénomènes d'endommagements menant à la ruine, mais cette solution nécessite encore du développement.

De plus, des observations microscopiques des endommagements n'ont pas été possibles non plus, car la saturation ne pouvait pas être garantie pendant la durée d'observation (ou pendant le processus de préparation des échantillons). Il n'aurait donc pas été possible de dissocier les endommagements liés à la désorption de ceux provoqués au cours de l'essai de fatigue.

En raison d'un incident technique, les composites « 3 bars saturé » n'ont pas pu être testés. Cela aurait pu donner des informations intéressantes quant à l'effet du taux de fibres sur les endommagements provoqués par la saturation et par la fatigue.

En revanche, la campagne d'essai sur les « 1 bar » est un premier pas dans la caractérisation des composites en fatigue *in situ*. Des travaux seront menés par les différents laboratoires impliqués dans cette thèse avec pour objectif de développer les méthodes utilisées et de compléter les analyses.

Chapitre 9 – Comportement statique au cours d'un vieillissement hygrothermique cyclique

Un vieillissement réel d'une structure en extérieur se fera selon des conditions hygrothermiques différentes au cours du temps, alternant une exposition à des conditions humides et des conditions sèches, en plus de la présence d'eau liquide lors d'intempéries. Les sollicitations réelles sont également appliquées pendant de longues périodes temporelles et les dégradations peuvent apparaître après plusieurs années. De ce fait, les sollicitations aqueuses étudiées précédemment peuvent ne pas être représentatives d'un vieillissement réel. De plus, des endommagements supplémentaires ont été mis en évidence dans la littérature (cf. [chapitre 2](#)) lors de sollicitations hygrothermiques ou hydrothermiques cycliques. L'objectif est donc d'appliquer un vieillissement hygrothermique cyclique dans des conditions sévères afin d'étudier les phénomènes en jeu.

Cette étude sera réalisée sur les composites « 3 bars ». Pour rappel, leur taux volumique de fibres est de 51.1 % et leur taux volumique de porosités est de 2.1 %. Les propriétés de ce matériau avant vieillissement ont été présentées dans le [chapitre 6](#).

Dans ce chapitre, la méthode de vieillissement sera présentée. Ensuite, les propriétés au cours du vieillissement seront suivies. Enfin, les propriétés mécaniques après vieillissement seront évaluées et discutées.

9.1 – Méthode de vieillissement cyclique en conditions hygrothermiques

Le vieillissement cyclique a été réalisé dans une enceinte climatique Weiss WKL 34/+10 ([figure 9.1.1](#)) à 70 °C, pour respecter la température utilisée lors de l'immersion pratiquée dans le [chapitre 6](#). Les conditions hygrothermiques ont été choisies par rapport aux capacités de régulation hygroscopiques de l'enceinte climatique à cette température. Deux hygrométries H1 = 90 % HR et H2 = 15 % HR sont donc utilisées.

Chaque cycle, d'une durée totale de 4 jours, est composé d'un demi-cycle de 2 jours d'absorption à H1 et d'un demi-cycle de 2 jours de désorption à H2.

Toute sortie en cours de vieillissement a été d'une durée inférieure à 5 minutes, permettant la réalisation de l'ensemble des essais non destructif de suivi de la prise en masse et des propriétés mécaniques par analyse vibratoire. Cette sortie, de durée aussi courte que possible, sera considérée comme négligeable sur les états de sorption.

Les essais ont été réalisés périodiquement au cours du vieillissement, soit après 4 cycles et 9 cycles. Dans la littérature, une stabilisation des propriétés mécaniques avait été observée à partir de 12 cycles en immersion [62] et à partir de 5 cycles pour des conditions hygrothermiques [61]. Il a donc été choisi initialement de réaliser 13 cycles, car il a été estimé que dans des conditions hygrothermiques, la stabilisation apparaîtrait avant le nombre de cycles nécessaire en immersion, mais un problème technique survenu après 11 cycles n'a pas pu permettre l'analyse à 13 cycles. Les différentes consignes au long du vieillissement sont récapitulées sur la [figure 9.1.2](#). Le cycle 7 apparaît perturbé, avec une absorption à 90 %HR pendant 96 heures et une désorption à 15 %HR pendant 72 heures. Cela provient d'un incident technique lors de l'absorption et, par contrainte calendaire, à un retour progressif aux cycles normaux.



Figure 9.1.1 : Enceinte climatique Weiss WKL 34/+10 pour le vieillissement cyclique hygrothermique

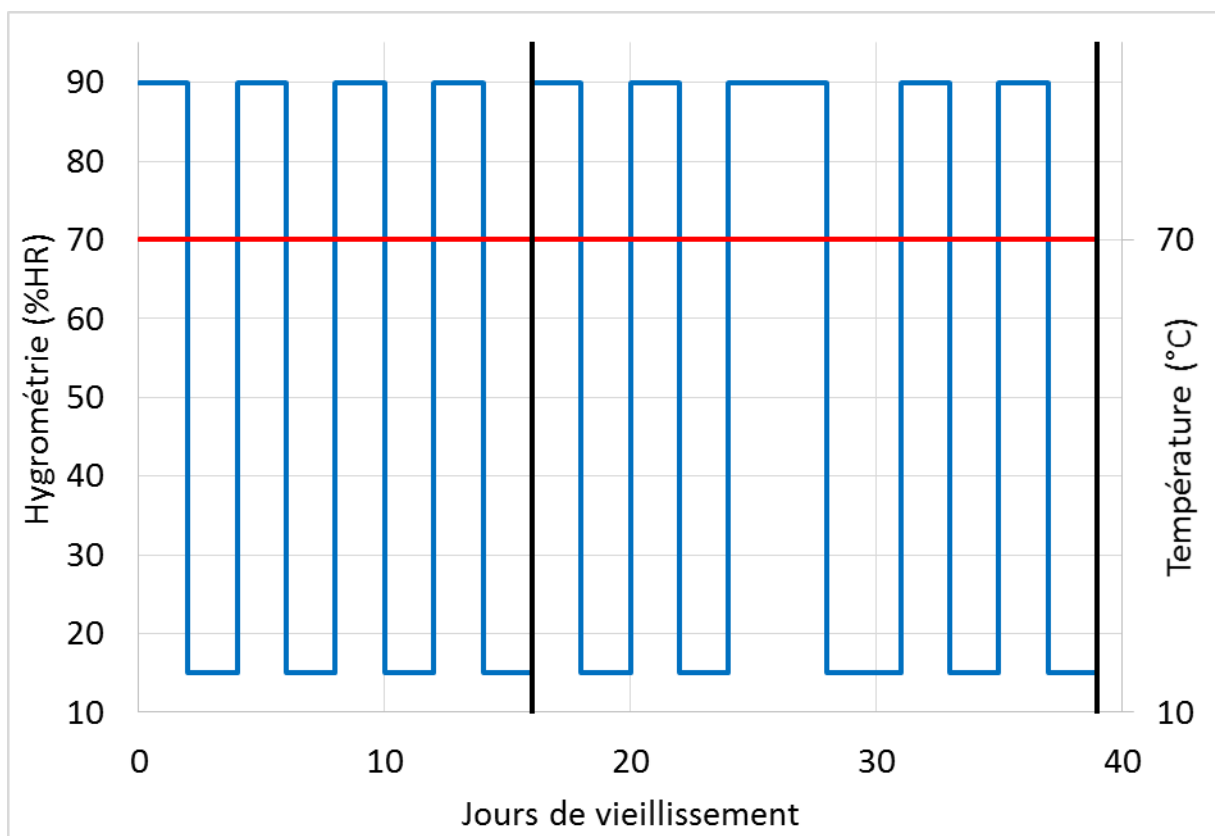


Figure 9.1.2 : Consignes de vieillissement cyclique hygrothermique appliquées aux échantillons au cours du temps (température en rouge, hygrométrie en bleu)

9.2 – Suivi des propriétés au cours du vieillissement

Dans cette section, le suivi des propriétés au cours du vieillissement sera effectué à l'aide d'analyse modale en vibrations libres. Les propriétés étudiées ici seront donc le module vibratoire et l'amortissement.

Sur la [figure 9.2.1](#), les points expérimentaux de prise en masse des échantillons de composite « 3 bars » en fonction de la durée de vieillissement sont représentés ainsi que les consignes en humidité pour rappel. Le cyclage appliqué y est également récapitulé. Le gain de masse atteint 4 % après les phases d'absorption, tandis que la perte de masse après les phases de désorption tend vers une décroissance progressive jusqu'à une asymptote à environ 1.2 % de perte de masse. Le matériau évolue entre ces limites, qui ne représentent cependant pas une saturation, que ce soit en absorption ou en séchage. Effectivement, si la durée d'exposition à une phase d'absorption ou de désorption, le gain de masse va croître encore (absorption) ou décroître encore (désorption).

La prise en masse lors du premier cycle de sorption est représentée sur la [figure 9.2.2](#) en fonction de la racine carrée du temps. Cette dernière est proportionnellement linéaire à la racine carrée du temps ce qui tend à confirmer que la diffusion suit une loi de Fick. De plus, ces résultats montrent que la prise en masse n'a pas encore atteint de palier de saturation. Le gain de masse atteint (4 %) est donc dans l'intervalle de [0 % ; 60 %] de la valeur à saturation.

Sur la [figure 9.2.1](#), un gain de masse négatif (perte) traduit le fait que l'échantillon initial est dans un état conditionné à 23 °C et 50 %HR. Les conditions appliquées entraînent en effet une perte de masse lors des phases de désorption par rapport à l'état de départ (23 °C/ 50 %HR). Ceci était attendu dans la mesure où l'humidité imposée durant la phase de désorption est particulièrement basse. On parlera de phase de séchage. Ainsi, au cours d'un même cycle, l'échantillon passera d'un état où il sera gorgé d'eau à un état asséché tout en restant éloigné des capacités maximales (seuil de saturation ou seuil d'assèchement) du composite.

Après chaque phase d'absorption, un même niveau de gain de masse est atteint, tandis qu'après séchage, une diminution du gain de masse jusqu'à tendre vers un seuil (différent du seuil d'assèchement).

Ces résultats indiquent qu'après chaque cycle, de plus en plus d'eau est évacuée jusqu'à une stabilisation. Inversement, après chaque séchage, un peu plus d'eau est absorbée. Ces phénomènes peuvent être liés à des endommagements (décohésions lors du séchage avec plasticité de la résine). Ces endommagements accélèrent les phénomènes [62], par transport privilégié dans des zones libres générées ou par capillarité dans ces zones, suivant la taille des endommagements créés. Les phénomènes peuvent également être liés à un gradient plus important qui peut entraîner une cinétique plus importante.

Ensuite, la [figure 9.2.3](#) récapitule l'évolution du module vibratoire en fonction des cycles de vieillissement hygrothermiques. Pour les états après les phases d'absorption (points du bas sur la figure), il est possible de voir une diminution au cours des premiers cycles suivis d'une stabilisation au cycle 4 au minimum. Les valeurs sont comprises entre 22 et 25 GPa pour les différents cycles. Pour les états après les phases de désorption (points en haut de la figure), une diminution faible (de environ 31.5 GPa à 29.5 GPa) apparaît également après le premier cycle, mais le module pour ces états « secs » semble se stabiliser ensuite. La différence est principalement due à la teneur en eau, qui plastifie le matériau et réduit sa rigidité, comme il a pu être observé dans le [chapitre 6](#).

De plus, en séchant le composite, une augmentation de la rigidité pourrait être attendue. Il est cependant observé une diminution de la rigidité. Les endommagements, présentés précédemment pour expliquer l'évolution du niveau de séchage, peuvent être

responsables de cette perte de rigidité, avec des décohésions fibre/matrice et de la plasticité de la résine autour des fibres.

La **figure 9.2.4** présente l'évolution de l'amortissement au cours du vieillissement cyclique. En considérant les écarts-types observés, les états humides (valeurs d'amortissement hautes globalement entre 1.4 et 1.6) et les états secs (valeurs basses globalement entre 0.8 et 1.2) semblent stables au cours du vieillissement. Un écart entre les états secs et humides de l'ordre de 50 % est observable, ce qui traduit une augmentation de la viscoélasticité observée également dans le **chapitre 6**.

Ce vieillissement ne semble donc pas impacter de manière significative les propriétés dynamiques (aux faibles déformations), ce qui peut être intéressant pour l'application considérée.

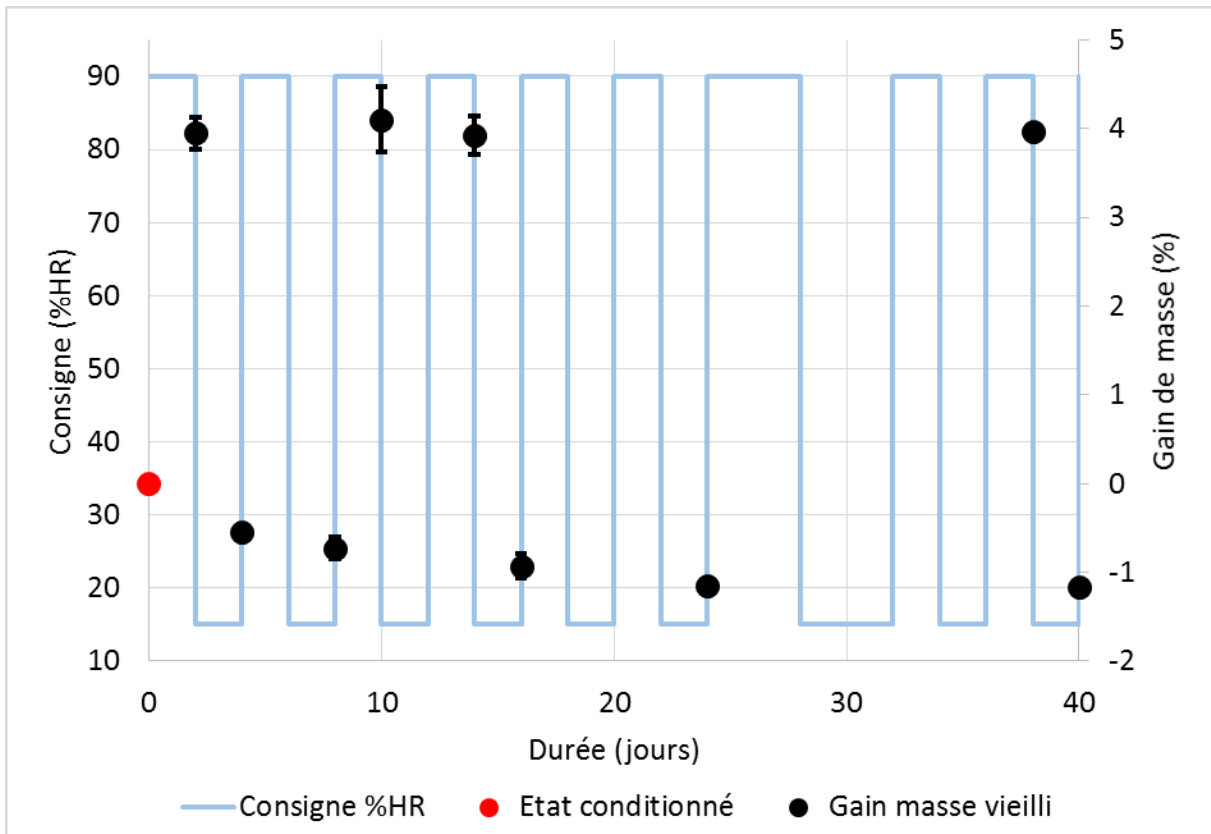


Figure 9.2.1 : Évolution du gain de masse en fonction des cycles de vieillissement sous sollicitations hygrothermiques

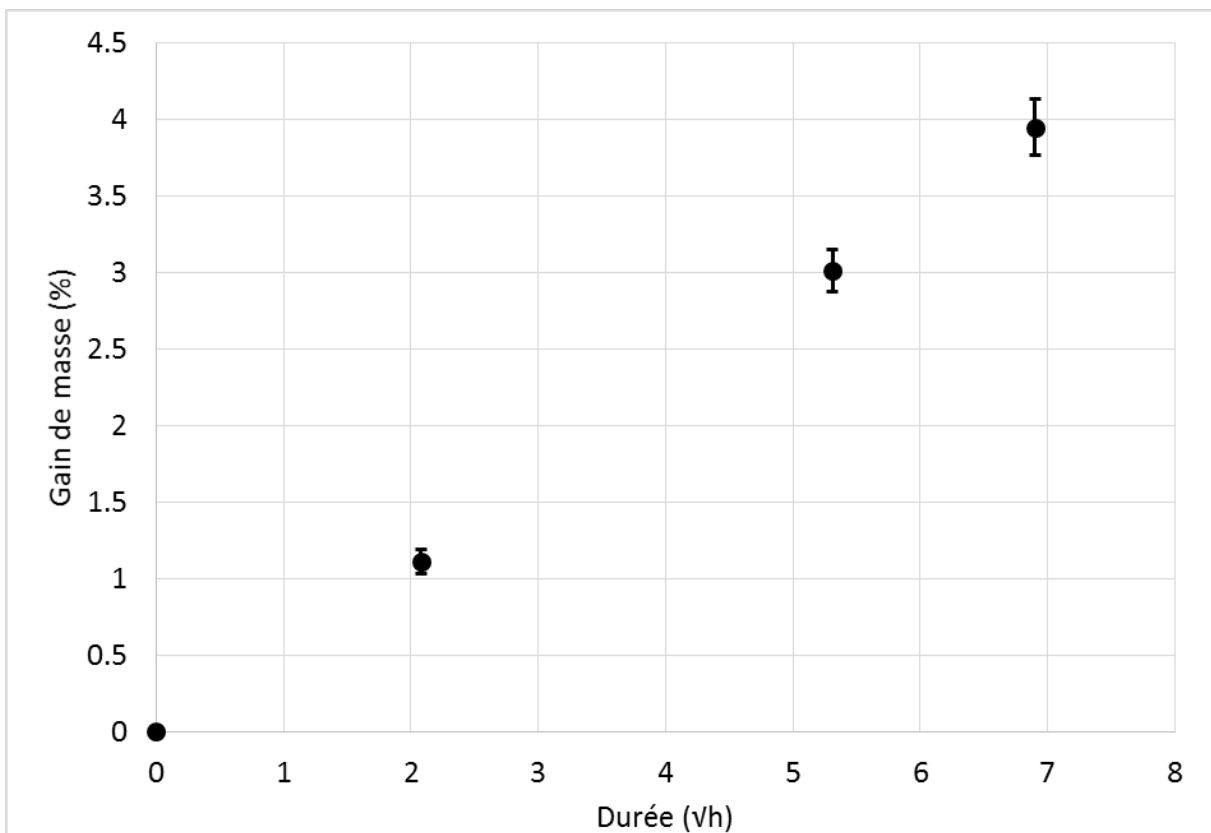


Figure 9.2.2 : Évolution du gain de masse en fonction du temps au cours du premier demi-cycle d'absorption

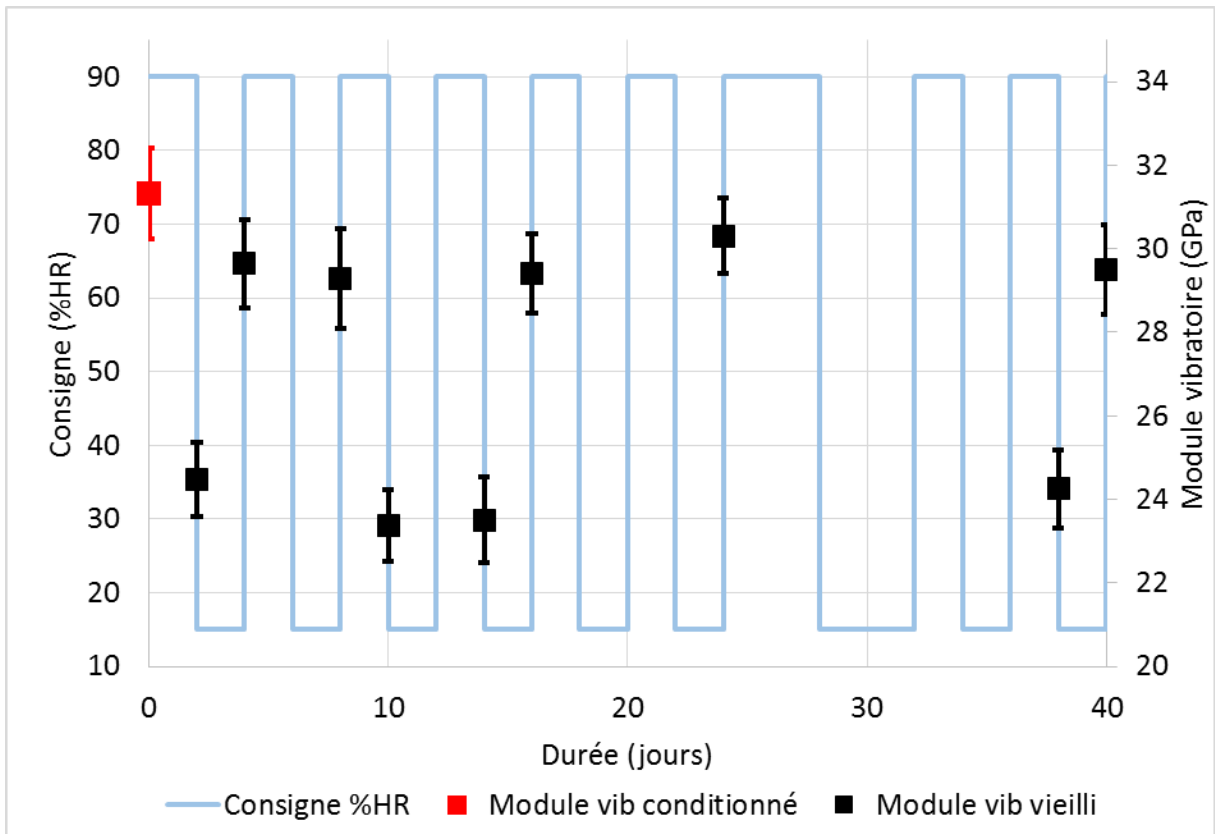


Figure 9.2.3 : Évolution du module vibratoire en fonction des cycles de vieillissement sous sollicitations hygrothermiques

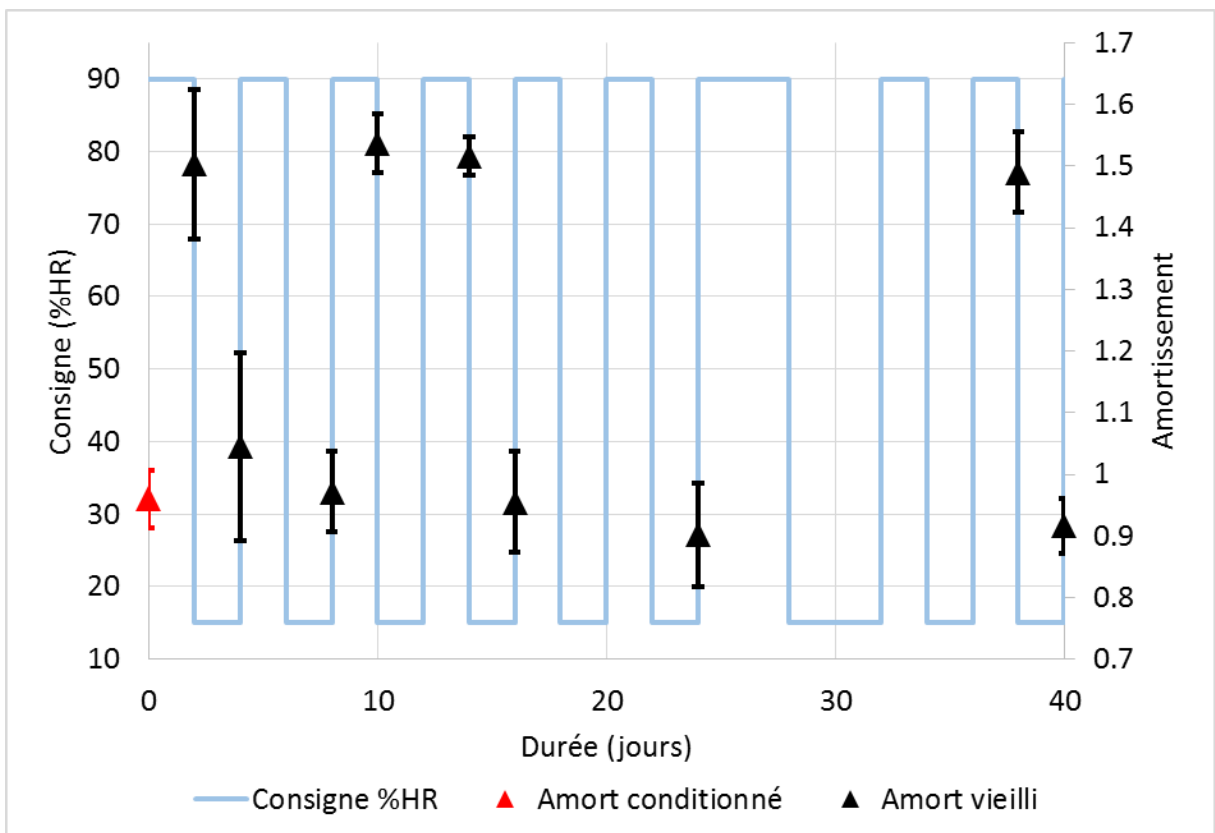


Figure 9.2.4 : Évolution de l'amortissement en fonction des cycles de vieillissement sous sollicitations hygrothermiques

9.3 – Évolution des propriétés mécaniques après 4 et 9 cycles de vieillissement

Des essais après 4 et 9 cycles ont été réalisés. Ils sont représentés sur la [figure 9.1.2](#) par un trait noir vertical, pour référence. Du fait du nombre limité d'échantillons, seuls ces deux états de vieillissement seront analysés dans cette section. Ces états seront donc toujours issus d'une phase de désorption, qui est le dernier demi-cycle subi avant essai, donc les échantillons seront dans un état « sec ».

La [figure 9.3.1](#) décrit le comportement mécanique lors d'un essai de traction monotone dans différents états du composite « 3 bars ». Pour chaque état, 4 échantillons ont été testés. Une seule courbe est présentée pour chaque état pour améliorer la lisibilité de la figure. L'échantillon présenté est considéré comme représentatif du lot considéré. Les résultats montrent un comportement initial affecté par le vieillissement, avec un pied de courbe qui marque une baisse de module aux faibles déformations. Ceci est cohérent avec la perte de module vibratoire observée précédemment. Aux grandes déformations, le module E_2 semble moins impacté, contrairement aux composites saturés en immersion dans la [section 6.4](#). Ceci est confirmé par la [figure 9.3.2](#) qui présente l'évolution des modules tangents des courbes de la [figure 9.3.1](#) pour les différents états considérés. Dans la zone des faibles déformations correspondant aux pieds des courbes de la [figure 9.3.1](#), la [figure 9.3.2](#) met en évidence un module initial faible qui croît progressivement jusqu'à atteindre une valeur pic. Une décroissance (présence d'un coude) de ces modules puis une stabilisation sont observées, comme pour le cas des échantillons conditionnés.

Les essais ont été réalisés après une phase de désorption, les composites vieillis contiennent donc moins d'eau que le composite dans l'état conditionné. Les fibres sont donc potentiellement plus cassantes et l'interface fibre-matrice peut être dégradée.

Le phénomène au niveau du pied de courbe de traction sur les composites ayant subi 9 cycles de vieillissement, avec une pente faible puis une augmentation très forte, avant même le coude classiquement observé sur les autres composites, est reproductible sur les différents échantillons testés. Cet effet apparait aussi pour les échantillons vieillis pendant 4 cycles, mais de manière moins exacerbée.

Il peut s'agir d'un effet du séchage, avec des transmissions faibles des efforts entre les fibres, du fait d'interfaces fibre/matrice dégradées par les cycles de sorption/désorption. Des analyses supplémentaires seraient nécessaires pour identifier plus clairement l'origine de ce phénomène, dont des observations microscopiques pour mettre en évidence d'éventuels endommagements au sein du matériau.

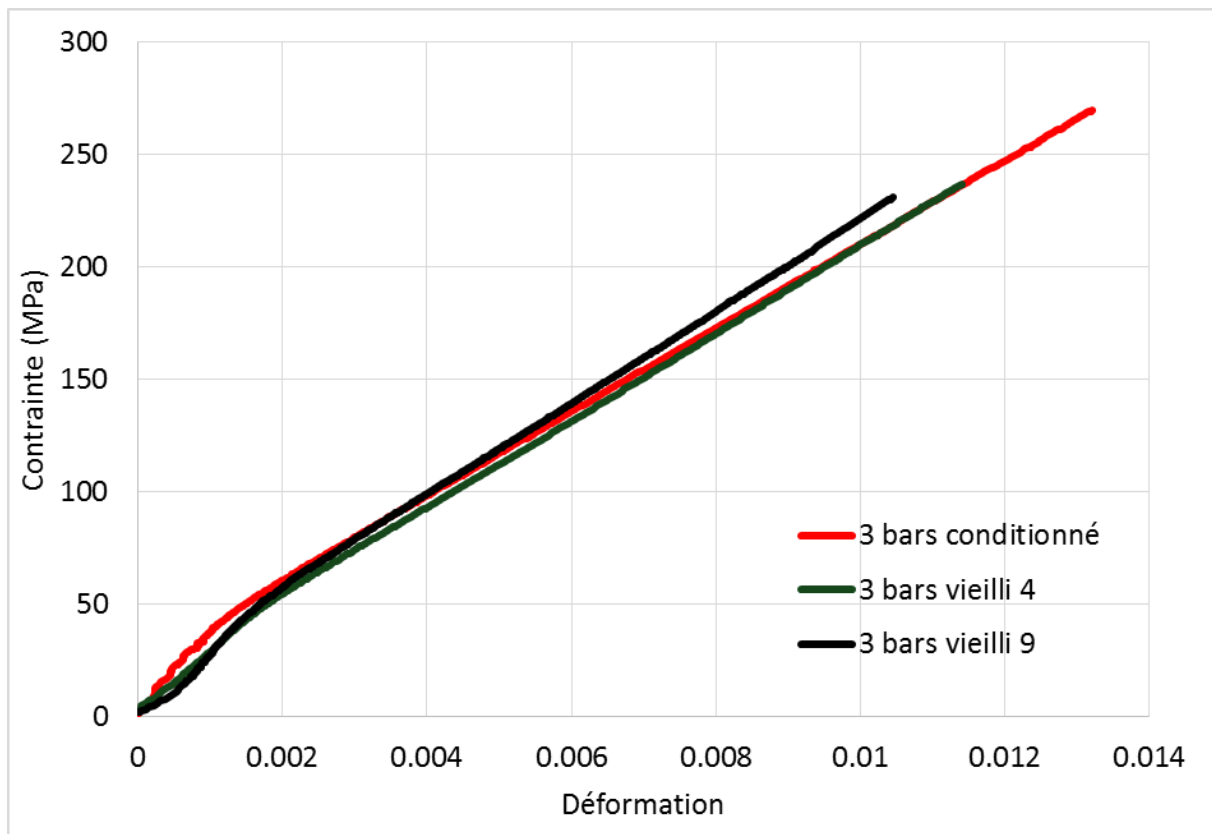


Figure 9.3.1 : Courbe d'évolution de la contrainte en fonction de la déformation pour les composites « 3 bar conditionné » (rouge), « 3 bar hydro 4 » (vert) et « 3 bars hydro 9 » (noir)

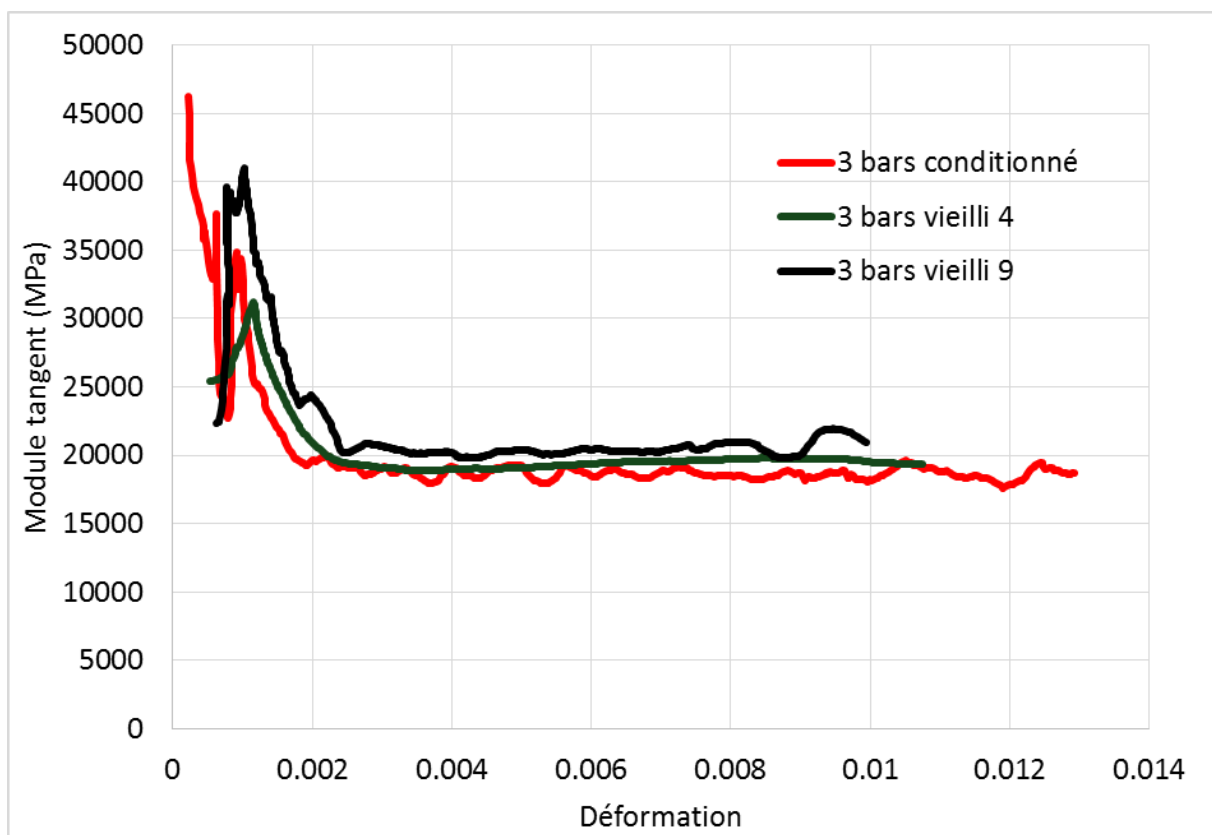


Figure 9.3.2 : Courbe d'évolution du module tangent en fonction de la déformation pour les composites avec le même code couleur que la **figure 9.3.1**

Dans le [tableau 9.3.1](#), les observations liées aux figures précédentes sont confirmées avec le récapitulatif des propriétés mécaniques. Les modules sont reproductibles, y compris le module E_1 . Il est cependant primordial de noter que le module E_1 a été mesuré en excluant les points du pied de courbe et ce module ne traduit donc pas le phénomène observé précédemment. De plus, une diminution de l’allongement à rupture et de la contrainte à rupture avec le nombre de cycles subis est observée.

La diminution des propriétés observées sur ces courbes peut être attribuée au fait que les échantillons ont subi un cyclage hygrothermique, avec les endommagements associés. La faible évolution de la contrainte à rupture et de l’allongement à rupture entre les deux composites vieilliss pour des nombres de cycles différents indiquerait que le cyclage n’induit pas significativement de changement entre 4 et 9 cycles pour ces propriétés à rupture, mais induit des changements significatifs dans les phénomènes mis en jeu aux faibles déformations. En se reportant à la phénoménologie classique, une fibre absorbe de l’eau et gonfle, provoquant un endommagement de la résine. Or, le gain de masse après les phases d’absorption reste stable, ce qui signifie que les fibres contiennent une quantité d’eau similaire. De ce fait, il est peu probable que des endommagements supplémentaires de la résine apparaissent. Ainsi, hormis la décohésion fibre/matrice et les endommagements de la résine lors du premier cycle, le composite peut ne subir que peu d’endommagement. Cette hypothèse est cohérente avec les propriétés stables après chaque phase du cyclage après le premier cycle. Des essais et analyses supplémentaires sont néanmoins nécessaires pour conclure sur ces aspects. En effet, il semble probable que suite à la première phase d’absorption, les fibres aient gonflé et endommagé la matrice. Ensuite, lors de la phase de désorption, les fibres dégonflent, mais la résine ne revient pas entièrement à sa place, du fait de déformations plastiques. Il peut donc y avoir perte de contact entre la fibre et la matrice, avec une création d’un volume libre entre les deux. Lors de la phase d’absorption suivante, la fibre gonfle à nouveau et vient en contact avec la matrice, mais ne provoque pas d’endommagement supplémentaire puisque la matrice a déjà été plastifiée.

De plus, le coefficient de Poisson dans le sens longitudinal n’est pas affecté après 4 cycles, mais augmente après 9 cycles pour atteindre une valeur de 0.51. Ceci pourrait traduire une instabilité de la structure, mais aucune hypothèse expliquant cette valeur supérieure à 0.5 n’a été formulée.

| 3 bars 0° | Etat conditionné | | Après 4 cycles hygrothermiques | | Après 9 cycles hygrothermiques | |
|----------------------------|------------------|------------|-----------------------------------|------------|-----------------------------------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| E_v (GPa) | 30.4 | 1.6 | 29.4 | 0.9 | 29.5 | 1.1 |
| E_1 (GPa) | 29.6 | 2.7 | 28.6 | 2.4 | - | - |
| E_2 (GPa) | 19.2 | 0.4 | 19.1 | 0.8 | 20.2 | 0.1 |
| $\sigma_{L \max}$ (MPa) | 316.5 | 21.3 | 250.1 | 12.5 | 238.4 | 10.5 |
| $\epsilon_{L \max}$ (%) | 1.55 | 0.06 | 1.19 | 0.07 | 1.02 | 0.01 |
| ν_L | 0.40 | 0.00 | 0.41 | 0.03 | 0.51 | 0.02 |

Tableau 9.3.1 : Propriétés mécaniques des composites « 3 bar conditionné », « 3 bar hygro 4 » et « 3 bar hygro 9 » dans le sens longitudinal

Les propriétés transverses à 90° et de cisaillement 45° sont reportées dans le [tableau 9.3.2](#). Les essais à 90° n’ayant pas pu être réalisés après 4 cycles, les données correspondantes n’ont pas pu être reportées dans ce tableau. Une nette diminution du module transverse à 90° est observée à partir des seuls résultats sur le « 3 bar hygro 9 », ainsi qu’une baisse de la

contrainte à rupture, mais l'allongement à rupture à 90° augmente légèrement. Cela va dans le sens de l'hypothèse du mode de dégradation avec perte de contact entre les fibres et la matrice. De plus, le module de cisaillement après 9 cycles reste stable par rapport à l'état conditionné. La contrainte de cisaillement diminue avec le vieillissement, mais se stabilise entre 4 et 9 cycles.

Ces résultats témoignent notamment d'une chute des propriétés de la résine. Des essais de traction additionnels sur la résine pure vieillie seraient à réaliser. Ils sont cohérents avec l'état « sec » des échantillons après les phases de désorption. En revanche, le manque de données d'essais à 90° notamment après 4 cycles ne permet pas de conclure de manière définitive sur cet aspect et des essais supplémentaires sont nécessaires.

| 3 bars 90° et 45° | Etat conditionné | | Après 4 cycles hygrothermiques | | Après 9 cycles hygrothermiques | |
|--------------------------|------------------|------------|-----------------------------------|------------|-----------------------------------|------------|
| | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type | Moyenne | Ecart-type |
| E_T (GPa) | 3.5 | 0.1 | - | - | 1.9 | 0.2 |
| $\sigma_{T \max}$ (MPa) | 18.8 | 1.1 | - | - | 12.4 | 1.6 |
| $\epsilon_{T \max}$ (%) | 0.61 | 0.06 | - | - | 0.79 | 0.09 |
| ν_T | 0.04 | 0.00 | - | - | 0.02 | 0.01 |
| G (GPa) | 1.88 | 0.22 | - | - | 1.80 | 0.33 |
| $\sigma_{45 \max}$ (MPa) | 32.2 | 2.5 | 25.1 | 1.8 | 25.1 | 0.7 |
| ϵ_{45} (%) | 0.76 | 0.05 | 0.73 | 0.10 | 0.83 | 0.01 |

Tableau 9.3.2 : Propriétés mécaniques des composites « 3 bar conditionné », « 3 bar hygro 4 » et « 3 bar hygro 9 » dans les sens transverses (90° et 45°)

9.4 – Conclusion : application à du mobilier urbain

Suite aux observations précédentes, il peut être conclu que les cycles de vieillissement sans saturation n'impactent que peu les propriétés mécaniques avec une stabilisation du comportement élastique après le premier cycle, avec des cycles récurrents dans des conditions identiques à chaque itération.

De plus, une étude de durabilité de la structure reste nécessaire, à l'aide d'un modèle ou d'essais de vieillissement accélérés. Au cas où la structure ne serait pas satisfaisante après vieillissement, il est possible d'envisager l'utilisation d'un gel-coat, qui améliorerait la durabilité des composites. Il est également possible d'envisager l'utilisation d'un matériau composite hybride, renforcé de fibres de lin majoritairement et de fibres de verre pour limiter l'absorption et augmenter les propriétés mécaniques. Ainsi, même si les fibres de verre sont partiellement remplacées ou remplacées entièrement, mais à condition d'appliquer un gel-coat, l'impact environnemental des composites partiellement biosourcés reste intéressant. Il faudra aussi dimensionner la structure en gardant bien à l'esprit les contraintes maximales et les modules du matériau vieilli.

Dans le cadre d'une application en extérieur de type mobilier urbain, les conditions hygrothermiques réelles (variables et dépendantes de la météorologie au cours du temps) ne seront jamais fixes pour une longue période temporelle. Il reste cependant difficile d'étudier ces vieillissements, sauf à considérer des vieillissements réels : de ce point de vue la sollicitation hygrothermique étudiée pour ces travaux pourrait être complétée par des sollicitations environnementales (UV, gel-dégel...). En effet, la présence d'eau dans les fibres pourrait induire des dégradations majeures en cas de basses températures. À ma connaissance, cela n'a pas été étudié dans la littérature pour des composites à fibres

végétales. La comparaison avec des essais laboratoires dits accélérés, pour des conditions de vieillissement spécifiques, permet d'étudier les phénomènes d'endommagement propres à ces conditions, mais ne peut pas être étendu à un cas réel.

Conclusions et Perspectives

Les problématiques environnementales ne sont plus à démontrer. Nous le savons, il faut trouver des solutions écologiques, tant dans la vie quotidienne que dans les développements technologiques actuels. C'est avec cette prise de conscience que la demande de matériaux biosourcés, notamment, a explosé. Les fibres synthétiques ont de très bonnes propriétés mécaniques, mais leur bilan carbone est élevé et ces fibres devraient donc être réservées à des applications où ces fibres sont nécessaires. Cependant, elles restent pourtant majoritaires. Heureusement, des solutions émergent depuis plusieurs années et se développent, avec le remplacement des fibres synthétiques par des fibres végétales. Leur disponibilité et leur bilan écologique positif en font des candidates idéales, mais leur faible durabilité constitue une problématique majeure à l'heure actuelle.

Cette durabilité occupe depuis quelque temps l'horizon de la recherche sur les fibres végétales, mais nécessite encore quelques années d'étude. En effet, une meilleure compréhension des phénomènes mis en jeu lors du vieillissement de ces composites au cours de leur durée de vie est primordiale. La quantification de la durabilité est également un défi scientifique et industriel, d'autant plus pour des composites structuraux destinés à une utilisation en extérieur, qui seront alors soumis à une multitude de sollicitations différentes, que ce soit avec de la température, de l'eau, des microorganismes, des rayonnements ultraviolets ou des chargements mécaniques.

Le consortium BioLam a pour objectif de mettre en commun des compétences autour, notamment, de ces problématiques de durabilité que ce soit en termes de recherche fondamentale que d'applications industrielles. Dans ce cadre-là, la fabrication de structures en biocomposites pour du mobilier urbain a été envisagée. Pour cela, l'analyse et la compréhension des mécanismes de dégradations des biocomposites à fibres végétales sont nécessaires. Cela consiste, d'abord, à caractériser la durabilité des composites à travers des campagnes expérimentales diverses et à mettre en place un modèle permettant la conception de structures en biocomposite.

L'étude par des campagnes expérimentales requiert, pour une quantification la plus précise possible, un matériau répétable et robuste, pour rendre compte de l'utilisation structurale visée. Pour cela, le procédé de fabrication a été étudié. De nombreux paramètres de fabrication ont pu être analysés grâce à la collaboration avec Thomas Cadu, doctorant du DRIVE et de l'IFSTTAR. Cette étude a abouti non seulement à un protocole efficace, puisque les objectifs de propriétés mécaniques ont été atteints (module initial d'au moins 30 GPa, contrainte à rupture d'au moins 300 MPa), mais également à une identification des paramètres pour l'optimisation de propriétés mécaniques ciblées.

Cette identification consiste à définir les paramètres de fabrication qui influent sur les différentes propriétés mécaniques sous chargement monotone. Par exemple, pour une pièce structurale de mobilier urbain, il peut être intéressant de travailler dans le domaine élastique, loin du comportement à rupture du matériau. Si le dimensionnement de la pièce dépend de la contrainte à rupture pour assurer le travail dans le domaine élastique, les performances en service seront plutôt pilotées par la rigidité de la pièce. Afin d'optimiser ce paramètre, selon l'étude réalisée, les paramètres de fabrication à optimiser sont notamment le conditionnement des fibres, la pression de consolidation et la température de sortie du moule. Cette étude permettra donc, lors de futurs travaux, d'optimiser le matériau de manière ciblée avec une plus grande rapidité.

Pour répondre au mieux aux problématiques environnementales, le remplacement de la résine, ici pétrosourcée, par une matrice dont le bilan écologique est meilleur peut également être envisagé, par exemple par de la GreenPoxy® de chez SICOMIN ou d'autres résines biosourcées en développement, en veillant à ce que ce ne soit pas au détriment des propriétés mécaniques.

Deux types de composite ont été produits, différenciés par leur taux volumique de fibres. La durabilité de ces composites a été étudiée à travers plusieurs sollicitations couplées, avec des sollicitations hydrothermiques, caractérisées sous chargement monotone et cyclique, et des sollicitations hygrothermiques cycliques.

Tout d'abord, afin d'avoir une référence avant l'exposition à des sollicitations couplées, une caractérisation sous chargement monotone a été effectuée. Les propriétés sont globalement comparables à celles obtenues pour des composites à fibres de verre, hormis pour les propriétés transverses où l'interface semble plus faible que pour les fibres synthétiques. Après saturation en immersion à la température de 70°C, le comportement a été altéré, mais l'influence du taux volumique de fibres tend à disparaître. En effet, le composite avec un taux volumique de fibres de 37.7 % a des propriétés équivalentes à celui avec un taux volumique de fibres de 51.1 %. La pression de consolidation requise pour produire les composites avec un taux volumique de fibres plus faible est réduite. Le coût énergétique de production en est donc également réduit. Suivant les sollicitations hydrothermiques de la structure en service, il peut donc être intéressant de ne pas forcément prendre le composite avec le taux volumique de fibres le plus élevé.

Pour de nouveaux composites, cette étude sera néanmoins à réitérer, avec potentiellement un vieillissement qui serait représentatif des conditions de service envisagées.

Les propriétés transverses, légèrement inférieures avant vieillissement à celles de composites à fibres synthétiques, diminuent fortement avec la saturation. Cela peut constituer un verrou pour l'utilisation industrielle de ces composites, car ces propriétés transverses témoignent d'une adhésion de faible qualité. Cependant, l'étude se porte ici sur un composite unidirectionnel. Cet empilement est connu pour être faible dans le sens transverse. Pour remédier à ces problèmes, un préalable traitement des fibres, pour de la fonctionnalisation, peut être effectué. Ces traitements font déjà l'objet de travaux, mais vont souvent à l'encontre du caractère écologique recherché.

Avec cette étude menée sur des composites unidirectionnels, il est possible d'envisager des analyses sur des composites avec des empilements plus complexes. Les résultats en unidirectionnel constitueront ainsi une référence permettant de différencier l'effet « normal » du vieillissement et l'effet de l'empilement sur la modification des propriétés au cours de la durée de vie.

Ces sollicitations hydrothermiques ont également fait l'objet d'une caractérisation en fatigue, sous chargement cyclique. Cette caractérisation a eu lieu en immersion *in situ*, ce qui est novateur. Des études complémentaires et différents réglages sont encore nécessaires pour exploiter le plein potentiel de cette méthode de caractérisation, avec par exemple la mise au point de l'acquisition de signaux d'émissions acoustiques.

Aussi, un taux volumique de fibres plus important mène à des endommagements plus importants, mais les performances mécaniques en fatigue étant meilleures, un taux volumique de fibres important reste préférable avant vieillissement. Ceci reste à étudier après vieillissement, d'autant plus que l'étude réalisée à saturation dans cette thèse a mis en

évidence une inversion de tendance entre les durées de vie des composites avant et après vieillissement.

En effet, en dessous d'une certaine contrainte répétée, la durée de vie des composites vieillis peut être plus importante que celle des composites non vieillis. Il est important de noter que le niveau de cette contrainte est non négligeable. Ceci est dû à une compétition entre la rigidification et le fluage, qui sont des phénomènes exacerbés par l'eau. Aussi, l'endommagement menant à la ruine est réduit pour le composite à saturation. Il reste cependant encore à identifier plus clairement l'origine de ces phénomènes pour l'utilisation industrielle de ces composites, par le biais d'analyse d'émissions acoustiques ou d'observations microscopiques par exemple, pour au moins constater les endommagements et nous éclairer sur les modes de ruines qui siègent dans le matériau au cours de son vieillissement. Avec ces conclusions sur un seul taux volumique de fibres, l'influence du taux volumique de fibres sur l'évolution des propriétés en fatigue à saturation devra être étudiée.

Pour se rapprocher des conditions de service, l'influence d'un vieillissement hygrothermique cyclique a été étudiée sous chargement monotone. Une stabilisation des propriétés mécaniques élastiques après le premier cycle a été observée. Ce résultat est très intéressant en vue d'une application industrielle. Des endommagements ont également été identifiés, mais restent à constater par des observations microscopiques. Les propriétés mécaniques ont diminué avec le vieillissement, mais de manière beaucoup plus faible que pour le cas de l'immersion, ce qui est logique puisque la quantité d'eau absorbée est bien moindre. Ceci est également rassurant pour l'utilisation industrielle.

Il peut également être primordial d'étudier un vieillissement réel, afin de comparer ce vieillissement aux vieillissements accélérés mis en place en laboratoire, ou afin de valider les conclusions pour les vieillissements accélérés.

Il reste tout de même essentiel de garder en tête qu'une structure réelle est soumise à des sollicitations couplées, y compris pour les sollicitations mécaniques. L'étude s'est ici portée sur des chargements monotones uniaxiaux et des chargements cycliques uniaxiaux. Il reste alors des études nécessaires en vue d'une utilisation industrielle, dont la sollicitation mécanique par choc (résistance à l'impact) et le vieillissement mécanique statique (fluage), ainsi que les différents couplages avec des sollicitations hydro(hygro)thermiques. Des directions de sollicitations différentes peuvent également être envisagées, avec des essais multiaxiaux après vieillissement, ce qui est très peu documenté.

De plus, davantage de sollicitations environnementales peuvent être étudiées, dont la sollicitation thermique en gel-dégel, qui a peu été étudiée, alors que la structure réelle envisagée de mobilier urbain a de fortes chances d'y être confrontée.

À la suite de ces caractérisations expérimentales, l'implémentation d'un modèle numérique a pour but d'aider à la conception et la prédiction de la durabilité de structures industrielles.

Sur les bases de données expérimentales, des hypothèses ont été mises en place ainsi que différents traitements de données, comme la définition de classes de fibres et de faisceaux. Un comportement mécanosorptif a été intégré avec un couplage faible, c'est-à-dire une dépendance unilatérale des propriétés mécanique en fonction de la diffusion. Ce modèle propose des résultats intéressants, avec majoritairement de la compression dans les matériaux, mais potentiellement due aux conditions aux limites.

De nombreux paramètres sont donc à étudier et à intégrer au modèle, de l'intégration des données expérimentales (définition de nouvelles classes de fibres et faisceaux, définition

d'autres descripteurs morphologiques), en passant par les hypothèses et simplifications mises en place (étude d'une géométrie 2D de taille réduite, comportement mécanique élastique linéaire, conditions aux limites), jusqu'au modèle (couplage fort entre diffusion et état de contraintes internes, intégration des porosités dans la microstructure, définition et intégration des zones d'interphase, intégration d'une interface décohésive).

Lorsque le modèle sera plus abouti selon ces pistes d'amélioration, avec une prédiction de la durabilité des composites en accord avec l'expérience, une homogénéisation des propriétés 2D peut être envisagée pour passer à un modèle 3D. C'est ce modèle 3D qui servirait à la conception de structures industrielles.

Enfin, afin d'appréhender l'état de confinement des fibres au sein des composites lors de la diffusion, un modèle de pression hydrique a été mis en place. Il s'agit d'une démarche intéressante, qui n'en est cependant qu'à ses premiers balbutiements.

- [1] J.-F. Preveraud, *Flax and Hemp Fibres: a Natural Solution for the Composite Industry*. JEC Group, 2012.
- [2] C. Bathias, *Matériaux composites*. Dunod, 2009.
- [3] D. B. Dittenber and H. V. S. GangaRao, "Critical review of recent publications on use of natural composites in infrastructure," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 43, no. 8, pp. 1419–1429, 2012.
- [4] I. Verpoest, "A general introduction to composites, highlighting the advantages of flax and hemp composites," *In : Reux and Verpoest*, vol. 2012, pp. 15–37.
- [5] L. Berreur, B. D. Maillard, and S. Nösperger, *L'industrie française des matériaux composites*. Technical report, Ministère de l'économie des finances et de l'industrie, 2002.
- [6] A. Regazzi, "Contribution à l'étude du vieillissement couplé thermohydomécanique de biocomposites PLA/lin," PhD Thesis - Ecole nationale supérieure des mines de Paris, 2013.
- [7] D. U. Shah, "Natural fibre composites : Comprehensive Ashby-type materials selection charts," *Journal of Materials and Design*, vol. 62, pp. 21–31, 2014.
- [8] L. Yan, N. Chouw, and K. Jayaraman, "Flax fibre and its composites – A review," *Composites Part B: Engineering*, vol. 56, pp. 296–317, 2014.
- [9] K. Charlet, C. Baley, C. Morvan, J. P. Jernot, M. Gomina, and J. Bréard, "Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 38, no. 8, pp. 1912–1921, 2007.
- [10] C. Baley, "Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 33, no. 7, pp. 939–948, 2002.
- [11] J. Summerscales, N. Dissanayake, A. Virk, and W. Hall, "A review of bast fibres and their composites. Part 2 – Composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 41, no. 10, pp. 1336–1344, 2010.
- [12] C. Baley, "Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites," *Techniques de l'ingénieur*, vol. 42142210, no. am5130, pp. 1–17, 2013.
- [13] S. K. Garkhail, R. W. H. Heijenrath, and T. Peijs, "Mechanical Properties of Natural-Fibre-Mat- Reinforced Thermoplastics based on Flax Fibres and Polypropylene," *Applied Composite Materials*, vol. 7, pp. 351–372, 2000.
- [14] A. Bourmaud, C. Baley, A. Bourmaud, and C. Baley, "Rigidity analysis of polypropylene / vegetal fibre composites after recycling Rigidity analysis of polypropylene / vegetal fibre composites after recycling," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 94, no. 3, pp. 297–305, 2009.
- [15] A. Le Duigou, P. Davies, C. Baley, A. Le Duigou, P. Davies, and C. Baley, "Environmental Impact Analysis of the Production of Flax Fibres to be Used as Composite Material Reinforcement Environmental Impact Analysis of the Production of Flax Fibres to be Used as Composite Material Reinforcement," *Journal of Biobased Materials and Bioenergy*, vol. 5, pp. 1–13, 2011.
- [16] 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," *Industrial Crops and Products*, vol. 44, pp. 343–351, 2013.
- [17] M. Sumaila and A. O. A. Ibadode, "Technical properties of some plant fibres compared with glass fibre," *International Journal of Engineering Research in Africa*, vol. 11, no. ISSN : 1663-4144, pp. 11–26, 2014.
- [18] P. Wambua, J. Ivens, and I. Verpoest, "Natural fibres : can they replace glass in fibre reinforced plastics ?," *Composites Science and Technology*, vol. 63, pp. 1259–1264, 2003.
- [19] O. Faruk, A. K. Bledzki, H. P. Fink, and M. Sain, "Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000-2010," *Progress in Polymer Science*, vol. 37, no. 11, pp. 1552–1596, 2012.
- [20] F. Duc, P. E. Bourban, C. J. G. Plummer, and J.-A. E. Månson, "Damping of thermoset and thermoplastic flax fibre composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 64, pp. 115–123, 2014.
- [21] J. W. S. Hearle, "The fine structure of fibers and crystalline polymers. III. Interpretation of the mechanical properties of fibers," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 7, pp. 1207–1223, 1963.
- [22] H. L. Bos and A. M. Donald, "In situ ESEM study of the deformation of elementary flax fibres," *Journal of Materials Science*, vol. 34, no. 13, pp. 3029–3034, 1999.
- [23] a. K. Bledzki and J. Gassan, "Composites reinforced with cellulose based fibres," *Progress in Polymer Science*, vol. 24, no. 2, pp. 221–274, 1999.
- [24] S. Alix, L. Colasse, C. Morvan, L. Lebrun, and S. Marais, "Pressure impact of autoclave treatment on water sorption and pectin composition of flax cellulosic-fibres," *Carbohydrate Polymers*, vol. 102, pp. 21–29, 2014.
- [25] O. M. Astley and A. M. Donald, "The tensile deformation of flax fibres as studied by X-ray scattering," *Journal of Materials Science*, vol. 38, pp. 165–171, 2003.
- [26] K. Charlet, "Contribution à l'étude de composites unidirectionnels renforcés par des fibres de lin : relation entre la microstructure de la fibre et ses propriétés mécaniques," PhD Thesis - Université de Caen, 2008.
- [27] A. Stamboulis, C. A. Baillie, and T. Peijs, "Effects of environmental conditions on mechanical and physical properties of flax fibers," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 32, no. 8, pp. 1105–1115, 2001.
- [28] V. Bossuyt, "Étude de la structure et des propriétés mécaniques de la fibre Obtenir, Pour Commission, A Plajjqart, Imprimerie Fde lin," PhD Thesis - Faculté des Sciences de Lille, 1941.
- [29] G. C. Davies and D. M. Bruce, "Effect of Environmental Relative Humidity and Damage on the Tensile Properties of Flax and Nettle Fibers," *Textile Research Journal*, vol. 68(9), pp. 623–629, 1998.
- [30] A. Bismarck, I. Aranbefwi-askargorta, T. U. Berlin, T. Lampkfc, B. Wielage, and R. Unwersit, "Cellulose Fibers ; Surface Properties and the Water Uptake Behavior," *Polymer Composites*, vol. 23, no. 5, 2002.
- [31] V. Tserki, N. E. Zafeiropoulos, F. Simon, and C. Panayiotou, "A study of the effect of acetylation and propionylation surface treatments on natural fibres," *Composites Part A:*

Applied Science and Manufacturing, vol. 36, pp. 1110–1118, 2005.

[32] A. Bergander and L. Salmén, “Cell wall properties and their effects on the mechanical properties of fibers,” *Journal of Materials Science*, no. 37, pp. 151–156, 2002.

[33] W. J. Cousins, “Young’s modulus of Hemicellulose as Related to Moisture Content,” *Wood Science and Technology*, no. 12, pp. 161–167, 1978.

[34] V. K. Thakur and M. K. Thakur, “Processing and characterization of natural cellulose fibers/thermoset polymer composites,” *Carbohydrate Polymers*, vol. 109, pp. 102–117, 2014.

[35] N. Graupner, “Application of lignin as natural adhesion promoter in cotton fibre-reinforced poly(lactic acid) (PLA) composites,” *Journal of Materials Science*, vol. 43, no. 15, pp. 5222–5229, 2008.

[36] K. Charlet, J. Jernot, J. Breard, and M. Gomina, “Scattering of morphological and mechanical properties of flax fibres,” *Industrial Crops and Products*, vol. 32, no. 3, pp. 220–224, 2015.

[37] J. Andersons, E. Springs, R. Joffe, and L. Wallstrom, “Strength distribution of elementary flax fibres,” *Composites Science and Technology*, no. 65, pp. 693–702, 2005.

[38] J. Mussig, *Industrial Applications of Natural Fibres: Structure, Properties and Technical Applications*. John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, UK, 2010.

[39] C. Poilâne, Z. E. Cherif, F. Richard, A. Vivet, B. Ben Doudou, and J. Chen, “Polymer reinforced by flax fibres as a viscoelastoplastic material,” *Composite Structures*, vol. 112, no. 1, pp. 100–112, 2014.

[40] A. Thuault, “Approche multiéchelle de la structure et du comportement mécanique de la fibre de lin Multiscale approach of the structure ...,” PhD Thesis - Université de Caen, 2015.

[41] V. Placet, A. Bouali, C. Garcin, J. Cote, and P. Perre, “Suivi par DRX des réarrangements microstructuraux induits par sollicitations mécaniques dans les fibres végétales tirées du chanvre,” in *20ème Congrès Français de Mécanique*, 2011.

[42] K. Charlet, S. Eve, J. P. Jernot, M. Gomina, and J. Breard, “Tensile deformation of a flax fiber,” *Procedia Engineering*, vol. 1, no. 1, pp. 233–236, 2009.

[43] Z. Mahboob and H. Bougherara, “Fatigue of flax-epoxy and other plant fibre composites : Critical review and analysis,” *Composites Part A*, vol. 109, no. March, pp. 440–462, 2018.

[44] S. Alix, E. Philippe, A. Bessadok, L. Lebrun, C. Morvan, and S. Marais, “Effect of chemical treatments on water sorption and mechanical properties of flax fibres,” *Bioresource Technology*, vol. 100, no. 20, pp. 4742–4749, 2009.

[45] L. Kroon-Batenburg, J. Kroon, and M. Northolt, “Chain modulus and intramolecular hydrogen bonding in native and regenerated cellulose fibers,” *Polymer Communications*, vol. 27, no. 10, 1986.

[46] K. Charlet, J. Jernot, M. Gomina, J. Bréard, C. Morvan, and C. Baley, “Influence of an Agatha flax fibre location in a stem on its mechanical , chemical and morphological properties,” *Composites Science and Technology*, vol. 69, no. 9, pp. 1399–1403, 2009.

[47] H. L. Bos, M. J. A. Van Den Oever, and O. C. J. J. Peters, “Tensile and compressive

- properties of flax fibres for natural fibre reinforced composites," *Journal of Materials Science*, no. 37, pp. 1683–1692, 2002.
- [48] G. Romhány, J. Karger-Kocsis, and T. Czigány, "Tensile fracture and failure behavior of technical flax fibers," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 90, no. 13, pp. 3638–3645, 2003.
- [49] K. Van de Velde and P. Kiekens, "Thermoplastic pultrusion of natural fibre reinforced composites," *Composite Structures*, vol. 54, no. 2–3, pp. 355–360, 2001.
- [50] A. K. Bledzki, A. Al-Mamun, and V. Gutwski, "The effects of acetylation on properties of flax fibre and its polypropylene composites The effects of acetylation on properties of flax fibre and its polypropylene composites," *eXPRESS Polymer Letters*, no. January, 2008.
- [51] B. Masseteau, F. Michaud, M. Irle, A. Roy, and G. Alise, "An evaluation of the effects of moisture content on the modulus of elasticity of a unidirectional flax fiber composite," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 60, pp. 32–37, 2014.
- [52] A. le Duigou, A. Bourmaud, E. Balnois, P. Davies, and C. Baley, "Improving the interfacial properties between flax fibres and PLLA by a water fibre treatment and drying cycle," *Industrial Crops and Products*, vol. 39, pp. 31–39, 2012.
- [53] Y. Li, Q. Li, and H. Ma, "The voids formation mechanisms and their effects on the mechanical properties of flax fiber reinforced epoxy composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 72, pp. 40–48, 2015.
- [54] K. Masania, W. Woigk, J. Rion, C. Dransfeld, and C. Materials, "Effect of Fibre Volume Content on the Mechanical Performance of Natural Fibre Reinforced Thermoplastic," *ECCM17*, no. June, pp. 26–30, 2016.
- [55] A. Monti, A. El Mahi, Z. Jendli, and L. Guillaumat, "Mechanical behaviour and damage mechanisms analysis of a flax-fibre reinforced composite by acoustic emission," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 90, pp. 100–110, 2016.
- [56] M. Wolfahrt, J. Sinic, S. Pichler, G. Wuzella, P. Competence, P. Competence, K. H. Gmbh, K. H. Gmbh, and K. H. Gmbh, "Effect of moisture absorption on selected mechanical properties of natural fiber composites based on woven flax fibers and polypropylene," *ECCM17*, no. June, pp. 26–30, 2016.
- [57] A. Le Duigou, A. Bourmaud, P. Davies, and C. Baley, "Long term immersion in natural seawater of Flax/PLA biocomposite," *Ocean Engineering*, vol. 90, pp. 140–148, 2014.
- [58] A. Memon and A. Nakai, "Fabrication and mechanical properties of jute spun yarn/PLA unidirection composite by compression molding," *Energy Procedia*, vol. 34, pp. 830–838, 2013.
- [59] B. Madsen, M. Aslan, and H. Lilholt, "Fractographic observations of the microstructural characteristics of flax fibre composites," *Composites Science and Technology*, vol. 123, pp. 151–162, 2016.
- [60] H. J. Kim and D. W. Seo, "Effect of water absorption fatigue on mechanical properties of sisal textile-reinforced composites," *International Journal of Fatigue*, vol. 28, no. 10 SPEC. ISS., pp. 1307–1314, 2006.
- [61] J. Gassan and A. K. Bledzki, "Effect of cyclic moisture absorption desorption on the mechanical properties of silanized jute-epoxy composites," *Polymer Composites*, vol. 20, no.

4, pp. 604–611, 1999.

[62] R. H. Newman, “Auto-accelerative water damage in an epoxy composite reinforced with plain-weave flax fabric,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, no. 10, pp. 1615–1620, 2009.

[63] J. George, J. Ivens, and I. Verpoest, “Mechanical properties of flax fibre reinforced epoxy composites,” *Die Angewandte Makromolekulare Chemie*, vol. 272, no. 4747, pp. 41–45, 1999.

[64] P. B. Gning, S. Liang, L. Guillaumat, and W. J. Pui, “Influence of process and test parameters on the mechanical properties of flax/epoxy composites using response surface methodology,” *Journal of Materials Science*, vol. 46, no. 21, pp. 6801–6811, 2011.

[65] M. Berges, R. Léger, V. Placet, V. Person, S. Corn, X. Gabrion, J. Rousseau, E. Ramasso, P. Ienny, and S. Fontaine, “Influence of moisture uptake on the static, cyclic and dynamic behaviour of unidirectional flax fibre-reinforced epoxy laminates,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 88, pp. 165–177, 2016.

[66] I. Van De Weyenberg, J. Ivens, A. De Coster, B. Kino, E. Baetens, and I. Verpoest, “Influence of processing and chemical treatment of flax fibres on their composites,” *Composites Science and Technology*, vol. 63, pp. 1241–1246, 2003.

[67] D. Scida, M. Assarar, C. Poilâne, and R. Ayad, “Influence of hygrothermal ageing on the damage mechanisms of flax-fibre reinforced epoxy composite,” *Composites Part B: Engineering*, vol. 48, pp. 51–58, 2013.

[68] Y. Li and B. Xue, “Hydrothermal ageing mechanisms of unidirectional flax fabric reinforced epoxy composites,” *Polymer Degradation and Stability*, vol. 126, pp. 144–158, 2016.

[69] D. U. Shah, P. J. Schubel, P. Licence, and M. J. Clifford, “Determining the minimum, critical and maximum fibre content for twisted yarn reinforced plant fibre composites,” *Composites Science and Technology*, vol. 72, no. 15, pp. 1909–1917, 2012.

[70] Y. Ledru, “Etude de la Porosité Dans Les Matériaux Composites Stratifiés Aeronautiques,” PhD Thesis - Université de Toulouse, 2009.

[71] H. Liholt and B. Madsen, “Volumetric composition in composites and historical data,” *Proceedings of the 18th Risø international symposium on materials science*, vol. 34, pp. 279–294, 2013.

[72] B. Madsen, A. Thygesen, and H. Liholt, “Plant fibre composites - porosity and volumetric interaction,” *Composites Science and Technology*, vol. 67, no. 7–8, pp. 1584–1600, 2007.

[73] B. Madsen, “Compaction of plant fibre assemblies,” in *Proceedings of the 23rd Risø international symposium on materials science. Sustainable natural and polymeric composites - science and technology. Rokskilde, Denmark*, 2002, pp. 239–50.

[74] C. Poilâne, A. Vivet, L. Momayez, B. Ben Doudou, M. H. Ayachi, and J. Chen, “Propriétés mécaniques de préimprégnés lin/époxyde,” in *Comptes Rendus des JNC 16*, 2009.

[75] S. Liang, H. Nouri, and E. Lafranche, “Thermo-compression forming of flax fibre-reinforced polyamide 6 composites: influence of the fibre thermal degradation on mechanical

properties,” *Journal of Materials Science*, vol. 50, no. 23, pp. 7660–7672, 2015.

[76] M. Ho, H. Wang, J. Lee, C. Ho, K. Lau, J. Leng, and D. Hui, “Critical factors on manufacturing processes of natural fibre composites,” *Composites Part B: Engineering*, vol. 8, no. 8, pp. 3549–3562, 2012.

[77] K. Van de Velde and E. Baetens, “Thermal and Mechanical Properties of Flax Fibres as Potential Composite Reinforcement,” *Thermal and Mechanical Properties of Flax Fibres as Potential Composite Reinforcement*, vol. 286, no. 6, pp. 342–349, 2001.

[78] W. K. Whitten, *Handbook of Composites*. Springer US, 1998.

[79] M. Hugues, J. Carpenter, C. Hill, M. Hughes, J. Carpenter, and C. Hill, “Deformation and fracture behaviour of flax fibre reinforced thermosetting polymer matrix composites,” *Journal of Materials Science*, vol. 42, no. 7, pp. 2499–2511, Mar. 2007.

[80] E. H. Saidane, D. Scida, M. Assarar, and R. Ayad, “Assessment of 3D moisture diffusion parameters on flax/epoxy composites,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 80, pp. 53–60, 2016.

[81] A. Le Duigou, P. Davies, and C. Baley, “Exploring durability of interfaces in flax fibre/epoxy micro-composites,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 48, pp. 121–128, 2013.

[82] M.-J. Le Guen, R. H. Newman, A. Fernyhough, and M. P. Staiger, “Tailoring the vibration damping behaviour of flax fibre-reinforced epoxy composite laminates via polyol additions,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 67, pp. 37–43, 2014.

[83] A. Aruniit, J. Kers, A. Krumme, T. Poltimäe, and K. Tall, “Preliminary Study of the Influence of Post Curing Parameters to the Particle Reinforced Composite’s Mechanical and Physical Properties,” *Materials Science*, vol. 18, no. 3, pp. 256–261, 2012.

[84] C. Campana, R. Leger, R. Sonnier, L. Ferry, and P. Ienny, “Effect of post curing temperature on mechanical properties of a flax fiber reinforced epoxy composite,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 107, pp. 171–179, 2018.

[85] F. Berbain and A. Chevalier, “Mise en œuvre des composites - Méthodes et matériels,” *Techniques de l’ingénieur*, vol. A 3 720, pp. 0–36, 1997.

[86] T. Peret, A. Clement, S. Freour, and F. Jacquemin, “Numerical transient hygro-elastic analyses of reinforced Fickian and non-Fickian polymers,” *Composite Structures*, vol. 116, pp. 395–403, 2014.

[87] B. Fayolle and J. Verdu, “Vieillessement physique des matériaux polymères,” *Techniques de l’ingénieur*, vol. 33, pp. 0–19, 2005.

[88] H. Carter and K. Kibler, “Langmuir-type model for anomalous moisture diffusion in composite resins,” *Journal of Composite Materials*, vol. 12, no. 2, pp. 118–131, 1978.

[89] S. Popineau, C. Rondeau-Mourob, C. Sulpice-Gaillet, and M. E. R. Shanahan, “Free/bound water absorption in an epoxy adhesive,” *Polymer*, vol. 46, no. 24, pp. 10733–10740, 2005.

[90] Y. J. Weitsman, *Fluid effects in polymers and polymeric composites*, Mechanical. Springer US, 2012.

- [91] D. W. Van Krevelen and K. Te Nijenhuis, "Symbol Index," in *Properties of Polymers*, 2009, pp. 957–977.
- [92] M. J. Adamson, "Thermal expansion and swelling of cured epoxy resin used in graphite/epoxy compositematerials," *Journal of Materials Science*, vol. 15, no. 7, pp. 1736–1745, 1980.
- [93] A. Céline, S. Fréour, F. Jacquemin, and P. Casari, "The hygroscopic behavior of plant fibers : a review," *frontiers in chemistry*, vol. 1, pp. 1–12, 2014.
- [94] M. Assarar, D. Scida, A. El Mahi, C. Poilâne, and R. Ayad, "Influence of water ageing on mechanical properties and damage events of two reinforced composite materials: Flax-fibres and glass-fibres," *Materials and Design*, vol. 32, no. 2, pp. 788–795, 2011.
- [95] A. Roudier, K. Charlet, F. Moreno, E. Toussaint, C. Généau-Sbartai, S. Commereuc, V. Verney, and A. Béakou, "Caractérisation des propriétés biochimiques et hygroscopiques d'une fibre de lin," *Matériaux & Techniques*, vol. 100, no. 5, pp. 525–535, 2012.
- [96] A. Le Duigou, A. Bourmaud, and C. Baley, "In-situ evaluation of flax fibre degradation during water ageing," *Industrial Crops and Products*, vol. 70, pp. 204–210, 2015.
- [97] I. Burgert and P. Fratzl, "Plants control the properties and actuation of their organs through the orientation of cellulose fibrils in their cell walls," *Integrative and comparative biology*, vol. 49, no. 1, pp. 69–79, 2009.
- [98] A. Céline, S. Fréour, F. Jacquemin, and P. Casari, "Characterization and modeling of the moisture diffusion behavior of natural fibers," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 130, no. 1, pp. 297–306, 2013.
- [99] A. Arbelaiz, B. Fernández, J. A. Ramos, A. Retegi, R. Llano-Ponte, and I. Mondragon, "Mechanical properties of short flax fibre bundle/polypropylene composites: Influence of matrix/fibre modification, fibre content, water uptake and recycling," *Composites Science and Technology*, vol. 65, no. 10, pp. 1582–1592, 2005.
- [100] H. N. Dhakal, Z. Y. Zhang, and O. W. Richardson, "Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites," *Composites Science and Technology*, vol. 67, no. 7–8, pp. 1674–1683, 2007.
- [101] P. A. Sreekumar, J.-M. Saiter, and S. Thomas, "Water absorption and ageing behaviour of natural fiber composites," in *Natural Fibre Reinforced Polymer Composites : From Macro to Nanoscale*, A. Contemporaines, Ed. 2009, pp. 446–472.
- [102] A. Espert, F. Vilaplana, and S. Karlsson, "Comparison of water absorption in natural cellulosic fibres from wood and one-year crop in polypropylene composites and its influence on their mechanical properties," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 35, pp. 1267–76, 2004.
- [103] Y. Joliff, L. Belec, and J. F. Chailan, "Modified water diffusion kinetics in an unidirectional glass / fibre composite due to the interphase area : Experimental , analytical and numerical approach," *Composite Structures*, vol. 97, pp. 296–303, 2013.
- [104] F. Gouanvé, S. Marais, A. Bessadok, and D. Langevin, "Kinetics of water sorption in flax and PET fibers," *European Polymer Journal*, vol. 43, pp. 586–598, 2007.
- [105] F. Bensadoun, K. A. M. Vallons, L. B. Lessard, I. Verpoest, and A. W. Van Vuure, "Fatigue

- behaviour assessment of flax – epoxy composites,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 82, pp. 253–266, 2016.
- [106] E. Munoz and J. A. Garcia-Manrique, “Water absorption behaviour and its effect on the mechanical properties of flax fibre reinforced bioepoxy composites,” *International Journal of Polymer Science*, vol. 2015, pp. 16–18, 2015.
- [107] Z. N. Azwa, B. F. Yousif, a. C. Manalo, and W. Karunasena, “A review on the degradability of polymeric composites based on natural fibres,” *Materials and Design*, vol. 47, pp. 424–442, 2013.
- [108] C. Baley, A. Le Duigou, A. Bourmaud, and P. Davies, “Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 43, no. 8, pp. 1226–1233, 2012.
- [109] D. Q. Vu, “Endommagements induits par la thermo oxydation dans les composites Carbone/Epoxy unidirectionnels et stratifiés,” ENSMA, 2011.
- [110] X. Buch and M. E. R. Shanahan, “Thermal and thermo-oxidative ageing of an epoxy adhesive,” *Polymer Degradation and Stability*, vol. 68, pp. 403–411, 2000.
- [111] A. Bourmaud and C. Baley, “Effects of thermo mechanical processing on the mechanical properties of biocomposite flax fibers evaluated by nanoindentation,” *Polymer Degradation and Stability*, vol. 95, no. 9, pp. 1488–1494, 2010.
- [112] B. Wielage, T. Lampke, G. Marx, K. Nestler, and D. Starke, “Thermogravimetric and differential scanning calorimetric analysis of natural fibres and polypropylene,” *Thermochimica Acta*, vol. 337, no. 1–2, pp. 169–177, 1999.
- [113] S. W. Case and K. L. Reifsnider, *Fatigue of composite materials. Cyclic Loading and Fatigue Comprehensive Structural Integrity*. Oxford: Pergamon, 2003.
- [114] A. P. Vassilopoulos, *Fatigue Life Prediction of Composites and Composite Structures*. Woodhead Publishing, 2010.
- [115] F. Saint-Antonin, “Essais de fluage,” *Techniques de l’ingénieur*, vol. 33, no. 0, 1995.
- [116] G. Apolinario Testoni, “In situ long-term durability analysis of biocomposites in the marine environment,” 2016.
- [117] Y. Ueki, H. Liholt, and B. Madsen, “Fatigue behaviour of uni-directional flax fibre / epoxy composites,” in *Proceedings of the 20th International Conference on Composite Materials*, 2015.
- [118] D. U. Shah, P. J. Schubel, M. J. Clifford, and P. Licence, “Fatigue life evaluation of aligned plant fibre composites through S-N curves and constant-life diagrams,” *Composites Science and Technology*, vol. 74, pp. 139–149, 2013.
- [119] A. Shahzad and D. H. Isaac, “Fatigue properties of hemp and glass fiber composites,” *Polymer Composites*, vol. 35, no. 10, pp. 1926–1934, 2014.
- [120] I. El Sawi, Z. Fawaz, R. Zitoune, and H. Bougherara, “An investigation of the damage mechanisms and fatigue life diagrams of flax fiber-reinforced polymer laminates,” *Journal of Materials Science*, vol. 49, no. 5, pp. 2338–2346, Mar. 2014.
- [121] S. Liang, P.-B. B. Gning, and L. Guillaumat, “Properties evolution of flax/epoxy

composites under fatigue loading,” *International Journal of Fatigue*, vol. 63, pp. 36–45, 2014.

[122] S. Asgarinia, C. Viriyasuthee, S. Phillips, J. Baets, A. Van Vuure, I. Verpoest, and L. Lessard, “Tension – tension fatigue behaviour of woven flax / epoxy composites,” *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 34, no. 11, pp. 857–867, 2015.

[123] E. Ramasso, V. Placet, and M. L. Boubakar, “Unsupervised Consensus Clustering of Acoustic Emission Time-Series for Robust Damage Sequence Estimation in Composites,” *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, vol. 64, no. 12, pp. 3297–3307, 2015.

[124] A. Fotouh, “Characterization and modeling of natural-fibres-reinforced composites (moisture absorption kinetics, monotonic behaviour and cyclic behaviour),” University of Alberta, Edmonton (AB, Canada), 2014.

[125] A. Fotouh, J. D. Wolodko, and M. G. Lipsett, “Fatigue of natural fiber thermoplastic composites,” *Composites Part B: Engineering*, vol. 62, pp. 175–182, 2014.

[126] S. Liang, P. B. B. Gning, and L. Guillaumat, “A comparative study of fatigue behaviour of flax/epoxy and glass/epoxy composites,” *Composites Science and Technology*, vol. 72, no. 5, pp. 535–543, 2012.

[127] D. S. de Vasconcellos, F. Touchard, and L. Chocinski-Arnault, “Tension–tension fatigue behaviour of woven hemp fibre reinforced epoxy composite: A multi-instrumented damage analysis,” *International Journal of Fatigue*, vol. 59, pp. 159–169, 2014.

[128] F. Bensadoun, “In-service behaviour of flax fibre reinforced composites for high performance applications,” 2016.

[129] W. Van Paepegem and J. Degrieck, “A new coupled approach of residual stiffness and strength for fatigue of fibre-reinforced composites,” *International Journal of Fatigue*, vol. 24, no. 7, pp. 747–762, 2002.

[130] V. Guicheret-Retel, O. Cisse, V. Placet, J. Beaugrand, M. Pernes, and M. L. Boubakar, “Creep behaviour of single hemp fibres. Part II: Influence of loading level, moisture content and moisture variation,” *Journal of Materials Science*, vol. 50, no. 5, pp. 2061–2072, Mar. 2015.

[131] O. Cisse, V. Placet, V. Guicheret-Retel, F. Trivaudey, and M. L. Boubakar, “Creep behaviour of single hemp fibres. Part I: viscoelastic properties and their scattering under constant climate,” *Journal of Materials Science*, vol. 50, no. 4, pp. 1996–2006, 2015.

[132] F. K. Sodoke, L. Toubal, and L. Laperrière, “Hygrothermal effects on fatigue behavior of quasi-isotropic flax/epoxy composites using principal component analysis,” *Journal of Materials Science*, vol. 51, no. 24, pp. 10793–10805, 2016.

[133] A. N. Towo and M. P. Ansell, “Fatigue of sisal fibre reinforced composites: Constant-life diagrams and hysteresis loop capture,” *Composites Science and Technology*, vol. 68, no. 3, pp. 915–924, 2008.

[134] A. N. Towo and M. P. Ansell, “Fatigue evaluation and dynamic mechanical thermal analysis of sisal fibre–thermosetting resin composites,” *Composites Science and Technology*, vol. 68, no. 3, pp. 925–932, 2008.

[135] A. E. Ismail and M. A. C. A. Aziz, “Fatigue strength of woven kenaf fiber reinforced composites,” *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*, vol. 100, no. 1, p.

12037, 2015.

- [136] A. Hodzic, J. K. Kim, A. E. Lowe, and Z. H. Stachurski, "The effects of water aging on the interphase region and interlaminar fracture toughness in polymer–glass composites," *Composites Science and Technology*, vol. 64, no. 13, pp. 2185–2195, 2004.
- [137] F. A. Ramirez, L. A. Carlsson, and B. A. Acha, "Evaluation of water degradation of vinylester and epoxy matrix composites by single fiber and composite tests," *Journal of Materials Science*, vol. 43, no. 15, pp. 5230–5242, 2008.
- [138] T. Peret, A. Clement, S. Freour, and F. Jacquemin, "Effect of mechanical states on water diffusion based on the free volume theory : Numerical study of polymers and laminates used in marine application," *Composites Part B: Engineering*, vol. 118, pp. 54–66, 2017.
- [139] A. S. Abhilash, S. P. Joshi, A. Mukherjee, and L. Mishnaevsky, "Micromechanics of diffusion-induced damage evolution in reinforced polymers," *Composites Science and Technology*, vol. 71, no. 3, pp. 333–342, 2011.
- [140] G. Yaniv and O. Ishai, "Coupling between stresses and moisture diffusion in polymeric adhesives," *Polymer Engineering & Science*, vol. 27, no. 10, pp. 731–739, 1987.
- [141] S. Neumann and G. Marom, "Free-volume dependent moisture diffusion under stress in composite materials," *Journal of Materials Science*, vol. 21, no. 1, pp. 26–30, Jan. 1986.
- [142] A. Fahmy and J. Hurt, "Stress dependence of water diffusion in epoxy resin," *Polymer Composites*, vol. 1, no. 2, pp. 77–80, 1980.
- [143] G. Youssef, S. Fréour, and F. Jacquemin, "Stress-dependent Moisture Diffusion in Composite Materials," *Journal of Composite Materials*, vol. 43, no. 15, pp. 1621–1637, 2009.
- [144] G. Marom and L. Broutman, "Moisture penetration into composites under external stress," *Polymer Composites*, vol. 2, no. 3, pp. 132–136, 1981.
- [145] S. Neumann and G. Marom, "Prediction of Moisture Diffusion Parameters in Composite Materials Under Stress," *Journal of Composite Materials*, vol. 21, no. 1, pp. 68–80, 1987.
- [146] G. Youssef, S. Fréour, and F. Jacquemin, "Effects of moisture-dependent properties of constituents on the hygroscopic stresses in composite structures," *Mechanics of Composite Materials*, vol. 45, no. 4, p. 369, Sep. 2009.
- [147] A. Chateauinois, L. Vincent, B. Chabert, and J. P. Soulier, "Study of the interfacial degradation of a glass-epoxy composite during hygrothermal ageing using water diffusion measurements and dynamic mechanical thermal analysis," *Polymer*, vol. 35, no. 22, pp. 4766–4774, 1994.
- [148] C. Griswold, V. M. Cross, L. Kjerengtroen, and J. J. Kellar, "Interphase variation in silane-treated glass-fiber-reinforced epoxy composites," *Journal of Adhesion Science and Technology*, vol. 19, no. 3–5, pp. 279–290, 2005.
- [149] D. Olmos and J. Gonzalez-Benito, "Composites formed by glass fibers and PS-modified epoxy matrix. Influence of the glass fibers surface on the morphologies and mechanical properties of the interphases generated," *Polymer Composites*, vol. 31, no. 6, pp. 946–955, 2010.
- [150] Y. Joliff, W. Rekik, L. Belec, and J. F. Chailan, "Study of the moisture / stress effects on glass fibre / epoxy composite and the impact of the interphase area," *Composite Structures*,

vol. 108, pp. 876–885, 2014.

[151] Y. Joliff, L. Belec, M. B. Heman, and J. F. Chailan, “Experimental , analytical and numerical study of water diffusion in unidirectional composite materials – Interphase impact,” *Computational Materials Science*, vol. 64, pp. 141–145, 2012.

[152] I. B. C. M. Rocha, S. Raijmaekers, F. P. Van Der Meer, R. P. L. Nijssen, H. R. Fischer, and L. J. Sluys, “Combined experimental / numerical investigation of directional moisture diffusion in glass / epoxy composites,” *Composites Science and Technology*, vol. 151, pp. 16–24, 2017.

[153] G. C. Davies and D. M. Bruce, “A Stress Analysis Model for Composite Coaxial Cylinders,” *Journal of Materials Science*, no. 32, pp. 5425–37, 1997.

[154] J. Gassan, A. Chate, and J. K. Bledzki, “Calculation of elastic properties of natural fibers,” *Journal of Materials Science*, no. 36, pp. 3715–20, 2001.

[155] R. M. V. G. K. Rao and N. Balasubramanian, “Moisture Absorption Phenomenon in Permeable Fiber Polymer Composites,” vol. 26, pp. 4069–4079, 1981.

[156] R. M. V. G. K. Rao, M. Chanda, and N. Balasubramanian, “A Fickian Diffusion Model for Permeable Fibre Polymer Composites,” *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 2, pp. 289–299, 1983.

[157] D. Gueribiz and H. Bourenane, “Diffusion Modelling of Composite with Permeable Fiber,” in *Applied Mechanics, Behavior of Materials, and Engineering Systems*, Springer International Publishing, 2017, pp. 311–321.

[158] D. Liu, Z. Zhuang, and S. Lyu, “Modeling of Moisture Diffusion in Permeable Fiber-Reinforced Polymer Composites Using Heterogeneous Hybrid Moisture Element Method,” vol. 26, no. 2, pp. 111–136, 2011.

[159] C. Mattrand, A. Béakou, and K. Charlet, “Numerical modeling of the flax fiber morphology variability,” *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 63, pp. 10–20, 2014.

[160] G. Stefanou, A. Nouy, and A. Clement, “Identification of random shapes from images through polynomial chaos expansion of random level set functions,” *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, vol. 79, no. 2, pp. 127–155, 2009.

[161] J. Berthelot, *Mécanique des Matériaux et Structures Composites*. ISMANS, 2013.

[162] T. Cadu, M. Berges, O. Sicot, V. Person, B. Piezel, L. Van Schoors, V. Placet, S. Corn, R. Léger, L. Divet, P. Ienny, and S. Fontaine, “What are the key parameters to produce a high-grade bio-based composite? Application to flax/epoxy UD laminates produced by thermocompression,” *Composites Part B: Engineering*, vol. 150, pp. 36–46, 2018.

[163] J. Meredith, S. R. Coles, R. Powe, E. Collings, S. Cozien-Cazuc, B. Weager, J. Müssig, and K. Kirwan, “On the static and dynamic properties of flax and Cordenka epoxy composites,” *Composites Science and Technology*, vol. 80, pp. 31–38, 2013.

[164] L. Marrot, A. Bourmaud, P. Bono, and C. Baley, “Multi-scale study of the adhesion between flax fibers and biobased thermoset matrices,” *Materials and Design*, vol. 62, pp. 47–56, 2014.

[165] V. Placet, “Characterization of the thermo-mechanical behaviour of Hemp fibres intended for the manufacturing of high performance composites,” *Composites Part A: Applied*

Science and Manufacturing, no. 40(8), 2009.

[166] K. G. Satyanarayana, G. G. C. Arizaga, and F. Wypych, "Biodegradable composites based on lignocellulosic fibers—An overview," *Progress in Polymer Science*, vol. 34, no. 9, pp. 982–1021, 2009.

[167] V. Placet, O. Cisse, and M. L. Boubakar, "Influence of environmental relative humidity on the tensile and rotational behaviour of hemp fibres," *Journal of Materials Science*, vol. 47, no. 7, pp. 3435–3446, 2012.

[168] V. Placet, O. Cissé, and M. L. Boubakar, "Nonlinear tensile behaviour of elementary hemp fibres. Part I: Investigation of the possible origins using repeated progressive loading with in situ microscopic observations," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 56, pp. 319–327, 2014.

[169] F. Trivaudey, V. Placet, V. Guicheret-Retel, and M. L. Boubakar, "Nonlinear tensile behaviour of elementary hemp fibres. Part II: Modelling using an anisotropic viscoelastic constitutive law in a material rotating frame," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 68, pp. 346–355, 2015.

[170] D. U. Shah, "Damage in biocomposites: Stiffness evolution of aligned plant fibre composites during monotonic and cyclic fatigue loading," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 83, pp. 160–168, 2016.

[171] S. Liang, "Étude de comportement en fatigue des composites renforcés par fibres végétales. Prise en compte de la variabilité des propriétés," 2012.

Titre : Mécanismes de dégradation sous sollicitations hydrothermomécaniques de biocomposites et renforts en fibres végétales : application au développement de mobiliers urbains ultralégers et mobiles

Mots clés : fibres de lin ; vieillissement ; fatigue ; modélisation

Résumé : Avec les préoccupations environnementales actuelles, la recherche se tourne vers des solutions alternatives à l'utilisation de fibres synthétiques. Les fibres végétales apparaissent comme de bonnes candidates, avec de bonnes propriétés spécifiques. Cependant, leur faible durabilité constitue une problématique majeure, notamment lorsque les composites sont soumis à des sollicitations hydro(hygro)thermiques. L'objectif de cette thèse est donc d'analyser et de comprendre les mécanismes de dégradation au cours de sollicitations hydrothermomécaniques, afin de réaliser un modèle prédictif de la durabilité de ces composites. Pour cela, le procédé de fabrication a été étudié et optimisé afin d'obtenir des composites robustes et répétables. Deux matériaux ont ainsi été fabriqués, différenciés par leurs taux volumiques de fibres, de 37.7 % et 51.1 %. Des campagnes expérimentales avaient pour but la caractérisation du comportement mécanique des matériaux sous différentes sollicitations. Un vieillissement hydrothermique a été étudié via des essais sous chargement monotone et des essais sous chargement cyclique (fatigue) en immersion *in situ*. Aussi, un vieillissement hygrothermique cyclique a été étudié afin de se rapprocher des conditions de service visées. Ces différentes campagnes expérimentales ont mis en évidence le fait que les composites étudiés présentent une forte chute de propriétés mécaniques en fonction du vieillissement, avec une influence finalement peu significative du taux volumique de fibres sur les propriétés après vieillissement, ce qui permet de questionner l'utilité industrielle d'atteindre ces taux volumiques de fibres.

Les propriétés mécaniques élastiques sous chargement monotone après des cycles de sollicitations hygrothermiques sont stables après le premier cycle, ce qui peut être rassurant pour une utilisation de ces matériaux. En revanche, des endommagements semblent s'accumuler jusqu'à environ 4 cycles avant de se stabiliser. Les résultats en fatigue montrent également que la saturation peut améliorer la résistance en fatigue en dessous d'une certaine contrainte maximale appliquée, ce qui est particulièrement intéressant pour l'utilisation industrielle visée. Un modèle a pu être implémenté, intégrant l'évolution des propriétés mécaniques au cours de la diffusion, étudiée sur une surface. Ce modèle a permis non seulement de montrer que le matériau est globalement en compression, ce qui est cohérent avec le gonflement contraint des fibres dans la résine, notamment, mais également de mettre en évidence des développements qui seraient nécessaires afin d'aboutir à un modèle prédictif robuste, dont notamment des couplages forts en intégrant une modification de la diffusion en fonction de l'état de contraintes et de déformations des constituants. De nombreuses perspectives ont été discutées, notamment sur des campagnes expérimentales lors de sollicitations mécaniques multiaxiales ou avec des modes de rupture différents (choc, fluage). De plus, le modèle prédictif n'est pas encore atteint et des développements nécessaires ont été identifiés.

Title : Degradation mechanisms under hydro-thermo-mechanical loads of natural fibers-reinforced biocomposites : application to the development of lightweight and movable urban furnitures

Keywords : flax fibres ; ageing ; fatigue ; modelisation

Abstract : With the current environmental concerns, research turns to alternative solutions to synthetic fibers. Vegetal fibers appear as good candidates, with good mechanical properties. However, their low durability is a major issue, especially when the composites are exposed to hydro(hygro)thermal loadings. The purpose of this thesis is to analyze and understand the degradation mechanisms when hydro-thermo-mechanical loadings are applied, in order to implement a predictive modeling of the composite durability. The manufacturing process was studied and optimized to produce reproducible and strong composites. Two materials were produced. Their only difference is their volumetric fiber contents (37.7 % and 51.1 %). Experimental campaigns were led to characterize the composite mechanical behavior under different loadings. A hydrothermal ageing was studied through monotonic mechanical testing and cyclic mechanical testing (fatigue) with *in situ* immersion. A hydrothermal ageing was also studied in order to be closer to the aimed service conditions. These different test campaigns showed an important loss of mechanical properties with the ageing processes. The volumetric fiber contents also showed almost no difference after the hydrothermal ageing. The industrial use of a high fiber content can then be questioned.

After the first hygrothermal cycle, the composite mechanical elastic properties were found constant, which is reassuring for an industrial use. However, damages accumulated throughout the first 4 cycles before stabilizing. Fatigue results showed that the saturation can enhance the fatigue resistance below a certain maximal loading, which is very interesting for the aimed industrial use. A surfacic numeric modelisation was implemented with the evolution of the mechanical properties throughout the diffusion process. This modelisation showed that the composite is mostly in compression, which is expected from the constrained swelling of the fibers within the resin, but also showed some development ideas which would be necessary to achieve an accurate predictive modelisation. Among these ideas, strong coupling between the diffusion process and the internal strains/stresses of the components. Numerous perspectives were discussed. Multiaxial loadings or breakage mode with impact or creep tests were mentioned. Moreover, the predictive modelisation that was aimed was not achieved yet, but amelioration axes were identified.